

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

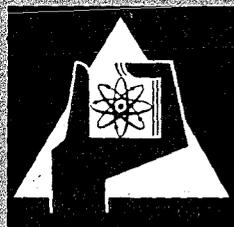
Oktober 1971

KFK 1400
EUR 4577d

Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Schneller Brüter

BRENNSTABMODELLTHEORIE
Modelle und Materialdaten

zusammengestellt von
H. Kämpf, H. Elbel, K. Kummerer



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

Oktober 1971

KFK 1400
EUR 4577 d

Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Schneller Brüter

B R E N N S T A B M O D E L L T H E O R I E
Modelle und Materialdaten

zusammengestellt von
H. Kämpf, H. Elbel, K. Kummerer

mit Beiträgen von

H.U. Borgstedt	K. Kummerer
D. Brucklacher	K. Laßmann****
F. Caligara*	Hj. Matzke*
K.D. Closs	G. Ondracek
F. Depisch**	C. Ronchi*
K. Ehrlich	H.E. Schmidt*
H. Elbel	B. Schulz
R. Godesar***	D. Vollath
O. Götzmann	Ch. Wassilew
G. Heß	J. Wordsworth***
H. Hoffmann	H. Zimmermann
H. Kämpf	

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

-
- * Europäisches Institut für Transurane
 - ** delegiert von AEG-Telefunken Großwelzheim
 - *** INTERATOM Bensberg
 - **** Institut für Reaktortechnik, TH Darmstadt

KURZFASSUNG

Dieser Bericht setzt sich aus 32 Einzelbeiträgen verschiedener Autoren zusammen. Die einleitende Diskussion der Aufgaben und Zielsetzung modelltheoretischer Arbeiten führt zur Behandlung einer größeren Anzahl modelltheoretischer Rechenprogramme, die in ihren wesentlichen Zügen dargestellt werden. Der zweite Abschnitt befaßt sich mit den Materialdaten von Brennstoff und Hülle sowie insbesondere mit deren physikalischen und mathematischen Aufbereitung für Zwecke der Brennstab-Modelltheorie.

ABSTRACT

This report comprises 32 single contributions of different authors. The discussion of the objectives of fuel pin modelling is followed by the presentation of a large number of existing computer codes in some details. The second part deals with materials data of fuel and cladding and especially with their evaluation and mathematical preparation for modelling purposes.

It is a well-known fact that the world is a vast and diverse place, with many different cultures and traditions. In the past, people from different parts of the world often did not know each other, and they lived in isolation. However, as the world has become more connected, people from different cultures have begun to interact and learn from each other. This has led to a greater understanding and appreciation of the world's diversity.

One of the most important aspects of this global interaction is the exchange of ideas and knowledge. People from different cultures bring their own unique perspectives and experiences to the table, which can help us to better understand the world and ourselves. This exchange is essential for the progress of humanity, as it allows us to learn from each other and to work together to solve the world's problems.

VORBEMERKUNG

Im Jahre 1970 studierte im Kernforschungszentrum ein "Arbeitskreis für Brennstab-Modelltheorie" den Stand und die Möglichkeiten der Weiterführung der modelltheoretischen Forschung. Insbesondere sollte auch die Verbindung der theoretischen Bemühungen zur experimentellen Materialforschung hergestellt werden. Das bedeutet einerseits, daß die vorhandenen Materialdaten und die festkörperphysikalischen Modellvorstellungen nutzbar gemacht werden sollen für die Aufstellung von Rechenprogrammen. Andererseits soll die Materialforschung unmittelbare Arbeitsansätze für "Modellexperimente" und für deren Auswertung bekommen.

Die Referate und Diskussionen des Arbeitskreises sollten eine möglichst umfassende Darstellung des gegenwärtigen Kenntnis- und Erfahrungsstandes bringen. Dies ist weitgehend, aber sicherlich nicht vollständig gelungen. Bei der Behandlung der verschiedenen Rechenprogramme mußte eine Auswahl getroffen werden, die nicht frei von einer gewissen Willkür ist. Die Materialphänomene wurden möglichst vollständig erfaßt.

In diesem KFK-Bericht ist das ganze im genannten Arbeitskreis besprochene Wissensgut in Form von 32 Einzelbeiträgen zusammengestellt. Jeder Beitrag ist sachlich in sich abgeschlossen und geht auf ein Referat zurück, das schriftlich ausgearbeitet und teilweise ergänzt wurde. Die Reinschrift der meisten Manuskripte sowie die redaktionelle Fertigstellung des ganzen Berichtes besorgte Frau B. Hauth. Ihr und den Autoren der Beiträge sei für die gute Zusammenarbeit sehr gedankt.

4. Oktober 1971

H. Kämpf, H. Elbel, K. Kummerer

VERZEICHNIS DER BEITRÄGE

Seite

Einleitung

- I. Charakterisierung der Brennstabmodelltheorie
H. Kämpf und K. Kummerer 1

Brennstab-Modelle und Rechenprogramme

Auslegung keramischer Brennstäbe

- II. Rechenprogramm SATURN 0
H. Kämpf 5
- III. Rechenprogramm BRAV
F. Depisch 11
- IV. Rechenprogramm FTB-4
J. Wordsworth 19
- V. Rechenprogramm FIGRO
F. Depisch und H. Elbel 25
- VI. Rechenprogramm COMETHE II C
R. Godesar 31
- VII. Rechenprogramm SATURN 1
H. Kämpf 39
- VIII. Rechenprogramme LIFE und ISUNE 1
F. Depisch und H. Elbel 53
- IX. Rechenprogramm CYGRO II
H. Kämpf 59
- X. Rechenprogramm CYGRO III
F. Depisch 67

Hüllrohrauslegung

- XI. Die Rechenprogramme CANNING und CRASH
K.D. Closs 75
- XII. Rechenprogramm SPAR
K. Laßmann 81
- XIII. Zum Kriechbeulverhalten von Brennstabhüllrohren
unter Außendruck
K. Laßmann 87

<u>Spezielle Rechenprogramme</u>		Seite
XIV.	Rechenprogramme zur Berechnung der Temperaturverteilung und der Brennstoffverdichtung F. Caligara	103
XV.	Rechenprogramm BEMØD H. Elbel	109
 <u>Materialdaten und festkörperphysikalische Modelle</u> =====		
<u>Blasen- und Porenverhalten im Brennstoff</u>		
XVI.	Schwellen durch feste Spaltprodukte H. Zimmermann	115
XVII.	Spaltgasverhalten in theoretisch dichtem Brennstoff Hj. Matzke und C. Ronchi	127
XVIII.	Spaltgasverhalten in porösem Brennstoff H. Zimmermann	145
XIX.	Wanderung der Herstellungsporen H. Hoffmann	161
 <u>Mechanische Eigenschaften von Brennstoffen</u>		
XX.	Kriechverhalten von keramischen Kernbrennstoffen unter Neutronenbestrahlung bei Temperaturen unterhalb 1200 °C D. Brucklacher	177
XXI.	Mechanische Eigenschaften unbestrahlter oxidischer Brennstoffe D. Vollath	191
 <u>Thermische Eigenschaften</u>		
XXII.	Experimentelle Befunde zum Wärmeübergang zwischen Brennstoff und Hülle H.E. Schmidt	199
XXIII.	Geometrische Erfassung der Oberflächenprofile und Modelle zum Wärmedurchgang durch den Kontakt Brennstoff-Hülle R. Godesar	219
XXIV.	Die Wärmeleitfähigkeit unbestrahlter keramischer Kernbrennstoffe H.E. Schmidt	227
XXV.	Zur Abbrandabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von UO ₂ und (U,Pu)O ₂ B. Schulz	247

	Seite
XXVI. Thermische Ausdehnung oxidischer Brennstoffe G. Ondracek und H. Kämpf	253

Mechanische Eigenschaften von Hüllmaterialien

XXVII. Kriechverhalten von Hüllmaterialien für schnelle Na-gekühlte Reaktoren K.D. Closs	263
XXVIII. Porenbildung in Hüllmaterialien K. Ehrlich	283
XXIX. Einfluß der Hochtemperaturversprödung auf das Zeitstand- und Kriechverhalten metallischer Werkstoffe Ch. Wassilew	289
XXX. Kurzzeiteigenschaften von austenitischen Stählen für natriumgekühlte schnelle Brüter G. Heß	299

Innere und äußere Korrosion

XXXI. Zur Verträglichkeit keramischer Brennstoffe mit metallischen Hüllmaterialien O. Götzmann	319
XXXII. Natrium-Korrosion von Hüllmaterialien H.U. Borgstedt	333

I. Charakterisierung der Brennstabmodelltheorie

von

H. Kämpf u. K. Kummerer

Inhalt:

1. Die modelltheoretischen Parameter
2. Ziele der Brennstabmodelltheorie
3. Anwendungsbereiche der Brennstabmodelltheorie

1. Die modelltheoretischen Parameter

In einer modelltheoretischen Behandlung der Brennstabauslegung und des Brennstabverhaltens kommen viele Parameter vor, die in komplexer Weise das Brennstabverhalten beeinflussen. Um zu einer Ordnung für die Einflußgrößen zu kommen, werden folgende 4 Gruppen von Parametern gebildet:

Brennstabauslegungsgrößen A

wie

Materialarten

Brennstoffdichte

Innere Geometrie

Äußere Geometrie

Betriebsbedingungen B

wie

Stableistung

Hüllaußentemperatur

Außendruck

Neutronenfluß

Materialphänomene von

Brennstoff und Hülle C

wie

Mechanische Eigenschaften

Wärmeleitfähigkeit

Wärmeübergang Brennstoff-Hülle

Thermische Ausdehnung

Schwellen

Spaltgasfreisetzung

Porenwanderung

Korrosion

Beanspruchungen D

wie

Temperaturverteilung

Spannungen

Spaltgasdruck

Verformungen

Materialverteilung

Korrosionsbeträge

Diese Darstellung kann die Gruppierung nur umreißen. Viele der angegebenen Größen können in Wirklichkeit nur durch mehrere Komponenten eindeutig beschrieben werden.

Außer diesen technischen Größen können auch noch ökonomische Parameter bedeutsam sein, z.B. die spezifische Brennstoffbelastung und die Fabrikationskosten. Wiewohl diese ökonomischen Parameter in enger Wechselwirkung gerade mit den Betriebsbedingungen und mit der Brennstabauslegung stehen, sollen sie hier nicht weiter betrachtet werden.

2. Ziele der Brennstabmodelltheorie

Die Brennstabmodelltheorie verfolgt als Hauptziel die Auslegung A, die Betriebsbedingungen B und die Materialphänomene C zu verknüpfen und daraus als Ergebnis die Beanspruchungsgrößen D zu bestimmen. Diese Hauptaufgabe läßt sich formal durch folgende funktionale Abhängigkeit angeben:

$$D = f (A, B, C)$$

In diesem allgemeinen Zusammenhang sind viele Gleichungen, Modelle und Vorstellungen verknüpft. Die modelltheoretischen Aktivitäten bestehen einerseits darin, die Modelle und Vorstellungen selbst zu verbessern, andererseits in immer umfassenderer Weise zu verknüpfen.

Eine modelltheoretische Berechnung des Brennstabverhaltens liefert somit die Beanspruchungsgrößen. Für diese Größen sind Kriterien zu formulieren, die es ermöglichen, die Funktionsfähigkeit des Brennstabes zu beurteilen.

Die Entwicklung der Brennstabtheorie erfolgt selbstverständlich schrittweise in Richtung allgemeinerer und detaillierterer Versionen. Jede dieser Versionen ist letztlich durch bestimmte Beschränkungen charakterisiert. Diese Beschränkungen sind geometrischer Art, sie beziehen sich auf die Erfassung des Zeitverhaltens, auf die Zahl der integrierten Phänomene und Einflußgrößen, auf die Entwicklung von Modellen selbst usw. Auf diese Weise sind im Prinzip Klassifizierungen der unterschiedlichen Versionen möglich.

3. Anwendungsbereiche der Brennstabmodelltheorie

Die so definierte Brennstabtheorie hat u.a. folgende Aufgaben zu lösen:

- a) Bereitstellung der theoretischen Hilfsmittel für die quantitative Auswertung der Bestrahlungsexperimente.
- b) Berechnung der Größen, die für den ingenieurmäßigen Entwurf von Brennstäben notwendig sind.
- c) Bereitstellung von Prioritätskriterien für die Untersuchung von Einzeleffekten.

- d) Bestimmung der Faktoren, die die Lebensdauer und die maximale Leistung begrenzen.

- e) Stimulierung gezielter experimenteller Versuche unter definierten Bedingungen.

Selbstverständlich erfolgt die Anwendung der Brennstabtheorie auf die aufgeführten Aufgabenstellungen in iterativer Rückkopplung.

II. Rechenprogramm SATURN 0

von

H. Kämpf

Inhalt:

1. Einleitung
2. Abbrand-Modell
3. Berechnung der Temperaturverteilung
4. Schlußbemerkung

1. Einleitung

Umfassende Bearbeitungen der GfK auf dem Gebiet der Brennstab-Modelltheorie, die ihren Niederschlag in entsprechenden Rechenprogrammen finden, werden mit der Abkürzung SATURN bezeichnet.

Schwellen Abbrand Temperatur unter Reaktorbedingungen
SATURN bzw.

Swell and Thermal Analysis under Reactor Conditions.

Das Rechenprogramm SATURN 0 berechnet die maximalen Standzeiten innerhalb eines Brennstabes als Funktion der axialen Position und innerhalb eines Cores als Funktion der radialen Coreposition auf der Basis folgender Modelle hinsichtlich der Bestimmung des maximalen Abbrandes und der radialen Temperaturverteilung [1, 2].

2. Abbrand-Modell

Das sehr komplexe Problem der quantitativen Fassung des maximalen Abbrandes wurde durch eine Arbeitshypothese sehr stark vereinfacht, die durch folgende Annahmen charakterisiert ist:

- a) Der Brennstoff wird in die folgenden Temperaturzonen eingeteilt, der plastischen Zone für Temperaturen oberhalb 1700°C , der Kriechzone für Temperaturen zwischen 1700°C und 1300°C und der Tieftemperaturzone für Temperaturen unterhalb 1300°C . Diese Zonenaufteilung gründet sich auf Betrachtungen der Schliffbilder hinsichtlich unterschiedlicher Korn- und Porenstruktur und auf Ergebnisse von Bestrahlungsexperimenten hinsichtlich Schwellens und Gasfreisetzung. Die Temperaturgrenzen werden während des Abbrandes festgehalten.
- b) Der Brennstoff schwillt in jeder der 3 Brennstoffzonen gemäß homogener, abbrandunabhängiger Schwellraten. Dabei wird unter Schwellrate die auf Abbrand und theoretisch dichtes Volumen bezogene Volumenänderung verstanden.
- c) Das Schwellen kann einerseits in die Herstellungsporosität hinein erfolgen, andererseits kann es in das heiße Spaltvolumen und in axialer Richtung erfolgen. Dabei kann das heiße Spaltvolumen, d.h. das Spalt-

volumen, das nach erfolgter thermischer Ausdehnung vorliegt, an beliebigen Orten, d.h. in Rissen und Zentralkanälen lokalisiert sein.

- d) Während das Spaltvolumen und das axiale Ausdehnungsvolumen für das Schwellen voll verfügbar ist, kann das Porenvolumen in den 3 Zonen nur zu bestimmten Anteilen, den Verfügbarkeitsfaktoren, durch das Schwellen aufgefüllt werden. Diese Verfügbarkeitsfaktoren werden als homogen und abbrandunabhängig vorausgesetzt. Diese Formulierung schließt ein, daß herstellungsmäßig erzeugte bzw. durch Porenwanderung entstandene Zentralkanäle zusammen mit dem Porenvolumen der zugehörigen Brennstoffzone nach Maßgabe des betreffenden Verfügbarkeitsfaktors gefüllt werden können.
- e) Die Hülle verformt sich nicht.

Der maximale Abbrand ist erreicht, wenn das durch c), d) und e) postulierte Leervolumen durch das Schwellen des Brennstoffes aufgefüllt ist.

Die Bedingung e) ist im Grunde genommen keine Einschränkung, da die z.Zt. zulässigen Hüllverformungen um 0,2 % liegen, d.h. bei Auftreten größerer Hüllverformungen ist der maximale Abbrand erreicht.

Die mechanische Wechselwirkung des schwellenden Brennstoffes mit der Hülle ist implizit in den Verfügbarkeitsfaktoren und in dem axialen Ausdehnungsvolumen enthalten. Um dies bezüglich der Verfügbarkeitsfaktoren einzusehen, betrachten wir einen frei und homogen schwellenden porösen Ring. Bei diesem ohne äußeren und inneren Restraint schwellenden Ring vergrößert sich sowohl der Innen- als auch der Außenradius und zwar vergrößert sich der Außenradius stärker als der Innenradius, d.h. der Ring wird dickwandiger. Die Porosität, d.h. der relative Porenvolumenanteil bleibt in diesem homogen frei schwellenden Ring erhalten, die Porengrößen selbst nehmen entsprechend zu. D.h. nur bei Vorliegen von Restraints ist die Porosität des Brennstoffes nach Maßgabe seiner Kriechfähigkeit zugänglich. Insbesondere ist dies der Fall, wenn ein äußerer Restraint, der durch die Kriechfestigkeit und Geometrie der Hülle gegeben ist, vorliegt. Die Größe der Verfügbarkeitsfaktoren ist also u.a. bedingt durch Hüllrestraint und Kriecheigenschaften des Brennstoffes. Dabei können 2 Grenzfälle unterschieden werden:

- starre Hülle und endlich kriechfähiger Brennstoff,
- endlicher Hüllrestraint und sehr gute Kriechfähigkeit des Brennstoffs.

3. Berechnung der Temperaturverteilung

Die quantitative Auswertung des Abbrand-Modelles erfordert die Berechnung der Volumina der 3 Temperaturzonen und des heißen Spaltvolumens. Die Berechnung der dazu erforderlichen radialen Temperaturverteilung erfolgte unter folgenden Voraussetzungen:

- a) Für die Temperatur- und Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit wurden analytische Ausdrücke verwendet. Der Ausdruck für die Temperaturabhängigkeit wurde durch Mittelung bekannter Ergebnisse und Ausgleich durch den bekannten festkörperphysikalischen Ansatz erhalten. Die Porositätsabhängigkeit wurde durch eine von uns theoretisch gefundene Beziehung erfaßt.
- b) Die Wärmedurchgangszahl Brennstoff-Hülle wurde konstant vorausgesetzt.
- c) Die thermischen Auswirkungen der Wanderung der Herstellungsporosität im relativ heißen Brennstoffbereich für Temperaturen oberhalb ca. 1700°C , verbunden mit einer Zentralkanalbildung und einer entsprechenden Verdichtung dieser Zone, wurde quantitativ auf der Basis eines 2-Zonen-Porositäts-Modelles erfaßt [3]. Dabei wurde vorausgesetzt, daß die Porosität des heißen Bereiches bis auf eine Restporosität ins Zentrum wandert und zwar bezüglich der Schmierdichte. Weiterhin wurde angenommen, daß die im Schwellmodell auftretende plastische Zone identisch mit der ist, in der die Porenwanderung erfolgt. Während die Zonengrenze hinsichtlich der Porenwanderung relativ scharf definiert ist, ist die im Schwellmodell auftretende Grenztemperatur etwas willkürlich. Grundsätzlich können für die Behandlungen verschiedener Phänomene verschiedene Zonenaufteilungen sinnvoll sein.

Bei der Berechnung des heißen Spaltvolumens wurde zusätzlich angenommen:

- a) Die Porosität des Brennstoffes ändert sich nicht während der thermischen Ausdehnung.
- b) Der Brennstoff ist nach der thermischen Ausdehnung spannungsfrei; im plastischen Bereich haben sich die Spannungen abgebaut, im äußeren Bereich haben sie zur Ribildung geführt.

c) Die stationäre Temperaturverteilung stellt sich sofort ein.

Das heiße Spaltvolumen ist dann auch in Rissen lokalisiert.

4. Schlußbemerkung

Bezüglich der Ergebnisse der Coreanalyse und umfangreicher Parameterstudien muß auf die Veröffentlichungen [1, 2] verwiesen werden.

Literatur:

- [1] G. Karsten, H. Kämpf, A. Gerken "Theoretical and Computer Analysis on the Behaviour of Fast Reactor Fuel Pins and Related Parts of the Core under Operational Conditions", KFK 878-EUR 4158e (November 68)
- [2] H. Kämpf "Theoretische Aspekte bei der Schnellbrüter-Brennstabentwicklung" - Vortrag gehalten auf der Reaktortagung 1969 in Frankfurt,
- [3] H. Kämpf "Einfluß der inneren Geometrie auf die radiale Temperaturverteilung von Schnellbrüter-Brennelementen", KFK 751-EUR 3710d (Februar 1968)

III. Rechenprogramm BRAV

von
F. Depisch

Inhalt:

1. Einleitung
2. Eingabedaten
3. Berechnete Größen
 - 3.1 Radiales Temperaturprofil
 - 3.2 Maximal zulässige Stableistung
 - 3.3 Thermische Ausdehnung von Hülle und Brennstoff
 - 3.4 Schwellverhalten des Brennstoffes
 - 3.5 Schmelzverhalten des Brennstoffes
 - 3.6 Spaltgasdruckaufbau
 - 3.7 Kriechaufweitung des Hüllrohrs
 - 3.8 Elastische Spannungen im Hüllrohr
 - 3.9 Zentralkanal durch Porenwanderung

1. Einleitung

Die Auslegung von Brennstäben für schnelle Reaktoren umfaßt zur Zeit eine Anzahl von Varianten. Es werden verschiedene Hüllmaterialien, Brennstoffe und geschlossene bzw. entlüftete Stabausführungen in Betracht gezogen. In BRAV [1] (Brennstoff - Hüllrohr - Abbrand - Verhalten) wurde versucht, alle bekannten Varianten zu berücksichtigen. Dies bedingte eine hohe Zahl von Eingabedaten für das Programm und einen Verzicht auf komplizierte Rechenmodelle. BRAV liefert eine Aussage über das Verhalten des Brennstabes in Abhängigkeit von der Standzeit und gestattet es, verschiedene Kenngrößen, wie maximale Stableistung und erforderliches Plenum zu optimieren.

2. Eingabedaten

Folgende Eingabedaten zur Durchführung der im nächsten Kapitel beschriebenen Rechenoperationen sind für BRAV erforderlich.

Für das Hüllrohr sind folgende Werte vorzugeben: Geometrie, Wärmeleitfähigkeit, thermische Ausdehnung, Elastizitätsmodul, Querkontraktionszahl, Nortonsche Kriechparameter n und k und die Korrosionsrate. Die Materialdaten können temperaturabhängig eingegeben werden. Die maximal zulässige Wärmespannung und Kriechaufweitung kann ebenfalls vorgegeben werden.

Folgende Daten des Brennstoffes sind erforderlich: Geometrie einschließlich von zentralen Hohlräumen und Einsenkungen, Wärmeleitfähigkeit, thermische Ausdehnung, Brennstoffdichte, Schmierdichte, Schmelztemperatur und Grenztemperaturen für die Nachsinterung. Für das Brennstoffschwellen benötigt BRAV die Angabe der Schwellraten in Abhängigkeit von der Temperatur. Eine Verfügbarkeit des vorhandenen Freivolumens zur Aufnahme des Schwellvolumens muß ebenfalls vorgegeben werden.

3. Berechnete Größen

3.1 Radiales Temperaturprofil

BRAV berechnet das radiale Temperaturprofil im Stab ausgehend von der Hülloberflächentemperatur. Der Wärmeübergang im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle wird durch einen Eingabewert spezifiziert. Das Temperaturprofil

im Brennstoff wird schrittweise von außen nach innen berechnet, wobei BRAV eine radiale Abhängigkeit der Leistungsverteilung berücksichtigt. Die Leistungsverteilung kann in diskreten Werten oder durch Vorgabe der Koeffizienten einer Funktion 3. Grades im Radius erfolgen. Dem Vorhandensein eines zentralen Loches im Brennstoff kann ebenfalls Rechnung getragen werden.

3.2 Maximal zulässige Stableistung

Bei Vorgabe der maximalen Brennstofftemperatur errechnet BRAV die zugehörige Stableistung. Bei oxidischem Brennstoff wird als Maximaltemperatur z.B. die Schmelztemperatur, bei karbidischem oder nitridischem Brennstoff eine Temperatur, bei der die Stabilität des Brennstoffes gesichert ist, vorgegeben.

3.3 Thermische Ausdehnung von Hülle und Brennstoff

Mit den eingegebenen Materialdaten berechnet BRAV die thermische Ausdehnung der Hülle. Als Temperatur des Werkstoffes wird dabei die errechnete mittlere Hülltemperatur verwendet. Für die thermische Ausdehnung des Brennstoffes sind in BRAV zwei Modelle vorhanden. Das eine Modell wird für niedrige Endabbrände verwendet. Es berücksichtigt, daß Brennstoffzonen oberhalb einer Grenztemperatur erst nach Auffüllung vorhandener Poren im Brennstoff zur thermischen Aufweitung beitragen. Das zweite Modell wird für hohe Endabbrände angewandt: Die thermische Ausdehnung ergibt sich aus der Summe aller Dehnungen der 100 Teilsylinder, in die der Brennstoff aufgeteilt wird.

3.4 Schwellverhalten des Brennstoffes

Im BRAV können 2 verschiedene Arten von Schwellvorgängen des Brennstoffes betrachtet werden. Kompensierbares Schwellen führt erst nach Auffüllung vorhandenen Porenvolumens zu einer Aufweitung des Brennstoffes. Nicht kompensierbares Schwellen ergibt in Abhängigkeit vom Endabbrand direkt eine Volumenvergrößerung des Brennstoffes. BRAV unterscheidet zwischen Schwellraten aufgrund von festen und gasförmigen Spaltprodukten. Bei der letzteren wird die eingegebene Spaltgasfreisetzung in Abhängigkeit von der Temperatur des Brennstoffes berücksichtigt. Für oxidischen Brennstoff kann BRAV die Schwellrate infolge

gasförmiger Spaltprodukte mit Hilfe des sogenannten LSBR-Modells [2] berechnen. Das kompensierbare Schwellen im Brennstoff wird durch die Eingabe einer Temperaturgrenze in zwei Bereiche aufgeteilt. Unterhalb der Temperaturgrenze führt das kompensierbare Schwellen nach Auffüllung des Porenvolumens zu einer Aufweitung des Brennstoffzylinders. Oberhalb der Temperaturgrenze schwillt der Brennstoff nach innen und verkleinert somit einen vorhandenen Zentralkanal. Der Brennstoff kann in bis zu 10 verschiedene radiale Temperaturzonen eingeteilt werden, wobei BRAV das Schwellverhalten in diesen Zonen einzeln berechnet. Eine radiale Abhängigkeit des Abbrandes als Folge eines inhomogenen Leistungsprofils kann in BRAV durch Eingabe von diskreten Abbrandwerten berücksichtigt werden.

3.5 Schmelzverhalten des Brennstoffes

BRAV untersucht, ob im Brennstoff bei einer vorgegebenen Stableistung die Schmelztemperatur überschritten ist. Ist dies der Fall, so berechnet BRAV den Radius an dem die Schmelztemperatur erreicht ist und die Volumenvergrößerung des geschmolzenen Brennstoffes aufgrund des Phasenüberganges.

3.6 Spaltgasdruckaufbau

Mit der Annahme, daß bei 100 Spaltungen im Brennstoff 27 Spaltgasatome entstehen und unter Verwendung des vorgegebenen Leistungs- und Abbrandprofils berechnet BRAV die pro Kubikzentimeter Brennstoff produzierte Spaltgasmenge unter Normalbedingungen. Durch Vorgabe der Freisetzungsrates des Spaltgases in Abhängigkeit von der Temperatur liefert BRAV die freigesetzte Spaltgasmenge unter Normalbedingungen. Man kann das Verhältnis von Brennstoffvolumen zu Gasplenumvolumen eingeben und erhält aus BRAV den zu Abbrandende erreichten Spaltgasdruck, wobei die Plenumtemperatur bekannt sein muß.

3.7 Kriechaufweitung des Hüllrohrs

BRAV berechnet die Kriechaufweitung des Hüllrohrs nach Norton infolge Spaltgasdruck und Brennstoffschwelldruck.

Es werden 3 Zeitabschnitte bei der Kriechaufweitung betrachtet. Der erste Abschnitt ist gekennzeichnet durch wachsenden Spaltgasdruck. Das Ende dieses Zeitabschnittes ist erreicht, wenn der Spalt zwischen Hüll-

rohr und Brennstoff geschlossen ist. Im zweiten Abschnitt herrscht ein zeitlich unabhängiger Brennstoffschwelldruck. In dieser Zeit schwillt der Brennstoff in vorhandenes Porenvolumen im Brennstoff. Wird im dritten Abschnitt der Spaltgasdruck größer als der konstante Brennstoffschwelldruck, so wirkt auf die Hülle der bis zum Ende wachsende Spaltgasdruck weiter. Bei Vorgabe eines Spaltgasdruckes berechnet BRAV die stattgefundene Kriechaufweitung des Hüllrohrs. Spezifiziert man eine zulässige Kriechaufweitung so erhält man aus BRAV den maximal zulässigen Spaltgasdruck. Mit diesem Spaltgasdruck und dem vorher erwähnten Plenum-zu-Brennstoffvolumenverhältnis kann das erforderliche Plenum angegeben werden.

Nach Auffüllung des Porenvolumens im Brennstoff und des Spaltes zwischen Hüllrohr und Brennstoff wird angenommen, daß der Brennstoffschwelldruck so groß wird, daß die Hülle die Brennstoffausdehnung nicht verhindern kann.

3.8 Elastische Spannungen im Hüllrohr

BRAV berechnet die elastischen thermischen Spannungen im Hüllrohr aufgrund der Temperaturdifferenz zwischen Innen- und Außenradius und vergleicht sie mit einem vorgegebenen Maximalwert. Bei Überschreiten dieses Maximalwertes liefert BRAV eine Fehlermeldung. Die zu Abbrandende auftretende Spannung im Hüllrohr infolge Spaltgasdruckes wird von BRAV ausgedruckt. Die Abtragung des Hüllrohres durch Korrosion wird berücksichtigt.

3.9 Zentralkanal durch Porenwanderung

Bei Vorgabe einer Grenztemperatur oberhalb der Porenwanderung im Brennstoff, berechnet BRAV den entstehenden Zentralkanal. Ein vorgegebenes zentrales Loch wird dabei berücksichtigt. Bei Vorgabe des Endabbrandes erhält man aus BRAV die Verkleinerung des Zentralkanals durch Schwellen und Schmelzen des Brennstoffes.

Literatur

- [1] F. Depisch, H.G. Sälzer, "BRAV ein Rechenprogramm zur Auslegung von Brennstäben für schnelle Reaktoren", ATW 9/10 (1970), S. 439
- [2] B. Lustmann, "Fuel Clad Design Basis for Thermal Reactors", WAPD-T-1939 (Mai 1966)

B R A V - Flußdiagramm

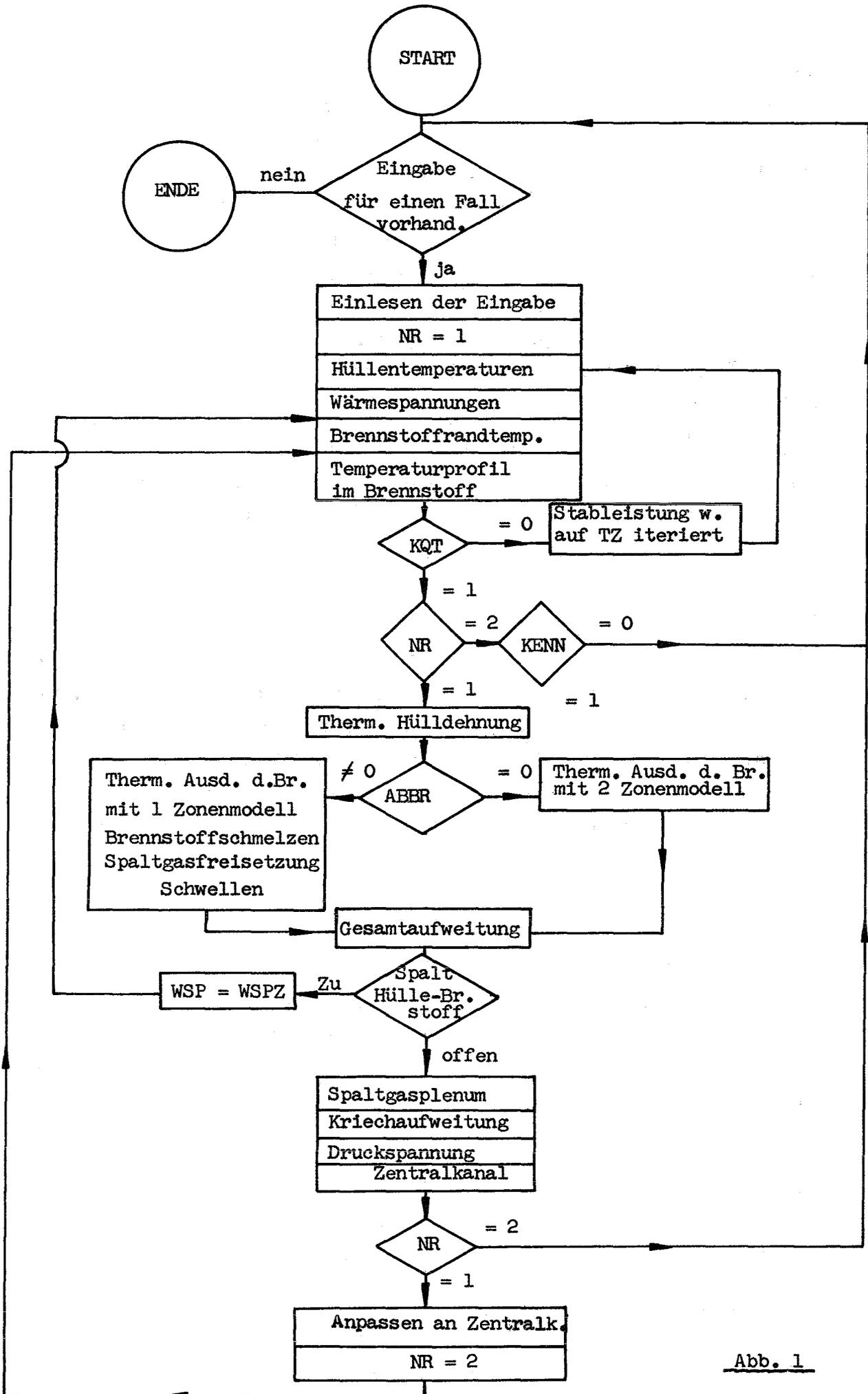


Abb. 1

Erklärung der Steuergrößen im Flußdiagramm von BRAV

NR = 1	Die Korrektur des Temperaturprofils auf den Zentralkanaleffekt wurde noch nicht durchgeführt
NR = 2	Die obige Korrektur wurde durchgeführt
KQT = 0	Die lineare Stabileistung soll auf eine vorgegebene Zentraltemperatur ausiteriert werden
KQT = 1	Obige Iteration entfällt
KENN = 1	Thermische Ausdehnung und Schwellen des Brennstoffs sollen mit dem korrigierten Temperaturprofil (Zentral-Kanal) neu berechnet werden
ABER = 0	Keine Abbrandrechnung
ABER = 0	Abbrandrechnung
WSP = WSPZ	Bei geschlossenem Spalt zwischen Hüllrohr und Brennstoff wird mit einer neuen Wärmeübergangszahl WSPZ das Temperaturprofil neu errechnet.

10

11

12

13

14

15

16

17

18

19

20

21

22

23

24

25

26

27

28

29

30

31

32

33

34

35

36

37

38

39

40

41

42

43

44

45

46

47

48

49

50

51

52

53

54

55

56

57

58

59

60

61

62

63

64

65

66

67

68

69

70

71

72

73

74

75

76

77

78

79

80

81

82

83

84

85

86

87

88

89

90

91

92

93

94

95

96

97

IV. Rechenprogramm FTB-4

von

J. Wordsworth

1. Einleitung
2. Berechnete Größen
 - 2.1 Temperaturverteilung und Verdichtung des Brennstoffes
 - 2.2 Brennstoff-Ausdehnung
 - 2.3 Temperatur und Verformung der Hülle
3. Erforderliche Materialdaten
 - 3.1 Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes und des Spaltgasgemisches
 - 3.2 Linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient des Brennstoffes und der Hülle
 - 3.3 Elastizitätsmodul des Brennstoffes
 - 3.4 Kriechgeschwindigkeit des Brennstoffes und der Hülle
 - 3.5 Korrosionsgeschwindigkeit der Hülle im Kühlmittel

1. Einleitung

Das Rechenprogramm FTB-4 (Fuel Thermal Behaviour, Version 4) [1] liefert mit wenig Aufwand einen guten Überblick über das Verhalten eines Brennstabes in einem schnellen Reaktor. Einerseits wurden in FTB-4 zahlreiche Vereinfachungen vorgenommen, andererseits wurden teilweise Detaileffekte berücksichtigt.

Im Rahmen eines Rechenprogrammaustausches mit Atomics International wurde FTB-4 in das INTERATOM Brennstab-Programmsystem aufgenommen. Das Programm wurde für die CDC-6400 umgestellt; etwa 66000 Zentralspeicher-Einheiten werden beansprucht, die Rechenzeit für einen typischen Brennstab beträgt ca. 2 Minuten.

Der Brennstoff wird axial in maximal 10 Abschnitte gleicher Länge aufgeteilt. Der axiale Verlauf der Stableistung, die zeitlich konstant ist, wird durch einen abgeschnittenen Cosinus dargestellt. Maximal 100 gleichmäßig verteilte Abbrandstützpunkte können berücksichtigt werden. Die übliche Wärmebilanz im Kühlmittel liefert für jeden axialen Abschnitt die mittlere Kühlmitteltemperatur und anschließend die Oberflächentemperatur auf der Hüllaußenseite.

2. Berechnete Größen

2.1 Temperaturverteilung und Verdichtung des Brennstoffes

Bei dem Wärmeübergang im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle wird Wärmeleitung im Gas vorausgesetzt. Strahlung und bei Kontakt Festkörper-Wärmeleitung werden nicht berücksichtigt. Die Wärmeleitfähigkeit des Gases wird auf die arithmetisch mittlere Spalttemperatur bezogen.

FTB-4 gründet sich auf ein 3-Zonen-Brennstoffmodell mit spontan sich einstellender Verdichtung. Die Hochtemperaturzone I weist Stengelkristall-Bildung auf, in der mittleren Zone II tritt globulares ("equiaxed") Kornwachstum auf, während die Tieftemperaturzone III keine Gefügeänderungen zeigt. Die Temperaturgrenzen dieser Zonen und die Dichten in den Zonen I und II nach erfolgter Porenwanderung sind Eingabedaten. In [1] werden diese Werte mit 1800°C bzw. 1400°C und 98 % th.D. bzw. 95 % th.D. für UO_2 angegeben.

Das Programm wurde für schnelle Reaktoren entwickelt, in deren Brennstäben nur geringfügige radiale Flußabsenkungen auftreten. Die Leistungsdichte ist daher in erster Näherung lediglich eine Funktion der Brennstoffdichte.

Eine Massenbilanz und die Lösung der radialen Wärmeleitungsgleichung liefern die Grenzradien der Zonen I, II und III sowie die Brennstoff-Zentraltemperatur für eine vorgegebene evtl. iterativ zu korrigierende Brennstoff-Ausdehnung.

2.2 Brennstoff-Ausdehnung

Die Ausdehnung des Brennstoffes wird durch die mechanischen Eigenschaften der Zone III maßgeblich beeinflusst. In FTB-4 sind zwei Modelle für diese Zone enthalten. Einerseits kann eine rißfreie Zone III angenommen werden, bei der der Brennstoff-Außenradius die Verformung des Brennstoffes bestimmt. Andererseits kann eine gerissene Zone III bzw. bei vibriertem Brennstoffpulver eine nicht gesinterte Zone III vorausgesetzt werden. In diesem Falle bestimmt der Grenzradius zwischen Zone II und III die Verformung. In jedem Falle wird die spannungsfreie thermische Ausdehnung sowie Festkörper- und Gas-schwellen bei der Bestimmung des formgebenden Radius berücksichtigt. Die Zonen I und II dehnen sich in Richtung Zentrum aus, solange bis ein durch Fertigung bzw. Porenwanderung entstandener Zentralkanal zugewachsen ist oder bis es zu einem Anliegen zwischen Brennstoff und Hülle kommt.

Bei zugewachsenem Zentralkanal läßt FTB-4 eine weitere Verdichtung des Brennstoffes in den Zonen I und II zu, notfalls bis zu 100 % theoretischer Dichte. Sollte diese zusätzliche Verdichtung für die Ausdehnungen der Zonen I und II nicht ausreichen, so erfolgt die Brennstoff-Ausdehnung nach außen.

Bei Kontakt Brennstoff-Hülle entsteht eine elastische Wechselwirkung. Der entstehende Festkörperdruck bewirkt ein Kriechen der Hülle nach außen und der Zone III nach innen, wobei die restliche Herstellungs-porosität allmählich aufgezehrt wird.

Das Festkörper-Schwellen, sowie das Gas-Schwellen und die Gas-Freisetzung werden nach Greenwood und Speight [2] bzw. Nichols [3] berechnet.

2.3 Temperatur und Verformung der Hülle

Die Oberflächentemperatur der Hüllinnenseite wird iterativ mit der bekannten Beziehung für ein dickwandiges Rohr berechnet. Für die thermische Ausdehnung, das Kriechen und die äußere Korrosion wird die arithmetisch mittlere Wandtemperatur zu Grunde gelegt. Die Hülle kriecht nach dem Nortonschen Kriechgesetz unter dem Gas- bzw. Festkörperdruck, wobei der größere von beiden bestimmend ist.

Bei der Berechnung der Hüllrohr-Spannungen infolge Gasdruckes wird die unterschiedliche Temperatur des Gases näherungsweise berücksichtigt. Für das Gas im Plenum wird die entsprechende mittlere Kühlmitteltemperatur zu Grunde gelegt. Für das Gas im oberen bzw. unteren Blanket wird die entsprechende Oberflächentemperatur der Hüllinnenseite eingesetzt. Das Gas im Brennstoff und im Spalt nimmt die mittlere Brennstofftemperatur an.

3. Erforderliche Materialdaten

3.1 Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes und des Spaltgasgemisches

- a) Für die Zonen I und II und die rißfreie Zone III:

Die Wärmeleitfähigkeit des 100 % dichten Brennstoffes setzt sich additiv aus einem Term für die Gitterleitfähigkeit und einem Term für die Strahlung im oberen Temperaturbereich zusammen. Die Porositätskorrektur erfolgt nach Biancheria [4].

- b) Für einvibriertes Pulver in Zone III:

Für die Wärmeleitfähigkeit eines vibrationsverdichteten Brennstoffes wird die Beziehung von Berg, Flinta und Seltorp [5] eingesetzt.

- c) Für die gerissene Zone III:

Mit Hilfe einfacher Modellvorstellungen wurde eine Gleichung für die Wärmeleitfähigkeit in einem durch thermische Spannungen gerissenen Brennstoff abgeleitet [1]. Die effektive Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes ist danach eine Funktion der Wärmeleitfähigkeit der festen Phase (vergl. a) bzw. b)), der Wärmeleitfähigkeit des Gases in den Spalten und der äquivalenten Porosität des homogen verteilten Spaltvolumens.

d) Für das Spaltgasgemisch:

Die Wärmeleitfähigkeit des Spaltgasgemisches wird nach Brokaw
[6] bestimmt.

3.2 Linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient des Brennstoffes und der Hülle

Der lineare Ausdehnungskoeffizient ist jeweils eine lineare Funktion der Temperatur.

3.3 Elastizitätsmodul des Brennstoffes

Der Elastizitätsmodul des 100 % dichten Brennstoffes ist eine lineare Funktion der Temperatur. Eine Porositätskorrektur erfolgt nach Biancheria [4].

3.4 Kriechgeschwindigkeit des Brennstoffes und der Hülle

Die Kriechgeschwindigkeit des Brennstoffes setzt sich additiv aus zwei Gliedern zusammen. Der erste Term entspricht einem Ansatz nach Norton, während das zweite Glied das strahlungsinduzierte Kriechen als lineare Funktion der Leistungsdichte wiedergibt.

Die Kriechgeschwindigkeit der Hülle wird nach Norton berechnet, d.h. primäres und tertiäres Kriechen werden nicht berücksichtigt.

3.5 Korrosionsgeschwindigkeit der Hülle im Kühlmittel

Die Korrosionsgeschwindigkeit der Hüllaußenseite ist abhängig von der Hülltemperatur, der Kühlmittelgeschwindigkeit und der Wärmestromdichte.

Literatur:

- [1] C.W. Sayles, "FTB-4. A Computer Code to Describe the Thermal and Burnup Behaviour of Ceramic Fuels in a Fast Reactor Environment", Atomics International, AI-68-TDR-101 (1968)
- [2] G.W. Greenwood, M.V. Speight, "An Analysis of the Diffusion of Fission Gas Bubbles and its Effect on the Behaviour of Reactor Fuels", Journal of Nuclear Materials, 10 (1963) 2, 140/144
- [3] F.A. Nichols, "Behaviour of Gaseous Fission Products in Oxide Fuel Elements", Bettis Atomic Power Laboratory, WAPD-TM-570 (1966)
- [4] A. Biancheria, "The Effect of Porosity on Thermal Conductivity of Ceramic Bodies", Transactions of the American Nuclear Society, 9 (1966), 1, 15
- [5] K. Berg, J.E. Flinta, L. Seltorp, "Thermal Conductivity of UO_2 ", Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 7 (1958), 691/696
- [6] R.S. Brokaw, "Estimating Thermal Conductivities for Non-Polar Gas Mixtures", Industrial and Engineering Chemistry, 47 (1955), 11, 2398/2400

V. Rechenprogramm FIGRO

von

F. Depisch u. H. Elbel

Inhalt:

1. Überblick
2. Schwellmodelle
3. Temperaturverteilung
4. Geometrie- und Porositätsänderung
durch Schwellen

1. Überblick

Das Rechenprogramm FIGRO [1] wurde im Hinblick auf eine Analyse des Brennstoffschwellens und der Berechnung der radialen Temperaturverteilung in einem zylindrischen Brennstab mit oxidischem Brennstoff entwickelt.

Der Brennstoff kann in Form von Hohl- oder Volltabletten vorliegen. Zur Verfeinerung der Berechnung kann wahlweise mit einer oder zwei radialen Zonen gerechnet werden.

Die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs wird als Funktion der Temperatur, des Abbrandes und der Porosität vorausgesetzt. Als Randbedingung zur Lösung der Wärmeleitungsgleichung kann entweder der Wärmestrom durch die Hülloberfläche oder die Temperatur am Innenradius des Brennstoffs angegeben werden. Bei Angabe der zweiten Randbedingung erfolgt eine Umrechnung auf die erste.

Das Schwellen des Brennstoffs wird als Funktion der Temperatur, des Abbrandes, der Spaltungsrate und des hydrostatischen Druckes vorausgesetzt.

Die wichtigsten Annahmen von FIGRO sind:

- a) Das Schwellen wird als unabhängig vom Betriebsablauf des Brennstabes angesehen. Es ist allein durch den erreichten Abbrandzustand des Brennstabes gegeben.
- b) Der Wärmedurchgang durch Zwischenschichten und den Spalt wird mit Hilfe von Wärmedurchgangskoeffizienten berechnet.
- c) Axialer Wärmetransport wird vernachlässigt.
- d) Dem Rechenverfahren wird Axialsymmetrie zugrundegelegt.
- e) Thermische Rißbildung im Brennstoff wird nicht betrachtet.

Das Rechenverfahren besteht im Kern aus einer Iterationsschleife zur gemeinsamen Berechnung der Temperaturverteilung und der Volumen- und Porositätsänderungen durch Schwellen. Es läßt sich in dieser Hinsicht in folgende Schritte unterteilen:

- a) Berechnung der Temperaturverteilung anhand der anfangs vorhandenen Geometrie und Porosität.

- b) Berechnung des Brennstoffschwellens anhand dieser Temperaturverteilung.
- c) Korrektur der Geometrie und der Porosität unter Berücksichtigung des Schwellens.
- d) Neuberechnung der Temperaturverteilung anhand der angepassten Geometrie und Porosität.
- e) wie b) u.s.w.

Die Iterationen werden solange wiederholt, bis Konvergenz erreicht ist, d.h. zwei aufeinanderfolgende Temperaturberechnungen innerhalb einer vorgegebenen Schranke übereinstimmen. Abb. 1 zeigt schematisch die Struktur der Iterationschleife in FIGRO.

Die zur Berechnung des Endzustandes erforderlichen Eingabegrößen sind:

- Anfangsgeometrie (Außen- und Innenradius von Brennstoff und Hülle, Spalt, Zentralkanal, ein oder zwei Zonen im Brennstoff)
- Anfangsporosität
- Außendruck im Endzustand
- Innendruck im Endzustand
- Kühlmitteltemperatur (Kühlmittel ist Wasser)
- Wärmestrom durch Hülloberfläche (oder Brennstoffzentraltemperatur)
- Endabbrand
- Spaltungsrate
- Wärmeerzeugung in der Hülle
- Wärmeleitfähigkeit der Hülle

Temperatur- und geometrieabhängige Eingabegrößen sind die Wärmedurchgangskoeffizienten.

Entsprechend der Aufgabenstellung wird in FIGRO keine Spannungsanalyse durchgeführt und somit auch nicht das Problem der mechanischen Wechselwirkung von Brennstoff und Hülle behandelt.

2. Schwellmodelle

In FIGRO können zwei Modelle für das Schwellen durch gasförmige Spaltprodukte gewählt werden. Beide Modelle gehen davon aus, daß das Schwellen eine Funktion der Temperatur- und Abbrandbedingungen ist, wie sie sich im Rechenzeitpunkt darstellen, also nicht von den vorangegangenen Betriebsbedingungen abhängt.

Das eine Modell legt die Annahme zugrunde, daß Anzahl und Größe der Spaltgasblasen fest ist; weiterhin wird das ideale Gasgesetz angewendet.

Das zweite Modell, das auf den Vorstellungen von Greenwood und Speight [2] basiert, läßt ein Anwachsen der Blasengröße infolge von Koaleszenzen zu. Die Blasenwanderung erfolgt durch Oberflächendiffusion der Brennstoffatome aus der Blasenoberfläche. Anstelle des idealen Gasgesetzes wird die Van der Waal'sche Zustandsgleichung verwendet. Der Druck in den Blasen wird durch die Oberflächenspannung und durch äußeren Druck bestimmt.

Eine Verminderung des Schwelleffektes aufgrund von Spaltgasfreisetzung kann im Programm wahlweise berücksichtigt werden. Dem Schwellen durch feste Spaltprodukte wird mit einem einfachen Ansatz Rechnung getragen.

3. Temperaturverteilung

Die Berechnung der Temperaturverteilung startet mit dem Wert der Temperatur des Kühlmittels. Unter Zugrundelegung des Wärmestroms durch die Hülloberfläche wird schrittweise der Temperaturanstieg durch die Oberflächenschicht zwischen Kühlmittel und Hülle, durch die Hülle, durch den Spalt oder die Kontaktschicht zwischen Hülle und Brennstoff und durch den Brennstoff hindurch (unter Berücksichtigung einer eventuell vorgesehenen Unterteilung in zwei Zonen) ausgerechnet. Dabei kann eine mögliche Wärmeerzeugung in der Hülle in die Berechnung aufgenommen werden.

Der Wärmedurchgang durch Zwischenschichten bzw. Spalte wird wie erwähnt mit Hilfe von Wärmedurchgangskoeffizienten beschrieben.

Die zur Bestimmung der Wärmeleitung im oxidischen Brennstoff herangezogene Gleichung verwendet einen Korrekturfaktor, der neben dem Einfluß der ursprünglich vorhandenen Porosität auch den durch das Schwellen hervorgerufenen Einfluß auf die Wärmeleitung des 100 % dichten Brennstoffs erfaßt.

4. Geometrie- und Porositätsänderung durch Schwellen

Das Schwellen verändert einerseits die Herstellungsporosität, andererseits die axialen und radialen Abmessungen des Brennstoffs. Durch geeignet gewählte Eingabeparameter kann bestimmt werden, auf welche Weise und bis zu welchem Grad der Einfluß des Schwellens berücksichtigt wird.

Im einzelnen sind folgende vier Möglichkeiten gegeben, die im allgemeinen in der angegebenen Reihenfolge angesprochen werden:

- a) Schwellen in die Herstellungsporosität
- b) Schwellen in axialer Richtung
- c) Schwellen in radialer Richtung nach außen
und für das Hohlpellet
- d) Schwellen in radialer Richtung nach innen.

Die Bestimmung der Eingabeparameter muß sich auf Annahmen stützen, die aus konservativen Voraussagen über das Brennstabverhalten, aus Anpassungen an experimentelle Beobachtungen und/oder aus Vergleichen mit Berechnungen umfangreicherer Programme, wie z.B. CYGRO, gewonnen werden.

Literatur:

- [1] I. Goldberg, L.L. Lynn, C.D. Sphar, "FIGRO, Fortran-IV Digital Computer Program for the Analysis of Fuel Swelling and Calculation of Temperature in Bulk-oxide Cylindrical Fuel Elements", WAPD-TM-618, Dez. 1966
- [2] G.W. Greenwood, M.V. Speight, "An Analysis of the Diffusion of Fission Gas Bubbles and its Effect on the Behaviour of Reactor Fuels", J. Nucl. Mat. 10, 140-144 (1963).

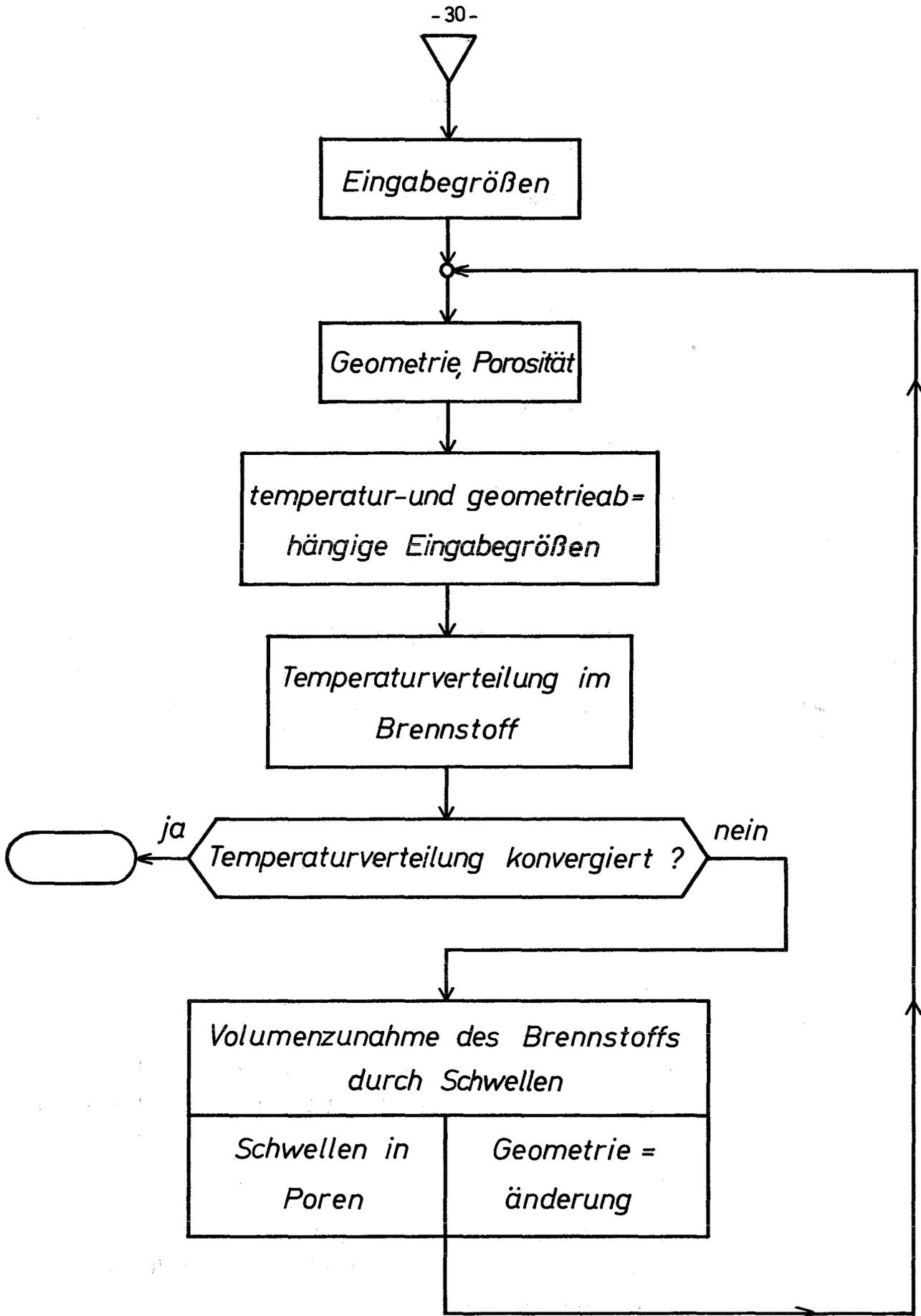


Abb. 1: Verkürztes Strukturdiagramm von FIGRO

1. Kurzbeschreibung

Die Auslegung von Brennstäben erfordert eine genaue Kenntnis des Abbrandverhaltens, um Hüllrohrschäden zu vermeiden. Die quantitative Vorhersage des Brennstabverhaltens unter Bestrahlung erfordert die Kopplung einer großen Anzahl komplexer physikalischer Vorgänge. Das zu diesem Zweck entwickelte Programm COMETHE II (Code for Mechanical and Thermal Behaviour of Fuel Pins) berechnet für maximal 30 axiale Schnitte durch den Stab:

- a) das Temperaturprofil im Kühlmittel, in der Hülle, im Spalt und im Brennstoff,
- b) die dreidimensionalen Volumenänderungen des Brennstoffes infolge thermischer Ausdehnung, Schwellen und Verdichtung,
- c) die elastischen Spannungen und Dehnungen in der Hülle,
- d) die Gasfreisetzung, welche durch Integration über den ganzen Stab zum Druckaufbau führt.

Diese Zielsetzungen wurden durch die folgenden Modelle erreicht:

- a) Die thermische Ausdehnung des Brennstoffes wird berechnet mit einem Zwei-Zonen-Modell: die "gerissene" und die "ungerissene" Zone. Zu Beginn der Bestrahlung erstrecken sich die radialen Rissen bis ins Zentrum des Pellets, solange die Ausdehnung völlig ungehindert in radialer und axialer Richtung erfolgen kann. Sobald diese Bewegung in irgendeiner Richtung behindert wird, erfolgt die Volumenzunahme im plastischen Teil des Brennstoffes (heißer als 1400°C) zuerst in die Einsenkungen, dann in den radialen Spalt und schließlich in den Zentralkanal. Sofern diese verfügbaren Volumina ausreichen und sofern es nicht zur Entstehung einer Festkörperbrücke kommt, welche das Innere des Pellets gegen äußere Krafteinwirkung abschirmt, erfolgt das Kriechen des Brennstoffes ohne signifikanten Festkörperdruck. Dabei wird angenommen, daß die Kriechgeschwindigkeit des Brennstoffes oberhalb 1400°C unendlich groß und unterhalb unendlich klein ist. Darüber hinausgehende Volumenzunahme des Brennstoffes führt zu Aufbau von Festkörperdruck, d.h. zu Hüllrohrdehnung.

VI. Rechenprogramm COMETHE II C

von
R. Godesar

Inhalt:

1. Kurzbeschreibung
2. Eingabedaten
3. Möglichkeiten des Programms
4. Rechenergebnisse
5. Unzulänglichkeiten

- b) Das Schwellmodell für den Brennstoff unterscheidet zwischen nach außen gehendem Schwellen und Schwellen in die Poren hinein.
- c) Der Wärmeübergang im Spalt wird im Falle eines offenen Spaltes nach der Theorie der Wärmeleitfähigkeit von Gasgemischen im Knudsen-Zustand und im Falle eines geschlossenen Spaltes entweder nach dem Modell von Cetinkale-Fishenden oder nach der vereinfachten Gleichung von Dean berechnet.
- d) Die Berechnung der Gasfreisetzung erfolgt nach dem Modell von Booth mittels an Bestrahlungsexperimenten geeicher Konstanten [4].
- e) Der Gasdruck im Stab ergibt sich aus der geeigneten Wichtung der Gasfreisetzung mit den vorhandenen Volumina bei den entsprechenden Temperaturen.

Genauere Beschreibungen der einzelnen Modelle sind in verschiedenen Berichten und Vorträgen enthalten [1,2,3]. Die Kopplung der Modelle ist schematisch im beiliegenden Flußdiagramm erläutert.

2. Eingabedaten

Unter Eingabedaten werden nur solche Werte verstanden, die spezifisch für das zu rechnende Experiment sind: geometrische Abmessungen, Spezifikationen sowie Kühlungs- und Leistungsbedingungen. Alle Konstanten und Korrelationen, welche in die Modelle einfließen, sind leicht austauschbar im Programm eingebaut.

Im einzelnen werden folgende Eingabedaten benötigt:

- a) Kühlmittel
 - Art
 - Druck
 - Aufwärmespanne
 - Gitterabstand

- b) Hülle:
- Material
 - Außen- und Innendurchmesser
 - Oberflächenrauigkeit (innen)
- c) Brenn- bzw. Brutstoff:
- Art
 - Zusammensetzung
 - Stöchiometrie
 - Pelletgeometrie
 - Dichte
 - Säulenlänge
 - Oberflächenrauigkeit
- d) Stab:
- Länge der Plena
 - Strukturmaterialanteil je Plenum
 - Füllgasdruck
 - Füllgaszusammensetzung (Partialdrücke)
- e) Bestrahlungsgeschichte:
- Art des Neutronenflusses
 - Stableistung als Funktion von Ort und Zeit
 - Flußabsenkung im thermischen Fluß als Funktion der Zeit

3. Möglichkeiten des Programms

Folgende Optionen können wahlweise angesprochen werden:

- a) Kühlmittelarten:
- Na
 - NaK
 - Druckwasser
 - He
 - CO₂
- b) Hüllmaterial:
- AISI 316
 - Zircaloy 2 oder 4
 - DIN 4988
 - DIN 4961

- Sk 12R72HV
- Inconel 625

- c) Brenn- bzw. Brutstoffart:
 - UO_2
 - UO_2 - PuO_2 (20 %)

- d) Stabeinteilung:
 - Corezone + 1 oder 2 Brutzonen
 - Corezone + 1 oder 2 Brutzonen
+ 1 oder 2 fiktive Corepellets

- e) Bestrahlungsgeschichte:
 - konstant
 - zyklisch

- f) Neutronenfluß:
 - thermisch
 - schnell

- g) Kühlkanalordnung:
 - dreieckig
 - quadratisch
 - kreisförmig

- h) Modelle für Wärmedurchgang
im Kontaktfall:
 - Cetinkale und Fishenden
 - Dean

- i) Füllgaszusammensetzung:
 - He, Ar, Na, H_2 , H_2O in jeder
Kombination

- j) Gasdruckaufbau:
 - geschlossener Stab
 - belüfteter Stab

4. Rechenergebnisse

Für maximal 30 Querschnitte des Stabes werden folgende Ergebnisse als Funktion der Zeit ermittelt:

- Temperaturprofil im Kühlmittel, in der Hülle, im Spalt und im Brennstoff als Funktion des Radius.

- Zentralkanaldurchmesser, Stengelkristallzonendurchmesser und Kornwachstumsdurchmesser im heißen und im kalten Zustand.

- Radiale Abbrandverteilung (im thermischen Fluß).
- Wärmeübergangszahl im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle.
- Elastische Hüllrohrdehnung infolge Gasdruck, Festkörperdruck, Kühlmitteldruck und thermischen Spannungen.
- Gasfreisetzungen

Ferner werden folgende zeitabhängige Größen berechnet:

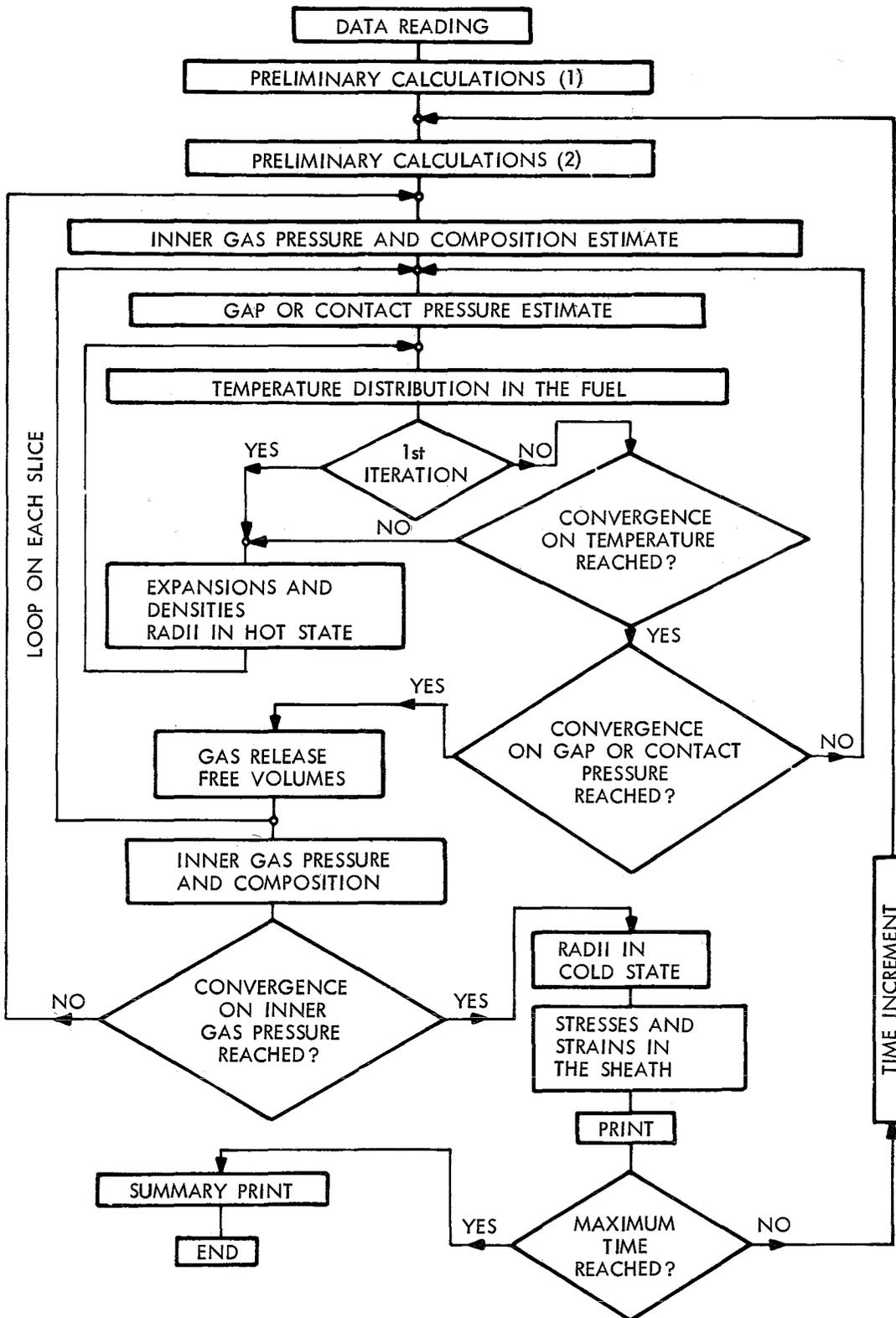
- Massenstromdichte des Kühlmittels
- Stabileistung
- Mittlerer Stababbrand
- Gewichtete Brennstofftemperatur
- Axiale Säulenausdehnung
- Spaltgasdruck

5. Unzulänglichkeiten

- a) Hüllrohrdehnung infolge Stahlschwellens im schnellen Neutronenfluß wird erst in COMETHE II_D berücksichtigt [3].
- b) Kriechen sowie plastische Verformung der Hülle können erst berücksichtigt werden, wenn COMETHE II_D und CRASH gekoppelt sind [5].
- c) Die Berechnung von vibriertem Brennstoff ist bisher nicht vorgesehen.

Literatur:

- [1] R. Godesar, M. Guyette, N. Hoppe
Deutsches Atomforum, April 15 - 18, 1969
- [2] R. Godesar, M. Guyette, N. Hoppe
Nucl. Appl. and Technology, 7, 1970
- [3] O. Dupont, R. Godesar, N. Hoppe
COMETHE II_D - General Description
BN 7101-01 (to be issued)
- [4] J. Dewandeleer, R. Godesar, N. Hoppe, H. Mayer, E.M. Müller
Oxide Fuel Pins Behaviour: Comparison of Experimental Results
with Predictions by the COMETHE II_C-Code.
ANS-Tagung, Karlsruhe, Sept. 1970
- [5] M. Guyette
Nucl. Appl. 8 Techn. 9, 1 60 (1970)



Strukturdiagramm

VII. Rechenprogramm SATURN 1

von
H. Kämpf

1. Einleitung
2. Programmstruktur
 - 2.1 Mechanisch-thermische Phasen
 - 2.2 Zeitstruktur
 - 2.3 Kürzung von Rechenzeitintervallen
 - 2.4 Temperaturiterationen
3. Behandlung der Mechanik von Brennstoff und Hülle
 - 3.1 Voraussetzungen
 - 3.2 Lösungsverfahren
 - 3.3 Randbedingungen
 - 3.4 Zwei-Zonen-Brennstoff-Modell
 - 3.5 Spannungsfreie Volumenänderungen
4. Thermisches Verhalten von Brennstoff und Hülle

1. Einleitung

Die Aufgabenstellung von SATURN 1 ist in Fig. 1 veranschaulicht. Ein Satz von Input-Daten liefert unter Verknüpfung der Materialphänomene die Output-Daten. Die Output-Daten bestehen im zeitlichen Verlauf der radialen Verteilungen von Temperatur, Spannung, Geometrie und Porosität, durch die ein mechanisch-thermischer Zustand bestimmt ist. Die Input-Daten sind einerseits durch die Startwerte von Geometrie und Porosität und durch die elementaren Materialdaten wie z.B. Wärmeleitfähigkeit der Hülle gegeben. Andererseits müssen die zeitabhängigen Brennstab-Betriebsbedingungen, d.h. Stableistung, Hüllaußentemperatur und Außendruck eingegeben werden. Dies erfolgt tabellarisch zu bestimmten Zeitpunkten, wobei zwischen diesen Zeitpunkten linear interpoliert wird. Dadurch wird die Erfassung von stationären und zyklischen Betriebsbedingungen ermöglicht. Die in Fig. 1 aufgelisteten, für das thermische und mechanische Verhalten wesentlichen Materialphänomene sind einerseits durch analytische Beziehungen in Abhängigkeit von Temperatur, Spannung, Porosität u.a. gegeben, andererseits müssen die Phänomene durch geeignetes Modellieren der Behandlung zugänglich gemacht werden.

Die mechanisch-thermischen Zustände ändern sich einerseits durch Variation der Betriebsbedingungen, andererseits durch Ablaufen der materiellen Vorgänge bei konstanten äußeren Bedingungen. Dabei besteht die Schwierigkeit u.a. darin, daß durch Änderung der äußeren Bedingungen und Ablaufen der materiellen Vorgänge Temperatur, Spannung, Geometrie und Porosität sich gleichzeitig in gegenseitiger Abhängigkeit ändern. Dazu treten Komplikationen, wie die zur Rißbildung führende Sprödigkeit von oxidischem Brennstoff, großer radialer Plastizitätsgradient, Kompressibilität des Brennstoffes auf Grund seiner Porosität, Spannungsabhängigkeit des Gasschwellens u.a. auf. Nur durch Entwicklung von notwendigerweise umfangreichen Rechenprogrammen ist es möglich, die im Brennstab auftretenden Phänomene in ihrer wechselseitigen Beeinflussung zu behandeln und Aussagen über das komplexe Stabverhalten zu erhalten. Auf diesem Wege ist es möglich, Versagens- und Lebensdauer-Kriterien für Brennstabkonzepte herauszuarbeiten, die in gezielten Experimenten unter Beweis zu stellen sind.

Eine einführende Vorstellung von SATURN 1 samt einiger Anwendungen erfolgte kürzlich [1]. Ein detaillierter Bericht mit Flußdiagrammen und ausführlicher Programmbeschreibung ist in Vorbereitung [2].

2. Programmstruktur

Mittels des in Fig. 2 dargestellten Strukturdiagrammes wird gezeigt, wie in SATURN 1 die skizzierte Aufgabenstellung gelöst ist. Dabei wird in diesem Kapitel ausschließlich die externe Verknüpfung der Phänomene bzw. Unterprogramme behandelt, die interne Behandlung der Phänomene selbst erfolgt in den folgenden Kapiteln.

2.1 Mechanisch-thermische Phasen

In SATURN 1 werden folgende drei mechanisch-thermische Phasen im Brennstab unterschieden, deren Auftreten von den ja-nein-Entscheidungen hinsichtlich der Existenz von Rissen, Kontaktdruck und Spalt Brennstoff-Hülle gesteuert werden.

- a) Mechanische Wechselwirkung von Brennstoff in Kontakt mit der Hülle. Spannungstheoretische Behandlung unter Berücksichtigung von Kriechen, Schwellen, thermische Ausdehnung, Gasdruck im Falle eines Zentralkanals und Kühlmitteldruck.
- b) Sowohl Hülle als auch Brennstoff sind freistehend. Allgemeine spannungstheoretische Behandlung wie im vorhergehenden Fall, wobei aber beide Körper unter Gas- bzw. Kühlmitteldruck stehen.
- c) Vollständig oder partiell gerissener Brennstoff nach Maßgabe einer thermisch formulierten Rißbedingung mit oder ohne Kontakt mit der Hülle. Im Falle von Kontakt kann kein Kontaktdruck auftreten. Der Brennstoff in Form von Ringen und Keilen ist nur dem hydrostatischen Gasdruck ausgesetzt. Die Brennstoffvolumenänderungen durch thermische Ausdehnung und Schwellen erfolgen spannungsfrei. Die freistehende Hülle wird spannungstheoretisch wie im Fall b) behandelt.

2.2 Zeitstruktur

Zur Berechnung der zeitabhängigen mechanisch-thermischen Zustände wird die vorgegebene Betriebszeit in Rechenzeitintervalle aufgeteilt und sukzessive jeweils aus dem Anfangszustand eines Rechenzeitintervalles der Endzustand bestimmt. Da sich der mechanisch-thermische Zustand sowohl durch Variation der Betriebsbedingungen Stabileistung, Hüllaußentemperatur und Außendruck ändert als auch durch Abläufen der materiellen

Vorgänge, ist eine Trennung beider Einflüsse erstrebenswert. Dies wird dadurch ermöglicht, daß die Änderung der äußeren Bedingungen sprunghaft am Anfang des Zeitintervalls vorgenommen wird und die sprunghaften Änderungen des mechanisch-thermischen Zustandes berechnet werden. Diese bestehen in Änderungen der Temperatur und des elastischen Spannungs- und Verformungszustandes von Brennstoff und Hülle bzw. gegebenenfalls in der spannungsfreien thermischen Ausdehnung des Brennstoffes. Das Auftreten von Rissen wird nur bei diesen sprunghaften Änderungen der äußeren Bedingungen zugelassen. Von diesem so berechneten Anfangszustand dieses Zeitintervalls wird anschließend bei konstant gehaltenen äußeren Bedingungen der Endzustand des Rechenzeitintervalls auf Grund der Langzeiteffekte Kriechen, Schwellen und Porenwanderung berechnet.

2.3 Kürzung von Rechenzeitintervallen

In SATURN 1 treten zwei externe Kürzungen von Rechenzeitintervallen auf. Die erste Kürzung tritt ein, wenn ein Wechsel der Phase von freistehender Hülle und Brennstoff zur Kontaktphase dadurch auftritt, daß der berechnete Brennstoffradius unzulässig größer als der berechnete Hüllinnenradius ist. Dies gilt sowohl für den Fall von gerissenem Brennstoff als auch von unter Spannungen stehendem Brennstoff. Die zweite Kürzung von externen Rechenzeitintervallen bezieht sich auf den Temperaturunterschied zwischen Anfangs- und Endzustand eines Zeitintervalls. Ist der Temperaturunterschied auf Grund der ablaufenden Langzeiteffekte unzulässig groß, tritt eine Zeitintervallkürzung ein. In beiden Fällen muß ein Rücksprung an das Ende des vorhergehenden Zeitintervalls erfolgen, wenn sich in dem betreffenden Zeitintervall die äußeren Bedingungen ändern. Zu erwähnen ist, daß interne Zeitintervallkürzungen in den Mechanik- und Porositätswanderungs-Unterprogrammen möglich sind.

2.4 Temperaturiterationen

Bei der Konzeption von SATURN 1 wurde davon ausgegangen, daß die Temperatur der Parameter ist, von dem die Materialphänomene innerhalb eines Rechenzeitintervalls am empfindlichsten abhängen. Dies findet seinen Niederschlag in zwei externen Temperatur-Iterationsschleifen.

Die erste bezieht sich auf die Berechnung des Sprunges am Anfang des Zeitintervalls. Die Iteration der Temperatur erfolgt in Bezug auf den Wärmeübergang zwischen Brennstoff und Hülle, wobei im Kontaktfall der Kontaktdruck, bei Vorhandensein eines Spaltes die Spaltbreite ausiteriert wird. Im Falle des Spaltes wird mit der Ausgangsspaltbreite und den geänderten äußeren Bedingungen eine neue Temperaturverteilung und mittels der thermischen Ausdehnung eine neue Spaltbreite bestimmt. Da die wahre Spaltbreite zwischen beiden liegen muß, wird mit der mittleren Spaltbreite eine neue Temperaturverteilung bestimmt. Über die thermische Ausdehnung, die eine neue Spaltbreite ergibt, läßt sich eine weitere Temperaturverteilung bestimmen. Stimmen beide Temperaturverteilungen hinreichend überein, ist Konvergenz erreicht. Das Verfahren im Falle des Kontaktdruckes ist analog.

Die zweite externe Iterationsschleife bezieht sich auf die Berechnung des Zeitintervalls bei konstanten äußeren Bedingungen. Die Langzeitvorgänge Kriechen, Schwellen und Porenwanderung ändern die Geometrie und damit auch die Temperaturverteilung. Überschreitet diese Änderung der Temperaturverteilung vom Anfangszustand bis zum Endzustand eine vorgegebene Schranke, so wird vor Berechnung einer neuen Mitteltemperatur für die Langzeitvorgänge der Endzustand analog dem Anfangszustand bezüglich der Temperatur ausiteriert.

3. Behandlung der Mechanik von Brennstoff und Hülle

3.1 Voraussetzungen

Die spannungstheoretischen Voraussetzungen für die in SATURN 1 möglichen Zustände sind Axialsymmetrie und ebene axiale Verformung. Dann ist das Zylinderkoordinatensystem das Hauptachsensystem, in dem Schubspannungen und Verformungen verschwinden und die verbleibenden Hauptdehnungen und Spannungen nur radiusabhängig sind. Unter diesen speziellen Voraussetzungen vereinfachen sich die Gleichgewichtsbedingungen und die Beziehungen zwischen den Gesamtdehnungen und den Gesamtverschiebungen.

Die weiterhin notwendigen Spannungs-Dehnungs-Beziehungen sind dadurch gegeben, daß sich die Komponenten der Gesamtverformung aus folgenden Termen zusammensetzen

- a) einem elastischen Anteil, der durch das lineare Hookesche-Gesetz gegeben ist,
- b) einem bleibenden Anteil, dessen Zuwächse durch die Söderberg-Gleichungen nach Maßgabe eines sekundären Kriechgesetzes gegeben sind,
- c) einem thermischen Ausdehnungsterm und
- d) einem Schwellterm.

Die beiden Terme der thermischen Ausdehnung und des Schwellens sind die freien relativen Längenänderungen im Falle, daß ein nicht poröser Körper vorliegt und beide Ausdehnungen spannungsunabhängig sind. Im Falle porösen Materials und spannungsabhängiger Ausdehnungen, z.B. durch Gasschwellen, bedeuten diese Terme die relativen Längenänderungen bei hydrostatischem Druck. In SATURN 1 wird die Rückwirkung der Spannungsverteilung auf die thermische Ausdehnung und das Schwellen des porösen Brennstoffes nicht berücksichtigt. Zwei thermische Ausdehnungskoeffizienten und zwei Schwellraten tragen phänomenologisch der gleichzeitigen äußeren Längenänderung und der Porositätsänderung Rechnung. Dabei ist zu beachten, daß in den Spannungs-Dehnungs-Beziehungen nur die inhomogenen Anteile der thermischen Ausdehnungen und des Schwellens enthalten sind. Die homogenen, zu keinen Spannungen führenden Anteile ergeben mit der Startgeometrie die spannungsfreie Bezugsgeometrie.

3.2 Lösungsverfahren

Die oben erwähnten Beziehungen können in eine Differentialgleichung für die radiale Verschiebung zusammengefaßt werden. Die zweimalige Integration dieser Gleichung führt auf den dreiaxialen Dehnungs- und Spannungszustand in Abhängigkeit vom Radius und von der Zeit.

Die Lösung des Problems wird in enger Anlehnung an [3] mit Hilfe eines Dehnungsiterationsverfahrens erreicht. Dieses Verfahren ist folgendermaßen aufgebaut: Aus dem Anfangsspannungszustand werden Kriechdehnungen abgeleitet, die als erste Schätzwerte für die zu erwartenden Kriechdehnungen am Ende eines sog. Iterationszeitintervalles dienen. Unter Verwendung dieser Schätzwerte wird der Spannungszustand am Ende des Iterationszeitintervalles berechnet.

Im nächsten Schritt wird für das Zeitintervall aus Anfangs- und Endzustand ein mittlerer Spannungszustand bestimmt. Diesem entspricht eine mittlere Kriechrate, aus der neue Kriechdehnungen und somit ein neuer

Spannungszustand für das Ende des Zeitintervalls folgen.

Dieses Verfahren wird solange wiederholt, bis Änderungen der Kriechrate unter eine vorgegebene Schranke fallen.

Die Länge des Iterationszeitintervalles wird anhand der notwendigen Voraussetzung bestimmt, daß der Unterschied des Spannungszustandes am Ende gegenüber dem am Anfang eine bestimmte Schranke nicht überschreitet. Das bedeutet eine Beschränkung der im Zeitintervall zulässigen Kriechdehnungen. Je nach Größe der Kriechrate folgt daraus eine bestimmte zulässige Länge des Iterationszeitintervalles. Eine Kürzung dieses Intervalls tritt ein, wenn die Zahl der Iterationen einen bestimmten Wert überschreitet oder wenn die vorgegebenen Genauigkeitsschranken zu Divergenzen führen würden.

3.3 Randbedingungen

Im Falle der freistehenden Hülle und des Brennstoffes müssen die jeweils auftretenden drei Integrationskonstanten durch die folgenden drei Randbedingungen bestimmt werden:

- a) Für den Innenradius ist die radiale Druckkomponente gleich dem Innendruck im Falle des Hohlzylinders. Im Falle des Vollzylinders muß die radiale Verschiebung im Mittelpunkt verschwinden.
- b) Für den Außenradius ist die radiale Druckkomponente gleich dem Außendruck.
- c) Das Flächenintegral der axialen Spannungskomponente ist gleich der durch Innen- und Außendruck gegebenen Axialkraft.

Im Falle des Kontaktes zwischen Brennstoff und Hülle müssen sechs Integrationskonstanten aus sechs Randbedingungen ausgerechnet werden.

a) und b) bleiben ungeändert. Weiterhin gelten für die Grenzfläche Brennstoff-Hülle die beiden radialen Randbedingungen: Radialspannung und -Verschiebung von Brennstoff und Hülle müssen gleich sein. Die beiden restlichen Randbedingungen beziehen sich auf die axiale Wechselwirkung. Während der allgemeine Fall der Reibung in SATURN 1 nicht behandelt wird, können die zwei Grenzfälle der Haftung und des reibungslosen Gleitens erfaßt werden. Im Falle der Haftung sind die beiden axialen Randbedingungen dadurch gegeben, daß die axiale Gesamtverformung von Brennstoff und Hülle gleich ist und das gesamte Flächenintegral der axialen Spannungskomponente über Brennstoff und Hülle

durch die Axialkraft gegeben ist. Im Falle des reibungsfreien Gleitens sind die einzelnen Flächenintegrale sowohl für den Brennstoff als auch für die Hülle jeweils durch die entsprechende Axialkraft gegeben.

3.4 Zwei-Zonen-Brennstoff-Modell

Im Brennstoff treten im Vergleich zur Hülle i.A. deutlich höhere Kriechraten auf. Das kann dazu führen, daß in den inneren Bereichen die Kriechrate des Brennstoffes, die Schwellgeschwindigkeit bzw. die Geschwindigkeit der Änderung der thermischen Ausdehnung stark übersteigt. In diesem Falle liegt in diesen Brennstoffzonen ein dem Gasdruck entsprechender hydrostatischer Spannungszustand vor. Der Brennstoff wird deshalb in zwei Zonen aufgeteilt. Nur die äußere Brennstoffzone muß spannungstheoretisch behandelt werden. Die Verformungen in der inneren unter hydrostatischem Druck stehenden Zone erfolgen spannungsfrei. Wegen der sehr starken Temperaturabhängigkeit der Kriechrate bei höheren Temperaturen ist die Grenze zwischen den beiden Zonen durch eine Temperatur charakterisiert. Der Wert dieser Grenztemperatur hängt davon ab, ob stationäre oder zyklische Betriebsbedingungen vorliegen.

3.5 Spannungsfreie Volumenänderungen

Bevor die spannungstheoretische Behandlung der äußeren Brennstoffzone erfolgt, wird mit Hilfe folgender thermisch formulierter Reißbedingung überprüft, ob diese Zone im gerissenen Zustand vorliegt: Wenn die Temperaturänderung pro Zeiteinheit eine vorgegebene Schranke überschreitet und die mittlere Temperatur der äußeren Zone unterhalb einer kritischen Temperatur liegt, wird die Volumenänderung des gesamten Brennstoffes spannungsfrei berechnet. Der dabei auftretende spannungsfreie Zustand des gesamten Brennstoffes ist allgemein dadurch charakterisiert, daß oberhalb einer bestimmten Grenztemperatur eine rißfreie plastische Zone vorliegt, an die sich nach außen hin beliebig viele radial gerissene Bruchstücke anschließen. Die durch die Reißbildung begrenzte plastische rißfreie Zone kann sich durch Porenwanderung und durch Ausheilen von Rissen auf Grund von Volumenzunahmen vergrößern. Die Geometrie zu einem bestimmten Zeitpunkt ist erstens durch freie thermische Ausdehnung bzw. durch freies Schwellen in der plastischen Zone und in den gerissenen Keilen bestimmt. Zweitens ist für die Geometrie ein Fixpunkt maßgebend,

der gemäß Fig. 3 in differenzierter Weise bestimmt wird. Die zeit- und ortsabhängige Berechnung des Rißvolumens ermöglicht es, den Zeitpunkt zu ermitteln, ab dem die spannungstheoretische Behandlung des Brennstoffes einsetzen muß. Dieser Zeitpunkt ist erreicht, wenn die Risse bis zu einer vorgegebenen Temperatur ausgeheilt sind.

4. Thermisches Verhalten von Brennstoff und Hülle

Unter der Voraussetzung des radialen Wärmeflusses wird sowohl für den Brennstoff als auch für die Hülle die radiale Temperaturverteilung ermittelt. Während die Hülle als quellenfrei vorausgesetzt wird, werden beim Brennstoff hinsichtlich der Wärmequellenverteilung zwei Varianten unterschieden. Für schnelle Flußbedingungen wird Proportionalität zwischen Wärmequellendichte und Porosität angenommen; für thermische Flußbedingungen wird die Wärmequellendichte als Polynom im Radius mit geraden Exponenten bis zum vierten Grad vorgegeben. Für die numerische Berechnung wird zunächst eine Ringaufteilung von Brennstoff und Hülle vorgenommen. Für vorgegebene Außentemperatur und Stableistung bzw. Quellendichte werden die Ringrandtemperaturen und die mittleren Ringtemperaturen von außen nach innen berechnet. Wegen der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit muß dabei iterativ verfahren werden. Weiterhin wird die Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes berücksichtigt. Während bei vorliegender Geometrie die Verteilung der Hülltemperatur durch die Außentemperatur und die Stableistung gegeben ist und praktisch unabhängig von Geometrieänderungen ist, hängt die Temperaturverteilung im Brennstoff empfindlich von Änderungen des Zentralkanals, der Porositätsverteilung, des Spaltes bzw. Kontaktdruckes ab [4].

Bei vorgegebener Hüllinnentemperatur ist die Brennstoffoberflächentemperatur nach Maßgabe des Wärmeübergangs Brennstoff-Hülle gegeben. Im Falle des Spaltes wird der Temperaturabfall im Spalt iterativ aus der "Spaltgleichung" [4] ermittelt. Im Kontaktfall wird insbesondere die Abhängigkeit der Wärmedurchgangszahl vom Kontaktdruck berücksichtigt.

In SATURN 1 ist die Kinetik der Porenwanderung mit den erheblichen thermischen Auswirkungen über die damit verbundene Zentralkanalbildung und Verdichtung integriert. Die Ausbildung des Zentralkanals wird nach folgendem numerischen Verfahren berechnet. Übersteigt die Porosität im innersten Ringelement einen vorgegebenen Maximalwert, so wird dieser Ring dem Zentralkanal zugeschlagen und die verbleibende Masse dieses Ringes dem benachbarten Ring hinzugefügt.

VIII. Rechenprogramme LIFE und ISUNE 1

von

F. Depisch u. H. Elbel

Inhalt:

A. Rechenprogramm LIFE

1. Einleitung
2. Behandlung des mechanischen Verhaltens
 - 2.1 Geometrische Voraussetzungen
 - 2.2 Spannungstheoretische Behandlung
3. Behandlung des thermischen Verhaltens
4. Experimentell verifizierbarer Output von LIFE
5. Schlußbemerkung

B. Rechenprogramm ISUNE 1

A. Rechenprogramm LIFE

1. Einleitung

Das Rechenprogramm LIFE kommt in seiner Anlage den Forderungen nahe, die in einem Rechenprogramm verwirklicht sein müssen, das das Verhalten eines Brennstabes in einem Schnellen Reaktor unter optimaler Berücksichtigung der Betriebsbedingungen berechnen soll. So ist eine wesentliche Eigenschaft dieses Programms, daß die Betriebsbedingungen, denen ein Brennstab ausgesetzt ist, in ihrer Zeitabhängigkeit berücksichtigt werden können.

Zum Zeitpunkt der Abfassung dieses Beitrages lagen nur geringe Informationen vor, die im folgenden wiedergegeben werden [1, 2].

2. Behandlung des mechanischen Verhaltens

2.1 Geometrische Voraussetzungen

Die Grundannahmen bestehen wie üblich in Zylindergeometrie und Axialsymmetrie des Brennstabes. Der Brennstoff, als Hohltabelle vorausgesetzt, wird in drei konzentrische Zonen aufgeteilt, die den Bereichen mit Säulenkristallwachstum, mit ungerichteten Kornwachstum und mit der ursprünglichen Kornstruktur entsprechen. Die Größe dieser Zonen wird auf der Basis von Gleichungen über die Porenwanderung bestimmt, die von der Temperatur und dem Temperaturgradienten abhängig ist. Der Massetransport von einer Zone in die andere folgt einer Bilanzgleichung.

Die Auswirkung von Rissen im Brennstoff wird nicht betrachtet. Zwischen Brennstoff und Hülle kann ein Spalt vorhanden sein. Der Brennstab kann in bis zu zehn axiale Abschnitte unterteilt werden.

2.2 Spannungstheoretische Behandlung

Grundvoraussetzung ist die ebene axiale Verformung im Brennstoff und in der Hülle. Die axialen Ausdehnungen in Brennstoff und Hülle können aber unterschiedlich sein.

In LIFE werden elastische, thermische Kriech- und Schwellverformungen berechnet. Dabei wird dem Schwellen durch feste und gasförmige Spaltprodukte Rechnung getragen. Bei der Behandlung des gasförmigen Schwellens wird das Spaltgas als ideales Gas behandelt. Das Schwellen der Hülle wird gemäß der Theorie von Harkness und Li [3] berücksichtigt.

Ein ursprünglich vorhandener Spalt kann sich in Abhängigkeit von den Betriebsbedingungen schließen und wieder öffnen. Im Kontaktfall ist eine Relativbewegung von Brennstoff und Hülle in axialer Richtung möglich. Die Reibung zwischen den beiden Komponenten wird mit Hilfe eines einfachen Koeffizienten beschrieben.

Durch Einführung einer effektiven Hülldicke wird dem Auftreten von äußerer und innerer Korrosion Rechnung getragen.

3. Behandlung des thermischen Verhaltens

Die Stabileistung kann für die einzelnen axialen Abschnitte variieren. Die radiale Verteilung der Stabileistung wird als Funktion der Zeit angesetzt, wodurch eine Wanderung der Spaltstoffatome erfaßt wird.

Die Temperaturverteilung wird zu Beginn eines jeden Rechenschrittes bestimmt und dann im Rechenzeitintervall unverändert gelassen.

Zur Beschreibung des Wärmetransports vom Brennstoff zur Hülle und von der Hülle zum Kühlmittel werden Wärmedurchgangskoeffizienten verwendet. Der letztere ist im Falle des Kontakts eine Funktion des Kontaktdruckes.

Die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes wird als Funktion der Temperatur und der Porosität, die der Hülle als Funktion der Temperatur vorausgesetzt.

Die linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten werden ebenfalls als Funktion der Temperatur vorausgesetzt.

Zu erwähnen ist, daß in der Säulenkristallzone vollständige Spaltgasfreisetzung vorausgesetzt wird, während in den beiden übrigen Brennstoffzonen die Freisetzung nach Maßgabe vorgegebener Raten erfolgt. Weiterhin wird der Wanderung von festen Spaltprodukten Rechnung getragen.

4. Experimentell verifizierbarer Output von LIFE

LIFE liefert folgende experimentell nachprüfbare Rechenergebnisse:

- a) Außen- und Innendurchmesser der Hülle als Funktion der Betriebsbedingungen und der axialen Position,

- b) Länge der Hülle und der Brennstoffsäule,
- c) Zentralkanal und Größe der Brennstoffzonen als Funktion der Betriebsbedingungen und der radialen Positionen,
- d) Spaltgasfreisetzung ins Plenum,
- e) radiale und axiale Temperaturverteilung und
- f) radiale Spaltstoffverteilung.

5. Schlußbemerkung

In der Zwischenzeit sind umfangreichere Berichte zur LIFE-Entwicklung erschienen [4, 5].

B. Rechenprogramm ISUNE 1

Nach [6] ist mit dem Rechenprogramm ISUNE die Berechnung und Analyse folgender von der Betriebszeit abhängiger radialer Verteilungen möglich:

- a) Strahlungsinduziertes Schwellen, Spaltgasfreisetzung und Abbrand;
- b) Temperatur und Temperaturgradient in Hülle und Brennstoff;
- c) Spannungen und Dehnungen im Brennelement.

Der Brennstoff, der aus reinem UO_2 , $(U, Pu)O_2$ oder $(U, Pu, Th)O_2$ bestehen kann, wird in zwei Zonen aufgeteilt, der Säulenkristallzone und der Zone mit ungerichteten Kristallwachstum. Ein Zentralkanal kann sich aufgrund der Wanderung der ursprünglich vorhandenen Porosität bilden, die dem Temperaturgradienten folgend nach einem Verdampfungs-Kondensations-Mechanismus abläuft.

Bei der Berechnung der Temperaturverteilung innerhalb des Brennstoffs wird die unterschiedliche Wärmeleitung in den beiden Brennstoffzonen berücksichtigt.

Strahleninduziertes Schwellen und Spaltgasfreisetzung werden nach einem Modell behandelt, das an Ergebnisse von Untersuchungen des Verhaltens von Spaltgasblasen in Oxid-Brennstoff angepaßt wurde. Schwellen durch feste Spaltprodukte und eine Volumenzunahme aufgrund thermischen Zyklierens können miterfaßt werden.

Die Berechnung der Spannungs- und Dehnungsverteilung erfolgt mit Hilfe eines Iterationsverfahrens. In dieses Verfahren sind die Berechnung der Größe des Spaltes zwischen Hülle und Brennstoff und der Temperatur an der Brennstoffoberfläche einbezogen, ebenso die Berechnung der Größe der Spaltgasblasen, die vom hydrostatischen Spannungszustand des Brennstoffes abhängt.

Gestützt auf Ergebnisse, die anhand eines numerischen Beispiels unter Verwendung des Programms berechnet wurden, werden unter Verwendung von experimentellen Daten folgende Schlüsse gezogen:

- a) Die Radien der Zone ungerichteten Kristallwachstums, der Säulenkristallzone und des Zentralkanals nehmen in der Nähe der Mittelebene des Brennelements während der ersten 100 Betriebsstunden sehr schnell zu. Nach etwa 500 Betriebsstunden bei fester Stableistung erreichen die Radien beinahe konstante Werte.
- b) Zu Betriebsbeginn hängen bei konstanter Stableistung Temperaturverteilung und Temperaturgradient stark von der Betriebszeit, dagegen nur schwach von der Brennstoffoberflächentemperatur ab.
- c) In den zwei Brennstoffzonen werden die Spannungs- und Dehnungsverteilungen durch die Dichteunterschiede zwischen beiden Zonen deutlich beeinflusst.
- d) Nach einer genügend langen Betriebsdauer bei konstanter Stableistung (etwa 1500 h) sind Änderungen in den Spannungs- und Dehnungsverteilungen relativ gering.

Literatur:

- [1] R. W. Weeks, V. Z. Jankus - ANL 7632, Oct. 1969
- [2] R. W. Weeks, V. Z. Jankus - ANL 7655, Dec. 1969
- [3] S. D. Harkness, CHE-YU-LI; "A Model for Void Formation in Metals Irradiated in a Fast Neutron Environment"
Proceedings IAEA Symposium on Radiation Damage in Reactor Materials, Vienna, June 1969
- [4] V. Z. Jankus, R. W. Weeks; "LIFE-I, a Fortran IV Computer Code for the Prediction of Fast Reactor Fuel Element Behavior", ANL - 7736 (Nov. 1970)
- [5] R. W. Weeks, V. Z. Jankus, M. Ratsuragawa, J. D. B. Lambert; "Analysis of Mixed-Oxide Fuel Element Irradiations Using the LIFE-I Computer Code", paper presented at the Conference on Fast Reactor Fuel Element Technology, New Orleans, April 1971
- [6] B. M. Ma, C. K. Cheng; "ISUNE-1 - A Computer Code for Performing Radiation, Thermal, and Mechanical Analysis of Oxide Fuel Pins of Fast Reactors", Trans ANS, Vol. 13, No. 1, June 1970

IX. Rechenprogramm CYGRO II

von

H. Kämpf

Inhalt:

1. Einleitung
2. Voraussetzungen
3. Theorie von CYGRO
 - 3.1 Behandlung der Mechanik
 - 3.2 Spannungs-Dehnungs-Beziehungen
 - 3.3 Lösungsmethode

1. Einleitung

Die verschiedenen Versionen von CYGRO (Stress Analysis of the Growth of Cylindrical Fuel Elements) [1, 2, 3], die von Westinghouse entwickelt wurden, waren die frühesten fortgeschrittenen modelltheoretischen Behandlungen des Brennstabverhaltens.

Wie schon der Name CYGRO, Cylindrical Growth, zum Ausdruck bringt, ist die mechanische Behandlung des schwellenden verformbaren **porösen** Brennstoffs mit bzw. ohne Kontakt mit der verformbaren Hülle das herausragende Charakteristikum von CYGRO. Überhaupt stellt die konsequente mechanische Behandlung des schwellenden porösen Brennstoffes das Kriterium dar, durch das sich die Gruppe der fortgeschrittenen Versionen von der Gruppe von Rechenprogrammen unterscheidet, in denen der Brennstoff auf der Basis mehr oder minder **modifizierter** Volumenbilanzen behandelt wird. So ist die Behandlung von Phänomenen wie der mechanische Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle, das Kriechen und die Plastizität des Brennstoffes, das Gasschwellen, das Heißpressen, die Rißbildung im Brennstoff, Haftung und Reibung zwischen Brennstoff und Hülle u.a. nur möglich, wenn der Brennstoff in die spannungstheoretische Behandlung einbezogen wird.

Ein weiteres Charakteristikum ist, daß CYGRO 2 das mechanisch-thermische Verhalten des Brennstabes in Abhängigkeit der Zeit berechnet, wobei die äußeren Bedingungen wie Hüllaußentemperatur, Stableistung, Kühlmitteldruck und Gasdruck im Brennstab zeitlich veränderlich eingegeben werden können. Die zeitliche Veränderlichkeit der äußeren Bedingungen ist allerdings an die Voraussetzung gebunden, daß eine quasistationäre Behandlung zulässig ist (Pseudo-transient lifetime code).

CYGRO gründet sich auf die mechanische Behandlung endlicher Ringelemente (Finite element method), für die die zeitlichen Veränderungen während eines hinreichend kleinen Zeitintervalls ohne Iterationen (straight forward) berechnet werden. Durch geeignete Verbindung der endlichen Elemente zum Gesamtkörper nach Maßgabe von Randbedingungen erhält man die zeitliche Veränderung des gesamten Körpers. Der mathematische Formalismus gründet sich auf die Behandlung von Vektor - und damit Matrizengleichungen, wobei etwas ungewohnte Vektoren gebildet werden.

CYGRO 2 [2] ist im wesentlichen eine Überarbeitung von CYGRO 1 [1] unter Hinzufügen eines Modells zur mechanischen Behandlung von Gasblasen und Herstellungsporen. Die Darstellung der Mechanik und der Lösungsmethode ist in [2] deutlich klarer als in [1].

2. Voraussetzungen

Folgende Voraussetzungen liegen CYGRO 2 zugrunde:

- a) Axialsymmetrie und ebene axiale Verformung, so daß Spannungen und Verformungen nur radius- und zeitabhängig sind.
- b) Die Temperaturverteilung ist die Lösung der stationären Wärmeleitungsgleichung für den radialen Wärmefluß. Es besteht keine Rückwirkung der Änderung des Spannungs- und Verformungszustandes auf die Temperaturverteilung, die ausschließlich durch die äußeren Bedingungen gegeben ist nach Maßgabe der temperatur- und porositätsabhängigen Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes.
- c) Der Gasdruck im Spalt, Zentralkanal und Plenum ist eine Eingabegröße.
- d) Keine Rißbildung im Brennstoff wird zugelassen.
- e) Bei Kontakt des Brennstoffes mit der Hülle liegt hinsichtlich der axialen Wechselwirkung Haftung vor. Reibung wird nicht zugelassen.
- f) Massetransport wird nicht berücksichtigt, d.h. insbesondere die Porenwanderung mit Zentralkanalbildung und Verdichtung wird nicht berücksichtigt.

Die Voraussetzungen d) bis f) wurden in der Folgeversion CYGRO 3 [3] fallengelassen, die im folgenden Beitrag behandelt wird.

3. Theorie von CYGRO

3.1 Behandlung der Mechanik

Zugrundegelegt wird ein axiales Scheibenelement, das aus Hülle und Brennstoff besteht, der gegebenenfalls einen zentralen starren Kern enthalten kann. Brennstoff, Hülle und starrer Kern können sich in Kontakt befinden oder es können Spalte auftreten. Die äußeren Kräfte wirken jeweils auf die radiale Innenseite, die radiale Außenseite und die axiale Stirnfläche des axialen Brennstoff- und Hüllelementes. Die äußeren Kräfte setzen sich zusammen aus den Druckkräften durch Gas- bzw. Kühlmitteldruck und im Falle des Kontaktes zusätzlich aus den Kontaktkräften. Dabei sind im Kontaktfall die Kontaktkräfte primär

nicht bekannt, sondern ergeben sich aus dem Formalismus. Die axiale Kontaktkraft zwischen starrem Kern und Brennstoff wird in jedem Falle vernachlässigt.

Charakteristisch für CYGRO ist die Bildung von Kraft- und Geometrievektoren. Der Kraftvektor wird gebildet aus den Kräften, die auf die Ringinnenseite, die -außenseite und die axiale Stirnfläche wirken. Der Geometrievektor setzt sich aus Ringinnenradius, -außenradius und axiale Höhe zusammen.

Weiterhin ist charakteristisch, daß nicht die Größen selbst, sondern deren zeitliche Veränderungen, d.h. deren Raten betrachtet werden. Durch Multiplikation der Raten mit dem Zeitintervall erhält man die Zuwächse der Größen in dem Zeitintervall und aus den Größen zu Beginn des Zeitintervalls die Werte am Ende des Zeitintervalls.

Das axiale Brennstoff- und Hüllelement wird aufgeteilt in hinreichend viele radiale konzentrische Ringelemente, in denen Spannungen, Verformungen, Temperaturen und Materialeigenschaften homogen vorausgesetzt werden.

Zunächst erfolgt die Behandlung eines einzelnen axialen Ringelements, das aus dem Verband des Körpers herausgelöst ist. Durch einen Verbindungsprozeß (Connecting bzw. joining process) wird mittels Randbedingungen der Übergang zum ganzen Körper durchgeführt. Die äußeren Kräfte, die auf dieses Ringelement wirken, und die Geometrie dieses Elementes werden ganz analog zum Fall des gesamten Brennstoff- bzw. Hüllelementes zu Vektoren zusammengefaßt.

Ziel der Überlegungen an dem Ringelement ist die Ermittlung des Zusammenhanges zwischen der Rate des Kraftvektors und der Rate des Geometrievektors. Zunächst folgt aus einer einfachen Betrachtung der Zusammenhang zwischen dem Geometrieratenvektor und dem Verformungsratenvektor. Der Verformungsratenvektor setzt sich aus der radialen, tangentialen und axialen Verformungsrate zusammen. Die Rate des Verformungsvektors ergibt sich unter Berücksichtigung der elastischen, Kriech-, thermischen und Schwellverformung als linear abhängig zur Rate des Spannungsvektors wie im folgenden Abschnitt gezeigt wird. Aus der Energiebilanz, daß die Rate der Verformungsenergie gleich der Rate der Arbeit der äußeren Kräfte ist, folgt der Zusammenhang zwischen dem Kraft- und Spannungsvektor. Damit wurde der angestrebte Zusammenhang zwischen Rate des Kraftvektors und Rate des Geometrievektors gewonnen.

3.2 Spannungs-Dehnungs-Beziehungen

Die Spannungs-Dehnungs-Beziehungen erhält man durch Superposition der elastischen, der thermischen, der Kriech- und der Schwellverformungen zu den Gesamtverformungen für jede Hauptrichtung. Durch Formulierung der Abhängigkeiten, insbesondere der Spannungsabhängigkeit, der Teilverformungen erhält man die angestrebten Beziehungen.

Für die elastischen Verformungen wird die Gültigkeit des dreiaxialen linearen Hookschen Gesetzes vorausgesetzt.

Die thermischen Dehnungen werden berechnet nach Maßgabe des thermischen Ausdehnungskoeffizienten, der in den 3 Hauptrichtungen verschieden sein kann und der Temperaturverteilung, die für die in Abschnitt 2 angegebenen Voraussetzungen berechnet wird. Eine Spannungsabhängigkeit der thermischen Ausdehnung durch Ausdehnung in die Porosität wird nicht berücksichtigt.

Die Kriechdehnungen werden mit den Söderberg- bzw. Prandtl-Reuß-Gleichungen aus dem dreiaxialen Spannungszustand nach Maßgabe von Kriechgesetzen berechnet, wobei für die Vergleichsspannung die Form von Mises gewählt wird. Sowohl dem sekundären Kriechen als auch dem primären Kriechen bzw. der plastischen Verformung wird wie folgt Rechnung getragen: Zugrundegelegt wird ein sekundäres Kriechgesetz $\dot{\epsilon}_g = P_1 \cdot \sigma_g^{Q_1}$ als auch ein Plastizitätsgesetz $\dot{\epsilon}_g = P_2 \cdot \sigma_g^{Q_2}$, wobei ϵ_g = Vergleichskriechdehnung, $\dot{\epsilon}_g$ = deren Rate, σ_g = Vergleichsspannung und P_1 , P_2 , Q_1 und Q_2 Konstanten sind. Liefert die zu Beginn eines Zeitintervalls vorhandene Kriechdehnung ϵ_g gemäß dem Plastizitätsgesetz eine Spannung σ_p , die größer als die vorhandene Vergleichsspannung ist, so wird die bleibende Verformung mit dem sekundären Kriechgesetz berechnet, andernfalls mit dem Plastizitätsgesetz.

Die Dehnungsarten durch Schwellen werden durch feste Spaltprodukte und durch gasförmige hervorgerufen. Die Schwellrate durch feste Spaltprodukte ist eine Eingabegröße. Der Schwellratenvektor für gasförmige Spaltprodukte ergibt sich als linear abhängig von der Rate des Spannungsvektors auf der Basis eines detaillierten Schwellmodells, das im folgenden skizziert wird. In jedem Ring sind unterschiedlich große kugelförmige Poren vorhanden, jeweils in bestimmter Anzahl. Die Poren besitzen nach Maßgabe von Erzeugungs- und Freisetzungsraten, die Eingabefunktionen sind, bestimmte Gasmengen. Der Gasinhalt bestimmt über die Van de Waalsche

Gleichung den Gasdruck in der Pore. Es wird vorausgesetzt, daß sich die Pore in mechanischem Gleichgewicht mit der Umgebung befindet. Diese Bedingung liefert den auf die Pore wirkenden äußeren Druck als Differenz aus Gasdruck und Oberflächenspannungsdruck. Jede Pore sei von einem inkompressiblen Material bestimmter Ausdehnung umgeben, an dessen äußerer Begrenzung der hydrostatische Druck des makroskopischen Spannungsfeldes wirkt. Aus einer Energiebilanz, daß die Rate der Verformungsenergie in diesem inkompressiblen Ring gleich der Rate der Arbeit der äußeren Kräfte, d.h. des auf die Pore wirkenden Druckes und des hydrostatischen Druckes des Spannungsfeldes ist, erhält man das Spannungsfeld um die Pore. Vereinfachungen in der Rechnung liefern eine plastische Zone um die Pore, an die sich eine Kriechzone anschließt. Nach einigen Umformungen erhält man schließlich den Zusammenhang zwischen dem Schwellratenvektor und der Rate des Spannungsvektors.

3.3 Lösungsmethode

Für jeden Ring des gesamten Brennstoff- bzw. Hüllhohlzylinders gilt der angegebene Zusammenhang zwischen der Rate des Kraftvektors und der Rate des Geometrievektors. Eine sukzessive Zusammenfassung der einzelnen Ringe zu einem neuen zusammengesetzten Ring, für den eine analoge Beziehung zwischen der Rate des Kraftvektors und der Rate des Geometrievektors gilt, ist durchführbar unter Verwendung der folgenden Randbedingungen:

- a) Die radialen Kräfte zwischen benachbarten Ringen sind gleich und haben entgegengesetztes Vorzeichen.
- b) Die Raten der Radiusänderungen benachbarter Ringgrenzen sind gleich.
- c) Die Raten der axialen Verformungen der einzelnen Ringe sind gleich.
- d) Die Summe der Raten der axialen Kräfte auf die einzelnen Ringe ist gleich der Rate der axialen Kraft des gesamten zusammengesetzten Systems.

Weiterhin ist zur Ermittlung der genannten Beziehung die folgende Energiebilanz erforderlich: Die Summe der Rate der äußeren Kräfte, die auf die einzelnen Ringe wirken, ist gleich der Rate der äußeren Kräfte, die auf den zusammengesetzten Ring wirken, wobei die Randbedingungen zu berücksichtigen sind. Man erhält so sukzessive aus der Beziehung für einen Ring

die für den gesamten Brennstoff bzw. der Hülle geltende Beziehung. Im Falle des freistehenden Brennstoffes bzw. der Hülle sind die Raten der äußeren Kräfte bekannt. Im Falle des Kontaktes muß zunächst die Rate der Kontaktkräfte ermittelt werden. Dann sind die Raten der Geometrievektoren bekannt. Die Umkehrung des skizzierten Verfahrens liefert die Rate des Geometrie-, Kraft-, Verformungs- und Spannungsvektors in jedem Ring.

Literatur:

- [1] C. M. Friedrich, "CYGRO - Stress Analysis of the Growth of Concentric Cylinders", WAPD-TM-514 (Okt. 1965)
- [2] C. M. Friedrich, W. H. Gulinger, "CYGRO 2, A Fortran IV Computer Program For Stress Analysis of the Growth of Cylindrical Fuel Elements with Fission Gas Bubbles", WAPD-TM-547 (Nov. 1966)
- [3] E. Duncombe, Analysis of void migration, clad collapse and fuel cracking in bulk oxide fuel rods, WAPD-TM-794 (Juli 1968)

X. Rechenprogramm CYGRO III

von

F. Depisch

Inhalt:

1. Einleitung
2. Rißverhalten des Brennstoffes
3. Wanderung der Porosität im Brennstoff
4. Reibung zwischen Brennstoff und Hülle

1. Einleitung

CYGRØ II wurde von E. Duncombe [1] durch Berücksichtigung von drei Brennstoffeffekten erweitert. Die drei Effekte sind: das Rißverhalten des Brennstoffes, die Wanderung von Porosität im Brennstoff und die Reibung zwischen der Brennstoffsäule und dem Hüllrohr.

2. Rißverhalten des Brennstoffes

Risse im Brennstoff treten normalerweise in den Hauptebenen (Ebenen, die normal zum Hauptachsensystem stehen) auf und sind daher mit den 3 Hauptspannungen verknüpft. In CYGRØ [1] wird das Auftreten eines Risses längs einer der 3 Achsen angenommen, wenn die Spannung in dieser Richtung einen vorgegebenen Wert überschreitet. Eine Rißausbreitung von einem Ringelement zum nächsten wird nicht angenommen. Bei Auftreten von Druck heilen die Risse spontan aus.

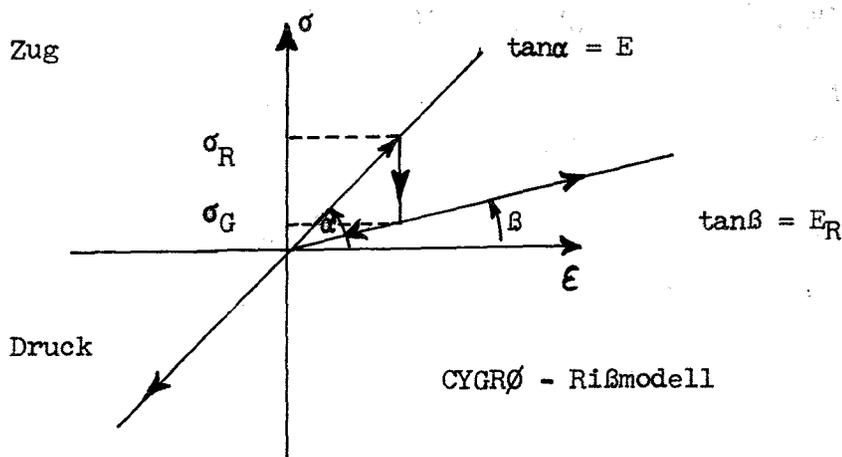
Bei Auftreten eines radialen Risses in einem zylindrischen Körper geht die Azimutalsymmetrie der Spannungen verloren [2], d.h. die Spannungen werden r und zusätzlich azimutal abhängig. CYGRØ vereinfacht das Rißverhalten mit der Einführung einer azimutal gemittelten Spannung, die als winkelunabhängig definiert wird.

Bei Überschreiten von Rißspannungen in einem Ringelement des Brennstoffes in den 3 Hauptrichtungen reißt der Brennstoff in der entsprechenden Richtung auf. Dabei geht die Voraussetzung ein, daß mit Auftreten eines radialen Risses beliebig viele radiale Bruchstücke des Brennstoffes in diesem Ringelement entstehen und die Tangentialspannung gegen 0 geht.

Die numerische Behandlung des Rißverhaltens erfolgt erstens durch folgende logische Abfragen:

- a) Bei Überschreiten der Rißspannung erfolgt Aufreißen des Brennstoffes.
- b) Bei Übergang von Zug- auf Druckspannungen im gerissenen Ringelement erfolgt spontanes Ausheilen der Risse.

Diese Behandlung des Rißverhaltens wird durch folgendes Spannungs-Dehnungsdiagramm verdeutlicht:



- E = E-Modul im ungerissenen Zustand
- E_R = E-Modul im gerissenen Zustand
- σ_R = Reißspannung
- σ_G = Spannung im gerissenen Zustand

Zweitens wird das Reißverhalten dadurch berücksichtigt, daß im spannungstheoretischen Formalismus das Hookesche Gesetz gemäß (1) durch das modifizierte entsprechend (2) ersetzt wird.

$$\vec{\epsilon} = \frac{1}{E} \begin{bmatrix} 1 & -\nu & -\nu \\ -\nu & 1 & -\nu \\ -\nu & -\nu & 1 \end{bmatrix} \vec{\sigma} \quad \text{ungerissener Zustand} \quad (1)$$

$$\vec{\epsilon} = \frac{1}{E} \begin{bmatrix} C_i & -\nu & -\nu \\ -\nu & C_j & -\nu \\ -\nu & -\nu & C_k \end{bmatrix} \vec{\sigma} \quad \text{gerissener Zustand} \quad (2)$$

$\vec{\epsilon}$ = Vektor der elastischen Verformung

$\vec{\sigma}$ = Spannungsvektor

ν = Poisson Zahl

$C_i, C_j, C_k =$

Korrekturfaktoren, um den E-Modul des ungerissenen Zustandes in den des gerissenen gemäß folgender Gleichung überzuführen.

$$E_{Re} = \frac{E}{C_e} \quad e = i, j, k \quad (3)$$

3. Die Wanderung der Porosität im Brennstoff

Die Theorie für den folgenden Abschnitt wurde aus [3] entnommen. In CYGRØ III wird die Wanderungsgeschwindigkeit von Porosität mit 2 Formeln errechnet.

Für große Poren (z.B. Sinterporen) ist der Mechanismus des Verdampfens und Kondensierens maßgebend:

$$v_1 = \frac{A_v}{T^{3/2}} \cdot \frac{dT}{dr} \cdot \exp\left(-\frac{Q_v}{kT}\right) \quad (4)$$

v_1 = Wanderungsgeschwindigkeit für große Poren

Q_v = Verdampfungswärme pro Brennstoffmolekül (Aktivierungsenergie)

A_v = Materialkonstante, abhängig von der Brennstoff- und Dampfzusammensetzung. Die Konstante ist durch den Druck innerhalb der Pore zu dividieren.

$\frac{dT}{dr}$ = Temperaturgradient

k = Boltzmann-Konstante

T = Absolute Temperatur

Für kleine Blasen (Spaltgasblasen) wird die Oberflächendiffusion als Transportmechanismus angenommen:

$$v_2 = 3 D_0 \frac{\nu \Omega Q^*}{r_0 K T^2} \cdot \frac{dT}{dr} \cdot \exp\left(-\frac{Q}{kT}\right) \quad (5)$$

v_2 = Wanderungsgeschwindigkeit für kleine Blasen

Q = Aktivierungsenergie für Oberflächendiffusion

ν = Anzahl der diffundierenden Moleküle per Oberflächeneinheit

Ω = Molekularvolumen des Festkörpers

r_0 = Radius der Gasblase

Q^* = Transportwärme für die Oberflächendiffusion

$\frac{dT}{dr}$ = Temperaturgradient im Festkörper

T = Absolute Temperatur

Die Wanderungsgeschwindigkeit jeder Porosität im Brennstoff wird als Summe der beiden Geschwindigkeiten v_1 und v_2 berechnet.

Blasen, deren Radius einen kritischen Radius unterschreiten, werden als an den Korngrenzen festsitzend betrachtet. Dieser kritische Radius für Oberflächendiffusion errechnet sich:

$$r_{\text{krit}} = \left(\frac{\Omega \gamma T}{2 \cdot Q \cdot \frac{dT}{dr}} \right)^{1/2} \quad (6)$$

r_{krit} = Kritischer Radius

γ = Korngrenzen-Oberflächenenergie

(Restliche Bezeichnungen, siehe vorige Gleichung)

Die Porositätswanderung in CYGRØ III wird nun numerisch folgenderweise behandelt:

Am Ende jedes Zeitintervalls wird Porositätsvolumen vom jeweils kälteren Ringelement in sein benachbartes heißeres Ringelement weitergegeben. Die ursprüngliche feste Masse in einem Ringelement wird festgehalten, d.h. die Radien des Ringelements müssen neu berechnet werden. Damit bleibt die Wärme-
produktion pro Ringelement während der Porositätswanderung konstant.

Die am Ende des Zeitintervalls weitergegebene Porositätsfläche errechnet sich zu

$$\Delta V_g = P \cdot V_{1,2} \cdot \Delta t \cdot 2\pi \cdot r \quad (7)$$

ΔV_g = im Zeitintervall Δt gewanderte Porosität

P = Porosität im Ringelement

$V_{1,2} = v_1 + v_2$ = Porositätswanderungsgeschwindigkeit

r = Innenradius des Ringelements

In CYGRØ III wird die Zeitintervalllänge so begrenzt, daß der zurückgelegte Weg der Porosität kleiner als die halbe Ringbreite bleibt, d.h. es gilt:

$$V_{1,2} \Delta t \leq 0,5 (r_i - r_{i-1}) \quad (8)$$

wobei

r_i, r_{i-1} = begrenzende Radien des Ringelementes sind.

4. Reibung zwischen Hülle und Brennstoff

In CYGRØ wird die mechanische Wechselwirkung zwischen Hülle und Brennstoff mit Hilfe der axialen und radialen Kontaktkraft berechnet. Im Falle, daß der Reibungskoeffizient unendlich (Haftung) wird, ist die axiale Kontakt-

kraft unter der Voraussetzung einer axial unabhängigen Stableistung über die Stablänge konstant (siehe Fig. 1). Im Normalfall (Reibung) wird beginnend von den freien Enden der Brennstoffsäule pro Längeneinheit vom Brennstoff auf die Hülle eine axiale Kraft übertragen. Das bedeutet, die axiale Kontaktkraft steigt linear mit der Brennstoffsäulenlänge von den freien Enden weg bis zu einem Wert an, der dem Haftungsfall entspricht.

Die Voraussetzung für das Eintreten des Reibungsfalles ist gegeben, wenn die unter Haftungsbedingungen errechnete Axialkraft F_Z größer an einer Stelle am Stab wird, als die durch die Reibung übertragbare Kraft μF_r , die mit dem Reibungskoeffizienten multiplizierte Radialkraft zwischen Brennstoff und Hülle

$$\begin{aligned} F_Z &\leq \mu F_r && \text{Haftung} \\ F_Z &> \mu F_r \longrightarrow F_Z = \mu F_r && \text{Reibung} \end{aligned} \tag{9}$$

Literatur:

- [1] E. Duncombe, Analysis of void migration, clad collapse and fuel cracking in bulk oxide fuel rods, WAPD-TM-794 (Juli 1968)
- [2] B. Wedell, A theoretical evaluation of crack formation in UO_2 fuel pellets, Risö-Report Nr. 52 (Juli 1962)
- [3] F. A. Nichols, Behaviour of gaseous fission products in oxide fuel elements, WAPD-TM-570, (October 1966)

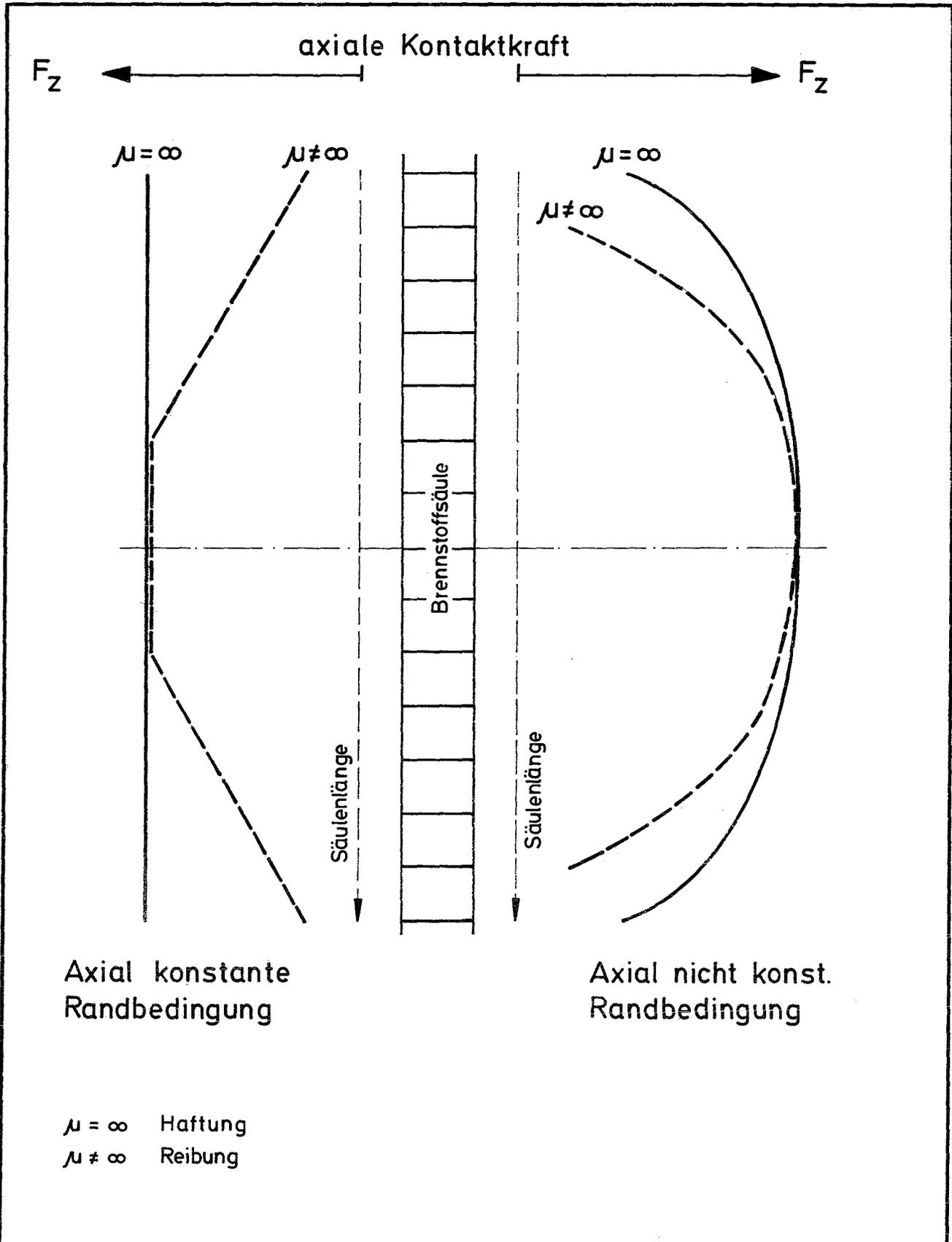


Abb. 1

Die axiale Kontaktkraft zwischen Hülle und Brennstoff entlang des Brennstabes für axiale konstante und variable Randbedingungen, d.h. Stableistung und Hüllaußentemperatur.

XI. Die Rechenprogramme CANNING und CRASH

von
K. D. Closs

Inhalt:

1. Einleitung
2. Rechenprogramm CANNING
3. Rechenprogramm CRASH
 - 3.1 Eingabegrößen
 - 3.2 Rechenverfahren
4. Schlußfolgerungen

1. Einleitung

Die Rechenprogramme CANNING [1] und CRASH [2] wurden mit unterschiedlicher Zielsetzung geschrieben. Ziel des Programms CANNING ist es, durch konservative Annahmen die Grundgleichungen für die mehrachsige Kriechverformung eines Hüllrohres vereinfacht zu lösen und damit ohne großen Rechenaufwand die erforderliche Länge des Spaltgasplenums als Funktion von Wandstärke und Abbrand für Brennelementhüllrohre schneller flüssigmetallgekühlter Reaktoren zu bestimmen. Das Programm eignet sich daher besonders zur Durchführung von Parameterstudien, entspricht aber keinem echten Brennstab-Rechenprogramm.

Im Gegensatz dazu lassen sich mit dem Programm CRASH die Spannungen und Dehnungen bei einer vorgegebenen Hüllrohrgeometrie ohne wesentliche Vereinfachungen über die gesamte Einsatzzeit in einem Hüllrohr berechnen. Der Vorteil von CRASH besteht darin, daß sich dieses Programm mit Rechenprogrammen kombinieren läßt, die das Verhalten des Brennstoffs beschreiben.

2. Rechenprogramm CANNING

Beim Rechenprogramm CANNING wird mit Hilfe der eingegebenen Flußverteilung und Kühlmiteleintrittstemperatur die Beanspruchung ⁱⁿ verschiedenen Querschnitten durchgerechnet und der Brennstab nach der gefährdeten Stelle ausgelegt. Dabei wird der Einfluß des Verhältnisses von Hüllrohr- zu Brennstoffquerschnitt auf die Länge des Spaltgasplenums untersucht und damit die optimale Wandstärke angegeben.

Zur Bestimmung der Spannungen und Dehnungen werden beim Rechenprogramm CANNING die gleichen Grundgleichungen benutzt wie beim Rechenprogramm CRASH, nämlich im wesentlichen die Gleichgewichtsbedingung, die Kompatibilitätsbedingung sowie Gleichungen, die den Zusammenhang zwischen Spannungen und Dehnungen beschreiben. Vergleichsspannungen und Vergleichsdehnungen werden nach der Schubspannungshypothese von Mohr bzw. Tresca berechnet. Ein Außendruck, ein Korrosionsabtrag der Hülle sowie ein beliebiger zeitlicher Verlauf der Reaktorbetriebsbedingungen können nicht in den Rechnungen berücksichtigt werden.

Zur Berechnung der Kriechvorgänge im Hüllrohr wird eine halbanalytische Näherung verwendet, die auf der Formulierung einer "Grenzspannung" in Analogie zur Streckgrenze des Werkstoffs basiert. Damit wird das Kriechproblem auf den bekannten Fall eines elastischen-idealplastischen Rohres unter Innendruck und zyklisch wechselnden Wärmespannungen zurückgeführt, wobei alle rechnerisch über dieser "Grenzspannung" liegenden Spannungen durch bleibende Verformung abgebaut werden, alle darunterliegenden jedoch voll erhalten bleiben. Mit diesem Verfahren wird zunächst ein zulässiger Innendruck am Ende der Standzeit ohne Berücksichtigung von thermischen Spannungen berechnet. Anschließend wird dieser Wert mit einem Faktor < 1 so lange multipliziert, bis auch beim Auftreten von thermischen Spannungen die Umfangskriechdehnung durch sog. "ratcheting"-Effekte nicht mehr über einen zulässigen Betrag ansteigt.

Um den Rechenaufwand und vor allem die Zahl der Eingabedaten klein zu halten, sind im Programm noch folgende Vereinfachungen enthalten:

- a) Ersatz zeitlich veränderlicher Innendrucke durch einen konstant wirkenden Innendruck.
- b) Beschränkung auf rein sekundäres Kriechen nach dem Norton'schen Kriechgesetz $\dot{\epsilon} = k \cdot \sigma^n$.
- c) Berechnung der Kriechparameter als Funktion der Temperatur nach der Larson-Miller-Beziehung $T_1 (C - \log \dot{\epsilon}_{T_1}) = T_2 (C - \log \dot{\epsilon}_{T_2})$ aus den Werten für eine bestimmte Temperatur.

Umfangreiche Vergleichsrechnungen [3], bei denen gleiche Materialgrößen, Randbedingungen, Kriechgesetze und Vergleichsspannungen etc. eingegeben wurden, haben gezeigt, daß allein aufgrund des Rechenverfahrens die mit CANNING berechneten tangentialen Kriechaufweitungen stets um den Faktor 1,5 bis 3 über den mit CRASH berechneten Werten lagen.

3. Rechenprogramm CRASH

3.1 Eingabegrößen

Mit CRASH (CReep Analysis in a fuel pin Sheath) ist es möglich, in einem bestimmten vorgegebenen Querschnitt des Hüllrohres den Spannungs- und Dehnungszustand über die gesamte Einsatzzeit des Brennelementes zu beschreiben. Dabei können folgende zeitabhängige Randbedingungen berücksichtigt werden:

- a) Kühlmitteldruck
- b) Spaltgasdruck
- c) Axialkräfte
- d) Temperaturgradient in der Hülle (Stableistung)
- e) Kühlmitteltemperatur
- f) Wandstärkeverminderung infolge Korrosion
- g) Kontaktdruck des Brennstoffes.

Diese Größen können beliebige Funktionen der Zeit sein.

Zur Berechnung der Spannungs- und Dehnungsverteilung im Hüllrohr werden die gleichen Grundgleichungen wie beim Rechenprogramm CANNING verwendet. Die Umrechnung des dreiachsigen auf den einachsigen Spannungszustand kann in CRASH sowohl nach der Schubspannungshypothese von Mohr bzw. Tresca als auch nach der Gestaltänderungshypothese von Mises erfolgen. Ferner können neben reinen Kriechrechnungen auch Plastizitätsrechnungen (Spannungsabbau durch Überschreiten der Streckgrenze des Materials) durchgeführt werden. Im Prinzip kann dabei jedes beliebige Kriech- oder Plastizitätsgesetz vorgegeben werden. Zur Zeit sind in das Rechenprogramm CRASH zwei Kriechgesetze und zwei Plastizitätsgesetze fest eingebaut.

Kriechgesetze:

- a) Norton $\dot{\epsilon} = k \cdot \sigma^n$
- b) Primärbereich $\dot{\epsilon} = k_1 \sigma^{n_1} t^{m_1}$ $\dot{\epsilon} = k_2 \cdot \sigma^{n_2} \epsilon^{m_2}$

Die Gesetze für den primären Kriechbereich entsprechen den Zeitverfestigungs- bzw. Dehnungsverfestigungsansätzen.

Plastizitätsgesetze:

- a) elastisch-idealplastischer Fall
- b) Verlauf des Spannungs-Dehnungs-Diagramms in Form eines Potenzgesetzes.

3.2 Rechenverfahren

Die einzelnen Gleichungen werden numerisch durch ein iteratives Verfahren für maximal 20 radiale Punkte in der Hüllrohrwand gelöst. Zunächst wird bei bekanntem Spannungs- und Dehnungszustand zur Zeit t eine bleibende Verformung zur Zeit $t + \Delta t$ geschätzt. Mit diesem Wert wird die gesamte Dehnung und der Spannungszustand unter Berücksichtigung der Randbedingungen (Innendruck, Außendruck, Axialkraft, Temperaturverhältnisse usw.) für die Zeit $t + \Delta t$ berechnet. Anschließend wird ein Mittelwert der Spannung für das Zeitintervall Δt gebildet und damit die während der Zeit Δt tatsächlich auftretende Verformung unter Verwendung eines beliebigen Kriechgesetzes berechnet. Die geschätzte und berechnete Verformung werden dann verglichen, und die gesamte Schleife im Rechenprogramm so lange wiederholt, bis eine vorgegebene Konvergenz erreicht ist. Wenn keine Konvergenz erreicht wird, werden die geschätzten Kriechverformungen nach der Newton-Raphson-Methode zum Lösen nichtlinearer Gleichungssysteme bestimmt.

4. Schlußfolgerungen

Das Rechenprogramm CRASH stellt ein gutes Hilfsmittel zur Berechnung der Spannungs- und Dehnungsverhältnisse in einem Brennelementhüllrohr dar. Es eignet sich besonders zum Nachrechnen von Bestrahlungsexperimenten an Brennstoffstäben, da die genauen Betriebsverhältnisse des Reaktors eingegeben werden können. Durch seinen universellen Aufbau können ohne Schwierigkeiten nachträglich beliebige Kriech- und Plastizitätsgesetze eingebaut werden, außerdem läßt es sich mit Programmen kombinieren, die das Brennstoffverhalten beschreiben.

Da bei hochabgebrannten Brennelementen unter Umständen Probleme durch die Wechselwirkung Hülle - Brennstoff auftreten können, sollte bei späteren CRASH-Versionen auch eine Wandstärkenverminderung von der Innenseite des Hüllrohres berücksichtigt werden. Aufgrund der Rohrgeometrie läßt sich dieses Problem nicht ohne weiteres durch eine erhöhte Korrosionsrate des Kühlmittels ersetzen. Außerdem wäre es wünschenswert, im Rechenprogramm CRASH eine Kombination von plastischer Verformung und Kriechverformung

durchzuführen, da diese Beanspruchungsart bei karbidischen Brennelementen mit hoher Stableitung auftreten kann.⁺⁾

⁺⁾ Anmerkung: Nach Fertigstellung des Berichtes wurde bekannt, daß mit der neuesten CRASH II C-Version eine Rechnung von plastischer Verformung und Kriechverformung möglich ist.

5. Literaturverzeichnis

- [1] G. Schmidt: Ein Rechenverfahren zur festigkeitsmäßigen Auslegung der Brennstabhüllrohre von flüssigmetallgekühlten schnellen Reaktoren. KFK 808 (1968)
- [2] M. Guyette: CRASH: A Computer Programme for the Analysis of Creep and Plasticity in Fuel Pin Sheaths. KFK 1059 (1969)
- [3] K.D. Closs, G. Guyette, G. Schmidt: interne Notiz

XII. Rechenprogramm SPAR

von

K. Laßmann

Inhalt:

1. Theoretische Grundlagen
2. Möglichkeiten des Programms
3. Durchgeführte Untersuchungen
4. SPAR-Allgemein

1. Theoretische Grundlagen

Mit dem SPAR-Rechenprogramm können Spannungsverteilungen $\sigma_{ij}(r,t)$ und Dehnungsverteilungen $\epsilon_{ij}(r,t)$ in einem Brennstabhüllrohr berechnet werden. In der Theorie, die auf Arbeiten von Guyette [1] basiert, sind zwei Voraussetzungen enthalten:

- a) Querschnitte bleiben bei der Verformung eben
- b) Es liegt radiale Symmetrie vor

Spannungen σ_{ij} , die im vorliegenden Fall Hauptspannungen sind und Dehnungen ϵ_{ij} sind folgendermaßen verknüpft:

$$\epsilon_j(r,t) = E_{ij} \cdot \sigma_j(r,t) + \alpha \cdot \vartheta(r,t) + \epsilon_j^k(r,t) + \epsilon_j^s(r,t) \quad (1)$$

j = radial, tangential, axial

r = Radius

t = Zeit

E_{ij} = Elastizitätsmatrix

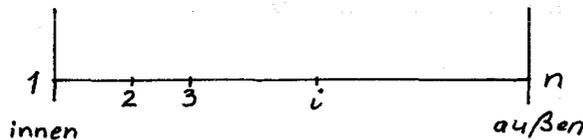
α = Wärmeausdehnungskoeffizient

ϑ = Temperatur

ϵ_j^k = Kriechdehnung

ϵ_j^s = Schwelldehnung

Die Hülle wird in k Raumpunkte unterteilt, sodaß Gleichung (1) für jeden Raumpunkt zu lösen ist:



Die Raumpunkte können äquidistant oder beliebig gelegt werden. Ihre maximale Anzahl beträgt 30.

Wegen der Zeitabhängigkeit der Spannungs- und Dehnungsverteilungen wird das Problem auch hinsichtlich der Zeit t intervallweise gelöst. Dabei gilt

$$\dot{\epsilon}_j^k = \dot{\epsilon}_j^k (\bar{\sigma}_j, v^g(r, t), \dots) \Delta t \quad (2)$$

$$\bar{\sigma}_j \text{ (im Intervall } \Delta t) = \frac{\sigma_j(t) + \sigma_j(t+\Delta t)}{2} \quad (3)$$

Das Kriechgesetz (2) kann beliebig gewählt werden.

Die Gleichung (1) muß iterativ gelöst werden, da die zu berechnenden Spannungen $\sigma_j(t+\Delta t)$ bereits bei der Ermittlung der Kriechdehnung durch das Kriechgesetz (2) benötigt werden. Die Durchführung dieser Iteration stellt die Hauptschwierigkeit für die Lösung dar, da bei Problemen dieser Art leicht Konvergenzschwierigkeiten mit hohem Aufwand an Rechenzeit auftreten. Im SPAR-Programm wird die Iteration über die Kriechdehnungen durchgeführt, deren Werte zur Zeit $t+\Delta t$ im 1. Iterationsschritt aus einer linearen Extrapolation der vorhandenen Werte geschätzt wird. Damit kann die Gesamtdehnung

$$\epsilon_j(t+\Delta t) = \epsilon_j \text{ (elast.-, Wärme-, Kriech-, Schwelldehnungen, Randbedingungen)} \quad (4)$$

als erste Näherung angegeben werden. Die Gleichung (4) kann über Gleichgewichts- und Verträglichkeitsbedingungen aus (1) entwickelt werden. Mit den Gesamtdehnungen $\epsilon_j(t+\Delta t)$ können die Spannungen $\sigma_j(t+\Delta t)$ berechnet werden. Damit erhält man neue mittlere Spannungen

$$\bar{\sigma}_j^{(m)} \text{ (im Interv. } \Delta t) = \frac{\sigma_j(t) + \sigma_j^{(m)}(t+\Delta t)}{2} \quad (3')$$

$m = \text{Iterationsindex}$

mit denen neue Kriechdehnungen und damit neue Gesamtdehnungen $\epsilon_j^{(m)}$ bestimmt werden können.

Die Konvergenz dieses Verfahrens ist sehr zufriedenstellend, im Mittel ist nur eine Iteration notwendig, um eine Konvergenzschranke von

$$\frac{\epsilon_j^{(m)}(t+\Delta t)}{\epsilon_j^{(m+1)}(t+\Delta t)} < 0,2 \cdot 10^{-6} \quad (5)$$

zu unterschreiten. Das Zeitintervall wird über die empirische Formel

$$\Delta t = \frac{f}{k \cdot n \cdot E \cdot \sigma_{\max}^{n-1}} \quad (6)$$

$k, n = \text{Nortonparameter} ; f \approx 1 \dots 4$

bestimmt.

Der Faktor f kann vorgegeben oder vom Programm optimal ermittelt werden, ferner wird das Zeitintervall entsprechend verkleinert, wenn die Iteration nicht konvergiert. Dies ist der Fall, wenn der Faktor f zu groß gewählt wird. Im Falle eines beliebigen Kriechgesetzes ist (6) analog zu erweitern.

2. Möglichkeiten des Programms

Die Möglichkeiten des Programms seien stichwortartig gegeben.

Spannungskriterien : Mises oder Tresca
Randbedingungen : äußerer Druck $p_a = p_a(t)$
innerer Druck $p_i = p_i(t)$
Temperaturverteilung $\vartheta = \vartheta(r, t)$
d.h. alle Randbedingungen beliebig

Berücksichtigung von : zyklischem, nicht zyklischem Betrieb } mög-
äußerer Korrosion } lich
innerer "Korrosion" }

Schwellen des Materials } z.Zt. noch
Plastizität des Materials } nicht möglich

Das SPAR-Rechenprogramm, das in der vorliegenden Version schneller als das CRASH-Programm [1] arbeitet, soll noch in zwei Punkten verbessert werden:

a) Im Programm soll wahlweise die Annahme getroffen werden können, daß die Spannungen σ_j im Zeitintervall konstant sind. Damit würde der Iterationsprozeß wegfallen. Bei genügend kleinen Intervallen ist der dabei entstehende Fehler sicherlich zu vernachlässigen, außerdem liegt der Fehler in den Dehnungen auf der sicheren Seite.

b) Bei Erreichen einer Gleichgewichtsspannungsverteilung, die sich in manchen Fällen sehr rasch einstellt, reicht die Beschreibung eines einzigen Raumpunktes aus, da

$$\sigma_j(r, t) \sim \sigma_j(r, t + \Delta t)$$

ist.

Mit dieser Methode wird eine erhebliche Rechenzeitverkürzung angestrebt.

3. Durchgeführte Untersuchungen

Das SPAR-Rechenprogramm wurde bereits zur Untersuchung folgender Probleme eingesetzt:

- a) Auswirkung einer thermischen Wechselbeanspruchung auf die Auslegung eines Brennstabhüllrohrs [2]
- b) Auswirkungen von Reaktionszonen infolge chemischer Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle auf die Hüllrohrmechanik [3]
- c) Abschätzung zum Kriechverhalten von Hülle und Brennstoff [3]. Hierzu wurde die SPAR-Version RELAX (Spannungsrelaxation im Brennelement) entwickelt
- d) Einfluß von anisotropen Materialeigenschaften (herstellungsbedingt oder durch Dehnungsverfestigung hervorgerufen) auf das Hüllrohrverhalten [3]

4. SPAR-Allgemein

Im Zusammenhang mit dem SPAR-Programm ist ein Programmsystem SPAR-Allgemein entstanden, das es gestattet, sämtliche Eigenschaften und Effekte eines Brennstabes (z.B. Schwellraten) in beliebiger radialer Abhängigkeit im Rahmen eines Differenzenverfahrens theoretisch exakt zu berücksichtigen. Damit ist im Prinzip die

Möglichkeit gegeben, das Brennstabverhalten unter Berücksichtigung von Spaltbildung und Entstehung von Rissen sowie sonstigen Effekten zu untersuchen. Für die sehr umfangreiche formale analytische Behandlung wurde ein Rechenprogramm in der FORMAC-Sprache [4] geschrieben. Die Grundstruktur des Programmsystems ist ausgetestet, an Ergänzungen wird noch gearbeitet.

Literatur:

- [1] M. Guyette, CRASH-programme, KFK-1050
- [2] E. Schnabel, Studienarbeit am Institut für Reaktortechnik, THD, 1970
- [3] K. Laßmann, Veröffentlichung demnächst
- [4] User's preliminary reference manual for the experimental FORMula MANipulation Compiler, IBM, 1964

XIII. Zum Kriechbeulverhalten von Brennstabhüllrohren
unter Außendruck

von

K. Laßmann

Inhalt:

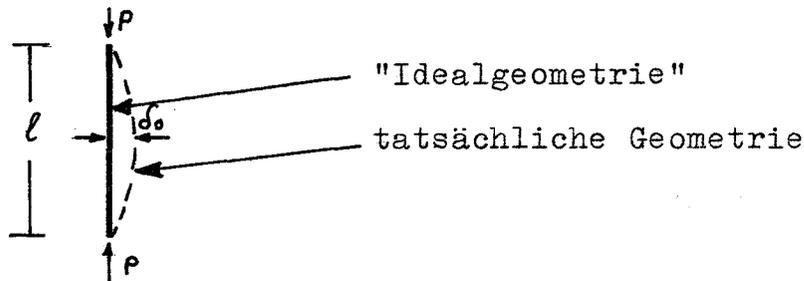
1. Einleitung
2. Hoff'sche Theorie
3. Fehlerabschätzung zur Hoff'schen Theorie
 - 3.1 Auswirkung von fehlerbehafteten Eingangsgrößen
 - 3.2 Berücksichtigung von elastischen und plastischen Verformungen
 - 3.3 Berücksichtigung von Primärkriechen sowie beliebigem Kriechgesetz
 - 3.4 Auswirkungen der Annahme über die Geometrie
4. Einfluß von radialen Temperaturgradienten, Rippen, Exzentrizität und Stützwirkung des Brennstoffs

1. Einleitung

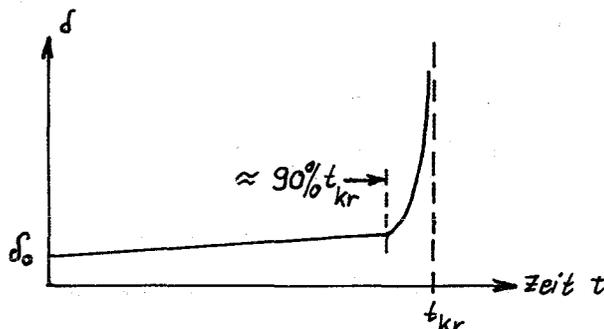
Begrifflich fällt das Kriechbeulverhalten von Brennstabhüllrohren unter Außendruck in das Gebiet der Stabilitätsprobleme, genauer in das Gebiet der Kriechstabilität. Darunter versteht man, daß durch eine beliebig kleine Kraft in einer Struktur eine Deformationsgeschwindigkeit $\dot{\delta}$ hervorgerufen wird, die im Falle der Kriechinstabilität nach einer gewissen Zeit, die als kritische Zeit t_k bezeichnet wird, gegen unendlich strebt. Im Gegensatz zur bekannten elastischen Instabilität, bei der eine kritische Last P_k eine Rolle spielt, ist also hierbei die kritische Zeit die zu betrachtende Größe.

Für die Untersuchung der Kriechinstabilität für ein Rohr unter konstantem Außendruck geht man davon aus, daß Abweichungen von der idealen Kreisgeometrie aus Herstellungsgründen stets vorhanden sind. Dadurch wird der Querschnitt durch Biegemomente belastet, die die Krümmung über Kriechvorgänge vergrößern und damit wiederum die Biegemomente anwachsen lassen.

Als Beispiel diene ein Stab:



Der Verlauf der Auslenkung beim Stab bzw. der Ovalität des Rohres wird wegen der extremen Nichtlinearität der Kriechgesetze folgenden qualitativen Verlauf haben:



Eine Folge der Nichtlinearität ist die Tatsache, daß bis zu $\approx 90\%$ der kritischen Zeit t_{kr} nur sehr geringe Abweichungen von der Anfangsauslenkung auftreten.

Ein zweites Konzept der Untersuchung der Stabilität geht von der idealen Kreisgeometrie aus. Dabei werden zum vorhandenen Kriechprozeß Störungen $\delta\sigma$, $\delta\epsilon$ und $\delta\dot{\epsilon}$ aufgebracht, deren Auswirkungen auf das Stabilitätsverhalten untersucht werden [1, 2]. Darauf soll hier nicht näher eingegangen werden.

Die Schwierigkeiten in der Berechnung des Kriechbeulvorgangs für ein Hüllrohr liegen in der Nichtlinearität der Spannungsverteilung und dem daraus resultierenden Verschiebungsfeld bei nichtidealer (d.h. hier radialsymmetrischer) Geometrie. In der Theorie zum CRASH-Programm [3] konnte das Problem deshalb gelöst werden, weil alle Verträglichkeitsbedingungen durch eine einzige Variable, nämlich der radialen Verschiebung formuliert werden konnten.

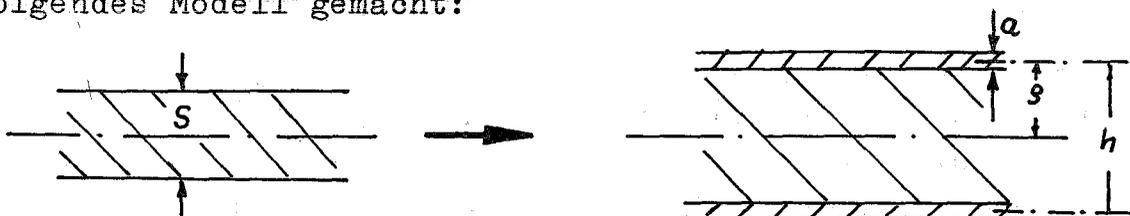
Zwei Modelle zur Spannungsverteilung können noch relativ einfach behandelt werden:

- a) Annahme einer linearen Spannungsverteilung (Ellington [4])
- b) Sandwich-Konzept (Hoff [5])

Da die Hoff'sche Theorie zur Auswertung von Versuchen herangezogen wird [6, 7], soll an Hand dieser Arbeit aus dem Jahre 1959 diskutiert werden, welche Voraussagen über Verformungen und kritische Einbeulzeiten zu erwarten sind.

2. Hoff'sche Theorie

Zunächst sei die erste Voraussetzung nach Hoff, das Sandwichprinzip, dargestellt. Von der tatsächlichen Struktur wird folgendes Modell gemacht:



tatsächliche Struktur
S = Wandstärke

Sandwichmodell
a, s = Modellparameter

Das Sandwich bestehe aus zwei äußeren Schichten, die nur Membranspannungen übertragen können, die mittlere Schicht nimmt keine Normalspannungen auf und hat gegen Scherung einen unendlich großen Widerstand. Ueber die Modellparameter a und s kann man

zunächst noch frei verfügen. Sie sollen aus zwei Forderungen getrennt voneinander bestimmt werden [8], obwohl auch andere Wege denkbar sind. Die erste Forderung lautet: Die Verlängerung von tatsächlicher Struktur und Sandwichmodell soll bei gleicher Zugbeanspruchung gleich sein. Daraus erhält man unmittelbar

$$a = \frac{S}{2} \quad (1)$$

Die zweite Forderung lautet: Bei gleichem Biegemoment soll die Absenkung in der Struktur und im Modell gleich sein. Berücksichtigt man Kriechvorgänge nach dem Norton'schen Gesetz, dann erhält man

$$S = \frac{S}{2} \left(\frac{n}{2n+1} \right)^{\frac{n}{n+1}} \quad (2)$$

n = Nortonparameter

betrachtet man nur rein elastische Absenkungen, dann gilt

$$S = \frac{S}{\sqrt{12}} \quad (3)$$

Hoff verwendet die Gleichung (3), die Auswirkungen der theoretisch besser begründeten Formel (2) werden im folgenden untersucht.

Das Sandwich-Konzept hat sich nach Samuelson [9, 10] als ein sehr guter Ersatz für die tatsächliche Vollwand des Rohres bewährt, so daß angenommen werden kann, daß diese Annahme vernünftig ist. Weitere Annahmen sind:

- b) Das Rohr sei unendlich lang und von konstanter Wandstärke. Belastung erfolgt durch gleichmäßigen Außendruck.
- c) Es wird ein ebener Verzerrungszustand angenommen.
- d) Es gilt die Invariantentheorie nach Odqvist [11], d.h. die Erweiterung des Norton'schen Gesetzes auf mehraxialen Spannungszustand (nach Mises). Elastische und plastische Verformungen, sowie Primärkriechen werden nicht berücksichtigt.
- e) Sowohl die Anfangsgeometrie als auch die Geometrie während der Verformung lassen sich durch einen Ansatz der Form

$$R = R_m (1 + \alpha(t) \cos 2\varphi) \quad (4)$$

R_m = mittlerer Radius

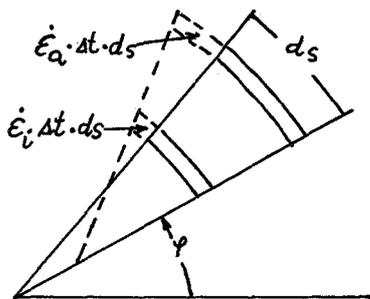
(Beulform 1. Ordnung) beschreiben. Die Konsequenzen dieser Annahme werden noch aufgezeigt.

Alle Betrachtungen von Hoff gelten nur für

$$\alpha \ll 1 \quad (5)$$

Diese Forderung ist natürlich nicht mehr erfüllt, wenn die Hoff'sche Theorie benutzt wird, um vollständiges Kollabieren der Rohrprobe zu berechnen. Die Auswirkungen der dann falschen Rechnung sind jedoch deshalb gering, weil die Voraussetzung (5) bis 90 % der kritischen Zeit t_{kr} gut erfüllt wird. Bei $\alpha = 1$ (vollständiges Kollabieren) hätte sich der Umfang der Probe nach (4) bei gleichbleibender Wandstärke nahezu verdoppelt, obwohl das Volumen konstant bleiben sollte.

Aus (4) läßt sich nach den Regeln der Differentialgeometrie die Krümmungsgeschwindigkeit $\dot{\alpha}$ als Funktion von $\alpha(t)$, das vorerst noch unbekannt ist, bestimmen. Durch Gleichgewichts-betrachtungen lassen sich an jeder Stelle φ des Quadranten Kräfte und Momente angeben (bei Hoff näherungsweise), aus denen in folgender Weise über Kriechgeschwindigkeiten $\dot{\epsilon}$ Krümmungsänderungen bestimmt werden können:



Es gilt angenähert

$$\Delta \alpha \approx \frac{\Delta t}{h} (\dot{\epsilon}_i - \dot{\epsilon}_a) \quad (6)$$

Wäre die exakte Form des deformierten Quadranten bekannt, dann müßten Krümmungsänderungsgeschwindigkeit aus Differentialgeometrie $\dot{\alpha}_g$ und Krümmungsänderungsgeschwindigkeit durch Kriechen $\dot{\alpha}_c$ übereinstimmen

$$\dot{\alpha}_g = \dot{\alpha}_c \quad (7)$$

Wegen der Annahme (4) ist das nicht erfüllt. Hoff bestimmt $\alpha(t)$ in der Weise, daß

$$\int_0^{\frac{\pi}{4}} (\dot{\alpha}_g - \dot{\alpha}_c) d\varphi = 0 \quad (8)$$

wird. Das Verfahren wird Kollokationsverfahren genannt. Man erhält als Lösung folgende Differentialgleichung

$$\dot{X} = \frac{X}{T} \left\{ 1 + \frac{(n-1)(n-2)}{1^2 \cdot 3^2} X^2 + \frac{(n-1)(n-2)(n-3)(n-4)}{1^2 \cdot 3^2 \cdot 5^2} X^4 + \dots \right\} \quad (9)$$

mit

$$\tilde{T}^{-1} = \frac{n \cdot k}{3} \left(\frac{p \cdot R_m}{s} \right)^n \left(\frac{R_m}{g} \right)^2$$

$$X = \frac{\alpha(t) \cdot R_m}{g} \quad \text{Bezeichn. s. Liste der Symbole}$$

Zur Lösung dieser Differentialgleichung sind Programme vorhanden [6, 12, 13]. Während [12] keinen Spaltgasdruckaufbau und Korrosionsabtrag berücksichtigt, kann im Programm BEULEO [13] der Einbeulvorgang unter Berücksichtigung des zeitlich veränderlichen Spaltgasdruckes und der zeitlich veränderlichen Wandstärke infolge von äußerer Korrosion berechnet werden. Da die Hoff'sche Differentialgleichung nur für ganzzahlige n-Werte gilt, wurde sie in [13] auch für nichtganzzahlige n-Werte umgeschrieben. Im Rechenprogramm nach [12] werden nichtganzzahlige n-Werte in folgender Weise auf ganzzahlige n-Werte umgerechnet

$$\dot{\epsilon} = k \cdot \sigma^n = k^* \cdot \sigma^{n_{\text{ganzzahlig}}} \quad (10)$$

Die Zulässigkeit dieser Methode wird wegen der sich ändernden Spannung im folgenden noch betrachtet werden müssen.

3. Fehlerabschätzungen zur Hoff'schen Theorie

3.1 Auswirkungen von fehlerbehafteten Eingangsgrößen

Die folgenden Untersuchungen sollen nun zeigen, welche Standzeiten nach der Hoff'schen Theorie erwartet werden können. Als geometrische Parameter wurden folgende Werte gewählt:

Anfangsovalität	=	$D_{\max} - D_{\min} = 4 - 10 \mu$
Innenradius r_i	=	3,1 mm
Außenradius r_a	=	3,5 mm

Große Sorgfalt muß bei der Wahl der Werkstoffparameter angewendet werden. Als Unterlage für diese Untersuchung dienten mehraxiale Messungen an Rohren aus Incoloy 800 bei 700 °C [14], die mit dem SPAR-Programm [15] nachgerechnet wurden. Als Nortonparameter erhält man für den Spannungsbereich $\sigma_v \approx 6 \dots 9 \text{ kp/mm}^2$ und für

$$\begin{aligned} 100 \text{ h} < t < 500 \text{ h} \\ n &= 7,1 \pm 3 \% \\ k &= 2,5 \cdot 10^{-10} \pm 30 \% \quad (\text{Annahme 1}) \end{aligned}$$

Nach [16] ist das Zeitstandverhalten von Incoloy 800 stabil, so daß auch eine Extrapolation auf Standzeiten von 20 000 h (d.h. Extrapolationsfaktor = 40!) gewagt werden kann. Exemplarisch soll in einer zusätzlichen Untersuchung angenommen werden, daß sich die Kriecheigenschaften in folgender Weise ändern:

$$\begin{aligned} n^{\#} &= n \pm 10\% \\ k^{\#} &= f \cdot k ; \quad f = 0.1 ; 10 \end{aligned} \quad (\text{Annahme 2})$$

In Abb.1 sind Ergebnisse der Hoff'schen Theorie eingetragen. Während für $n = 7,1$ und $k = 2,5 \cdot 10^{-10}$ die Unsicherheit der Ovalität ($4\mu \dots 10\mu$) den Faktor

$$F = \frac{\text{obere Grenze der kritischen Zeit}}{\text{untere Grenze der kritischen Zeit}} = 1,3$$

bewirkt, sind die Auswirkungen der Ungenauigkeit der Kriechparameter sehr viel größer.

Nach Annahme 1 wird $F = 4$, nach Annahme 2 erhält man $F \approx 500$. Das eingezeichnete Fehlerband ist eine Abschätzung für den Fall, daß Annahme 1 bis 500 h gültig ist und Annahme 2 ab 20 000 h realistisch sei. Aus der Abb.2 sieht man diese Werte noch einmal von einem anderen Standpunkt: Sind die Kriechparameter gut bekannt (Annahme 1), ist ferner das Werkstoffverhalten stabil, so ergibt die Extrapolation, daß das Kollabieren des Rohrs nach 20 000 h bei einem Druck von 35 at $\pm 11\%$ eintritt. Gilt die Annahme 2, dann vergrößert sich der Fehler auf 35 at $\pm 32\%$.

Die berechneten zulässigen Drücke nach Hoff sind also mit einer beträchtlichen Unsicherheit behaftet. Der Vergleich mit Theorien nach Ellington [4] und Malmberg [17] zeigt jedoch, daß Abweichungen gegenüber Hoff weniger als den Faktor 2 betragen. Hieraus kann der Schluß gezogen werden, daß Kriechbeultheorien so gut übereinstimmen, daß Unterschiede durch Ungenauigkeit im Werkstoffverhalten bei weitem überdeckt werden.

Zwei schon erwähnte Angaben müssen noch diskutiert werden:

- a) die Auswirkung von Gleichung (2), Abhängigkeit des Sandwichparameters ξ vom Kriechverhalten. Bei Berücksichtigung von (2) tritt eine Vergrößerung der Standzeit gegenüber Hoff von 30 % ein, sie fällt also nicht ins Gewicht.
- b) Die Umrechnung von nichtganzzahligem n -Wert in einen ganzzahligen nach [12] hat einen Fehler von < 5 % in der Standzeit zur Folge, d.h. also daß dieser Trick vernünftig ist.

3.2 Berücksichtigung von elastischen und plastischen Verformungen

Die Hoff'sche Theorie liefert für $t_{kr} \rightarrow 0$ $\Delta p \rightarrow \infty$, ohne das Phänomen des elastischen oder elastisch-plastischen Einbeulens erfassen zu können. Der kritische, rein elastische Einbeuldruck p_{kr}^{el} beträgt [18]

$$p_{kr}^{el} = \frac{E}{4(1-\nu^2)} \left(\frac{s}{R_m} \right)^3 = 625 \text{ at für vorliegenden Fall} \quad (11)$$

Man kann zeigen, daß an Stelle einer exakten Berücksichtigung der elastischen Verformungen eine Korrektur der Ausgangsgeometrie in folgender Weise vorgenommen werden kann:

$$X^* = X \cdot \frac{1}{1 - \frac{p}{p_{kr}^{el}}} \quad (12)$$

X : vorhandene Ovalität
 X^* : korrigierte Ovalität
 p : Druck

Die Auswirkungen dieser elastischen Korrektur betreffen für das vorliegende Beispiel Drücke $p > 300$ at, d.h. Einbeulzeiten $< 10^{-2}$ h, d.h. das elastische Verhalten braucht nicht berücksichtigt zu werden. Etwas anders verhält es sich mit plastischen Anfangsverformungen. Dafür gibt Corum [19] ein Verfahren an, das durch Versuche recht gut bestätigt wird, das jedoch nicht näher beschrieben werden soll.

Anschaulich kann man sich etwa folgendes vorstellen: Durch die Abnahme von $\frac{dG}{dE} = E^*$ wird die Neigung zu instabilem Verhalten sehr stark wachsen. Größenordnungsmäßig läßt sich analog zum elastischen Beuldruck ein überelastischer kritischer Beuldruck angeben, der im vorliegenden Fall etwa $1/3$ des elastischen Beuldrucks beträgt. Die Trennung von Kriechbeulen und überelastischem Beulverhalten läßt sich hierbei nicht mehr durchführen. Man kann jedoch folgendes sagen: Die Kriechversuche können durch die angegebenen Nortonparameter beschrieben werden ($100 < t < 500$ h), die im plastischen Bereich sicherlich nicht mehr gelten. Die Korrektur des elastischen-plastischen Gesamtverhaltens läßt sich analog zum rein elastischen Verfahren durchführen und bringt folgende Ergebnisse: Bei Drücken > 80 at, d.h. Zeiten $t < 100$ h, ist dieser Einfluß zu berücksichtigen, der Gültigkeitsbereich der Hoff'schen Theorie beginnt erst nach 100 h. Meßwerte zur Ueberprüfung der Hoff'schen Theorie sollten also für Incoloy 800 erst ab ≈ 100 h herangezogen werden.

3.3 Berücksichtigung von Primärkriechen, sowie beliebigem Kriechgesetz

Spielen in dem betrachteten Werkstoff Ausscheidungsvorgänge eine Rolle, dann wird man ein Abknicken der Zeitstandkurve beobachten. Die Anwendung der Hoff'schen Theorie mit konstanten Nortonparametern ist dann nicht mehr zulässig, sie führt dann auf die schon genannten Unsicherheiten um den Faktor 100 oder mehr in der Standzeit.

Um diesen Nachteil zu beseitigen, wurde die Hoff'sche Theorie mit dem Ziel umgearbeitet [13], daß jedes beliebige Kriechgesetz, also z.B. auch zeitabhängige Nortonparameter, Grundlage der Rechnung sein kann (BEULE1). Gleichzeitig wurden in diesen Rechnungen einige Annahmen von Hoff überprüft und einzelne Berechnungsteile (z.B. Berechnung der Momente) genauer durchgeführt. Im einzelnen soll das nicht diskutiert werden, die Hoff'schen Annahmen erweisen sich als vernünftig.

3.4 Auswirkung der Annahme über die Geometrie

Der sehr große Nachteil der Hoff'schen Theorie besteht in der Annahme, daß die Geometrie des Rohres stets durch

$$R = R_m (1 + \alpha(t) \cos 2\varphi) \quad (4)$$

beschrieben werden kann. Dieser Nachteil wurde durch eine rein numerische Behandlung unter Verwendung des Sandwichmodells vermieden [20, 21, 22].

Dabei wird die tatsächliche Rohrgeometrie durch einen Polygonzug angenähert und in jedem der dabei entstehenden Elemente Momente, Normalkräfte sowie Dehnungen jedes Elementes berechnet. Die Ermittlung der Geometrie nach der Verformung kann wie in [20, 21] über die Krümmungsänderungen $\Delta \kappa$ oder direkt durch Zusammenfügen der Elemente [22] ermittelt werden. Die Theorie [20, 21] liefert im Vergleich zu Hoff Standzeiterhöhungen von 20 - 30 %, die Theorie nach [22] kleinere Standzeiten als Hoff. Der Unterschied zwischen [20, 21] und [22] liegt in der Berücksichtigung der tangentialen Verschiebung in [22], die bei [20, 21] und bei Hoff nicht erfasst wird. Mit [22] kann das Kriechbeulverhalten einer Hülle mit beliebig variabler Wandstärke untersucht werden.

4. Einfluß von radialen Temperaturgradienten, Rippen, Exzentrizität und Stützwirkung des Brennstoffs

Durch keine bisher veröffentlichte Kriechbeultheorie kann der Einfluß von radialen Temperaturgradienten, Rippen, Exzentrizität und Stützwirkung des Brennstoffs behandelt werden. Abschätzungen zeigen, daß weder der Einfluß des radialen Temperaturgradienten, noch der Einfluß von Rippen sehr wesentliche Verschiebungen der Standzeit bewirken werden. Die Frage der Exzentrizität, also der Schwankung der Wandstärke wird in [22] untersucht. Zum Einfluß der Stützwirkung des Brennstoffs können vor-

erst ebenfalls keine Angaben gemacht werden. Viel schwieriger als die theoretische Berücksichtigung dieses Effektes auf das Kriechbeulverhalten wird jedoch die zahlenmäßige Angabe der zu erwartenden Stützwirkung sein.

Liste der verwendeten Symbole

a	:	Modellparameter des Sandwichs [mm]
ds	:	Bogenlänge eines Segmentes
E	:	Elastizitätsmodul [kp/mm ²]
F	:	Faktor
h	:	Modellparameter des Sandwichs [mm]
k	:	Nortonparameter
n	:	Nortonparameter
p	:	Druck [at]
R	:	Radius [mm]
S	:	Wandstärke des Rohrs [mm]
t _{kr}	:	kritische Zeit [h]
X	:	Ovalität
α	:	Formfaktor
δ	:	Auslenkung [%]
ε	:	Dehnung [%]
ε̇	:	Dehnungsgeschwindigkeit [%/h]
α	:	Krümmung [mm ⁻¹]
ν	:	Querkontraktionszahl
β	:	Modellparameter des Sandwichs [mm]
σ	:	Spannung [kp/mm ²]
τ	:	Hoff-Konstante
φ	:	Winkelkoordinate

Indizes :

a	:	außen	g	:	geometrisch
c	:	kriech	i	:	innen
el	:	elastisch	m	:	mittlerer

Literaturverzeichnis

- [1] W.E.Jahsman, Creep stability of a column with coupled geometric imperfection and material behavior effects. Second IUTAM Symposium on creep in structures, Gothenburg (1970)
- [2] C. Libove, Creep-buckling analysis of rectangular-section columns. NACA 2956 (1953)
- [3] M.Guyette, CRASH: a computer program for the analysis of creep and plasticity in fuel pin sheats. KFK Report 1050 (1969)
- [4] J.P.Ellington, Creep collapse of tubes under external pressure. DFG-Report 162 (R), (1960)
- [5] N.J.Hoff et al., A study of creep collapse of a long circular cylindrical shell under uniform external pressure. J. Aerospace Sciences (1959), p. 663
- [6] E.Glucker, E.Passig, J.Höchel, Kriechbeulen von Brennelement-Hüllrohren. Nuc. Eng. Design 7 (1968), p. 236-248
- [7] H. Kaupa, private Mitteilung
- [8] Yu.N. Rabotnow, Creep problems in structural members. North-Holland Publishing Company, Amsterdam/London
- [9] L.A.Samuelson, Creep deformation and buckling of a circular cylindrical shell under axial compression. FFA Report No.108, (1967)
- [10] L.A.Samuelson, Creep buckling of a circular cylindrical shell. AIAA Journal Vol.7, No.1 (Jan.1969), p. 42-49
- [11] Odqvist/Hult, Kriechfestigkeit metallischer Werkstoffe. Springer Verlag (1962)
- [12] G.Bürkle, H.Kaupa, W.Schneider, Ein Fortran-IV-Rechenprogramm zur Vorausbestimmung des Kriechbeulverhaltens dünnwandiger Rohre. Kernforschungszentrum Karlsruhe, Externer Bericht 6/70-1 (1970)
- [13] G.Neubrech, Diplomarbeit am Institut für Reaktortechnik der Technischen Hochschule Darmstadt (1970)
- [14] Cloß/Schäfer, Untersuchungen über das Zeitstand- und Kriechverhalten von Hüllrohrproben mit und ohne Bestrahlung. International Meeting on fast reactor fuel and fuel elements, Karlsruhe (1970)
- [15] K.Laßmann, SPAR, ein Computer-Programm zur Spannungsberechnung in einem rennelementhüllrohr. Unveröffentlicht
- [16] Cloß, private Mitteilung

- [17] T.Malmberg, private Mitteilung
- [18] S.P.Timoshenko und J.M. Gere, Theory of Elastic Stability, McGraw Hill, New York, 1961
- [19] J.M. Corum, An investigation of the instantaneous and creep buckling of initially out-of-round tubes subjected to external pressure. ORNL-3299 Report (1963)
- [20] W. Kruse, Diplomarbeit am Institut für Reaktortechnik der Technischen Hochschule Darmstadt (1970)
- [21] G. Stern, Diplomarbeit am Institut für Reaktortechnik der Technischen Hochschule Darmstadt (1970)
- [22] K.Laßmann, Zum Kriechbeulverhalten einer Brennstabhülle mit variabler Wandstärke, demnächst

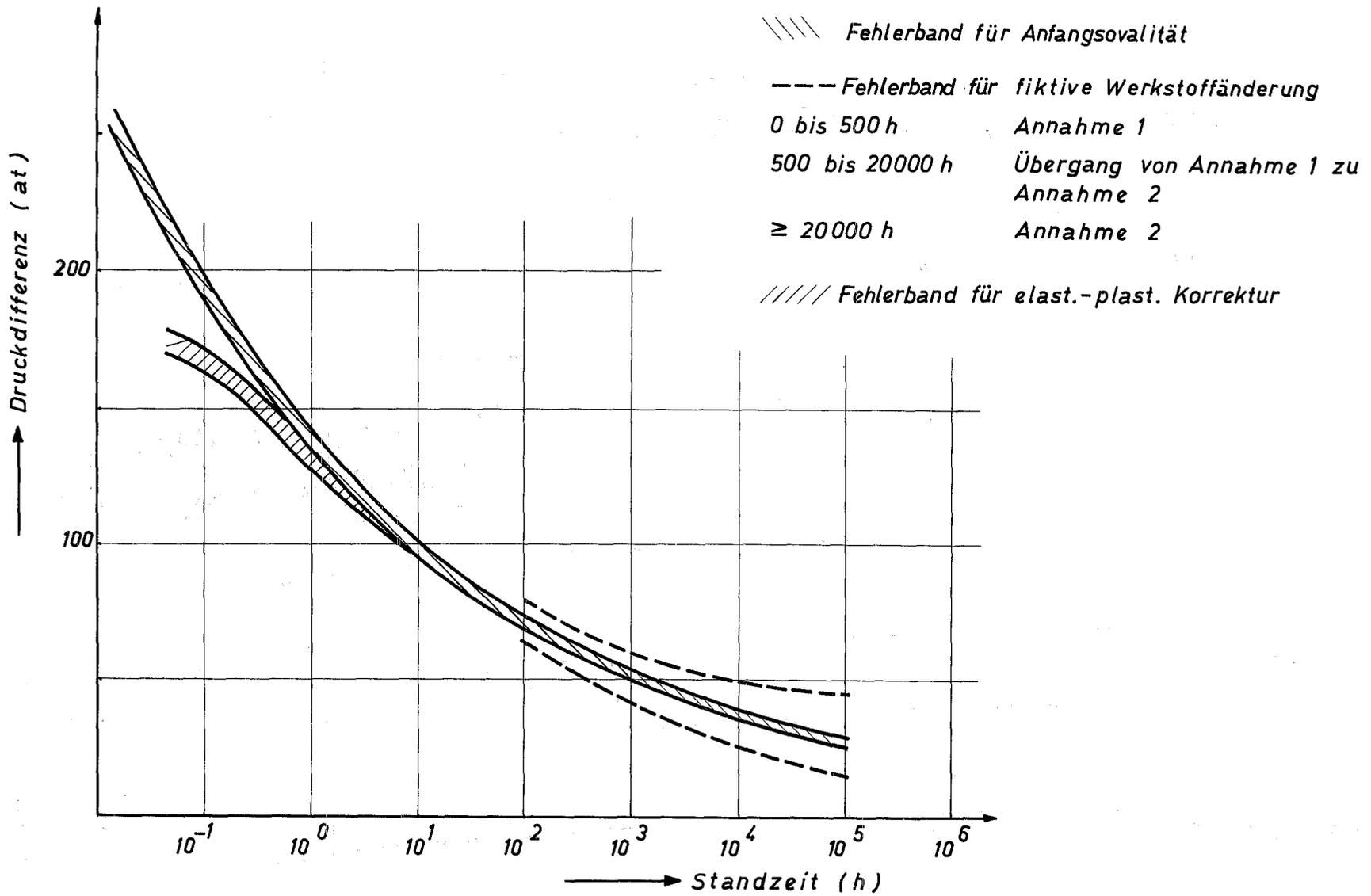


Abb.1 Einfluß von Unsicherheiten auf die Kriechbeulstandzeit für Incoloy 800 bei 700°C

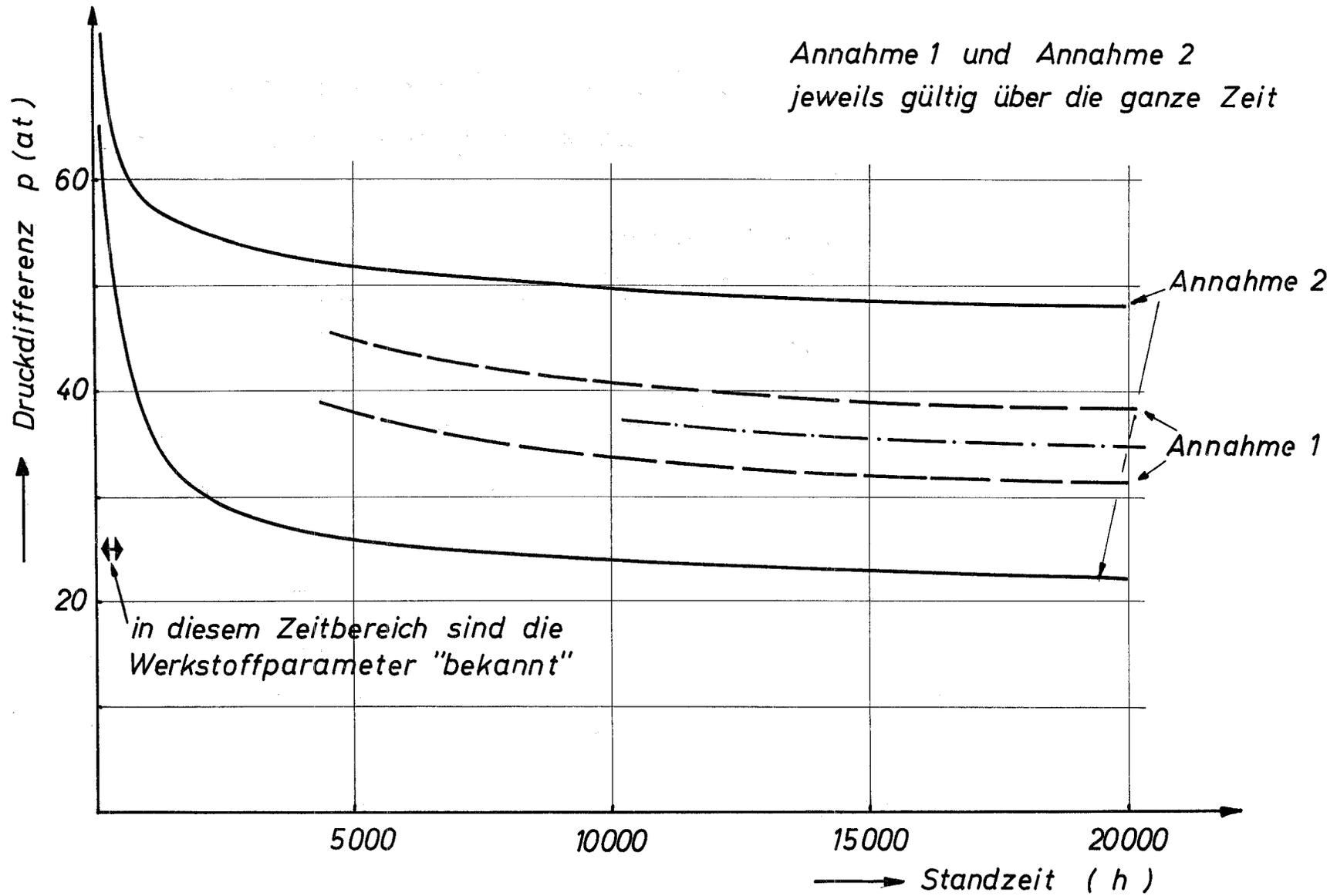


Abb. 2 Einfluß von Werkstoffänderungen auf die Kriechbeul-
standzeit

XIV. Rechenprogramme zur Berechnung der Temperaturverteilung
und der Brennstoffverdichtung

von

F. Caligara

Inhalt:

1. Berechnung der Wärmedurchgangszahl mit dem Rechenprogramm E2BST.
2. Berechnung der zeitlichen Änderung der radialen Porositäts- und Temperaturverteilung mit dem Rechenprogramm E3BST.

1. Berechnung der Wärmedurchgangszahl mit dem Rechenprogramm E2BST

Das Rechenprogramm E2BST ermöglicht die Berechnung der radialen Temperaturverteilung und der radialen Porositätsverteilung für den asymptotischen Endzustand.

Der Code setzt voraus, daß der Brennstabquerschnitt aus drei Zonen besteht, dem Zentralloch, der Stengelkristallzone und dem äußeren kalten Ring. Dabei wird angenommen, daß sich diese Anordnung zeitlich nicht mehr ändert. Die Aufgabe besteht darin, das Dichte- und das Temperaturprofil für verschiedene axiale Schnitte zu berechnen, die sich bei vorgegebener Stableistung und Kühlmitteltemperatur einstellen werden. Dazu werden zunächst für verschiedene angenommene Werte der Wärmedurchgangszahl die radialen Temperaturprofile ermittelt. Dabei werden folgende Voraussetzungen gemacht:

- a) Die Wärmeleitfähigkeit λ des Hüllmaterials ist durch $\lambda(T) = a + bT$ ($T = \text{Temperatur}$) gegeben.
- b) Die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs (U,Pu-Oxid mit 20 % Pu) ist durch folgenden Ausdruck gegeben:

$$\lambda(T) = (A + B T)^{-1} + C T + D T^E \quad \left(\frac{\text{W}}{\text{cm} \cdot ^\circ\text{C}} \right) \quad (1)$$

wobei A, B, C, D, E von der Brennstoffzusammensetzung abhängen. T in $^\circ\text{K}$.

Dabei wurden die folgenden in unserem Laboratorium [1] an nicht bestrahlten Materialien ermittelten Daten eingesetzt:

$$A = 9,6; B = 0,026; C = 6,74 \cdot 10^{-6}; D = 5,44 \cdot 10^{-3}; E = 0$$

- c) Die Variation der Wärmeleitfähigkeit mit der Porosität wird durch ein Gesetz der Form [2]:

$$\lambda_p = \lambda_o (1 - P^{2/3}) \quad (2)$$

beschrieben, wobei P die Porosität bedeutet. Die tatsächliche Porosität in jeder Zone hängt ab von der Fabrikationsporosität und von der Verdichtung, die im Verlauf der Bestrahlung eintritt. Die Porositätsverteilung ist zeit- und radiusabhängig.

- d) Die Wärmequellendichte ist der Dichte proportional, d.h. es wird vorausgesetzt, daß ein schneller Fluß vorliegt. Nach längerer Zeit stellt sich eine asymptotische radiale Endverteilung ein, die durch die folgende Gleichung gegeben ist:

$$P(r) \cdot v(r) \cdot 2\tilde{\pi}r = 0 \quad (3)$$

wobei P = Porosität, v = Porengeschwindigkeit.

$v(r)$ wurde mit Hilfe der von Nichols [3] angegebenen Formel berechnet:

$$v \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = A \cdot \exp(-B/T \text{ (}^\circ\text{K)}) \cdot T^{-1,5} \text{ (}^\circ\text{K)} \cdot \frac{dT}{dr} \left(\frac{^\circ\text{K}}{\text{cm}} \right) \cdot p^{-1} \text{ (atm)} \quad (4)$$

wobei p = Gasdruck in Poren und für UO_2 $A = 5,51 \cdot 10^9$; $B = 7,17 \cdot 10^4$.

Das Dichte- und das Temperaturprofil werden in einem iterativen Verfahren ermittelt. Zunächst wird T überall gleich der äußeren Hülltemperatur und P überall gleich der Fabrikationsporosität gesetzt. Mit Hilfe von (1) und (2) werden dann, unter Annahme konstanter Wärmequellendichte über den ganzen Radius, $\lambda(r)$ und $T(r)$ berechnet. Mit dem so gewonnenen Temperaturprofil läßt sich dann $P(r)$ mittels der Ausdrücke (4) und (3) bestimmen, was zu einer neuen Quellendichteverteilung und zu einer neuen $P(r)$ -Verteilung führt. Damit wird dann wieder ein Temperaturprofil bestimmt und so weiter, bis schließlich $T(r)$ konvergiert.

Bricht man die Rechnung bei Unterschieden in der Zentraltemperatur von weniger als 2° ab, so genügen auf diesem Wege vier bis acht Iterationsschritte.

2. Berechnung der zeitlichen Änderung der radialen Porositäts- und Temperaturverteilung mit dem Rechenprogramm E2BST

Um Dichteänderungen über den Brennstabquerschnitt zu Beginn des Reaktoreinsatzes zu berechnen, wurde ein Computer-Code, E2BST, entwickelt. Dabei wird davon ausgegangen, daß die Verdichtung durch Wanderung der Fabrikationsporen gegen den Temperaturgradienten erfolgt.

Von fundamentaler Bedeutung für diese Betrachtungen ist die Kenntnis des Temperaturprofils, das, wie oben beschrieben, mit dem Code E2BST ermittelt wurde, mit den gleichen Annahmen über die Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von Porosität und Temperatur.

Der Temperaturabfall ΔT im Spalt zwischen Hülle und Brennstoff wurde gemäß folgender Beziehung [2] bestimmt:

$$\delta = \frac{C_c T_I^{s+1} \left(\left(1 + \frac{\Delta T}{T_I} \right)^{s+1} - 1 \right)}{\frac{\lambda}{2\pi r_I} - C_R T_I^4 \left(\left(1 + \frac{\Delta T}{T_I} \right)^4 - 1 \right)} \quad (5)$$

wobei δ = Spaltweite; T_I = Hüllinnentemperatur; r_I = Hüllinnenradius; λ = Stableistung; C_c , s = Konstanten, die vom Gas im Spalt abhängen und C_R eine vom Emissionsvermögen der Oberflächen abhängige Konstante ist.

Die Spaltweite δ wird in einem Iterationsverfahren berechnet, wobei die thermische Ausdehnung von Brennstoff und Hülle sowie das Temperaturprofil berücksichtigt werden.

Zunächst wurde versucht, die zeitliche Veränderung des Dichteprofiles durch Lösen der Differentialgleichung

$$\frac{\delta P}{\delta t} \cdot 2\pi r = \frac{\delta Q}{\delta r} \quad (6)$$

zu ermitteln, wo $P(r, t)$ die Porosität und $Q(r, t)$ der den gesamten Radius r überschreitende und nach innen gerichtete Porenfluß sind, wobei beide Funktionen von Ort und Zeit sind. $Q(r, t)$ ist dabei folgendermaßen definiert

$$Q(r, t) = 2\pi r \cdot P(r, t) \cdot v(r, t) \quad (7)$$

mit $v(r, t)$, der Wanderungsgeschwindigkeit der Poren.

Für $P(r, t)$ wurde die folgende Form angenommen:

$$P = a(r, t) + b(r, t) t + c(r, t) t^2 \quad (8)$$

wobei a , b und c durch Iteration für jeden r -Wert bestimmt werden sollten.

Die Integration von (6), unter Berücksichtigung von (7) und (8) führt auf ein Polynom mit neun Gliedern, die sich bis zu einem Faktor 10^9 voneinander unterscheiden. Mit dem verfügbaren Computer IBM 1130 konnte dieses Problem nicht gelöst werden, da dieser nur 6 Stellen verarbeiten kann und sich die

Fehler bei aufeinanderfolgenden Iterationen in zu starkem Maße addierten. Eine andere Schwierigkeit resultiert aus der Tatsache, daß (6) bei $r = 0$ eine Singularität aufweist.

Wir haben das Problem dann in folgender Weise gelöst: Der Brennstabquerschnitt wird in N konzentrische Zonen unterteilt, die erste ist die Hülle, die zweite ist der Spalt und die folgenden $N-2$ sind Brennstoff-Ringzonen von ursprünglich gleicher Dicke. Es wird für die Rechnung angenommen, daß jede Zonenoberfläche für Poren aber nicht für feste Materie durchlässig ist, so daß jede Ringzone immer die gleiche Masse enthält. Die nach innen gerichtete Porenwanderung im Brennstab bewirkt, daß die äußere Zonenoberfläche nach außen wandert und zwar um einen Betrag, der durch das die Zonenoberfläche durchwandernde Porenvolumen gegeben ist. Die Dichteänderung in einem Ring entspricht dann einer Volumenänderung des Ringes selbst.

Die Berechnung der Verschiebung jeder Zonenoberfläche in einem vorgegebenen Zeitintervall \mathcal{S} erlaubt somit direkt die Berechnung des Dichteprofiles.

r_i sei der ursprüngliche Radius der Zonenoberfläche, deren Verschiebung in der Zeit \mathcal{S} wir berechnen wollen und r_i' sei ihr Radius nach Ablauf der Zeit \mathcal{S} . Weiterhin soll ein Radius r_a so gewählt werden, daß eine dort befindliche Pore innerhalb der Zeit \mathcal{S} bis zum Radius r_i' wandert, also jede Pore auf r_a erreicht r_i' zur gleichen Zeit. Das bedeutet, daß r_i' und r_a den folgenden Bedingungen genügen müssen:

$$\pi (r_i'^2 - r_i^2) = 2\pi \int_{r_i}^{r_a} P(r) r dr \quad (9)$$

$$\int_{r_i}^{r_a} \frac{1}{v(r)} dr = \mathcal{S} \quad (10)$$

wobei $P(r)$ die Porosität zu Beginn des Zeitintervalls \mathcal{S} ist und $v(r)$ die Geschwindigkeit der Poren bezeichnet.

Das obige Gleichungssystem wird durch ein Iterationsverfahren gelöst. Man beginnt mit einem beliebigen r_a , berechnet r_i' nach Gl. (9) ($P(r)$ vom vorhergehenden Schritt bekannt) und führt die Integration (10) aus. Wenn

das resultierende \mathcal{J} nicht der Eingabe entspricht, wird ein neuer r_a -Wert angenommen, bis Konvergenz erreicht wird. Wenn $r_a - r_i$ größer als $r_{i-3} - r_i$ wird, wird die Rechnung automatisch gestoppt und mit einem kleineren \mathcal{J} -Wert neu begonnen. Der innere Radius des innersten Ringes ist natürlich der Radius des Zentralloches. Die Rechnung ergab, daß die Enddichte in einer sehr dünnen Schale um das Zentralloch herum sehr gering sein mußte ($P \leq 0,7$), wodurch ihre Bedeutung in Frage gestellt wurde. In der Tat wird bei diesen hohen Porositäten die von uns verwendete Porositätskorrektur für die Wärmeleitfähigkeit nicht mehr gültig sein und Nichols Formel für die Wanderungsgeschwindigkeit ist nicht mehr anwendbar. Da diese Schale sehr dünn ist, ist dieser Fehler nicht erheblich.

Literatur:

- [1] H.E. Schmidt, F. Caligara, Reaktortagung, Berlin 20. - 22.4.1970
- [2] H. Kämpf, G. Karsten, Nucl. Appl. Techn. 9, 288, 1970
- [3] F.A. Nichols, J. Nucl. Mat. 30, 143, 1969

XV. Rechenprogramm BEMØD

von

H. Elbel

Inhalt:

1. Einleitung
2. Annahmen und Voraussetzungen
3. Berechnete Größen
 - 3.1 Temperaturverteilung
 - 3.2 Gasdruck
 - 3.3 Ausdehnung des Brennstoffes
 - 3.4 Spaltgasfreisetzung
 - 3.5 Ausdehnung der Hülle
 - 3.6 Kontaktdruck
4. Eingabedaten

1. Einleitung

Das Rechenprogramm BEMOD [1] ist dazu bestimmt, das Verhalten eines Brennstabes mit metallischem Brennstoff während der Bestrahlung zu untersuchen und eine Aussage über die Lebensdauer dieses Brennstabes zu ermöglichen.

Das Programm berechnet Spannungen und Dehnungen der Hülle zusätzlich zur Temperaturverteilung im Brennstoff, dem Druck im Gasraum, dem Druck zwischen Brennstoff und Hülle bei direktem Kontakt und der plastischen Verformung der Hülle. Dabei sind die mittlere Stableistung, die Kühlmittel-eintrittstemperatur, die Temperaturzunahme im Kühlmittel längs des Brennstabes und der Außendruck die im Rechenzeitintervall vorgegebenen Größen. Die Berechnungen werden beendet, wenn die Umhüllung eine maximale Dehnung erreicht bzw. einen Schaden erlitten hat.

2. Annahmen und Voraussetzungen

Der Brennstab hat Zylindergeometrie. Er besteht aus dem metallischen Brennstoff, der Umhüllung, einer Natriumfüllung und dem Plenum, das mit Edelgas von annähernd Atmosphärendruck gefüllt ist.

Der Brennstab wird in axialer Richtung in mehrere Zonen unterteilt. Die Berechnungen werden für jede Zone getrennt durchgeführt. Eine Kopplung der Zonen besteht indirekt durch die axiale Temperaturverteilung im Kühlmittel und durch den Druck im Plenum.

Das Schwellen des Brennstoffes während der Bestrahlung wird durch die wachsende Menge der erzeugten festen und gasförmigen Spaltprodukte hervorgerufen. Es wird angenommen, daß der Brennstoff sich dadurch nur in radialer Richtung ausdehnt, da die Ausdehnung in axialer Richtung im Vergleich dazu klein ist.

Die Spaltgasfreisetzung wird als nur von der Ausdehnung des Brennstoffes aufgrund des Schwellens abhängig angesehen.

Der Druck auf die Hülle ist entweder der Gasdruck oder der Kontaktdruck von Brennstoff und Hülle. Im ersten Fall ist der Druck für jede Zone gleich, im zweiten Fall kann er verschieden sein.

Es wird weiter angenommen, daß zwischen Brennstoff und Hülle keine Reibung auftritt.

Das Kriechen der Hülle wird als Funktion der mittleren Temperatur und der mittleren Tangentialspannung angesetzt.

3. Berechnete Größen

3.1 Temperaturverteilung

Es wird die Temperaturverteilung in radialer Richtung berechnet, ausgehend von der mittleren Kühlmitteltemperatur. Eine Wärmeleitung in axialer Richtung wird vernachlässigt.

Die Wärmeleitfähigkeit von Brennstoff und Hülle wird als lineare Funktion der Temperatur angenommen. Als Wärmeleitfähigkeit des metallischen Brennstoffes wird ein Wert eingesetzt, der der maximal auftretenden Porosität entspricht.

Da der Temperaturabfall in der Natriumzwischenschicht unbedeutend ist, wird im Programm der Wärmedurchgang durch diese Schicht mit einer vom Benutzer frei wählbaren, aber dann fest vorgegebenen Schichtdicke gerechnet. Dadurch sind im Programm die Berechnungen zur Temperaturverteilung und zum Hüllinnendruck entkoppelt.

Wie der Wärmeübergang zwischen Brennstoff und Umhüllung bei Bestehen eines Kontaktdruckes behandelt wird, wird aus dem vorliegenden Bericht nicht ersichtlich.

3.2 Gasdruck

Die Berechnung des Gasdruckes wird über ein besonders ausgewähltes Iterationsverfahren ausgeführt. Das Verfahren startet mit einem geschätzten Wert für den Gasdruck. Von diesem Druck sind das Volumen des Brennstoffes und das Hüllinnenvolumen abhängig. Die Differenz beider Volumina liefert das für Natrium und Gas zur Verfügung stehende Volumen. Von diesem wird das Volumen des Natriums abgezogen, wobei die Temperaturabhängigkeit der Dichte des Natriums berücksichtigt wird. Der Druck im verbleibenden Volumen wird mit Hilfe der Zustandsgleichung für das ideale Gas berechnet, unter Hinzufügung des Natriumdampfdruckes.

Dieser Berechnungszyklus bildet den Kern des vom Autor angewendeten speziellen Iterationsverfahrens.

3.3 Ausdehnung des Brennstoffes

Das Volumen des Brennstoffes nimmt infolge von thermischer Ausdehnung und von Schwellen zu.

Bei der Berechnung der thermischen Ausdehnung wird die Temperaturverteilung im Brennstoff berücksichtigt, während sonst nur mit der mittleren Temperatur gerechnet wird.

Der Beitrag des Schwellens wird, oberflächlich besehen, in einen Anteil, der von den festen Spaltprodukten herrührt, (nicht kompensierbares Schwellen) und einen Anteil, der von den gasförmigen Spaltprodukten herrührt, (kompensierbares Schwellen) aufgespalten. Für beide werden phänomenologische Ansätze gemacht.

Das durch feste Spaltprodukte hervorgerufene Schwellen ist im wesentlichen zum Abbrand proportional. Der gewählte Ansatz für die relative Volumenzunahme will auch den Einfluß erfassen, den kleine, nahezu inkompressible Spaltgasblasen haben.

Der übrige Teil des durch gasförmige Spaltprodukte hervorgerufenen Schwellens ist dadurch ausgezeichnet, daß er durch äußeren (hydrostatischen) Druck verringert werden kann. Er wird im wesentlichen proportional dem reziproken Wert des Gas- bzw. Kontaktdruckes angesetzt, wobei die Abbrandabhängigkeit berücksichtigt wird.

3.4 Spaltgasfreisetzung

Es wird angenommen, daß der Bruchteil des freigesetzten Spaltgases eine Funktion der relativen Volumenzunahme des Brennstoffes ist. Die Abhängigkeit wurde empirisch gefunden.

Die Spaltgasfreisetzung beginnt bei einem bestimmten Wert der Volumenzunahme, steigt bis zu einem zweiten Wert linear an und ist darüber hinaus im wesentlichen proportional zu "eins minus dem reziproken Wert der Volumenzunahme".

3.5 Ausdehnung der Hülle

Die Hülle wird näherungsweise als dünnwandig angesehen. Die elastische Dehnung, die neben der thermischen Ausdehnung, der Kriechdehnung und

der plastischen Dehnung in die Berechnung der Vergrößerung des Brennstabradius eingeht, ist dann nur von der tangentialen und der axialen Spannung abhängig.

Bei der Berechnung der plastischen Verformung wird zwischen primärem und sekundärem Kriechen unterschieden. Die Temperaturabhängigkeit des sekundären Kriechens wird durch einen Exponentialansatz beschrieben. Durch einen additiven Term wird erfaßt, daß bei niederen Temperaturen eine Erhöhung der Kriechrate unter dem Einfluß des schnellen Neutronenflusses eintritt. Die Spannungsabhängigkeit wird durch einen Potenzansatz beschrieben.

3.6 Kontaktdruck

Zur Berechnung des Kontaktdruckes zwischen Brennstoff und Hülle wird davon ausgegangen, daß das Brennstoffvolumen gleich dem inneren Volumen der Hülle ist.

Da beide Volumina in komplizierter Weise vom Druck abhängen, wird der Kontaktdruck mit Hilfe des gleichen Iterationsverfahrens bestimmt, das zur Berechnung des Spaltgasdruckes im Plenum eingesetzt wird.

Der so berechnete Wert des Kontaktdruckes wird für die Berechnungen aber nur dann weiterverwendet, wenn er den zuvor errechneten Wert des Spaltgasdruckes übersteigt.

4. Eingabedaten

Die verwendeten phänomenologischen Modelle, die im Grunde Beschreibungen von Versuchsergebnissen sind, bedingen eine große Zahl von Eingabeparametern. Die Werte dieser Parameter sind in einer Reihe von Experimenten am EBR II gewonnen worden.

Literatur:

- [1] V.Z. Jankus, "BEMOD, A Code for the Lifetime of Metallic Fuel Elements", ANL-7586 (July 1969)

XVI. Schwellen durch feste Spaltprodukte

von

H. Zimmermann

Inhalt:

1. Einleitung
2. Schwellen oxidischer Brennstoffe
 - 2.1 Verhalten der festen Spaltprodukte im Brennstoff
 - 2.2 Abschätzungen der Schwellrate
3. Schwellen karbidischer Brennstoffe
 - 3.1 Verhalten der festen Spaltprodukte im Brennstoff
 - 3.2 Abschätzungen der Schwellrate
4. Schlußfolgerungen

1. Einleitung

Dem Anteil des Brennstoffschwellens, der durch feste Spaltprodukte verursacht wird, wurde in der Literatur bisher relativ wenig Aufmerksamkeit geschenkt, obwohl ca. 85 % der entstehenden Spaltprodukte Metalle sind. Im Gegensatz zu den Spaltgasen aber, deren Schwellanteil sehr stark von den Betriebsbedingungen des Brennstoffes abhängt und damit in gewissem Grade beeinflussbar ist, ist die Schwellung durch die festen Spaltprodukte praktisch unbeeinflussbar.

Das Schicksal eines Spaltgasfragmentes, das nach der Kernspaltung in das Kristallgitter des Brennstoffes eingelagert wurde, hängt ab von seinen physikalischen und chemischen Eigenschaften und von denen des Matrixmaterials. Durch die Temperatur- und Abbrandabhängigkeit einiger dieser Eigenschaften, z.B. der Beweglichkeit der Spaltproduktatome und der Stöchiometrie des Brennstoffes, ist auch eine leichte Abhängigkeit der durch die festen Spaltprodukte bedingten Schwellrate von der Temperatur und vom Abbrand zu erwarten.

2. Schwellen oxidischer Brennstoffe

2.1 Verhalten der festen Spaltprodukte im Brennstoff

Nach ihrem wahrscheinlichen Zustand in UO_2 und $(U,Pu)O_2$ kann man die festen Spaltprodukte nach [1] einteilen in:

1. lösliche Spaltprodukte

Zr, Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd

2. nichtmetallische Einschlüsse

Sr- und Ba-Zirkonate

3. metallische Einschlüsse

Mo, Tc, Ru, Rh, Pd

4. flüchtige Elemente

Rb, Cs, J

5. Ionenverbindungen

Br, J, Se, Te

Die Seltenen Erden oxydieren normalerweise zu Se_2O_3 [2]. Diese Oxide sind thermodynamisch sehr stabil und bilden mit UO_2 feste Lösungen. Bei Mikrosondenuntersuchungen wurden die Seltenen Erden, mit Ausnahme des Ce, homogen in der Matrix verteilt gefunden [3]. Ce trat vorwiegend in Ba-reichen Einschlüssen auf, vermutlich bedingt durch den Ba-Vorgänger des Ce-140 [4].

Ein Teil des Zr liegt als ZrO_2 vor, dessen freie Bildungsenthalpie bei höheren Temperaturen zwischen denen des UO_2 und des PuO_2 liegt und das ebenfalls im Brennstoffgitter löslich ist. Es wurde bei Mikrosondenuntersuchungen auch an fast jeder Stelle entdeckt [3]. Ferner wurde es gefunden in Ba-haltigen metallischen Einschlüssen [3] und in geringen Konzentrationen in der keramischen sog. grauen Phase [4], die im Bereich gleichgerichteten (equiaxed) Kornwachstums auftritt und hauptsächlich aus Ba mit Zusätzen von Ce, Sr und Zr besteht. Diese Elemente liegen hier als Oxide oder Zirkonate vor. So nahm Wait nach [5] an, daß Ba als Zirkonat und Sr als unlösliches Oxid auftritt. Nach [1] treten dagegen sowohl Ba als auch Sr als Zirkonate auf. Auch Bramman et al. [6] vermuten, daß Ba, Sr und Zr als Oxide kombinieren und stabilere Zirkonate bilden.

Die Elemente Mo, Ru, Tc, Rh und Pd treten in metallischen Ausscheidungen vorwiegend am Beginn und am Ende der Stengelkristallzone auf. Je nach den Betriebsbedingungen des Brennstoffes erreichen diese Einschlüsse Größen von einigen μm bis zu 1 mm [6]. Die Zusammensetzung dieser Ausscheidungen variiert mit der Spaltproduktausbeute und der Stöchiometrie; denn nach den thermodynamischen Daten [7] sollte Mo zu MoO_2 oxydieren, bevor der Brennstoff

wesentlich überstöchiometrisch wird. Die in bestrahltem Mischoxid gefundenen Einschlüsse sind einphasig und haben eine hexagonale Kristallstruktur mit $a_0 = 2,75 \text{ \AA}$ und $c_0 = 4,43 \text{ \AA}$ [6,8]. Die Dichte metallischer Ingots aus hochabgebranntem Brennstoff ergab sich zu $11,3 \text{ g/cm}^3$ in UO_2 und $12,2 \text{ g/cm}^3$ in Mischoxid [9]. Der Wert $12,2 \text{ g/cm}^3$ ist unsicher, da der untersuchte Einschluß sehr klein war, wegen der höheren Ausbeute an Ru, Rh und Pd bei Pu-Spaltung ist jedoch auch ein höherer Wert bei Mischoxid zu erwarten. Der Schmelzpunkt von Legierungen, deren Zusammensetzungen denen der weißen Einschlüsse entspricht, liegt zwischen 1800 und 1900°C [6]. Die metallischen Ausscheidungen sollten also im Zentrum eines Brennstabes unter Betriebsbedingungen flüssig sein.

Cs und Rb verbleiben wahrscheinlich größtenteils in elementarer Form, obwohl sie Jodide bilden können. Bei Untersuchungen des Ausscheidungsverhaltens von CsJ in einem Rohr mit einem gleichmäßigen Temperaturgradienten fand, in Abhängigkeit von den Versuchsbedingungen, sehr leicht Zersetzung des CsJ statt [10]. Auch bei Untersuchungen der Freisetzung von Cs und J aus metallischem U wurde gefunden, daß sich die Elemente separat ausschieden [11]. Experimentell wurde festgestellt, daß bei 900°C aus CsJ und UO_{2+x} freies J entsteht, wenn $x \geq 0,18$ ist [12]. Von den in [1] aufgeführten Elementen, von denen dort angenommen wurde, daß sie als Ionenverbindungen auftreten, liegt Br vermutlich als CsBr vor. Te wurde bei Mikrosondenuntersuchungen in geringen Mengen in metallischen Mo-haltigen Einschlüssen im UO_2 gefunden [3]. In $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ wurde es auch zusammen mit Cs in dunkelgrauen Gefügebestandteilen am Brennstoffrand entdeckt [13]. Ferner soll die keramische graue Phase, deren Hauptbestandteil Al_2O_3 ist, das als Verunreinigung im Brennstoff vorkommt, als Getter für die Oxide des Ba, Ce und Te wirken [14].

Die Verteilung vieler Spaltprodukte im Brennstoff ist nicht gleichmäßig bzw. entspricht nicht der Spaltungsdichte. Es muß also eine Wanderung stattgefunden haben. Der größte Teil der im Brennstoffgitter unlöslichen Spaltprodukte wandert zunächst an die Korngrenzen. Diese Diffusion zu den

Korngrenzen und anschließende Korngrenzendiffusion sind Voraussetzungen für die Bildung größerer Ausscheidungen. Unterstützt wird dieser Prozeß noch durch Korngrenzenwanderung. Auf diese Weise entstehen die ringförmigen Anhäufungen der metallischen Ausscheidungen in der Zone gleichgerichteten Kornwachstums und in der Umgebung des Zentralkanals. Die Ausscheidung des Cs in den kälteren Bereichen des Brennstoffes beruht wahrscheinlich auf Verdampfung in den heißen Brennstoffzonen und Kondensation in den kälteren. Transportwege sind Risse und andere Hohlräume.

2.2 Abschätzungen der Schwellrate

Von verschiedenen Autoren wurden Berechnungen zur Schwellrate durch die festen Spaltprodukte angestellt. Für derartige Berechnungen müssen Annahmen über den chemischen Zustand, in dem die Spaltprodukte vorliegen, getroffen werden, um ihren Volumenbedarf zu ermitteln. Ferner muß ihre Konzentrationsverteilung möglichst genau bekannt sein.

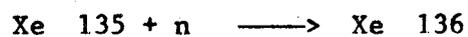
Wait, dessen Ergebnisse in [5] zitiert werden, berechnete für UO_2 unter der Voraussetzung, daß alle Spaltprodukte, einschließlich der Gase, in elementarer Form oder als Moleküle verteilt sind, eine Gesamtschwellrate von 0,96%/Abbrand. Er nahm dabei Bildung von CsJ und CsBr sowie von MoO_3 an. Für den wahrscheinlicheren Fall, daß Mo zu MoO_2 oxidiert, ergab sich 0,87%/Abbrand. Ohne Gase erhielt er eine Schwellrate von 0,52%/Abbrand.

Barney und Seymour [15] errechneten eine Schwellrate von 0,86%/Abbrand ohne Xe und Kr. Sie nahmen an, daß Mo und Cs größtenteils in metallischer Form vorliegen und etwas MoO_2 , sowie CsJ und CsBr auftreten, wobei Br vollständig als CsBr, J nur teilweise als CsJ gebunden ist.

Frost und Wait [16] bestimmten die Schwellrate fester Spaltprodukte im Oxidbrennstoff zu ca. 0,4 %/Abbrand, wenn Mo als Metall auftritt, und zu 0,5 bzw. 0,61%/Abbrand, wenn Mo als MoO₂ bzw. MoO₃ vorliegt.

Anselin und Baily [1] ermittelten für UO₂ und (U_{0,8}Pu_{0,2})O₂ eine mittlere Schwellrate von 0,85 %/Abbrand. Unter der Annahme, daß sämtliche erzeugten Leerstellen verbraucht werden, berechneten sie die minimale Schwellrate zu 0,32%/Abbrand. Als maximale Schwellrate, die dann auftritt, wenn keine der erzeugten Leerstellen in Anspruch genommen wird, ermittelten sie 1,3%/Abbrand.

Harrison und Davies [17] berücksichtigen den Einfluß des thermischen Neutronenflusses, der durch die Reaktionen



das Verhältnis Xe:Cs mit steigendem Neutronenfluß zu höheren Werten verschiebt. Da nach [17] der Anteil des Cs an der Schwellrate der festen Spaltprodukte ungefähr 30 % beträgt, sind Änderungen der Cs-Ausbeute sehr wichtig. Für UO₂ ergaben sich in Abhängigkeit vom Neutronenfluß folgende "feste" Schwellraten:

$\frac{n}{\text{cm}^2 \text{ s}}$	10 ¹²	10 ¹³	10 ¹⁴	10 ¹⁵
$\frac{\Delta V}{V} \text{ %/Abbrand}$	1,14	1,06	0,99	0,97

Allen berechneten Schwellraten ist die Vernachlässigung der Spaltproduktwanderung gemeinsam. Spaltproduktwanderung bzw. -freisetzung haben aber Änderungen der Schwellrate in einzelnen Brennstoffbereichen zur Folge.

Im folgenden Fall sollen noch einige durch feste Spaltprodukte bedingte Schwellraten genannt werden, die in der Literatur angenommen werden. So nehmen Wullaert et al [18] für alle Kernbrennstoffe eine "feste" Schwellrate von ca. 0,4 % / 10^{20} Spaltungen / cm^3 an. Das sind für UO_2 0,97%/ Abbrand. Nach [5] wird eine Schwellrate von 1%/ Abbrand als "leicht pessimistisch" bezeichnet. In [19] wird für Mischoxid eine Schwellrate von ca. 0,3%/ Abbrand angenommen.

Nach Untersuchungen an UO_2 -rostfreier Stahl-Cermets mit 10 % Abbrand (aller U-Atome) betrug der Anteil der weißen Phase, d.h. der metallischen Ausscheidungen von Mo, Ru, Rh, Tc und Pd, in den UO_2 -Partikeln 3-6 Vol.-% [20] .

3. Schwellen karbidischer Brennstoffe

3.1 Verhalten der festen Spaltprodukte im Brennstoff

Über das Verhalten der Spaltprodukte in karbidischem Brennstoff ist noch relativ wenig bekannt. Eine umfassende Übersicht über das zu erwartende Verhalten der Spaltprodukte in Karbid auf Grund thermodynamischer Daten und bisheriger Untersuchungen an simulierten Brennstoff-Spaltproduktsystemen wird in [21] gegeben. Danach ist folgendes Verhalten der Spaltprodukte zu erwarten.

1. Die Alkalimetalle treten in metallischer Form in der kälteren Zone auf.
2. Die Erdalkalimetalle liegen als Dikarbide in Ausscheidungen vor.
3. Die Seltenen Erden sind wahrscheinlich als Monokarbide im Brennstoff gelöst; eventuell liegen sie aber auch als Sesquikarbide in Ausscheidungen vor.
4. Zr ist als ZrC_{1-x} im Brennstoff gelöst.

5. Mo und Tc sind in geringen Konzentrationen als Monokarbide im Brennstoff gelöst. Bei höheren Konzentrationen sind sie Bestandteile von Ausscheidungen U- und Pu-haltiger Komplexkarbide.
6. Die Platinmetalle scheiden sich unterhalb der peritektischen Zerfallstemperatur ($\sim 1700^{\circ}\text{C}$) als U- und Pu-haltige Komplexkarbide aus.

Aus UC, das bis zu einem Abbrand von 20 000 MWd/t bei Temperaturen unterhalb 300°C bestrahlt wurde, anschließend in He bei verschiedenen Temperaturen bis zu 1800°C gegläht und dann in HNO_3 aufgelöst wurde, wurden unlösliche Rückstände aus Ru, Rh und Pd erhalten, bei denen es sich vermutlich um eine metallische Legierung dieser Spaltprodukte handelte [22]. Die Zusammensetzung dieser Legierung entsprach ungefähr der Spaltausbeute; die Menge der ausgeschiedenen Metalle nahm mit der Glüh Temperatur zu. Sie war in unterstöchiometrischem UC größer als in überstöchiometrischem.

Mo und Tc ließen sich nicht im Rückstand nach Auflösung des UC nachweisen [22]. Sie liegen also vermutlich als Karbide vor.

3.2 Abschätzungen der Schwellrate

Legt man die Annahme von Wullaert [18] zugrunde, nach der die festen Spaltprodukte in allen Kernbrennstoffen eine Schwellrate von ca. $0,4\% / 10^{20}$ Spaltungen / cm^3 erzeugen, so ergibt sich für UC ca. $1,3\%/\%$ Abbrand.

Rough und Chubb [23] geben für UC Schwellraten von 1,0 bis $1,6\%/\%$ Abbrand an. Der erste Wert gilt für höhere Temperaturen, wobei angenommen wird, daß die Spaltprodukte zu den freigewordenen U-Gitterplätzen diffundieren. Der zweite Wert soll für niedrige Temperaturen gelten, bei denen vorausgesetzt wird, daß sich die Spaltprodukte auf Substitutions- und Zwischengitterplätzen entsprechend deren Häufigkeiten befinden.

Für Temperaturen unter 1000°C wird in [24] eine Schwellrate aller Spaltprodukte in UC von $1,8\%$ / $10\ 000\ \text{Mwd/t}$ angegeben. Da angenommen wurde, daß die Spaltgase bei diesen Temperaturen noch keine Blasen bilden, ergibt sich daraus die Schwellrate durch feste Spaltprodukte zu ca. $1,3\%$ Abbrand.

Harrison und Davies [17] errechneten für UC folgende Schwellraten in Abhängigkeit vom Neutronenfluß

$\frac{n}{\text{cm}^2\ \text{s}}$	10^{12}	10^{13}	10^{14}	10^{15}
$\frac{\Delta V}{V}\ \text{%/Abbrand}$	1,54	1,43	1,43	1,30

An anderer Stelle [25] errechnete Harrison einen Wert von ca. 1% Abbrand für alle Spaltprodukte außer Xe und Kr und ca. $0,6\%$ Abbrand ohne Xe, Kr und Cs.

Ross und Rose [26] legen bei der Analyse der Schwellrate eines leicht unterstöchiometrischen UC-Brennstoffes mit Abbränden unter 1% bei Temperaturen zwischen 630 und 1310°C eine Schwellrate durch feste Spaltprodukte von ca. 2% Abbrand zugrunde.

4. Schlußfolgerungen

Für Oxidbrennstoff wurden durch feste Spaltprodukte bedingte Schwellraten von $0,3 - 1,3\%$ Abbrand berechnet. Die diesen Werten zugrunde liegenden Annahmen berücksichtigen keine Spaltproduktwanderung und -freisetzung. Es wird vorgeschlagen, mit einer integralen Schwellrate von $0,7\%$ Abbrand zu rechnen, die in erster Näherung und mangels Kenntnis der entsprechenden Abhängigkeiten als unabhängig von der Temperatur und vom Abbrand angesehen

werden kann. Wird eine Zoneneinteilung des Brennstoffes vorgenommen, so sollte die Schwellrate in der Hochtemperaturzone mit Stengelkristallbildung um den Anteil des Cs, ca. 0,2 %/ % Abbrand, vermindert werden; denn das Cs verflüchtigt sich größtenteils aus dieser Zone und schlägt sich an kalten Oberflächen nieder.

Für Karbidbrennstoff wird eine integrale "feste" Schwellrate von 1%/ % Abbrand empfohlen. Dieser Wert, der an der unteren Grenze der berechneten Werte liegt, wurde gewählt, weil Dichtebestimmungen an (U,Pu)-Brennstoffen, deren Zentraltemperaturen unter 1200°C lagen, stets Dichteabnahmen $\leq 2\%/ \%$ Abbrand ergaben. Außerdem ist anzunehmen, daß sich die Schwellraten verschiedener keramischer Brennstoffe in erster Näherung wie ihre U- bzw. (U,Pu)-Dichten verhalten.

L i t e r a t u r

- [1] F. Anselin u. W.E. Baily
The Role of Fission Products in the Swelling of Irradiated
UO₂ and (U,Pu)O₂ Fuels
Trans. ANS 10 (1967) 103
- [2] K.E. Spear and J.M. Leitnaker
Chemical Effects of Nuclear Burnup on Fast Reactor Fuels
Trans. ANS 12 (1969) 593
- [3] B.M. Jeffery
Microanalysis of Inclusions in Irradiated UO₂
J. Nucl. Mat. 22 (1967) 33
- [4] D.R. O'Boyle et al.
Solid Fission Product Behavior in U-Pu Oxide Fuel Irradiated
in a Fast Neutron Flux
J. Nucl. Mat. 29 (1969) 27
- [5] J.B. Ainscough
Some Limiting Aspects of UO₂ Performance
TRG 1937 (s), 1970
- [6] J.I. Braman et al.
Metallic Fission-Product Inclusions in Irradiated Oxid Fuels
J. Nucl. Mat. 25 (1968) 201

- [7] J.H.Davies et al.
The Effect of Burnup on the O/M Ratio of Irradiated
(U,Pu)O₂ and PuO₂
- [8] D.R. O'Boyle et al.
Analysis of Fission Product Ingots Formed in U-Pu Oxide
Irradiated in EBR-II
J.Nucl.Mat. 35 (1970) 257
- [9] J.M. Davies et al.
On the Composition of Metallic Ingots Formed in High-
Performance Ceramic Fuel Elements
Trans. ANS 9 (1966) 63
- [10] D.A. Collins et al.
The Temperature-Gradient Tube Technique for Characterisation
of Released Fission Products
TRG 1332 (W), 1967
- [11] A.W. Castleman, Jr. und I.N.Tang
Vaporization of Fission Products from Irradiated U
J.Inorg. Nucl. Chem. 32 (1970) 1057
- [12] M.Chen et al.
Phase Diagram of the U-Pu-O System Containing Fission
Products (Nonradioactive)
ANL-7655, 1969
- [13] L.A. Neimark et al.
Fuel Element Performance
ANL-7577, 1969
- [14] C.E. Crouthamel
Chemistry of Irradiated Fuel Materials
ANL-7577, 1969
- [15] W.K.Barney und W.E.Seymour
in J.Belle (Ed.), "Uranium Dioxide", p. 547, 1961
- [16] B.R.T. Frost und E. Wait
Irradiation Experiments on Plutonium Fuels for Fast Reactors
Symp. on Plutonium as a Reactor Fuel, Brüssel, 1967
- [17] J.W. Harrison und L.M.Davies
The Variation of Solid Fission Product and Gas Swelling
in U-Compounds with Thermal Neutron Dose Rate
J.Nucl.Mat. 27 (1968) 239
- [18] R.A. Wullaert et al.
An Evaluation of UC-PuC for Sodium-Cooled Fast Reactors
BMI-1799, 1967

- [19] W.E.Baily et al.
Swelling Rates of Mixed-Oxide Fuel and Cladding in Fast Flux
Trans. ANS 11 (1968) 515

- [20] J.D.B. Lambert
Irradiation Behaviour of UO_2 Particles in Cermets
Proc.Brit.Ceram.Soc. No.7, Febr.1967

- [21] H.Holleck
Stoffliche Änderungen beim Abbrand im Reaktor
Beitrag III in KFK 1111

- [22] N. Oi
Behavior of Fission Product Ruthenium in UC
J.Nucl.Mat.34 (1970) 227

- [23] F.A. Rough und W.Chubb
An Evaluation of Data on Nuclear Carbides
BMI-1441, 1960

- [24] J.E. Frank et al.
Irradiation Behavior of Unalloyed Hypostoichiometric
Uranium Carbide
NAA-SR-11440, 1966

- [25] J.W. Harrison
The Irradiation-Induced Swelling of Uranium Carbide
J.Nucl.Mat. 30 (1969) 319

- [26] A.M. Ross and D.H. Rose
Replica Electron Microscopy of Irradiated UC
AECL-2701, 1967

XVII. Spaltgasverhalten in theoretisch dichtem Brennstoff

von

Hj. Matzke u. C. Ronchi

Inhalt:

1. Einleitung
2. Verhalten einzelner Gasatome, Gitterlöslichkeit, Temperatur- und Abbrandabhängigkeit
3. Verhalten von Spaltgasblasen
 - 3.1 Bildung und Wanderung
 - 3.2 Blasengröße in Abhängigkeit von Temperatur und Abbrand
4. Verhalten des Spaltgases in Brennstäben mit hoher Zentraltemperatur
 - 4.1 Löslichkeit des Gases in verschiedenen Zonen des Brennstabs
 - 4.2 Vorschlag eines Modells
5. Schlußfolgerungen, Ausblick

1. Einleitung

Die Frage des Verhaltens von Spaltgasatomen in keramischen Kernbrennstoffen wird seit etwa 1957 untersucht, wobei allerdings erst seit etwa 1964 die Möglichkeiten von Wechselwirkungen zwischen Gasatomen und Gitterdefekten einerseits und Gasatomen untereinander andererseits erkannt wurden, die auf grund der geringen Gitterlöslichkeit der Edelgase zu Blasenbildung führen und damit zum Schwellen des Brennstoffs beitragen. Während einzelne im Gitter gelöste Gasatome vom Gesichtspunkt des Schwellens her unbedeutend sind, und kleine Gasblasen ebenfalls toleriert werden können, führen größere Blasen zu beträchtlichen Volumenzunahmen des Brennstoffs. Erreichen die Blasen Durchmesser von einigen 10^2 \AA , so können die Spalteredelgase Kr und Xe als ideale Gase betrachtet werden, während bei kleineren Durchmessern van der Waals Korrekturen erforderlich werden. Somit gilt bei Vernachlässigung eines möglichen äußeren Drucks

$$p \cdot \frac{4}{3} \pi r^3 = m k T \quad (1)$$

mit $p = 2 \gamma / r$

p = Gasdruck in der Blase mit Radius r ,

m = Zahl der Gasatome in der Blase,

γ = Oberflächenspannung : 1000 erg/cm^2 (oder dyn/cm)

wenn genügend Leerstellen vorhanden sind. (z.B. $\sqrt{1}$). Somit ergibt sich

$$\frac{8}{3} \pi \gamma r^2 = m k T \quad (2)$$

und bei Koaleszens zweier Blasen mit m_1 und m_2 Gasatomen

$$(m_1 + m_2) = \frac{8 \pi \gamma R^2}{3 k T} \quad (3)$$

wobei $R^2 = r_1^2 + r_2^2$. Somit bleibt bei Koaleszens zweier Blasen die Oberfläche erhalten, während das Volumen wächst, d.h. neue Gitterleerstellen benötigt werden, wobei der Druck in der Blase abnimmt. Genau genommen vollzieht sich die Koaleszens in 2 Schritten, wobei erst $R^3 = r_1^3 + r_2^3$ ist und danach die Gleichgewichtsform durch Volumendiffusion der Gitterionen eingenommen wird. Z.B. wird bei

$r_1 = r_2 = 1000 \text{ \AA}$ die neue Blase ein $R = 1400 \text{ \AA}$ haben. Auf grund dieser Volumenzunahme sind also die Beweglichkeit und die Koaleszenz der Blasen die Faktoren, die das Gasschwellen hauptsächlich beeinflussen. Daneben ist zur Bildung der Blasen natürlich auch die Beweglichkeit einzelner Gasatome von Wichtigkeit. Letztere wird durch Entgasungsversuche studiert, während das Verhalten von Blasen im Elektronenmikroskop untersucht wird, wobei man sowohl in Transmission als auch mit Replikaverfahren arbeitet. Solche elektronenmikroskopischen Studien liefern Kenntnisse über

- (lokale) Konzentration der Blasen
- lokalen Schwellkoeffizienten $\Delta V/V$
- mittleren Druck \bar{p} (bei Annahme von Gleichgewicht $p = 2 \gamma/r$)
- Gasgehalt n der Blasen (bei Annahme von Gleichgewicht $p = 2 \gamma/r$).

Erstrebt ist die genaue Kenntnis der Radiusabhängigkeit dieser Größen, die dann mit den Ergebnissen von Modellrechnungen verglichen wird. Diese Modellrechnungen sollten Blasenbildung und -wanderung, Gasabgabe und Gaslösung während der Bestrahlung berücksichtigen. Erste Ergebnisse einer solchen Rechnung werden im Folgenden angegeben. Ältere Vorstellungen eines einfachen Mechanismus der Blasenwanderung in Richtung des Temperaturgradienten, die ihrerseits das Modell von Booth [2] als zu einfach und unrealistisch abgelöst haben, werden damit als ebenfalls zu vereinfachend ersetzt. Dabei ist der wesentliche neue Gesichtspunkt der der bestrahlungsbedingten stark erhöhten Löslichkeit des Gases, die sogar zu einem Verschwinden von Gasblasen führen kann.

Der vorliegende Bericht gibt erst einen Überblick über die derzeitige Kenntnis des Verhaltens einzelner Gasatome und Gasblasen. Danach folgt eine Besprechung des Verhaltens der Spaltgase in Brennelementen mit hoher Zentraltemperatur, der Vorschlag eines Modells, sowie einige typische Meßergebnisse, hauptsächlich für Oxidbrennstoff und in geringerem Maße für Karbidbrennstoff.

2. Verhalten einzelner Gasatome, Gitterlöslichkeit, Temperatur - und Abbrandabhängigkeit

Das Verhalten einzelner Gasatome in UO_2 und UC ist recht gut bekannt. In einem kürzlich vorgeschlagenen System der Gasabgabestufen lassen sich die verschiedenen Beiträge zur Gasbeweglichkeit nach Temperaturbereich und Mechanismus einordnen [4]. Im UC sind Spaltgasatome schon unterhalb Zimmertemperatur beweglich [5], wahrscheinlich mittels eines Zwischengitterdiffusionsmechanismus. Für die Fluoritstruktur des UO_2 ergäbe sich eine sehr hohe Aktivierungsenergie für einen solchen Mechanismus, sodaß er nicht beobachtet wird. In jedem Fall endet die Diffusion durch das Zwischengitter, wenn das Gasatom einen Defekt (z.B. auch Leerstellen) trifft, der dann als Falle wirkt.

Von größerer Wichtigkeit ist deshalb die nächste Stufe im Entgasungsprozess, nämlich die mit der Bewegung von Gitterleerstellen verbundene Beweglichkeit einzelner Gasatome, d.h. die Volumendiffusion der Edelgasatome. Diese Bewegung ist nötig zur Bildung und zum primären Wachstum von Blasen. Könnte man sie beeinflussen, so könnte man a) im Falle einer Verlangsamung die Entstehung und das Wachsen von Gasblasen verzögern b) im Falle der Beschleunigung eine erhöhte Abgabe erreichen, bes. im Falle des durch Bestrahlungseinfluß gelösten Gases. Beides wäre von technischem Interesse. Aus diesem Grund wurde der Diffusionsmechanismus einzelner Gasatome (bes. im UO_2 , aber auch im UC) eingehend untersucht. Einbringen von Dopingzusätzen (drei- und fünfwertige Kationen im UO_2) [6] oder leichte Stöchiometrieänderungen im UC [7] beeinflussen stark die Leerstellenkonzentration und dadurch auch die Beweglichkeit der gittereigenen Ionen U, C, und O, zeigen aber keinen deutlichen Einfluß auf die Beweglichkeit der Spaltgase, Ebenso wie diese im thermodynamischen Gleichgewicht stehenden Einzelleerstellen haben bestrahlungsinduzierte Leerstellen keinen wesentlichen Einfluß auf die Beweglichkeit einzelner Gasatome, wie durch Variation der Probestemperatur während Bestrahlung gezeigt werden konnte [8]. Dies spricht gegen einen Diffusionsmechanismus über einzelne Leerstellen, sondern deutet auf einen Mechanismus über Doppelleerstellen (UC) oder Dreifachleerstellen, sog. Schottky Trios (UO_2). Solche Schottky Trios

bestehen aus einer stöchiometrischen Einheit von einer Uran- und zwei Sauerstoffleerstellen. Diese Annahme des Diffusionsmechanismus wird durch sog. "channeling-Versuche" bestätigt [7,9], bei denen die Strukturabhängigkeit der Wechselwirkung von energetischen leichten Teilchen und Kristallgittern verwendet wird, um die genaue Position von bestimmten Atomen im Gitter festzustellen (oder gewisse Positionen auszuschließen).

Die Aktivierungsenthalpie, ΔH , für den Gitterdiffusionsmechanismus einzelner Gasatome liegt für UO_2 im Bereich von 3.6 bis 3.9 eV, also ca. 86 ± 4 kcal/Mol. Niedrigere Werte sind vermutlich durch bevorzugte Gasabgabe von oberflächennahen Schichten, höhere Werte durch Verdampfung von UO_2 während der Entgasungsstudien beeinflusst [4] (siehe auch die detaillierte Literaturübersicht in Referenz [4]). Der prä-exponentielle Faktor D_0 liegt im Bereich 0.01 bis $1 \text{ cm}^2/\text{sec}$ (siehe auch Figur 1). Das entsprechende ΔH für UC ist geringfügig niedriger (84 ± 5 kcal/Mol) als der Wert für UO_2 .

Auf Grund der obenerwähnten Untersuchungen ist also der Diffusionsmechanismus einzelner Gasatome bestimmt als eine Beweglichkeit über Mehrfachleerstellen, die sich leider nicht auf einfache Weise (z.B. Zusatz von spezifischen Verunreinigungen) beeinflussen läßt. Die erste Frage einer möglichen Steuerung des Gasschwellens wird somit vorerst negativ zu beantworten sein.

Zur Beantwortung der Frage der Gitterlöslichkeit bedarf es zuerst einer Definition dieser Größe. Beim Erhitzen von UO_2 in Spaltgasatmosphäre wird keine eindeutige Löslichkeit festgestellt. Dagegen wird bei isothermen Entgasungsversuchen nach Bestrahlung bei steigender Bestrahlungsdosis und somit steigender Gaskonzentration eine Grenzkonzentration von etwa 10^{-9} bis 10^{-8} Gasatome/U-Atom (Temperaturbereich 1000 - 1400°C) beobachtet, nach deren Überschreiten ein Ausfallen bzw. ein Einfang (trapping) von Gasatomen beobachtet wird, siehe z.B. [10] für UO_2 und [11] für UC. Dieser Wert könnte also als typisch für die Gitterlöslichkeit ohne gleichzeitige Bestrahlung angesehen werden. Wie weiter unten gezeigt wird, ist die Löslichkeit der Gase während Bestrahlung aufgrund

kinetischer Prozesse wesentlich größer.

Der eben erwähnte Einfang von Gasatomen beruht auf einer Wechselwirkung zwischen Gasatomen und Gitterdefekten wie Strahlenschäden, größeren Leerstellenagglomeraten, Spannungsfeldern an Versetzungslinien und -ringen, Stapelfehlern und -tetrahedern usw. auf der einen Seite oder anderen Gasatomen auf der anderen Seite. Als Folge treten eine Verlangsamung der Gasbeweglichkeit bis zu einem Faktor 10^3 und eine Erhöhung der Aktivierungsenthalpie um den Wert der Bindungsenergie des Gasatoms an dem Defekt (zwischen 0.6 und 0.9 eV) auf. Dadurch ist es schwer, einen effektiven Diffusionskoeffizienten D_{eff} , der z.B. typisch ist für die Bewegung einzelner Gasatome während Bestrahlung zu einer Gasblase, d.h. für das Wachstum der Blase, anzugeben. In Figur 1 sind die zuverlässigsten Werte, basierend auf einer ausführlichen und kritischen Literaturübersicht [47], in einem Arrhenius-diagramm dargestellt. Im Figurentext sind die einzelnen angegebenen Bereiche erläutert.

3. Verhalten von Gasblasen

3.1. Bildung und Wanderung

Bei wesentlichem Überschreiten der oben angegebenen Grenzkonzentration bilden sich Keime für Blasen, die durch Einfang anderer Gasatome wachsen. Die Gasblasen selbst sind auch beweglich, wobei die Beweglichkeit ungerichtet (Brown'sche Bewegung) oder unter einer Kraft gerichtet sein kann. Als Kraft können Spannungen, Wechselwirkungen mit Versetzungslinien oder Korngrenzen, ein Temperaturgradient usw. wirken. Besonders bei schlechten Wärmeleitern wie UO_2 sollte man einen starken Effekt von Temperaturgradienten ($\geq 10^3 \text{ }^\circ\text{C/cm}$)² erwarten. Auf diesen Annahmen basieren die älteren theoretischen Ansätze von z.B. Greenwood [12], Barnes und Nelson [13], aber auch Nichols [14], die als Hauptparameter den Temperaturgradienten, den Blasenradius, den Oberflächendiffusionskoeffizienten D_s der Uranatome und den Dampfdruck von UO_2 enthalten. Diese und ähnliche Ansätze führten zwar zu einem Satz von Gleichungen für alle möglichen Bedingungen und geometrischen Konfigura-

tionen, vernachlässigten aber den Gasdiffusionskoeffizienten unter Hinweis auf die geringe thermische Löslichkeit der Gasatome.

Diese Ansätze sind nun zum Teil überholt durch die Feststellung der bestrahlungsbedingten Löslichkeit von Gasatomen. Wapham [15] berichtete als erster von der Möglichkeit, daß Blasen während Bestrahlung verschwinden können : Wenn bestrahlte Proben, in denen durch Erhitzung nachweislich Gasblasen gebildet worden waren, bei tieferen Temperaturen nochmals im Reaktor bestrahlt wurden, zeigte eine folgende Nachbestrahlungsuntersuchung keine Blasen mehr. Offensichtlich war während der zweiten Bestrahlung das schon ausgefallene Gas wieder in Lösung gegangen. Diese Feststellung wurde auf der ANS-Konferenz in Schenectady 1968 weiter bestätigt [16, 17], und die seither angesammelte Evidenz beweist eine hohe bestrahlungsbedingte Löslichkeit von Spaltgasen. Neue theoretische Ansätze müssen dies berücksichtigen und somit wieder einen effektiven Gasdiffusionskoeffizienten D_{eff} einführen. Solche Ansätze wurden an einigen Stellen in Angriff genommen [17-20]. Ein weiterer Ansatz wird in Abschnitt 4.2 beschrieben.

Für die Wanderung von Spaltgasblasen kommen 3 Mechanismen in Frage :

- Oberflächendiffusion der Matrixatome
- Gitterdiffusion der Matrixatome
- Verdampfung und Kondensation der Matrixatome

Diese 3 Mechanismen lassen sich durch charakteristische "Blasendiffusionskoeffizienten D_b " beschreiben und führen zu verschiedenen Radiusabhängigkeiten der Beweglichkeit, so daß eine (z.B. elektronenmikroskopische) Untersuchung der Blasenwandergeschwindigkeit in Abhängigkeit vom Blasenradius zur Bestimmung des Mechanismus verwendet werden kann. Solche Untersuchungen wurden ausgeführt; eine tabellarische Literaturübersicht ist in [4] enthalten. Es zeigte sich, daß wie erwartet in reinem UO_2 , d.h. bei niedrigem Abbrand bzw. Abwesenheit von Zusätzen, oder Anwendung von Beschleunigern zum Einbringen des Gases der (schnelle) Oberflächendiffusionsmechanismus dominiert. In stark verunreinigtem UO_2 , d.h. bei höherem Abbrand oder bei Verwendung von Zusätzen ist die Beweglichkeit der Blasen kleiner und wird

wahrscheinlich auf grund von Kontamination der Blasenoberfläche durch Gitterdiffusion der Matrixatome kontrolliert.

Eine weitere Verlangsamung in hochabgebranntem Material kann durch Wechselwirkungen zwischen Blasen und Ausscheidungen fester Spaltprodukte bewirkt werden. In beiden Fällen ist die (Gitter- oder Oberflächen-) Diffusion von Uran als der langsameren Ionenart geschwindigkeitsbestimmend.

Das Zentrum der Blase wandert bei freier Beweglichkeit, d.h. ohne jegliche Kräfte, wie z.B. Temperaturgradienten usw. in der Zeit t um

$$\bar{x}_b = (6 D_b t)^{1/2} \quad (4)$$

also proportional zu $t^{1/2}$. Wirkt eine äußere Kraft F , etwa ein Temperaturgradient, so hat man

$$\bar{x}_F = (D_b/kT)Ft. \quad (5)$$

Dabei sind \bar{x}_b und \bar{x}_F die in der Zeit t eingetretenen Verschiebungen des Mittelpunkts der Blase. Nur bei $F > (6/D_b t)^{1/2} kT$ ist die Brown'sche ungerichtete Beweglichkeit vernachlässigbar. Der Einfluß des Temperaturgradienten (typisch $F \sim 10^{-7}$ dyn für z.B. 50 Å Blasen) ist wesentlich ($\bar{x}_F > \bar{x}_b$) bei Vorliegen eines Oberflächendiffusionsmechanismus, wogegen für den Gitterdiffusionsmechanismus häufig $\bar{x}_F \lesssim \bar{x}_b$ ist. Nur bei sehr großen Blasen wird der Verdampfungs-Kondensations-Mechanismus effektiv.

3.2. Blasengröße in Abhängigkeit von Temperatur und Abbrand:

Elektronenmikroskopische Untersuchungen an Brennstäben, durchgeführt in Chalk River [16], Berkeley [17], Harwell [18] und am Transuraninstitut [21,22] zeigten eine ziemlich konstante Konzentration von Blasen (10^{14} bis $10^{17}/\text{cm}^3$) eines ziemlich konstanten Durchmessers ($< 400\text{Å}$), obzwar die Zentraltemperaturen zwischen 1000 und 2800°C , der verwendete Neutronenfluß zwischen 10^{13} und 2×10^{14} $\text{n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ und die Neutronendosen zwischen 3×10^{19} und 3×10^{20} n/cm^2 variierten. Dieser Befund steht natürlich im Gegensatz zu den älteren thermodynamischen Erwartungen, nach denen die Konzentration und die Größe der Blasen eine wesentlich stärkere Temperatur- und Abbrandabhängigkeit aufweisen sollten. Neuere Modellüberlegungen, die die bestrahlungs-

induzierte Löslichkeit berücksichtigen (s.o.), sollten diese Befunde erklären.

4. Verhalten des Spaltgases in Brennstäben mit hoher Zentraltemperatur

4.1. Löslichkeit des Gases in verschiedenen Zonen des Brennstabs.

Neuere elektronenmikroskopische Messungen [21, 22], die im Transuraninstitut an den Stäben D2 und D4 ($O/M = 1.94$ bzw. 2.00) der Dounreay-Bestrahlung DS1 durchgeführt wurden, erlauben eine Korrelation zwischen der Konzentration des in Blasen ausgefallenen Gases und den verschiedenen Strukturzonen des Brennelementes. Man kann fünf solcher Zonen feststellen :

- Zone 0 : äußere Zone ohne Strukturänderung
- Zone I : Zone des gleichgerichteten Kornwachstums (equiaxed grains)
- Zone II : Kleine Stengelkristalle (einschließlich Übergang Zone I → Zone II)
- Zone III : Große Stengelkristalle
- Zone IV : Poröse Zone um Zentralkanal

Die radiale Ausdehnung dieser Zonen (siehe Fig. 2) variiert mit der axialen Position, d.h. mit Zentral- u. Außentemperatur. Die Zonen III und IV sind nur bei den Schnitten gut ausgeprägt, bei denen die Zentraltemperatur $> 2150^{\circ}\text{C}$ ist. Hohe Gaskonzentrationen wurden im kalten Teil des Brennstabs (niedrige Diffusionsgeschwindigkeit) und in Zone III gefunden (wenig Einfangzentren), während in Zonen II und IV, bei höherer Konzentration stabiler Senken wie große Poren, Korngrenzen usw. weniger Gas in Blasen beobachtet wurde.

Die Unterteilung der Zone der Stengelkristalle nach dem Grad der Rekristallisation ist ein erster Schritt zur Erfassung des Einflusses von Wechselwirkungen von Gasblasen mit Versetzungslinien bzw. sich bewegenden Korngrenzen. Eine weitergehende Korrelation von Gasgehalt und Struktur erscheint nötig, bevor deren gegenseitige Beeinflussung und der Einfluß auf das Schwellen völlig verstanden werden können.

Einige experimentelle Ergebnisse des Brennstabschwellens für UO_2 und UC sind in Fig. 3 und Tabelle 1 wiedergegeben.

4.2. Vorschlag eines Modells

Im Transuraninstitut wird ein Modell ausgearbeitet, das die Hauptpunkte des komplexen dynamischen Verhaltens der Spaltgase berücksichtigt :

- Ausfallen des Gases in Blasen
- Bestrahlungsinduzierte Lösung
- Einfang von Gas an Korngrenzen und folgende Abgabe.

Die strukturabhängigen Phänomene wie Wegziehen von Blasen durch Versetzungslinien oder wandernde Korngrenzen wurden bisher nicht berücksichtigt, so daß die Aussagen des Modells streng nur für Temperaturen bis etwa 1600°C gelten. Trotzdem liefert das Modell für alle Temperaturen interessante Aussagen über die Verteilung des Gases in gelöstes Gas, in Blasen ausgefallenes Gas und in an Korngrenzen befindliches Gas.

Ausgangsbasis ist eine Differentialgleichung für die Konzentration des Gases

$$\frac{dc}{dt} = \frac{dc}{dt} - \frac{dc}{dt} - \frac{dc}{dt} + \frac{dc}{dt} \quad (6)$$

Der letzte Term wird nach dem Vorschlag von Nelson [23] berechnet : Gasatome in der Blase erhalten durch Kollision mit Spaltprodukten oder mit Gitteratomen der durch die Spaltprodukte erzeugten Kollisionskaskaden eine gewisse kinetische Energie. Überschreitet diese Energie einen gewissen Schwellwert (etwa 600 eV), so dringen die Gasatome in die Matrix ein und werden "bestrahlungsgelöst". Die beiden negativen Terme ergeben sich aus einer kinetischen Behandlung des Ausfallen von Gas in Blasen und der Diffusion von Gas an Korngrenzen, die tiefe Senken darstellen. Um das Problem mathematisch einfach behandeln zu können, wird angenommen, daß eine homogene Verteilung von Blasenkeimen vorliegt und daß um jede Blase ein kugelförmiges Volumenelement gelegt werden und daß der Nettofluß an Gasatomen zwischen den einzelnen Volumenelementen vernachlässigt werden kann. Nach einiger

Rechnung erhält man die Differentialgleichungen

$$\frac{dc}{dt} = \beta - Kc \left(t - \frac{c}{\beta} - \frac{g}{\beta} \right)^{1/2} + C_0 (\beta t - c - g) - \frac{dg}{dt} \quad (7)$$

wobei

$$\frac{dg}{dt} = \left\{ \beta - Kc \left(t - \frac{c}{\beta} - \frac{g}{\beta} \right)^{1/2} + C_0 \beta \left(t - \frac{c}{\beta} + \frac{g}{\beta} \right) \right\} \cdot \left\{ 1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} e^{-n^2 \pi^2 D t / a^2} \right\} \quad (8)$$

Eine vereinfachte Form des Gleichungssystems (7, 8) erhält man für nicht zu große Werte von t , d.h. für $\frac{g}{c} < 0.25$:

$$\frac{dc}{dt} = - \frac{(K\sqrt{t} + C_0 + G(1+C_0 t_0))/\sqrt{t} c}{1 + 2 G\sqrt{t}} + \frac{\beta(1 - C_0 t)}{1 + 2 G\sqrt{t}} \quad (9)$$

Dabei sind

c = Konzentration des gelösten Gases (Mol/cm³)

g = Konzentration des an Korngrenzen ausgefallenen Gases (Mol/cm³)

β = Produktionsrate des Gases durch Spaltung (Mol/cm³ · sec)

t = Bestrahlungszeit (sec), t_0 = Zeit zum Erreichen einer Übersättigung

a = mittlerer Kornradius

Die restlichen Symbole K , C_0 und G werden definiert durch:

$$K = D \left(6 \pi n \beta R T / \gamma \right)^{1/2} \quad (10)$$

mit D = effektiver Gasdiffusionskoeffizient (cm²/sec) (siehe Fig. 1)

n = Zahl der Blasen/cm³

R = Gaskonstante

T = Temperatur (°K)

γ = Oberflächenspannung (erg/cm²)

$$C_0 = 3 R T d \eta / 2 b \gamma \quad (11)$$

mit d = Dicke der Kugelschale der Blase, aus der bestrahlungsinduzierte Lösung auftritt

η = Zahl der Kollisionen/sec zwischen Gasatomen und energiereichen

Atomen des Spaltvorgangs, wobei eine Minimalenergie übertragen wird, die zur Lösung ausreicht

b = van der Waals Volumen der Mischung Kr + Xe

$$G = 3/a (D/\pi)^{1/2} \quad (12)$$

Erste Folgerungen aus dem Modell bei Benutzung von Parametern, die für die Bestrahlungsexperimente DS 1 relevant sind, ergeben (siehe auch Fig. 4) : - bei niedrigen Temperaturen ist das meiste Gas in dynamischer Lösung, während bei hoher Temperatur das meiste Gas in Blasen ausgefallen ist.

Ferner folgt aus dem Modell, daß die Konzentrationen an Gas in Blasen im Korn und in Blasen an Korngrenzen beide linear mit der Bestrahlungszeit wachsen, d.h. daß der Schwellvorgang und die Gasabgabe über Korngrenzen die gleiche Zeitabhängigkeit haben und die jeweilige Rolle dieser beiden komplementären Prozesse als Funktion der Bestrahlungsparameter untersucht werden muß.

5. Schlußfolgerungen. Ausblick.

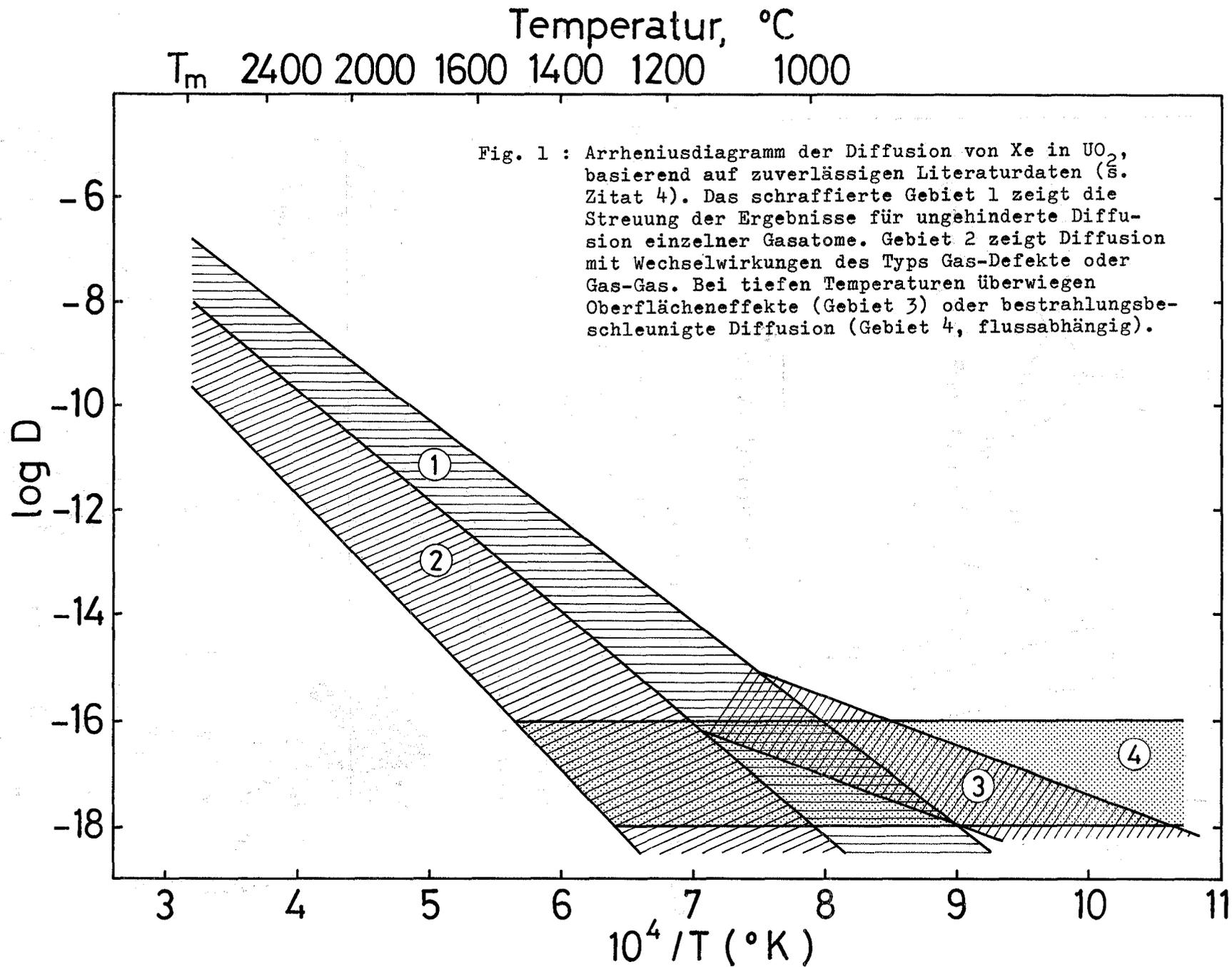
Das Verhalten einzelner Gasatome in UO_2 oder UC, das zur Bildung von Blasen sowie für deren anfängliches Wachstum wichtig ist, ist weitgehend bekannt, aber leider schlecht beeinflussbar. Ebenso sind die Wechselwirkungen von Gasatomen mit Defekten weitgehend erforscht, genauso wie der Effekt der bestrahlungsinduzierten Löslichkeit der Spaltgase. Aufgrund dieser Erkenntnisse müssen die älteren Schwelltheorien modifiziert werden. Neuere Ansätze sind in Arbeit. Gute Übereinstimmung zwischen Modell und Beobachtung wird vorerst besonders bei relativ niedrigen Temperaturen erzielt. Weitere Arbeit ist nötig zum Verständnis des Zusammenhangs und der gegenseitigen Beeinflussung von Mikrostruktur und Gasgehalt, besonders des Effekts von sich bewegenden Versetzungslinien und Korngrenzen.

Literaturverzeichnis

- 1) A.B. Lidiard and R. S. Nelson, Phil. Mag. 17 (1967) 425
- 2) A.H. Booth, Canada Report AECL-496 (1957) und
A.H. Booth und G.T. Rymer, Canada Report CRDC-720(1958)
- 3) Hj. Matzke, Proc. Summer School Physics of Ionized Gases,
Herceg Novi (1970) S. 326
- 4) Hj. Matzke, Proc. Symp. Physics of Ionized Gases, Herceg Novi (1970)S.354
- 5) Hj. Matzke, Solid State Comm. 7 (1969) 549
- 6) Hj. Matzke, Nucl. Applications 2 (1966) 131
- 7) Hj. Matzke, J. Nucl. Mat. 30 (1969) 110
- 8) Hj. Matzke und J.R. MacEwan, J. Nucl. Mat. 28 (1968) 316
- 9) Hj. Matzke und J.A. Davies, J. Appl. Phys. 38 (1967) 805
- 10) J.R. MacEwan und W.H. Stevens, J. Nucl. Mat. 11 (1964)77, und
J.R. MacEwan und P.A. Morel, Nucl. Applications 2 (1966) 158
- 11) Hj. Matzke und F. Springer, Rad. Effects 2 (1969) 11
- 12) z.B. G.W. Greenwood und M.V. Speight, J. Nucl. Mat. 10 (1963) 140
- 13) z.B. R.S. Barnes und R.S. Nelson, Harwell Report AERE-R 4592 (1965)
- 14) z.B. F.A. Nichols, J. Nucl. Mat. 30 (1969) 143
- 15) A.D. Whapham, Nucl. Applications 2 (1966) 123
- 16) A.M. Ross, J. Nucl. Mat. 30 (1969) 134
- 17) R.M. Cornell, M.V. Speight, and B.C. Masters, J. Nucl. Mat. 30
(1969) 170
- 18) D.J. Clough, J.R. Findlay, R.S. Nelson, J.B. Rich, J.B. Sayers und
A.D. Whapham, Symp. Rad. Damage in Reactor Materials, Wien 2 (1969)
313
- 19) M.V. Speight, Nucl. Sci. Eng. 37 (1969) 180
- 20) Verschiedene Arbeiten im Augustheft Nucl. Appl. Tech. 9 (1970)
127-218
- 21) C. Ronchi, Halbjahresberichte Nr. 7 bis 9, TU (1969) und (1970)
- 22) M. Coquerelle, L. Koch und C. Ronchi, Proc. ANS Meeting, Fast
Reactor Fuel and Fuel Elements, p. 411, Karlsruhe (1970).
- 23) R.S. Nelson, J. Nucl. Mat. 31 (1969) 153

		Kohlenstoffgehalt, Gew. %									
Zentraltemperatur (°C)		4.4	4.5	4.6	4.7	4.8	4.9	5.0	5.1	5.2	5.3
	500					0.3					0.4
750				0.5	0.7	0.5		0.3	0.8		
1000		1.0	0.6	0.6	0.6	0.6	0.5				
1100		1.2	1.5	1.2			0.9			0.8	
1200		3.0	1.5		0.3	0.8	0.8			1.0	
1300				1.0 bis 2.0							

Tabelle I : Schwellrate (pro 10^{20} Sp/cm³) von UC im schnellen Fluss für verschiedene Zentraltemperaturen und Kohlenstoffgehalte.



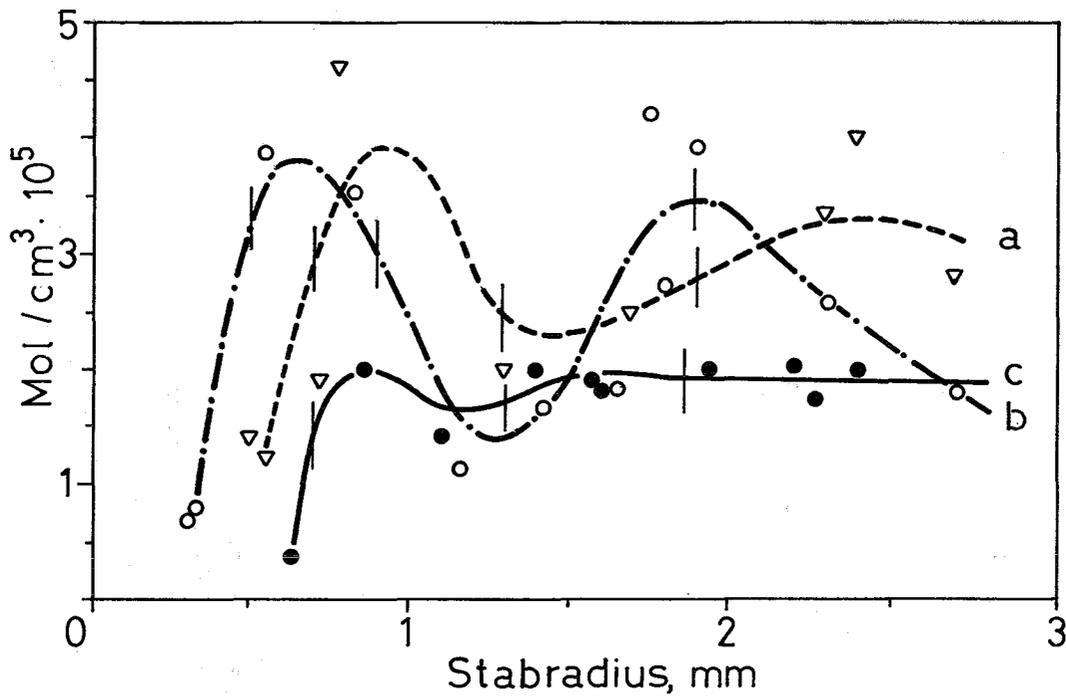
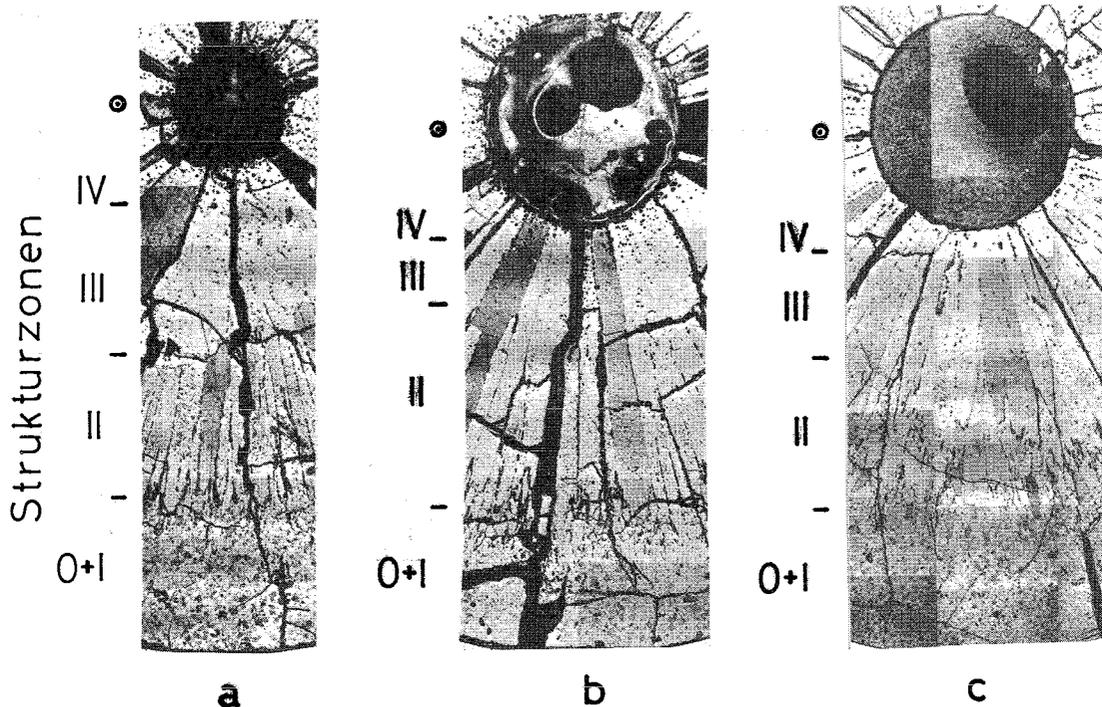


Fig.2: Ergebnisse für Bestrahlung DS 1 (21,22). Elektronenmikroskopische Bestimmung des in Blasen ausgefallenen Gases für verschiedene Strukturzonen (siehe Striche an den Kurven). Die Buchstaben a,b,c bezeichnen die Schnitte D4-7.2, D4-6.2 ($O/M=1.96$) und D2-8.2 ($O/M=2.00$) durch zwei verschiedene Brennstäbe.



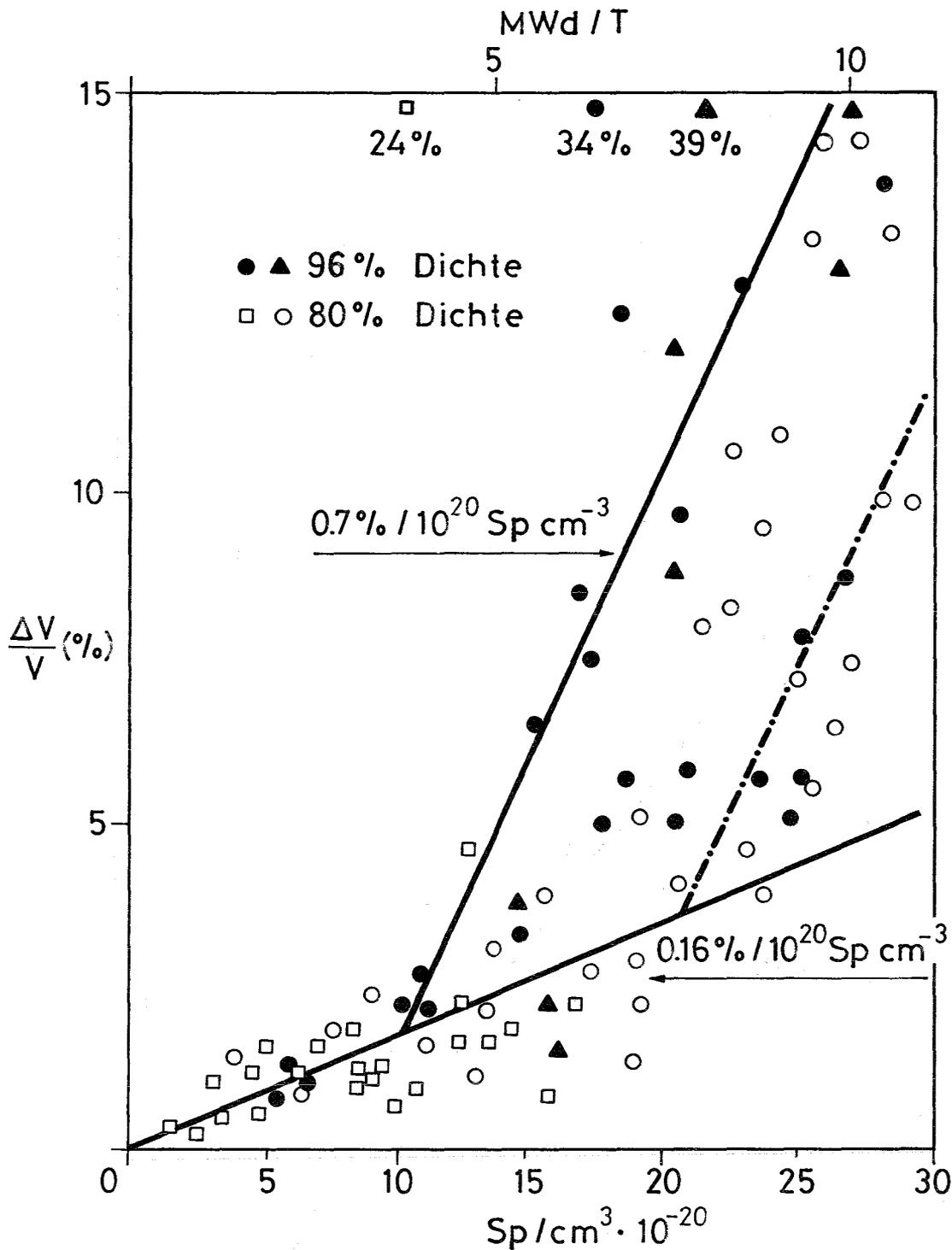
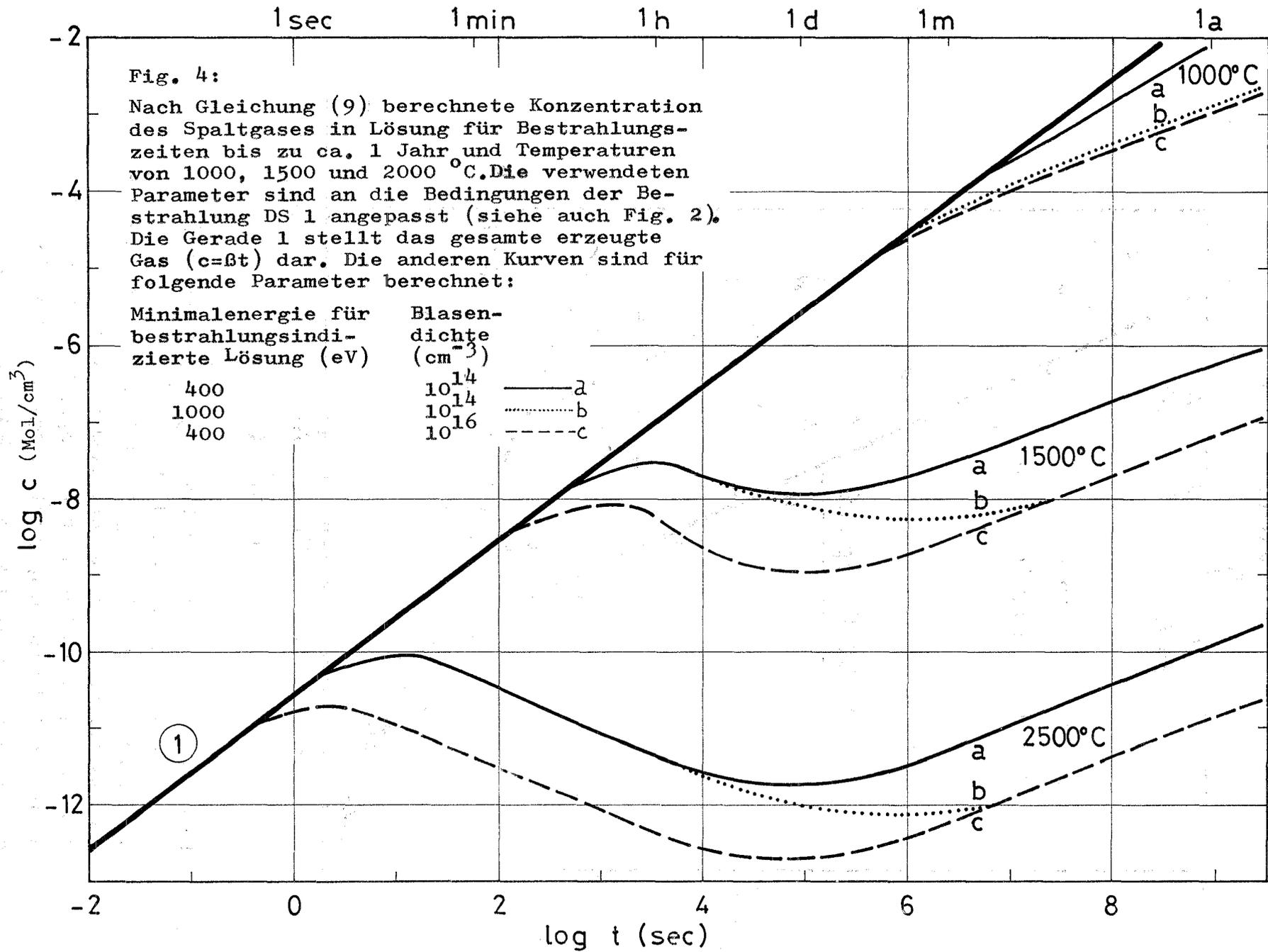


Fig. 3 : Schwellmessungen an bestrahltem UO_2 . Ergebnisse von
 J.B. Ainscough, Nucl. Eng. 8 (1963) 261
 B.R.T. Frost, Nucl. Eng. 12(1964)55 u. Rad.Dam.React,Mat.,Wien(1962)
 R.C. Daniel et al., US Report WAPD 263 (1962)
 R.E. Skovdahl, AIME Nucl. Met. Symp., Sess. E4 (1967)
 Sodium Cooled Reactors, Quart. Prog. Rep. GEAP 5522 (1967)
 M.L. Bleiberg, Rad. Dam. React. Mat., IAEA Wien (1962)
 Progr. Rep. Reactor Dev. ANL 7357 (1967)



XVIII. Spaltgasverhalten in porösem Brennstoff

von

H. Zimmermann

Inhalt:

1. Freisetzung in geschlossene Porosität
 - 1.1 Verhalten von Sinterporen unter Bestrahlung
 - 1.2 Spaltgasaufnahme durch Sinterporen
2. Spaltgasfreisetzung
 - 2.1 Spaltgasfreisetzung aus oxidischem Brennstoff
 - 2.1.1 Freisetzungsmechanismen
 - 2.1.2 Gemessene Freisetzungswerte
 - 2.2 Spaltgasfreisetzung aus karbidischem Brennstoff
3. Zusammenfassung

1. Freisetzung in geschlossene Porosität

1.1 Verhalten von Sinterporen unter Bestrahlung

Das Verhalten der Sinterporen unter Bestrahlung hängt ab von ihrer Grösse und von ihrer Lage im Brennstoff, d.h. von den Temperaturverhältnissen in der Umgebung der Pore. Die Poren können sich verkleinern bzw. verschwinden und im Temperaturgradienten wandern.

Unter Bestrahlung verschwinden in UO_2 kleine Poren mit Durchmessern $\leq 1 \mu m$ schon bei Temperaturen um $700^\circ C$ nach kurzer Zeit (1,2). Dies scheint auf einen strahlungsinduzierten Sintervorgang hinzuweisen. Nach (3) wurde beobachtet, dass der grösste Teil geschlossener Poren in gesintertem UO_2 mit Durchmessern $\leq 0,3 \mu m$ nach einem Abbrand von ca. 80 MWd/t bei $200^\circ C$ verschwunden war. Poren mit Durchmessern über $1 \mu m$ scheinen dagegen wesentlich stabiler zu sein. So berichtet Katz (4), dass in UO_2 mit einer Ausgangsdichte von 96% TD nach einem Abbrand von $14 \cdot 10^{20}$ Spaltungen/ cm^3 bei $870^\circ C$ die Sinterporen noch mehr als 2% des Brennstoffvolumens einnahmen.

Unter dem Einfluss des Temperaturgradienten im Brennstoff wandern die Sinterporen bei höheren Temperaturen zum Zentrum des Brennstabes. Die Wanderungsmechanismen sind dabei grundsätzlich dieselben wie bei der Spaltgas-Blasenwanderung. Im Falle der Sinterporen dürfte jedoch die Oberflächendiffusion wegen der Grösse der Poren und der dem Porendurchmesser umgekehrt proportionalen Wanderungsgeschwindigkeit keine grosse Rolle spielen. Merkliche Geschwindigkeiten ergeben sich erst bei Temperaturen ab ca. $1700^\circ C$. Die Wanderung erfolgt über den Verdampfungs-Kondensations-Mechanismus. Die Geschwindigkeit ist bei diesem Mechanismus davon abhängig, ob die Pore leer oder mit Gas gefüllt ist. Nach Rechnungen von Barnes und Nelson (5) beträgt die Wanderungsgeschwindigkeit in UO_2 bei $1750^\circ C$ und einem Temperaturgradienten von $10^3 \text{ }^\circ C/\text{cm}$ für eine Pore ohne Gasinhalt mit $10 \mu m$ Durchmesser ca. 3 \AA/s und für eine gleichgrosse Blase im Gleichgewichtszustand ca. $0,5 \text{ \AA/s}$. Die Wanderungsgeschwindigkeit einer Sinterpore dürfte zwischen diesen beiden Werten liegen, da die Pore im Laufe des Abbrandes Spaltgas aufnimmt.

Bei Glühversuchen an UO_2 ohne Bestrahlung in einem Temperaturgradienten von $500^\circ\text{C}/\text{cm}$ wurde bei ca. 1500°C keine merkliche Wanderung der Sinterporen entlang des Temperaturgradienten beobachtet (6). Die Porenradien lagen zwischen $0,3$ und $3,5 \mu\text{m}$.

1.2 Spaltgasaufnahme durch Sinterporen

Durch folgende Vorgänge kann Spaltgas in Sinterporen gelangen:

1. recoil-Prozess
2. knock-out-Prozess
3. Diffusion einzelner Atome
4. Blasenwanderung

Recoil- und knock-out-Prozess sind unabhängig von der Temperatur. Da durch diese beiden Prozesse nur ein Teil der in einer dünnen Brennstoffschicht um die Pore entstehenden bzw. sich befindenden Spaltgasatome in die Pore gelangen, ist die Spaltgasaufnahme unbedeutend.

Die Diffusion einzelner Spaltgasatome in eine Sinterpore ist ein temperaturabhängiger Prozess. Für Temperaturen unter ca. 1000°C in UO_2 muss man jedoch annehmen, dass der thermische Diffusionskoeffizient kleiner ist als der strahlungsaktivierte. Für diesen gilt nach (7)

$$D_g = 1,5 \cdot 10^{-31} R_f \left[\frac{\text{cm}^2}{\text{s}} \right]$$

$$R_f \text{ Spaltrate } [\text{cm}^{-3} \text{ s}^{-1}]$$

Setzt man voraus, dass in mittleren Temperaturbereichen Spaltgasblasenwanderung durch Oberflächendiffusion erfolgt, so wird ein Teil der entlang des Temperaturgradienten wandernden Blasen auf Sinterporen stossen und dort seinen Gasinhalt freisetzen. Spaltgasaufnahme kann auch dadurch erfolgen, dass Korngrenzen, die in eine Pore münden und mit Spaltgasblasen besetzt sind, ihren Gasinhalt in die Pore freisetzen.

Bei der Berechnung der Spaltgasaufnahme durch Sinterporen wird in der Literatur meist Diffusion als der massgebende Prozess betrachtet. So wird in (8) über eine unveröffentlichte Arbeit von J.M.Kennedy berichtet, der die Spaltgasaufnahme geschlossener Poren durch Diffusion bei Nachbestrahlungsglühungen berechnet. Die Zahl der von einer Pore aufgenommenen Gasatome ermittelte er zu

$$N = 4\pi a^3 C \left(2 \sqrt{\frac{Dt}{\pi a^2}} + \frac{Dt}{a^2} \right)$$

a Porenradius [cm]

C Gasatomkonzentration [cm^{-3}]

D Gasatomdiffusionskoeffizient [$\frac{\text{cm}^2}{\text{s}}$]

t Glühdauer [s]

Bei Nachbestrahlungsglühungen kann das Verhältnis der von Poren aufgenommenen Spaltgasmenge zu der freigesetzten nach Childs (9) sehr gross sein. Solange reine Diffusion massgebend ist, richtet sich das Mengenverhältnis nach dem Verhältnis der zur Verfügung stehenden Oberflächen. Für eine gesinterte Kugel mit dem Durchmesser d, der Dichte D und einem Oberflächenrauheitsfaktor f ist das Verhältnis v der Poren- zur freien Oberfläche

$$v = \frac{(1-D)d}{f b}$$

wobei b der mittlere Porendurchmesser ist. Mit $D=0,95$, $d=1 \text{ cm}$, $b=1 \mu\text{m}$ und $f = 5$ wäre bei dieser Probe in den frühen Stadien der Nachbestrahlungsglühung das Verhältnis der von Poren aufgenommenen Spaltgasmenge zu der freigesetzten 100:1. Rosenthal (10) untersuchte den Einfluss der Porosität auf die Spaltgasfreigabe unter Bestrahlung. Er kommt zu dem Schluss, dass bei Temperaturen, bei denen die Spaltgasfreigabe als Diffusionsprozess beschrieben werden kann, die geschlossene Herstellungsporosität zu Beginn der Bestrahlung keinen Einfluss auf die Freigabe hat. Der Porositätseinfluss wächst jedoch mit steigenden $\frac{Dt}{a^2}$ -Werten, d.h. mit der Bestrahlungsdauer und wegen des Diffusionskoeffizienten auch mit der Temperatur.

In (4) wurde eine Abschätzung des Spaltgasgehaltes von Sinterporen durchgeführt. Danach sind in den Sinterporen von UO_2 mit einer Aus-

gangsdichte von 96% TD, das bei 870°C bestrahlt wurde, nach $3,8 \cdot 10^{20}$ Spaltungen/cm³ 8% des erzeugten Spaltgases enthalten, nach $14 \cdot 10^{20}$ Spaltungen/cm³ 2%. Die absolute Menge des in Sinterporen festgehaltenen Gases nahm also leicht ab, vermutlich wegen des Verschwindens eines Teils dieser Porosität.

2. Spaltgasfreisetzung

2.1 Spaltgasfreisetzung aus oxidischem Brennstoff

2.1.1 Freisetzungsmechanismen

Für die Behandlung der Spaltgasfreigabe kann man den Brennstoff in drei Temperaturzonen einteilen:

1. Die äussere Zone mit Temperaturen unter 1100°C, in der praktisch keine Gefügeänderungen erfolgen.
2. Die Zone mit Temperaturen zwischen 1100 und 1800°C.
3. Die Stengelkristallzone mit Temperaturen über 1800°C.

In der äusseren Brennstoffzone liegt das Spaltgas hauptsächlich in dynamischer Lösung oder in Clustern bzw. kleinen Blasen vor, deren Durchmesser nach (11, 12) unter 50 Å liegen. Durch derartige Blasen können erhebliche Spaltgasmengen im Brennstoff gespeichert werden, wenn sie in hinreichend hoher Dichte auftreten. Nach (12) ist bei Temperaturen unter ca. 1100°C mit Blasendichten von ca. $3,5 \cdot 10^{17}$ pro cm³ zu rechnen. Nelson (13) errechnete eine praktisch temperatur- und spaltratenunabhängige Blasenkeimdichte von 10^{17} cm^{-3} . In (4) wurde die in Tabelle 1 angegebene Verteilung des Spaltgases in UO₂ mit 96% TD Ausgangsdichte, das bei 870°C bestrahlt wurde, abgeschätzt. Nach dieser Arbeit befindet sich ein sehr grosser Teil des erzeugten Spaltgases in Lösung (Tab. 1), wobei unter "Lösung" verstanden wird, dass es sich nicht in sichtbaren Blasen oder Clustern befindet, deren Nachweisgrenze bei 15 Å lag. Dies stimmt etwa überein mit Rechnungen von Nelson (13), der für 1% angereichertes UO₂ nach 1% Abbrand in einem thermischen Fluss von

$3 \cdot 10^{13}$ n/cm²·s bei 1080°C ($D = 10^{-18}$ cm²/s) feststellte, dass nahezu alles Spaltgas in dynamischer Lösung ist, bei Temperaturen über 1400°C ($D > 10^{-15}$ cm²/s) befindet sich praktisch alles Gas in Blasen.

Spaltgasfreisetzungen aus der äusseren Zone erfolgen hauptsächlich durch knock-out- und recoil-Prozesse, die beide temperaturunabhängig sind. Gefördert werden diese Freisetzungsprozesse durch Rissbildung infolge thermischer Spannungen. Dadurch werden zusätzliche freie Oberflächen geschaffen. Nach den Ergebnissen von (4) kann man auch in dieser Zone bei hohen Abbränden bereits mit Spaltgasansammlungen an den Korngrenzen rechnen, die bei Rissbildung zusätzlich freigesetzt werden.

Bei Temperaturen oberhalb 1100°C beginnen Diffusionsvorgänge und Blasenwanderung eine Rolle bei der Gasfreisetzung zu spielen. Die Freisetzung durch Diffusion atomaren Gases in einem dichten Brennstoff liegt nach (14) im allgemeinen jedoch unter 1% bei Temperaturen bis zu 1800°C. Im Laufe des Abbrandes kommt es zu einer Ansammlung des Spaltgases an den Korngrenzen, die bei beginnendem Kornwachstum durch die Korngrenzenwanderung noch verstärkt wird. Wenn das Gas an den Korngrenzen eine kritische Menge erreicht hat und eine Verbindung der gasgefüllten Hohlräume erfolgt, wird es freigesetzt. Wegen der starken Temperaturabhängigkeit dieser Vorgänge steigt die Freisetzungsrage in diesem Temperaturbereich steil an.

Bellamy und Rich (1) bestimmten Spaltgasfreisetzungen aus UO₂-Miniaturbrennelementen mit Pelletdichten von 95 und 98% TD bei maximalen Zentraltemperaturen von 1630°C. Bei allen Proben fand bei mehr als 3% Abbrand eine starke Erhöhung der Spaltgasfreisetzung statt. Bei Proben mit Zentraltemperaturen bis 1250°C betrug die Freisetzungsrage bis ca. 2% Abbrand weniger als 0,1%/Abbrand. Darüber stieg sie stark an, bis bei ca. 5% Abbrand etwa 8% des erzeugten Spaltgases freigesetzt waren. Dieser Effekt wird durch Ansammlung des Spaltgases an den Korngrenzen und

plötzliche Freisetzung hervorgerufen. Darauf deutet auch der Wechsel vom intrakristallinen zum interkristallinen Bruch dieser Proben nach Abbränden zwischen 2 und 3% hin. In (15) werden Bestrahlungsversuche an kleinen Kugeln aus geschmolzenem UO_2 beschrieben. Die zunächst geringe Freisetzungsrates bei $820^\circ C$ steigt bei 1,9% Abbrand steil an. Bei diesem Abbrand beginnen die Kugeln durch den Spaltgasdruck an den Korngrenzen zu brechen.

Aus der Stengelkristallzone erfolgt durch schnelle Poren- und Blasenwanderung eine nahezu vollständige Spaltgasfreisetzung. Diese rasche Freisetzung vollzieht sich nicht nur unter dem Einfluss eines hohen Temperaturgradienten, sondern auch bei nahezu isothermer Bestrahlung. An UO_2 -Proben mit niedriger spezifischer Leistung wurde bei $1840^\circ C$ festgestellt, dass das Spaltgas fast in dem Masse freigesetzt wird, wie es erzeugt wird (16). Die Gasfreisetzung bei diesen Versuchen begann bereits in den ersten Stunden der Bestrahlung.

2.1.2 Gemessene Spaltgasfreisetzungswerte

In Abb. 1 wurden an Mischoxid-Brennstäben gemessene Spaltgasfreisetzungswerte in Abhängigkeit vom Abbrand aufgetragen. Bei dem Brennstoff handelt es sich in allen Fällen um Mischoxidpellets mit 5 bis 25 Gew.-%, meist 20%, PuO_2 -Anteil. Die Pelletdichte lag bei oder über 90% TD. Der Durchmesser der Pellets betrug 5,4 - 5,5 mm. Die prozentuale Freisetzungsrates steigt bei niedrigen bis mittleren Abbränden zunächst etwa linear mit dem Abbrand an. Der Anstieg wird dann flacher bei höheren Abbränden. Bei 100 000 MWd/t ist unter den üblichen Betriebsbedingungen mit Freisetzungen von 70 bis 90% des erzeugten Spaltgases zu rechnen. Der anfängliche Anstieg der Freisetzungsrates mit dem Abbrand ist um so steiler, je höher die Stableistung und die Brennstofftemperaturen sind. Die Streuung der Werte ist jedoch sehr gross.

Bei Brennstäben mit vibriertem Brennstoff ist der anfängliche Anstieg der Freisetzungsrates noch steiler. Wegen des weit höheren

Anteils offener Porosität zu Beginn der Bestrahlung ist dieser Effekt leicht erklärbar. Bei hohen Abbränden sind dann die Freisetzungsraten nahezu gleich. In (17) wurden die Freisetzungsraten von Xe-133 aus vibrierten UO_2 -Brennstäben zu Beginn der Bestrahlung bei konstanten Leistungsdichten wiedergegeben. Stäbe mit Stableistungen um 1150 W/cm setzten die drei- bis fünffache Menge frei als solche mit 850 W/cm, wobei im Falle der höheren Stableistung die Freisetzungsraten mit der Zeit stärker anstiegen als bei der niedrigen Stableistung. Diese Versuche wurden allerdings nur bis zu Bestrahlungszeiten von 10^3 min durchgeführt.

2.2 Spaltgasfreisetzung aus karbidischem Brennstoff

Die Spaltgasfreigabe aus karbidischem Brennstoff ist ausführlich unter Auswertung der vorliegenden Literatur in (18, 19) behandelt. Im folgenden werden die zusammengefassten Ergebnisse dieser Arbeiten wiedergegeben.

Für stöchiometrisches UC hoher Dichte ergaben sich bei Abbränden unter 5% in Abhängigkeit von der Zentraltemperatur folgende Freisetzungswerte (19):

UC-Zentraltemperatur	Spaltgasfreigabe
$^{\circ}C$	%
< 800	$\leq 0,1$
1000	0,3
1100	0,5 - 1
1200	2 - 10
1500	5 - 20
1700	10 - 30

Bei UC mit niedriger Dichte können die Freisetzungswerte wesentlich höher liegen. Unterstöchiometrisches UC zeigt ebenfalls erheblich höhere Freisetzungswerte. Die Freigabe sinkt mit steigendem C-Gehalt.

Einen wesentlichen Einfluss auf die Freisetzungsrage hat auch der Abbrand. Nach (18) ist damit zu rechnen, dass bei Temperaturen zwischen 900 und 1000°C und Abbränden über 5% in U-Pu-Karbidbrennstoff die Spaltgasblasen an Korngrenzen sich zu vereinigen beginnen. Bei Brennstoffzentraltemperaturen über 900°C wurden nämlich nach 12 - 13% Abbrand Spaltgasfreisetzungen von 28 - 30% gemessen, während nach 5 - 10% Abbrand bei ca. 850°C Zentraltemperatur die Freisetzung unter 1 % lag.

3. Zusammenfassung

Die unter realen Reaktorbetriebsbedingungen aus oxidischen Brennstoffen freigesetzten Spaltgasmengen schwanken sehr stark, besonders bei niedrigen und mittleren Abbränden. Bei Abbränden um 100 000 MWd/t kann man mit Freisetzungen von 70 bis 90% des erzeugten Spaltgases rechnen. Der anfängliche Anstieg der Freisetzungsrage mit dem Abbrand ist bei vibriertem Brennstoff steiler als bei Tabletten-Brennstoff; er ist im allgemeinen auch um so steiler, je höher die Stabileistung und die Brennstofftemperatur sind. Die Menge des in verbliebenen Sinterporen gespeicherten Spaltgases ist gering.

Aus Karbidbrennstoffen wird bei Zentraltemperaturen unter 900°C und bei Abbränden unter 5% weniger als 1% des erzeugten Spaltgases freigesetzt. Oberhalb 900°C und 5% Abbrand steigt die Freisetzung sprunghaft an.

Literatur

- (1) R.G.Bellamy und J.B.Rich,
Grain-Boundary Gas Release and Swelling in High Burn-up UO_2
J.Nucl.Mat. 33 (1969) 64
- (2) D.J.Clough et al.
The Effects of Structural Changes on Gas Release Mechanisms in
 UO_2
Symp. Radiation Damage in Reactor Materials, Wien 1969
- (3) A.M. Ross
Irradiation Behaviour of Fission Gas Bubbles and Sintering
Pores in UO_2
J.Nucl.Mat. 30 (1969) 134
- (4) O.M.Katz
Fission Gas Bubbles in Fractured UO_2 Chips
J.Nucl.Mat.31 (1969) 323
- (5) R.S.Barnes und R.S.Nelson
The Behaviour of Inert Gases in Ceramic Fuels
Proc. Brit.Ceram.Soc. No.7, 1967, 343
- (6) R.O.Meyer et al.
Sinter Pore Migration in UO_2
ANL - 7679, 1970

- (7) R.S.Nelson
The Influence of Irradiation on the Nucleation of Gas Bubbles
in Reactor Fuels
J.Nucl.Mat. 25 (1968) 227
- (8) W.B.Lewis
Behaviour of Fission Gases in UO_2 Fuel
AECL - 1402, 1961
- (9) B.G. Childs
Fission Product Effects in Uranium Dioxide
J.Nucl.Mat. 9 (1963) 217
- (10) M.W. Rosenthal
The Effect of Closed Porosity on the Accuracy of the Model
for Fission-Gas Release from UO_2
CF - 59 - 11 - 24, 1959
- (11) A.D. Whapham
Electron Microscope Observation of the Fission-Gas Bubble
Distribution in UO_2
Nucl. Appl.2 (1966) 123
- (12) R.M.Cornell et al.
The Role of Bubbles in Fission Gas Release from UO_2
J.Nucl.Mat. 30 (1969) 170
- (13) R.S. Nelson
The Stability of Gas Bubbles in an Irradiation Environment
J.Nucl.Mat. 31 (1969) 153
- (14) R.L.Ritzmann et al.
Interpretations of Fission Gas Behavior in Refractory Fuels
Trans.ANS 12 (1969) 530
- (15) R.M.Carroll et al.
Fission-Gas Release from UO_2 during Irradiation under
Extreme Conditions
Trans. ANS 12 (1969) 76

- (16) R.F.Hilbert et al.
Irradiation Behavior of UO_2 at surface Temperatures
from 1300 to 1900°C
Trans. ANS 13 (1970) 132
- (17) G. Testa et al.
Fuel Microstructure Variation as a Consequence of the
First Irradiation Period and Approach-to-Power
Trans. ANS 11 (1968) 494
- (18) W.Dienst
Das Verhalten unter Neutronenbestrahlung
Beitrag in "Karbidische Kernbrennstoffe für schnelle Brut-
reaktoren", KFK 1111, 1969
- (19) W.Dienst und F.Thümmler
Bestrahlungsverhalten von UC und UN
Externer Bericht 6/67-2, 1967
- (20) W.J. Ross et al.
Post-Examination of UO_2 -5wt% PuO_2 Fuels
Trans. ANS 9 (1966) 40
- (21) B.F. Rubin et al.
The Irradiation of Stoichiometric and Hypostoichiometric
 UO_2 - PuO_2 -Fuels to Exposures of 125 000 MWD/MT
Trans. ANS 10 (1967) 102
- (22) K.J. Perry et al.
High Burnup Performance of Mixed-Oxide Fuel to 120 000 MWD/T
Trans. ANS 10 (1967) 461
- (23) F.Anselin et al.
Irradiation Behavior of Plutonium Mixed Oxide Driver Fuel
of Rapsodie
Trans. ANS 11 (1968) 514

- (24) C.N.Craig
Fast Reactor (Pu,U)O₂ Fuel Pin Irradiations in EBR-II
to 75 000 MWd/Te
Trans. ANS 12 (1969) 566
- (25) R.D. Seggett et al.
Hybrid Computer Simulation of Fuel Pin Performance
Trans. ANS 12 (1969) 566
- (26) J.W. Weber et al.
Performance of Stainless-Steel-Clad, Mixed-Oxide Fuel Pins
Trans. ANS 12 (1969) 604
- (27) A.R. Olsen
Intermediate-Burnup Irradiation Tests of Sphere-Pac
Sol-Gel Fuels
Trans ANS 13 (1970) 32
- (28) J.M.Gerhart et al.
The Irradiation and Examination of a Plutonium-Uranium Oxide Fast
Reactor Fuel
ASTM Spec.Techn.Publ. No. 306 (1961) 1954
- (29) H.Lawton et al.
The Irradiation Behaviour of Plutonium-Bearing Ceramic Fuel Pins
Proc. London Conf.Fast Breeder Reactor, 1966, paper 4B/4
- (30) J.B. Sayers
zitiert in Studies of Irradiation Effects on Solids,
Vol. 2, 1967

Tab. 1: Verteilung des erzeugten Spaltgases in UO_2 nach Bestrahlung bei
 $T \leq 870^\circ\text{C}$ in Abhängigkeit vom Abbrand nach (4)

Abbrand ($\frac{\text{Spaltungen}}{\text{cm}^3}$)	$3,8 \cdot 10^{20}$		$14 \cdot 10^{20}$		$24,9 \cdot 10^{20}$	
Aufenthaltsort des Spaltgases	Spaltgasmenge		Spaltgasmenge		Spaltgasmenge	
	$\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^3}$	%	$\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^3}$	%	$\frac{\text{Atome}}{\text{cm}^3}$	%
in Lösung oder in Clustern mit Durchmessern $< 15 \text{ \AA}$	$0,889 \cdot 10^{20}$	78	$2,646 \cdot 10^{20}$	63	$2,689 \cdot 10^{20}$	36
an Subkorngrenzen			$0,139 \cdot 10^{20}$	3,3	$3,511 \cdot 10^{20}$	47
in Sinterporen	$0,091 \cdot 10^{20}$	8	$0,084 \cdot 10^{20}$	2		
in Blasen	$0,160 \cdot 10^{20}$	14	$1,168 \cdot 10^{20}$	27,8	$0,344 \cdot 10^{20}$	4,6
freigesetzt			$0,143 \cdot 10^{20}$	3,4	$0,943 \cdot 10^{20}$	12,6

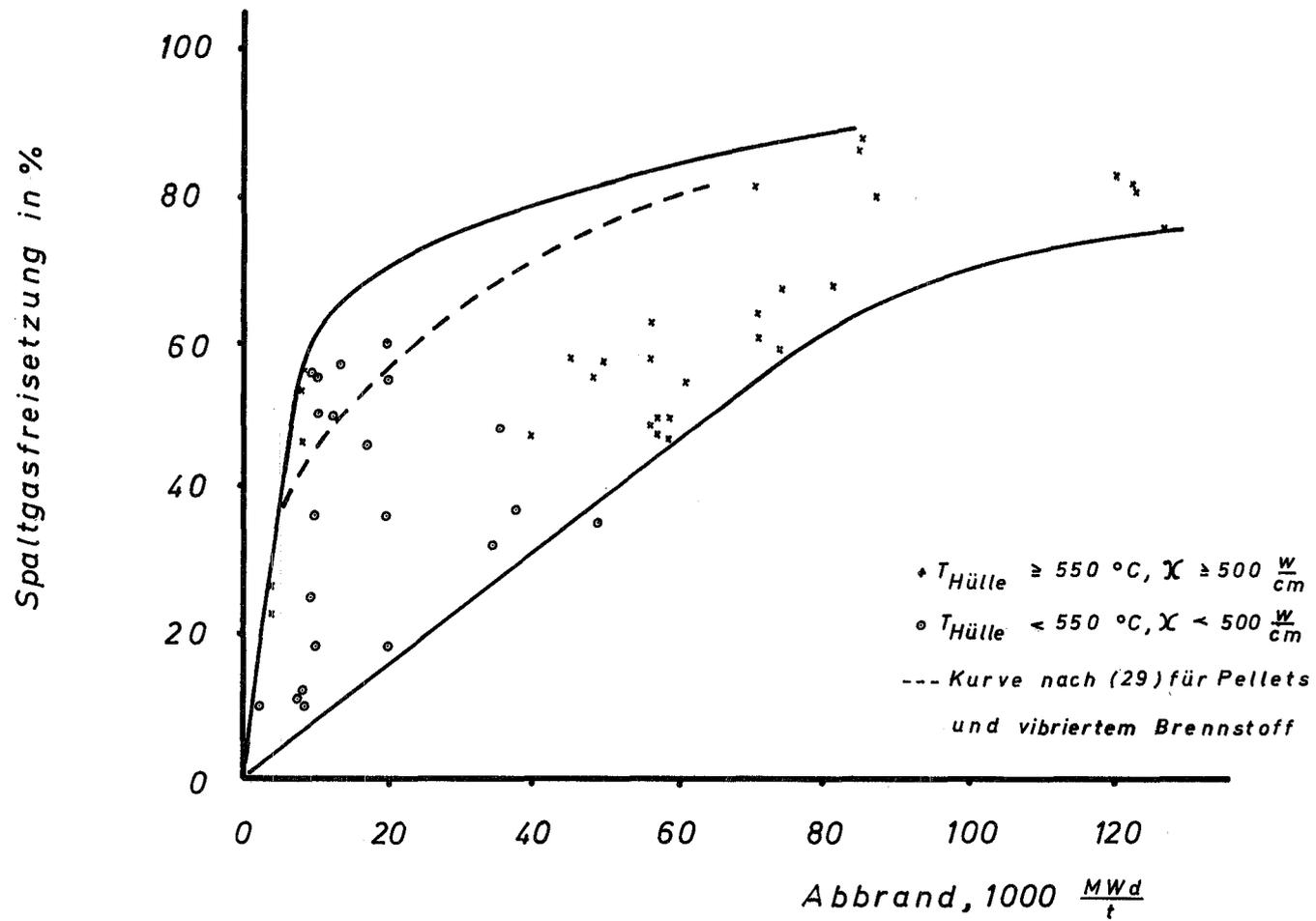


Abb.1: Spaltgasfreisetzung aus Mischoxid - Tabletten - Brennstoff in Abh\u00e4ngigkeit vom Abbrand (20 - 29)

XIX. Wanderung der Herstellungsporen

von
H. Hoffmann

Inhalt:

1. Einleitung
2. Porenwanderungsmodelle
3. Abschätzung der Einzelbeiträge zur Porenwanderungsgeschwindigkeit
 - 3.1 Porenwanderungsgeschwindigkeit als Funktion des Porenradius
 - 3.2 Porenwanderungsgeschwindigkeit als Funktion der Temperaturverteilung im Brennstoff
4. Wanderungsgeschwindigkeit als Funktion der Porenform
 - 4.1 Korrekturterm für Abweichungen von der Kugelgestalt
 - 4.2 Linsenblasen

1. Einleitung

In der Brennstabmodelltheorie unterscheidet man zwischen der Wanderung von Herstellungsporen und Spaltgasblasen. Während sich die Herstellungsporen beim Sintervorgang ausbilden (z.B. für UO_2 bei $1600^\circ C$ und einem strömendem Wasserstoff-Inertgas-Gemisch), entstehen die Spaltgasblasen erst im Reaktor mit zunehmendem Abbrand. Mit der Wanderung der Herstellungsporen beschreibt man Kurzzeitvorgänge, wie die Bildung des Zentralkanals und der Stengelkornzone, und mit der Wanderung der Spaltgasblasen erklärt man Langzeitvorgänge wie Spaltgasfreisetzung und Schwellen.

Da die Modelle für die Porenwanderung von der Größe, Gestalt, dem Gasgehalt, Druck etc. der Poren abhängen, ist die Aufstellung einer universellen Geschwindigkeitsrelation verhältnismäßig schwierig; eine Trennung bezüglich des Gasinhaltes und Druckes erfolgt durch die Einteilung in Sinterporen und Spaltgasblasen. Im folgenden werden nur Sinterporen mit einem mittleren Gasdruck von 1 atm und reiner He-Füllung behandelt.

2. Porenwanderungsmodelle

Wie bei der Wanderung von Spaltgasblasen unterscheidet man bei der Wanderung von Sinterporen 3 Modelle [1 - 11]:

- | | | |
|---|---|-----------------|
| a) <u>G</u> itterdiffusion | } | der Matrixatome |
| b) <u>O</u> berflächendiffusion | | |
| c) <u>V</u> erdampfung und <u>K</u> ondensation | | |

Den folgenden Betrachtungen liegt die Annahme zugrunde, daß eine kugelförmige Pore auch während der Wanderung entlang eines Temperaturgradienten $\frac{dT}{dx}$ ihre Form nicht ändert. Steht die Pore unter der Wirkung einer treibenden Kraft F , so gilt für die Porenwanderungsgeschwindigkeit V :

$$V = \frac{D}{kT} \cdot F \quad (1)$$

wobei D = Porendiffusionskoeffizient

k = Boltzmannkonstante

T = absolute Temperatur

Für die Kraft F gilt:

$$F = \frac{2\pi \rho^3}{\Omega} \cdot \frac{Q^*}{T} \cdot \left(\frac{dT}{dx} \right) \quad (2)$$

ρ = Porenradius

Ω = Molekularvolumen des Brennstoffes

Q^* = Transportwärme

Q^* ist die Wärme, die das Atom mit sich führt, wenn es sich entlang des Gradienten bewegt; für den Fall des Dampftransportes (Verdampfung-Kondensation) ist Q^* gleich der Verdampfungswärme ΔH der Matrixatome, für den Fall der Diffusion besteht eine Relation zwischen der Aktivierungsenergie Q der Diffusion und der Transportwärme Q^* . Letztere ist generell kleiner oder gleich Q . Da für UO_2 weder experimentelle noch theoretische Werte für die Transportwärme der Oberflächendiffusion Q_o^* vorhanden sind, wird hier $Q_o^* = Q_o$ angenommen, wobei Q_o die Aktivierungsenergie der Oberflächendiffusion ist.

Die Porenwanderungsgeschwindigkeit V setzt sich aus den oben angeführten 3 Anteilen zusammen. In den Einzelbeiträgen ist der Porendiffusionskoeffizient D durch den der Einzelmechanismen ersetzt:

$$V_G = \frac{D_G \cdot Q_G^*}{kT^2} \cdot \left(\frac{dT}{dx} \right) \quad (3)$$

$$V_O = \frac{3 \cdot D_o \cdot \gamma \cdot \Omega \cdot Q_o}{\rho \cdot k \cdot T^2} \cdot \left(\frac{dT}{dx} \right) \quad (4)$$

$$V_{VK} = \frac{9 \cdot p_o \cdot \Omega \cdot \Delta H}{16 \cdot p_{tot} \cdot \sigma^2} \cdot \frac{\exp(-\Delta H/kT)}{T^{3/2}} \sqrt{\frac{N(M_1 + M_2)}{2\sqrt{k} M_1 \cdot M_2}} \cdot \left(\frac{dT}{dx} \right) \quad (5)$$

V_G, V_O, V_{VK} = Porenwanderungsgeschwindigkeit, verursacht durch Gitter-, Oberflächendiffusion bzw. Verdampfung-Kondensation

$\gamma = \frac{1}{\Omega^{2/3}}$ = Zahl der diffundierenden Oberflächenatome pro Oberflächeneinheit

$p = p_o \cdot \exp(-\Delta H/kT)$ = Dampfdruck

p_{tot} = totaler Druck in der Pore

$\overline{\pi} \sigma^2$ = Stoßquerschnitt zwischen Dampf- und Matrixmolekülen

N = Loschmidtzahl

M_1 = Molekulargewicht von UO_2

M_2 = Molekulargewicht von He

$V = V_G + V_O + V_{\text{VK}}$

Die Porenwanderungsgeschwindigkeit V_G ist vom Porenradius unabhängig, V_O ist dem Porenradius umgekehrt proportional. Ist p_{tot} in Gl. (5) vom Radius unabhängig, so ist auch V_{VK} von ρ unabhängig. Eine experimentelle Ermittlung von $V = f(\rho)$ könnte somit den Wanderungsmechanismus festlegen.

3. Abschätzung der Einzelbeiträge zur Porenwanderungsgeschwindigkeit

Es wird nun versucht, die einzelnen Anteile zur Porenwanderungsgeschwindigkeit zu ermitteln. Hierzu werden 2 verschiedene Anwendungsbeispiele gewählt: Die Geschwindigkeit als Funktion des Porenradius und die Geschwindigkeiten als Funktion der Temperatur in einer bestrahlten UO_2 -Probe.

3.1 Porenwanderungsgeschwindigkeit als Funktion des Porenradius

Mit den in Tabelle 1 angegebenen Materialeigenschaften vereinfachen sich die Gleichungen 3 bis 5 zu:

$$V_G \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = 1,84 \cdot 10^{-11} \quad (6)$$

$$V_O \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = 3 \cdot 10^{-12} \cdot \frac{1}{\rho \text{ (cm)}} \quad (7)$$

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

Hierbei wurde eine mittlere Brennstofftemperatur von 2000°K und ein Temperaturgradient von $5 \cdot 10^3 \frac{^\circ\text{K}}{\text{cm}}$ angenommen. Für Gl. (8) müssen noch einige Annahmen bezüglich des totalen Druckes p_{tot} in der Pore getroffen werden:

- a) Da die Sintertemperatur von 1600°C mit der mittleren Brennstofftemperatur im Reaktor (ca. 1700°C) näherungsweise übereinstimmt und die Sinteratmosphäre ca. 1 atm beträgt, liegt der Schluß nahe, $p_{\text{tot}} = 1 \text{ atm}$ zu setzen. Gl. (8) wird dadurch ebenfalls von ρ unabhängig und man erhält:

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

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

Mit $T_0 = 293^{\circ}\text{K}$, $p_0 = 1 \text{ atm}$ und unter der Annahme, daß das Gasvolumen konstant bleibt, gilt:

$$p_{\text{tot}} = \frac{p_0}{T_0} \cdot T_{\text{Spalt}} \cong 3 \text{ atm}$$

Die Porenwanderungsgeschwindigkeit nimmt daher um den Faktor 3 ab:

$$v_{\text{VK}} \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = 2,79 \cdot 10^{-9} \quad (10)$$

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

$$v_{\text{VK}} \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = \frac{8,38 \cdot 10^{-3}}{3 \cdot 10^6 + \frac{2 \cdot 10^3}{\rho \text{ (cm)}}} \quad (11)$$

Für Porenradien $< 10^{-5} \text{ cm}$ wird Gl. (11) radiusabhängig und man erhält:

$$v_{\text{VK}} \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = 4,19 \cdot \rho \text{ (cm)} \cdot 10^{-6} \quad (12)$$

Gl. (12) gilt auch für Poren beliebiger Radien und $p_a = 0$.

Für große Poren ($r > 10^{-2}$ cm) wird der Beitrag der Oberflächenspannung vernachlässigbar und Gl. (12) wird radiusunabhängig.

Ein Vergleich der einzelnen Geschwindigkeitsbeiträge zeigt, daß der Beitrag der Gitterdiffusion vernachlässigbar ist; die übrigen Beiträge sind in Abb. 1 aufgetragen.

Die Radien der Sinterporen werden zu ca. 0,5 - 10 μ m angenommen; durch Agglomeration der wandernden Poren erweitert sich dieser Bereich zu höheren Radien (ca. 50 μ m). Im Gesamtbereich wird die Dominanz der Oberflächendiffusion durch die der Verdampfung und Kondensation abgelöst.

Für die Modellrechnung wird folgende Gleichung vorgeschlagen:

$$V \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}} \right) = V_0 + V_{VK} =$$

$$= \left\{ \frac{C_1}{\rho} \cdot \frac{1}{T^2} \cdot \exp \left(- \frac{60500}{T} \right) + \frac{C_2}{p_{\text{tot}}} \cdot \frac{1}{T^{3/2}} \cdot \exp \left(- \frac{71700}{T} \right) \right\} \left(\frac{dT}{dr} \right) \quad (13)$$

$$\text{mit } p_{\text{tot}} = p_a + \frac{2\gamma}{\rho} = C_3 + \frac{C_4}{\rho}$$

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

$$\text{und } C_1 = 3,13 \cdot 10^4$$

$$C_2 = 5,48 \cdot 10^8$$

$$C_3 = 3$$

$$C_4 = 2 \cdot 10^{-3}$$

Hierbei ist jedoch zu beachten, daß V_0 maximal abgeschätzt wurde, da Q_0^* unbekannt ist. Diese Größe kann evtl. wie folgt bestimmt werden: Eine experimentell ermittelte Porositätsverteilung im bestrahlten Brennstoff wird durch eine theoretische angepaßt; auf diese Weise werden die Konstanten C_1 bis C_4 , die jetzt als Variable auftreten, vom Experiment her bestimmt.

3.2 Porenwanderungsgeschwindigkeit als Funktion der Temperaturverteilung im Brennstoff

Der Temperaturverlauf wird vereinfachend als parabolisch angesehen:

$$T(r) = T_B + \frac{\chi}{4\pi k_B} \left(1 - \frac{r^2}{r_B^2} \right) \quad (14)$$

T_B = Brennstoffrandtemperatur

r_B = Brennstoffradius

χ = Stabileistung

k_B = mittlere Wärmeleitfähigkeit

Der Temperaturgradient ergibt sich hieraus zu:

$$\left(\frac{dT}{dr} \right) = - \frac{r}{r_B^2} \cdot \frac{\chi}{2\pi k_B} \quad (15)$$

Mit den Materialdaten der Tabelle 1 und einer Brennstoffrandtemperatur von 1070°K sind die Einzelbeiträge der Porenwanderungsgeschwindigkeiten für 2 verschiedene Stableistungen (250 W/cm und 500 W/cm) und 3 verschiedene Porenradien ($5 \cdot 10^{-5}$ cm, $5 \cdot 10^{-4}$ cm, $5 \cdot 10^{-3}$ cm) errechnet worden und in den Abb. 2 und 3 aufgetragen. Berücksichtigt wurde nur die Oberflächendiffusion und der Transport über den Verdampfungs-Kondensations-Mechanismus für $p_{\text{tot}} = 1$ atm. Legt man einen Bestrahlungszeitraum von 2 Jahren und eine Wanderstrecke der Poren von 1 mm zugrunde, so dürfte die Wanderung der Poren bei Temperaturen $< 1800^\circ\text{K}$ vernachlässigt werden. Für $r = 0$ cm wurde willkürlich $\frac{dT}{dr} = 5^\circ\text{K/cm}$ statt 0°K/cm gesetzt. Zur Brennstoffmitte nehmen die Wanderungsgeschwindigkeiten nach Erreichen eines Maximums wieder beträchtlich ab, welches auf die Abnahme des Temperaturgradienten bei nahezu gleichbleibender Temperatur zurückzuführen ist. Dies ist die Erklärung für Porenanhäufungen in der Nähe des Brennstoffzentrums bzw. Zentralkanals.

Die Abb. 4 und 5 zeigen die gleichen Ergebnisse in der Form $V_{\text{VK}}/V_0 = f(r)$ mit dem Porenradius als Parameter. Diese Auftragung ermöglicht eine leichtere Überschaubarkeit der Einzelbeiträge zur Wanderungsgeschwindigkeit. Mit zunehmendem Porenradius nimmt der Beitrag über den Verdampfungs-Kondensations-Prozeß merklich zu, hingegen mit zunehmendem Brennstoffradius merklich ab.

4. Wanderungsgeschwindigkeit als Funktion der Porenform

4.1 Korrekturterm für Abweichungen von der Kugelgestalt

Die Gleichungen (3) bis (5) gelten exakt nur für kugelige Poren, die ihre Gestalt auch während der Wanderung nicht verändern. Unter der Annahme, daß für die Wanderung der Sinterporen der Verdampfungs-Kondensationsprozeß der dominierende ist, berechnete Nichols einen Korrekturterm, der die zigarrenförmige Verformung in Wanderungsrichtung beschreibt [12]. Für V_{VK} wird angesetzt:

$$v_{VK} = - D_{VK} \Omega C_o \cdot \Delta H \cdot \frac{\nabla T}{k T_o^2} \cdot \left\{ P_1 (\cos \theta) + P_2 (\cos \theta) \cdot \frac{2}{3} \alpha \right\} \quad (15)$$

T_o = mittlere Temperatur in der Pore

D_{VK} = Diffusionskoeffizient bei T_o (siehe Tab. 1)

$C_o = \frac{P_o}{kT} \exp \left(- \frac{\Delta H}{RT} \right)$ = Gleichgewichtskonzentration der Matrixatome in der Dampfphase bei T_o

∇T = Temperaturgradient

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

θ = Polarwinkel

$\alpha = (\nabla T \cdot \rho / T_o) (\Delta H / kT_o) < 1$

Gl. (15), ohne das Legendre-Polynom zweiter Ordnung, ist identisch mit Gl. (5). Dieser zweite Term vergrößert die zur Oberfläche senkrechte Wanderungsgeschwindigkeit an der heißen Seite und verkleinert sie an der kälteren Seite. Dadurch wird eine Verlängerung der Pore entlang des Temperaturgradienten unter gleichzeitiger Porenvolumenkonstanz hervorgerufen. Die resultierende, abgeflachte Pore ist oberhalb einer kritischen Größe ebenfalls nicht stabil; sie zerfällt in eine Reihe nahezu kugeliger Poren, die alle entlang des Wanderweges der ursprünglichen Pore aufgereiht sind. Nichols schätzte diesen kritischen Radius zu [13]

$$r_{Kr} \approx \sqrt[3]{\frac{\gamma \cdot \Omega \cdot T_o^2}{3 \cdot \Delta H \cdot (\nabla T)^2}} \quad (16)$$

ab. Mit $T = 2000^\circ K$, $\nabla T = 10^3$ °K/cm und den Materialdaten (s. Tab. 1) ergibt sich $r_{Kr} \approx 20$ µm.

Der kritische Porenradius, unterhalb dessen keine zigarrenförmige Verlängerung auftritt, wurde zu [12]

$$r_{Kr}^* \approx \sqrt[3]{\frac{3\gamma \cdot \Omega \cdot k \cdot T_o^3}{4 \cdot (\Delta H)^2 \cdot (\nabla T)^2}}$$

abgeschätzt. Mit $T = 2000^\circ K$, $\nabla T = 10^3$ °K/cm und den Materialdaten (s. Tab. 1) ergibt sich $r_{Kr}^* \approx 5$ µm.

4.2 Linsenblasen

Bei den Nachbestrahlungsuntersuchungen wurden vielfach Linsenblasen festgestellt. Weder ihre Entstehung noch ihre Stabilität während der Wanderung sind letztlich geklärt. Aus fotografischen Untersuchungen läßt sich schließen, daß die wandernden Linsenblasen die Stengelkornstruktur hervorrufen, indem sie die auf ihrem Wege liegenden Hohlräume in Form von Poren und Korngrenzen aufsaugen und diese in Doppelreihen längs der neugebildeten Stengelkörner zurücklassen. Die Entstehung der Linsenblasen kann man sich evtl. wie folgt vorstellen: Die kleinen Sinterporen wandern in Richtung des Temperaturgradienten zur nächsten Korngrenze wo sie aufgefangen werden. Hier können sie an den Grenzflächen entlangwandern und mit anderen Poren agglomerieren. An Kornflächen, die senkrecht zum Gradienten ausgerichtet sind, können längliche oder linsenähnliche Blasen entstehen, die sich dann, bei Überschreiten einer kritischen Blasengröße, von der Korngrenze losreißen.

Nur die Gleichungen (9) und (10) sind näherungsweise auf die Wanderung der Linsenblasen anwendbar, da V_{VK} vom Porenradius unabhängig ist.

Literatur:

- [1] D.R. De Halas u. G. R. Horn, J. Nucl. Mat. 8 2 (1963) 207-220
- [2] E.E. Gruber, ANL-7079, 1965, Auszüge in ANL-6868 (1963) und ANL-7000 (1964)
- [3] P.G. Shewmon, Trans.Met. Soc. AIME 230 (1964) 1134-1137
- [4] M.V. Speight, J. Nucl. Mat. 13, 2 (1964) 207-209
- [5] R. S. Barnes u. R.S. Nelson, "Radiation Effects", Met. Soc. Conf., Asheville, Sept. 1965, Vol 37, S. 225-267
- [6] J. Biersack, Nukleonik 8, 8 (1966) 439-442
- [7] J. Biersack, HMI-B49, Dez. 1966
- [8] F.A. Nichols, WAFD-TM-570, Oct. 1966
- [9] E.E. Gruber, J. Appl. Phys. 38, 1 (1967) 243-250
- [10] F.A. Nichols, J. Nucl. Mat. 30 (69) 142
- [11] H.R. Warner u. F. A. Nichols, Nucl. Appl. and Techn. 9 (1970) 148-166
- [12] F.A. Nichols, J. Nucl. Mat. 27 (1968) 137-146
- [13] F.A. Nichols, J. Nucl. Mat. 22 (1967) 214-222
- [14] W.M. Robertson, J. Nucl. Mat. 30 (1969) 36-49
- [15] R. Lindner u. F. Schmitz, Zeitschr. f. Naturf. 16a (1961) 1373
- [16] E.H. Kennard, "Kinetic Theory of Gases", Mc Graw-Hill Book Co., Inc. New York, 1938, S. 194
- [17] C.A. Alexander, J.S. Ogden, G.W. Cunningham: EMI-1789 (1967)
- [18] M. Eber, C. Sari, G. Schuhmacher, J. Nucl. Mat. 39 (1971) 265

Tabelle 1: Materialdaten

$$D_o = 5 \cdot 10^6 \exp(-120000/RT) \text{ cm}^2/\text{sec} \quad [14]$$

$$D_G = 0,23 \cdot \exp(-104600/RT) \text{ cm}^2/\text{sec} \quad [15]$$

$$D_{VK} = \frac{3}{8} \sqrt{\frac{\pi \cdot kT}{2 \pi \sigma^2 p_{tot}}} \sqrt{\frac{M_1 + M_2}{M_1 \cdot M_2} \cdot RT} \text{ cm}^2/\text{sec} \quad [16]$$

$$p = 1,64 \cdot 10^{14} \exp(-142600/RT) \text{ dyn/cm}^2 \quad [17]$$

$$Q_o^* = 120\,000 \text{ cal/Mol} = Q_o$$

$$Q_G^* = 35\,000 \text{ cal/Mol} \quad [18]$$

$$Q_{VK}^* = 142\,600 \text{ cal/Mol} = \Delta H$$

$$\Omega = 4,09 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^2$$

$$M_1 = 270 \text{ g/Mol}$$

$$M_2 = 4 \text{ g/Mol}$$

$$\pi \sigma^2 = 2,8 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2$$

$$\gamma = 10^3 \text{ erg/cm}^2$$

$$r_B = 0,3 \text{ cm}$$

$$T_B = 1070^\circ\text{K}$$

$$\bar{k}_B = 0,02 \text{ W/cm}^\circ\text{C}$$

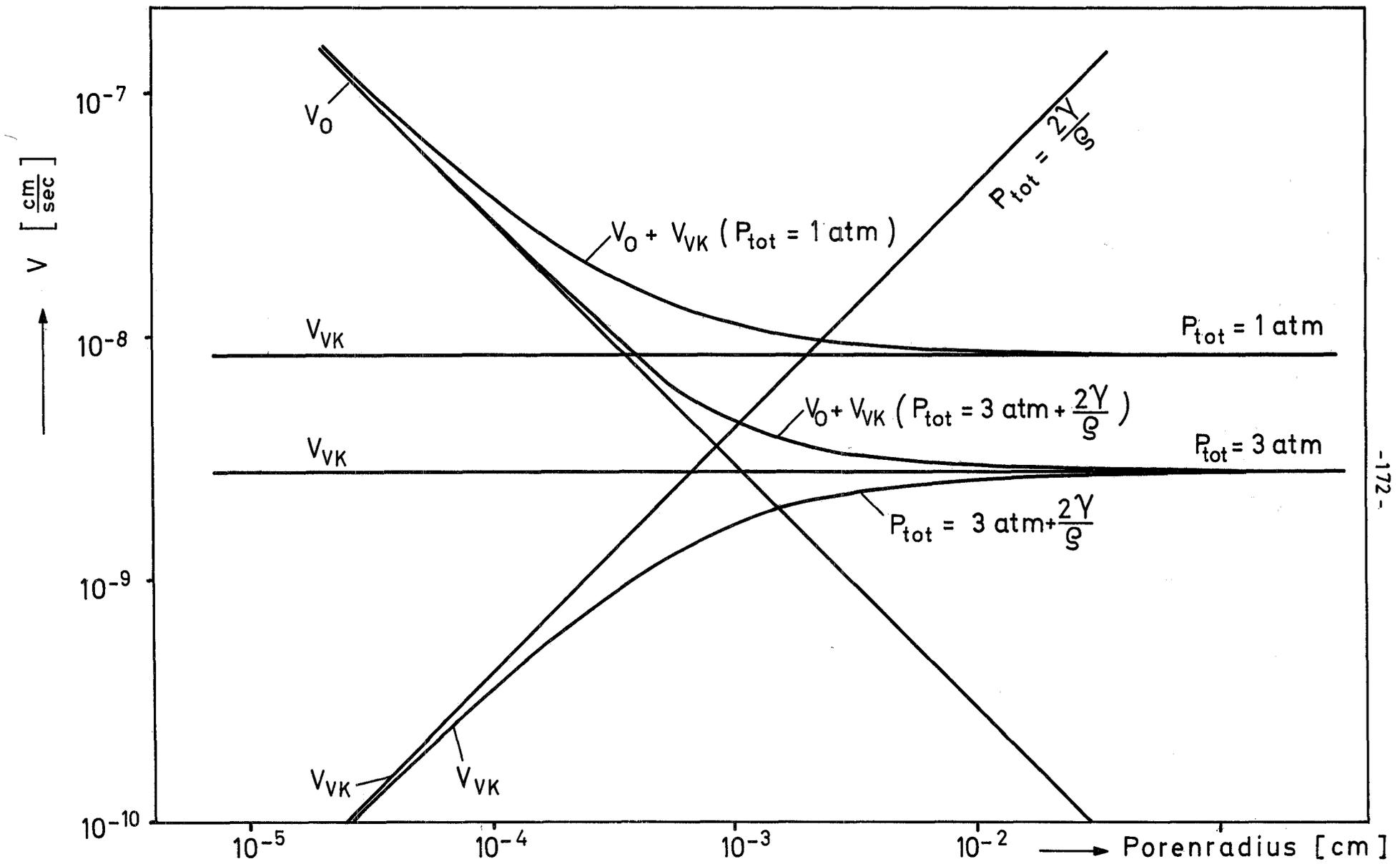


Abb. 1 Porenwanderungsgeschwindigkeiten, hervorgerufen durch Oberflächendiffusion (V_0) und Verdampfung-Kondensation (V_{VK}), als Funktion des Porenradius

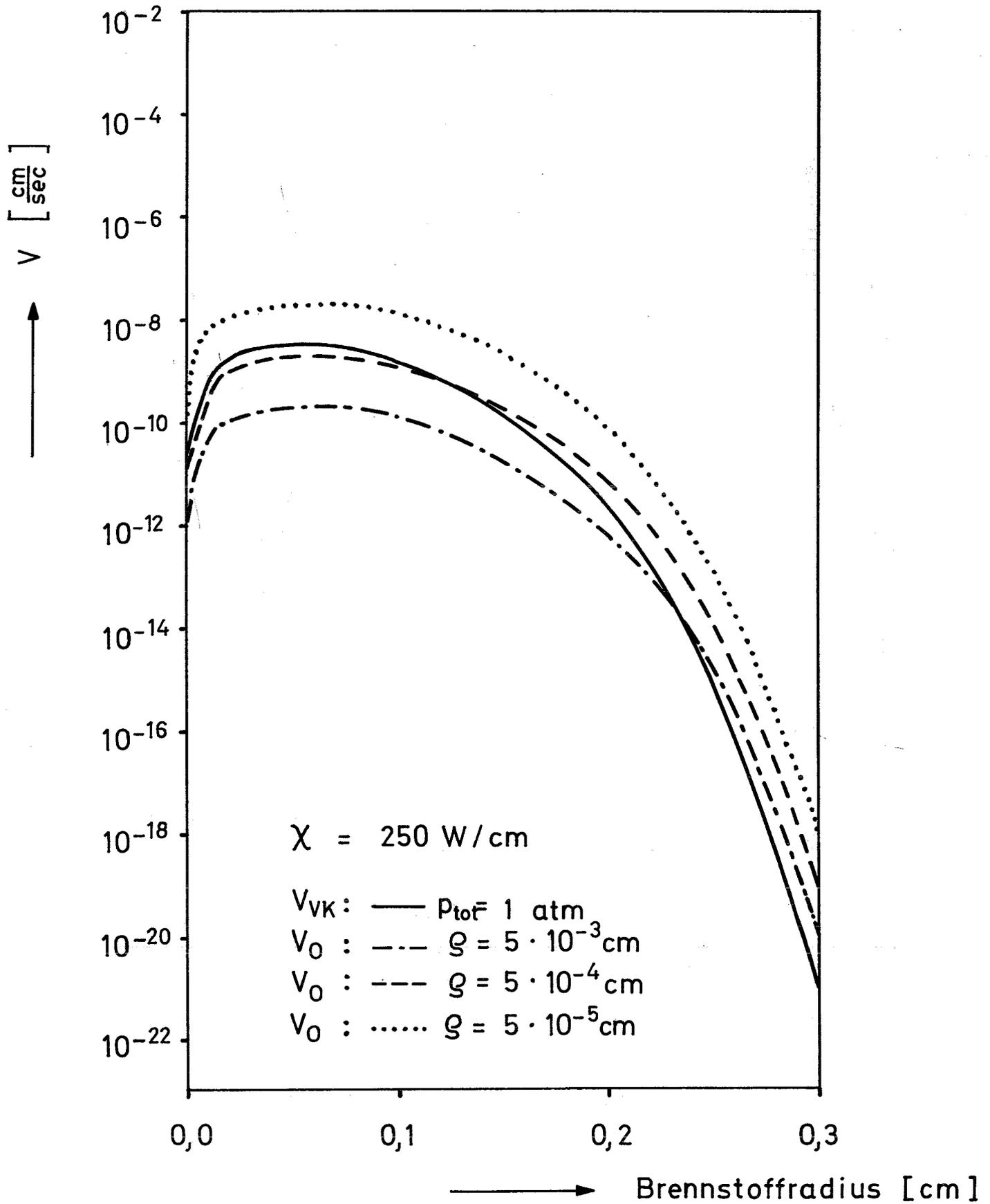


Abb. 2 Radiale Verteilung der Porenwanderungsgeschwindigkeiten, hervorgerufen durch Oberflächendiffusion (V_O) und Verdampfung-Kondensation (V_{VK}) für $\chi = 250 \text{ W/cm}$

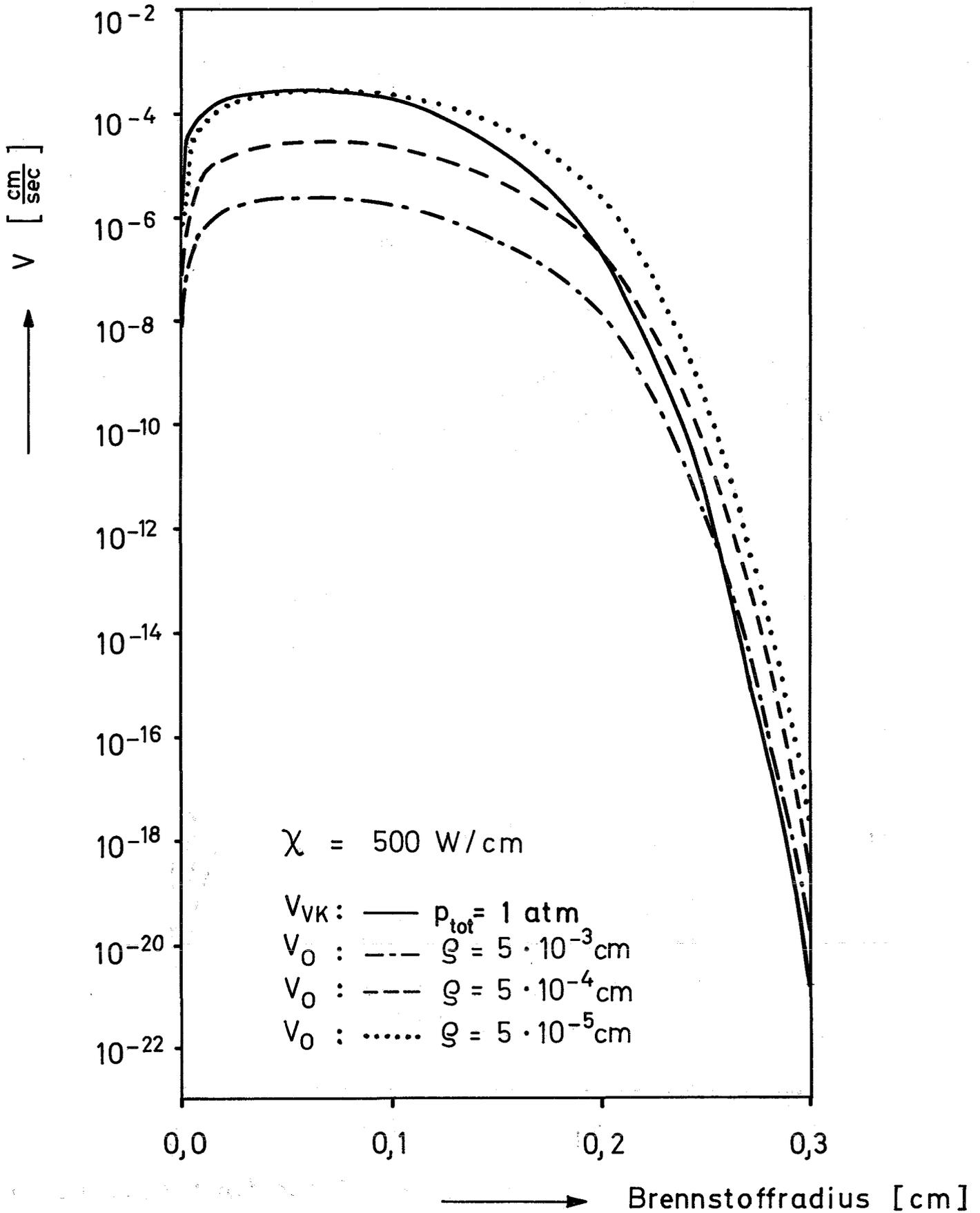


Abb. 3 Radiale Verteilung der Porenwanderungsgeschwindigkeiten, hervorgerufen durch Oberflächendiffusion (V_O) und Verdampfung-Kondensation (V_{VK}) für $\chi = 500 \text{ W/cm}$

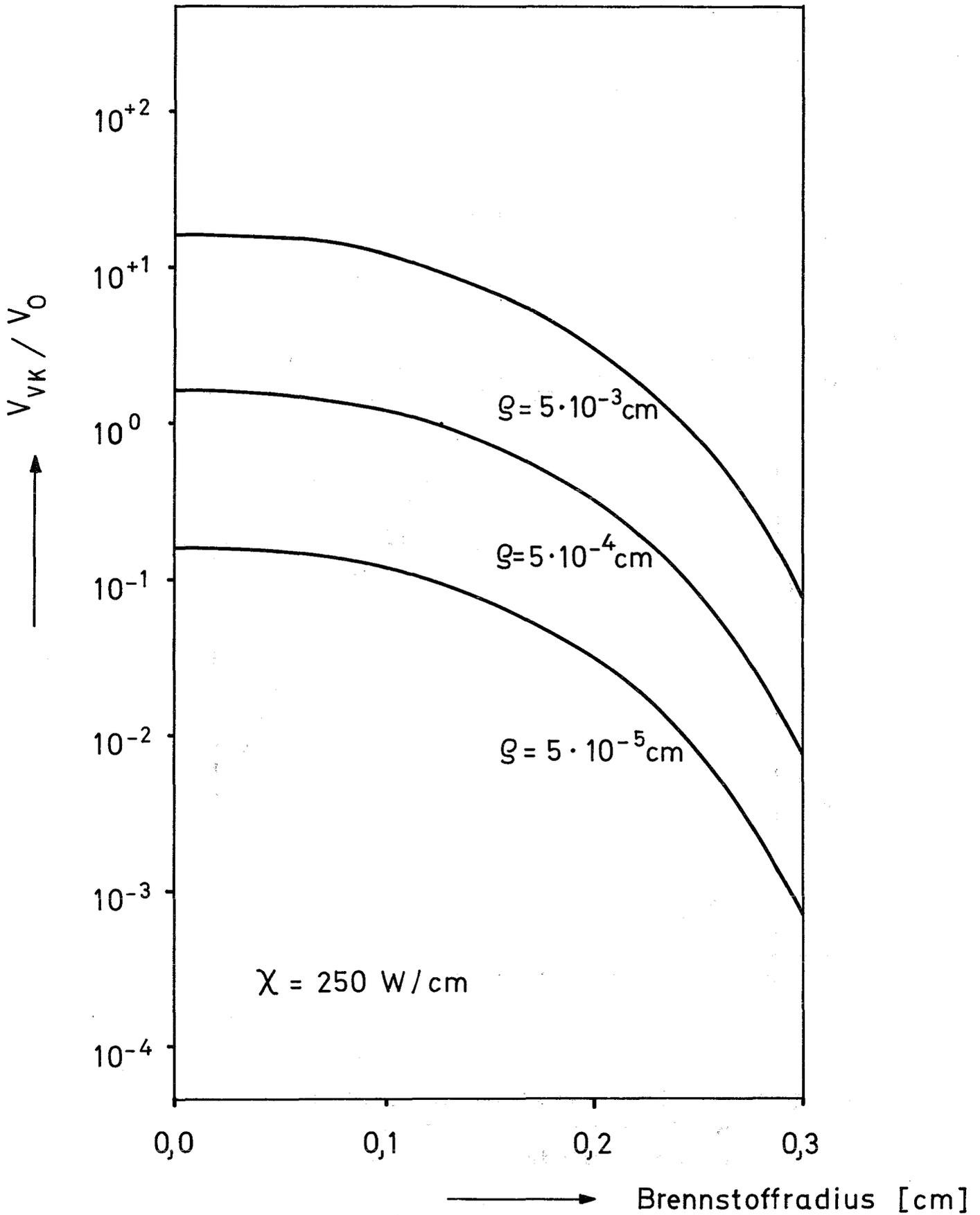


Abb. 4: Verhältnis der Porenwanderungsgeschwindigkeiten (Verdampfung-Kondensation / Oberflächendiffusion) über den Brennstoffradius für $\chi = 250 \text{ W/cm}$

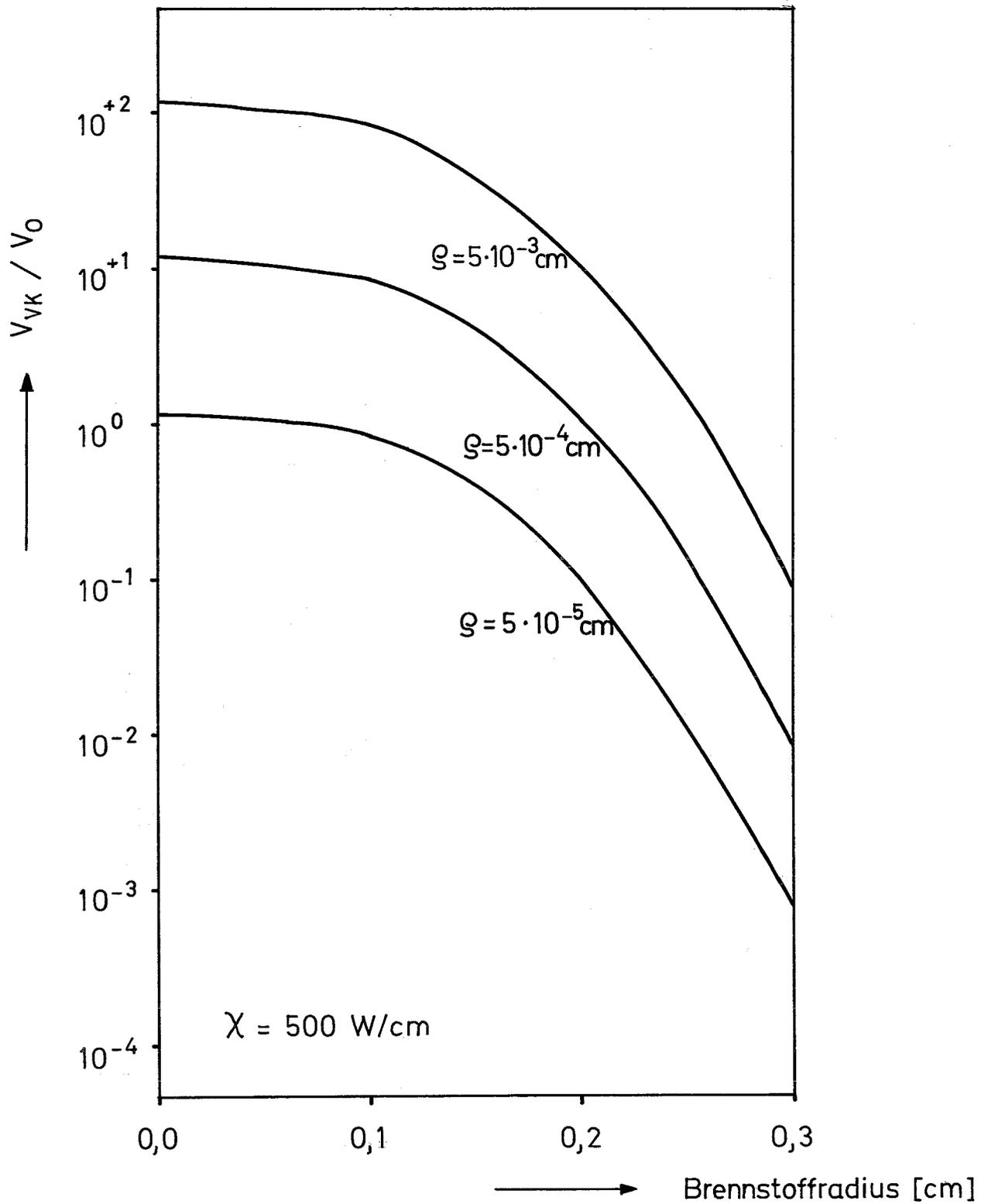


Abb. 5 Verhältnis der Porenwanderungsgeschwindigkeiten
(Verdampfung-Kondensation / Oberflächendiffusion)
über den Brennstoffradius für $\chi = 500 \text{ W/cm}$

XX. Kriechverhalten von keramischen Kernbrennstoffen unter
Neutronenbestrahlung bei Temperaturen unterhalb 1200°C

von

D. Brucklacher

Inhalt:

1. Einleitung
2. Theoretische Betrachtungen
3. Experimentelle Ergebnisse und Diskussion der Parameter
 - 3.1 Kriechverhalten von UO_2
 - 3.1.1 Spannungsabhängigkeit
 - 3.1.2 Temperaturabhängigkeit
 - 3.1.3 Spaltungsratenabhängigkeit
 - 3.1.4 Abbrandabhängigkeit
 - 3.1.5 Porositätsabhängigkeit
 - 3.1.6 Stöchiometrieabhängigkeit
 - 3.1.7 Korngrößenabhängigkeit
 - 3.2 Kriechverhalten von UO_2 - PuO_2
 - 3.3 Kriechverhalten von UC und UN
4. Schlußbemerkungen

1. Einleitung

Der Kriechvorgang wird charakterisiert durch die Kriechverformung. Diese Grösse ist als bleibende Formänderung normalerweise direkt zugänglich. Unter Neutronenbestrahlung tritt auch ohne Einwirkung von äusseren Spannungen eine kontinuierliche Formänderung durch Einlagerung fester und gasförmiger Spaltprodukte auf. Diese Volumenzunahme muss bei der Bestimmung der Kriechverformung berücksichtigt werden. Die Kriechverformung unter Bestrahlung ergibt sich deshalb aus der Differenz zwischen der gemessenen Formänderung und derjenigen Formänderung, die die Kriechprobe durch reines Schwellen bei den tatsächlich wirkenden Spannungen erleiden würde.

Das Kriechverhalten von unbestrahlten keramischen Kernbrennstoffen wird im wesentlichen bestimmt durch die äusseren Bedingungen (Temperatur, Spannung), die chemischen Eigenschaften (Stöchiometrie, Reinheit, Pu-Gehalt) und die stereometrischen Eigenschaften (Korngrösse, Porosität, Pu-Verteilung bei mechanisch gemischtem Material). Unter Neutronenbestrahlung kommt hinzu, dass die Kriechgeschwindigkeit von keramischen Kernbrennstoffen bei tiefen Temperaturen in Abhängigkeit von der Spaltungsrate stark erhöht wird. Ausserdem ist mit der Bestrahlung (Spaltung von U- bzw. Pu-Atomen, hoher Temperaturgradient) eine teilweise Änderung der chemischen und stereometrischen Eigenschaften verbunden, die zu einer Beeinflussung des Kriechverhaltens führen kann.

In dem vorliegenden Bericht soll versucht werden, aus den bisher bekannten experimentellen Ergebnissen unter Bestrahlung und aus theoretischen Betrachtungen erste quantitative Aussagen über den Zusammenhang zwischen Kriechgeschwindigkeit und Kriechparametern bei Temperaturen unterhalb 1200°C zu machen.

2. Theoretische Betrachtungen

Nach allgemeinen Kenntnissen über das Kriechen von polykristallinen oxydkeramischen Materialien [1] kann angenommen werden, dass die Kriechgeschwindigkeit von UO_2 im Temperaturbereich unterhalb

1200 - 1300°C bei relativ niedrigen Spannungen von 2 kp/mm², durch spannungsinduzierte Volumendiffusion bestimmt ist. Für ein überwiegendes Versetzungskriechen stehen unter diesen Bedingungen nicht hinreichend viele aktivierbare Gleitsysteme zur Verfügung.

Der theoretischen Abschätzung der zu erwartenden bestrahlungsbedingten Kriechgeschwindigkeit [2,3] wird die Nabarro-Herring-Formel für die Geschwindigkeit diffusionsbedingten Kriechens $\dot{\epsilon}$ zugrundegelegt:

$$\dot{\epsilon} = \frac{15 D \Omega}{G^2 \cdot k \cdot T} \sigma \quad (1)$$

σ ist die äussere Spannung, D der Volumenselbstdiffusionskoeffizient, Ω das Atomvolumen und G die Korngrösse. D ergibt sich bei Nabarro als Produkt des Leerstellendiffusionskoeffizienten D_L und der thermischen Leerstellenkonzentration $D_{L th}$

$$D = D_L C_{L th} \quad (2)$$

in dem $C_{L th}$ für den Fall einer Bestrahlung nicht ohne weiteres durch die bestrahlungsbedingt erhöhte Leerstellenkonzentration ersetzt werden kann.

Dazu ist eine sinngemässe Übertragung des Nabarro'schen Gedankenganges von der thermischen Erzeugung von Leerstellen an Korngrenzen auf die Ausheilung der durch Bestrahlung laufend erzeugten Leerstellen und Zwischengitteratomen an planaren Punktdefekt-Clustern erforderlich. Wegen ihrer grossen Häufigkeit (ca. $10^{15}/\text{cm}^3$) sind diese Cluster als die wirksamsten Punktdefekt-Senken anzusehen. Daher wurde für die Abschätzung des Kristallkorn in der Nabarro'schen Betrachtung durch die kleinste Zelle einer räumlichen Belegung mit planaren Defektclustern ersetzt, deren Durchmesser nach entsprechenden Literaturangaben bei etwa 1000 Å liegt und für G in die Nabarro-Herring-Formel eingesetzt wurde. Der geringe Belegungsgrad der Zellenoberfläche mit Punktdefekt-Senken an den Cluster-Rändern wurde durch einen Faktor 1/100 in dem Ausdruck für $\dot{\epsilon}^*$ berücksichtigt.

Die äussere Spannung σ ergibt hier für die Anlagerung von Punktdefekten an optimal orientierte planare Cluster eine um $\sigma \Omega$ verminderte Wanderungsenergie. Um den gleichen Betrag wird bei Nabarro die Leerstellen-Bildungsenergie herabgesetzt.

Daher ergibt sich für die bestrahlungsinduzierte Kriechgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}^*$ die Beziehung

$$\dot{\epsilon}^* = \frac{0,01 \cdot 15 \cdot D^*}{(1000 \text{ \AA})^2 \cdot k \cdot T} \sigma \quad (3)$$

in dem nun D^* der effektive Selbstdiffusionskoeffizient von U in der U-Verbindung unter Bestrahlung ist.

In Bild 1 sind die abgeschätzten Wertebereiche dieses effektiven Selbstdiffusionskoeffizienten in UO_2 für verschiedene Mechanismen dargestellt [3]. Der Bereich "Ausheilung von Frenkelpaaren an Clustern" entspricht unmittelbar den vorangegangenen Darlegungen. Der mit "thermal rods" bezeichnete Bereich ist durch die Defektclusterbildung in der durch Ionisierungsprozesse überhitzten Umgebung von Spaltfragmentbahnen bedingt. Er kommt hier nur für UO_2 bzw. UO_2 - PuO_2 in Betracht, aber z.B. nicht für die elektronenleitenden Verbindungen UN und UC. In diesen bewirken die Leitungselektronen eine viel schnellere Energieausbreitung und damit eine geringere Überhitzung in der Umgebung der Spaltfragmentbahnen. Ihre D^* -Werte müssen daher niedriger liegen als in UO_2 ; sie sind nach unten durch den Bereich "thermal spikes" begrenzt, der der Defektclusterbildung in den überhitzten Zonen entspricht, die beim Zusammenbruch von displacement spikes entstehen.

Die aus den D^* -Werten in Bild 1 berechneten Kriechgeschwindigkeiten unter einer Spannung von 2 kp/mm^2 bei einer Spaltungsrate von $10^{-8}/\text{s}$ entspr. $1,5 \cdot 10^{14}$ Spaltungen/ $\text{cm}^3 \text{ sec}$ sind in Bild 2 dargestellt. Zum Vergleich ist die thermisch bedingte Kriechgeschwindigkeit eingetragen. Man kann entnehmen, dass die Kriechgeschwindigkeit von UO_2 unterhalb etwa 1300°C überwiegend durch die thermal rods längs der Spaltfragmentbahnen bedingt ist und daher nur schwache Temperaturabhängigkeit zeigen sollte.

Für UN und UC sollte die Kriechgeschwindigkeit bei tiefen Temperaturen viel (max. um den Faktor 300) kleiner sein als für UO_2 . Erst oberhalb $900 - 1000^\circ C$ ist ein steiler Anstieg der Kriechgeschwindigkeit mit der Temperatur durch orientierte Punktdefektclusterbildung oder durch die steigende thermische Leerstellenkonzentration zu erwarten.

3. Experimentelle Ergebnisse und Diskussion der Parameter

3.1 Kriechverhalten von UO_2

Aus der Literatur liegen einige quantitative Ergebnisse über in-pile Druck- und Biegekriechversuche an UO_2 vor [3 - 12]. Es wurden stöchiometrische UO_2 -Proben hoher Dichte ($97 \pm 2\%$ TD) in Form von dünnen Tabletten, Hohlzylindern, Spiralfedern und Balken-Proben untersucht. Die Temperaturen lagen im Bereich zwischen 350 und $1200^\circ C$, die Drucke zwischen 1 und 4 kp/mm^2 und die Spaltungsraten zwischen $3 \cdot 10^{-11}$ und $5 \cdot 10^{-9}/s$. Der mittlere Korndurchmesser betrug bei den verschiedenen Versuchen 10 bis $35 \mu m$.

Die ermittelten Kriechgeschwindigkeiten zeigen untereinander eine gute Übereinstimmung und liegen bis ca. $1000^\circ C$ in dem für "thermal rods" angegebenen Bereich in Abb.2. Sie bestätigen die aus Stab- und Plattenbestrahlungen abgeschätzten bzw. mit Rechenprogrammen gewonnenen Kriechdaten [2, 13].

3.1.1 Spannungsabhängigkeit

Im Temperaturbereich unterhalb $1200^\circ C$, bei Spannungen bis 4 kp/mm^2 und Spaltungsraten bis $5 \cdot 10^{-9}/s$ ist die Kriechgeschwindigkeit der Spannung proportional.

$$\dot{\epsilon} \cdot \sigma \sim \sigma \quad (4)$$

3.1.2 Temperaturabhängigkeit

Ein Vergleich der bisher bekannten in-pile Kriechergebnisse gibt einen ersten Überblick über die Temperaturabhängigkeit des Kriechverhaltens von UO_2 unter Bestrahlung. Die gemessenen Werte wurden für Abb.3 unter der Annahme einer linearen Abhängigkeit der Kriech-

geschwindigkeit von der Spannung und der Spaltungsrate umgerechnet. Die Kurven entsprechen gemittelten Werten und generellen Tendenzen. Zum Vergleich ist die Kriechgeschwindigkeit ohne Bestrahlung eingetragen. Die schraffierten Bereiche zeigen die in [3] für das modifizierte Nabarro-Herring-Modell abgeschätzten Kriechgeschwindigkeiten.

Nach Abb.3 müssen für die Bestrahlungsbeeinflussung des Kriechverhaltens unterhalb 1200°C zwei Bereiche unterschieden werden, der Bereich des bestrahlungsinduzierten Kriechens und der Bereich des bestrahlungsbeschleunigten Kriechens. Unterhalb ca. 1000°C ist die bestrahlungsinduzierte Kriechgeschwindigkeit nicht oder nur leicht temperaturabhängig, so dass mit hinreichender Näherung für diesen Bereich die folgende temperaturabhängige Beziehung angegeben werden kann

$$\dot{\epsilon}_i^* = (4 \cdot 10^{-1} / \text{kp mm}^{-2}) \cdot \sigma \cdot \dot{A} \quad (5)$$

wenn \dot{A} die Uran-Spaltungsrate in Spaltungen pro U-Atom und Zeiteinheit ist.

Zwischen 1000 und 1200°C wurde eine durch die Bestrahlung erhöhte Kriechgeschwindigkeit gemessen, die stark temperaturabhängig ist. Die Aktivierungsenergie für den Kriechprozess unter Bestrahlung ist von der gleichen Grösse wie ohne Bestrahlung. Für den Fall des bestrahlungsbeschleunigten Kriechens lässt sich die Beziehung aufstellen

$$\dot{\epsilon}_b^* = (1 \times 10^{15} / \text{kp mm}^{-2}) \exp(-90\,000/RT) \sigma \cdot \dot{A} \quad (6)$$

3.1.3 Spaltungsratenabhängigkeit

Die verschiedenen Versuchsergebnisse deuten darauf hin, dass bis zu Spaltungsraten von $5 \cdot 10^{-9}/\text{s}$ die Kriechgeschwindigkeit proportional zur Spaltungsrate angesetzt werden kann

$$\dot{\epsilon}^* \sim \dot{A} \quad (7)$$

Dieses Ergebnis entspricht der Annahme in [3], dass die Anzahl der Gitterpunktdefekte, die je Spaltung erzeugt werden und an Defektclustern ausheilen, von der Spaltungsrate unabhängig ist.

3.1.4 Abbrandabhängigkeit

Bisher wurden Kriechversuche bis maximal ca. 50 000 MWd/t durchgeführt [5]. Danach stellt sich bei hochdichtem UO_2 die stationäre Kriechgeschwindigkeit bei ca. 0.3% Abbrand ein. Bis ca. 5% Abbrand treten keine gravierenden Änderungen der Kriechgeschwindigkeit mit fortschreitendem Abbrand auf.

3.1.5 Porositätsabhängigkeit

Der Zusammenhang zwischen Kriechgeschwindigkeit und Porosität wurde bisher nicht untersucht. Für eine quantitative Beschreibung kann deshalb nur die Abhängigkeit der Kriechgeschwindigkeit ohne Bestrahlung angenommen werden. Aus einem Vergleich der Messergebnisse von Proben verschiedener Dichte ergibt sich

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0 (1 + k_1 P^2) \quad (8)$$

$$\text{bzw. } \dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0 e^{k_2 P} \quad (9)$$

wenn P die Porosität des UO_2 ist und k_1 und k_2 Konstanten sind.

Bei höheren Abbränden ist zu beachten, dass geschlossene Sinterporen im Kernbrennstoff durch den Eintritt von Spaltgasblasen bei entsprechendem Innendruckaufbau gegen die Kriechverformung unter äusserem Druck stabilisiert werden können. An Stelle der tatsächlich vorhandenen Porosität muss dann eine verminderte "effektive" Porosität eingeführt werden, die den Grad der Stabilisierung beschreibt.

3.1.6 Stöchiometrieabhängigkeit

Untersuchungen über den Einfluss der Stöchiometrie des UO_2 auf die Kriechgeschwindigkeit unter Neutronenbestrahlung liegen nicht vor.

3.1.7 Korngrössenabhängigkeit

Der Zusammenhang zwischen Kriechgeschwindigkeit unter Neutronenbestrahlung und Korngrösse wurde noch nicht untersucht. Nach theoretischen Überlegungen (s. Abschnitt 2) ist keine Abhängigkeit der Kriechgeschwindigkeit von der Korngrösse zu erwarten. In dem modifizierten Nabarro'schen Ansatz wird die Leerstellendiffusion in einem Kristall-

korn auf die Diffusion von unter Bestrahlung erzeugten Leerstellen und Zwischengitteratomen in der "Elementarzelle" einer Verteilung von planaren Defektclustern übertragen.

3.2 Kriechverhalten von UO_2 - PuO_2

Für Mischoxide gibt es bisher keine in-pile-Kriechdaten.

3.3 Kriechverhalten von UC und UN

Die Kriechgeschwindigkeit von UN und UC unter Bestrahlung ist bei tiefen Temperaturen nach den theoretischen Betrachtungen [3] niedriger als für UO_2 .

Einige halbquantitative Kriechdaten von UN und UC unter Bestrahlung wurden aus der Differenz zwischen der ohne Hüllrestraint zu erwartenden Spaltproduktschwellung und der gemessenen Volumenzunahme von umhüllten Brennstofftabletten unter Einwirkung von Hüllspannungen für Temperaturen unterhalb $850^\circ C$ abgeschätzt [3]. Die Ergebnisse weisen darauf hin, dass die Kriechgeschwindigkeiten für diese beiden Brennstoffe bedeutend niedriger liegen als für UO_2 . Dies wurde bei einem quantitativen Druckkriechversuch an UN bestätigt [14]. Das untersuchte Material hatte eine Sinterdichte von $89 \pm 1\%$ TD, eine mittlere Korngrösse von $6 - 10 \mu m$ und einen UO_2 -Gehalt von 6 Vol.-%. Bei einer Temperatur von $750^\circ C$ und einer Spannung von 4 kp/mm^2 ergab sich bei einer Spaltrate von ca. $1,5 \cdot 10^{-9}/s$ eine Kriechgeschwindigkeit von $1,5 - 2 \cdot 10^{-6}/h$. Die Kriechgeschwindigkeit für UN ist demnach ungefähr eine Grössenordnung niedriger als für UO_2 (89% TD) unter gleichen Versuchsbedingungen. Sie fällt erwartungsgemäss in den Bereich zwischen "thermal rods" und "thermal spikes" in Abbildung 2. Sie ist viel kleiner als die lineare Schwellgeschwindigkeit, die bei den Bedingungen für Abbildung 2 zu $1,8 \cdot 10^{-5} h^{-1}$ erwartet wird.

4. Schlussbemerkungen

Für eine hinreichend genaue Beschreibung des Kriechverhaltens von UO_2 unter Neutronenbestrahlung reichen die bisher vorliegenden Versuchsergebnisse nicht aus. Die Zusammenhänge zwischen Kriechge-

schwindigkeit und Kriechparameter müssen eingehender untersucht werden. Dies gilt besonders für die Temperaturabhängigkeit oberhalb 800°C , für die Porositätsabhängigkeit im Bereich von 0 bis 15 Vol. % Porosität, die Korngrößenabhängigkeit, die Stöchiometrieabhängigkeit sowie für sämtliche Kriechparameter bei höheren Abbränden.

Für $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ sind keine Kriechgeschwindigkeiten bekannt. Hier werden besonders dringend Kriechdaten benötigt. Dies gilt in ähnlicher Weise auch für UC und UN sowie deren Mischverbindungen.

Literatur

- [1] T.Vasilos, E.M.Passmore
Effect of microstructure on creep mechanisms in ceramics
in Strengthening Mechanisms-Metals and Ceramics
Syracuse University Press, Syracuse, 1966
- [2] D.Brucklacher, W.Dienst, F.Thümmler
Überlegungen zum Kriechen von UO_2 unter Neutronenbestrahlung
KFK-Bericht 817, 1968
- [3] D.Brucklacher, W.Dienst, F.Thümmler
Untersuchungen über das Kriechen keramischer Kernbrennstoffe
unter Neutronenbestrahlung
Proc. Int.Meeting on Fast Reactor Fuel and Fuel Elements,
KFZ Karlsruhe, 1970
- [4] D.Brucklacher, W.Dienst
Kontinuierliche Messung des Kriechens von UO_2 unter Neu-
tronenbestrahlung
J.Nucl.Mat. 36, 1970, 244 - 247
- [5] D.Brucklacher
demnächst
- [6] D.J.Clough
Irradiation Included Creep of Ceramic Fuel
Proc. Int.Meeting on Fast Reactor Fuel and Fuel Elements,
KFZ Karlsruhe, 1970
- [7] E.C.Sykes, P.T.Sawbridge
The Irradiation Creep of Uranium Dioxide
C.E.G.B. Report RDIBIN 1489, 1970
- [8] P.T.Sawbridge
Private Mitteilung, 1970
- [9] J.S.Perrin, R.A. Robinson, S.F.Basham
BMI-Fortschrittsberichte Juli 1969 und später

- [10] J.P. Perrin
Irradiation-Induced Creep of Uranium Dioxide
J.Nucl.Mat. 39, 1971
- [11] J.S.Perrin, W.R.D. Wilson
Effect of Irradiation on the Creep of Uranium Dioxide
BMI-1899 , 1971
- [12] M.S.Seltzer, J.S.Perrin, A.H.Clauer, B.A.Wilcox
Review of aout-of pile and in-pile creep of Ceramic Nuclear Fuels
BMI-1906, 1971
- [13] J.B.Ainscough
Some Limiting Aspects of UO_2 -Performance
TRG Report 1937 (s), 1969
- [14] D.Brucklacher, W.Dienst, Th.Dippel, O.Götzmann, P.Hofmann,
H.Holleck, H.Kleykamp, W.Siebmans, F.Thümmler
Some Basic Work on Advanced Ceramic Nuclear Fuel
Neue Technik Nr. 7, 1971

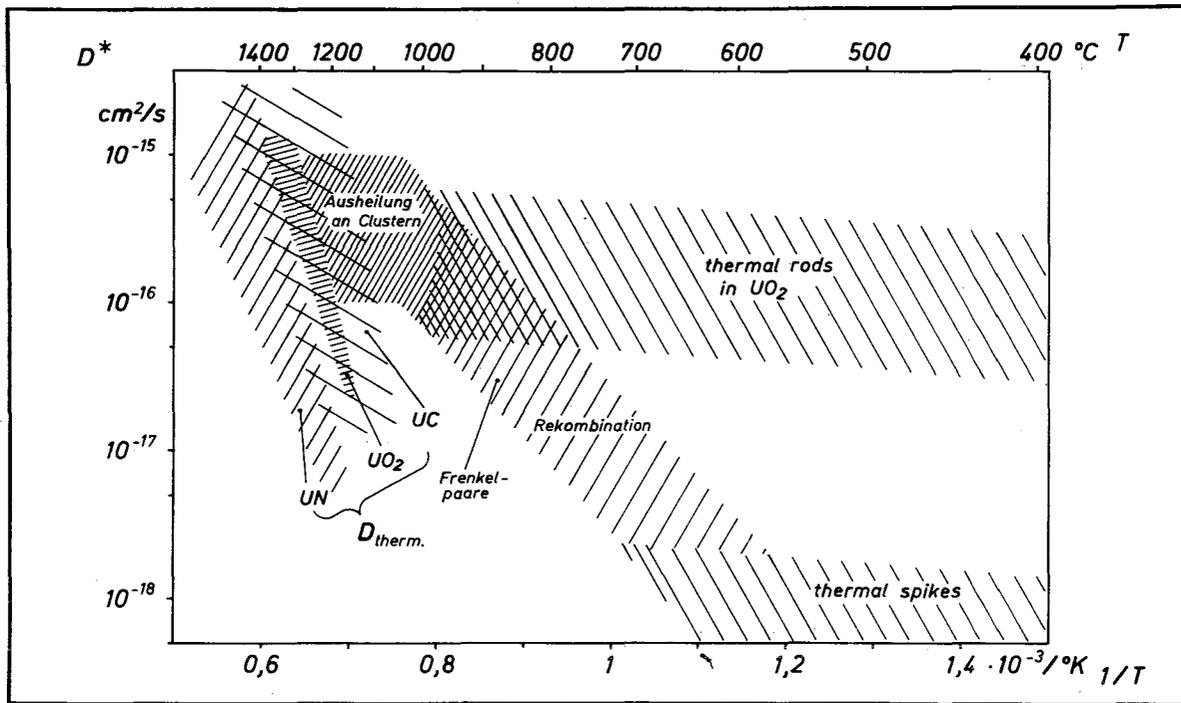


Abb. 1: Effektiver Uran-Selbstdiffusionskoeffizient in UO_2 (z.T. UN, UC) unter Bestrahlung bei einer Spaltungsrate von $10^{-8}/\text{s}$

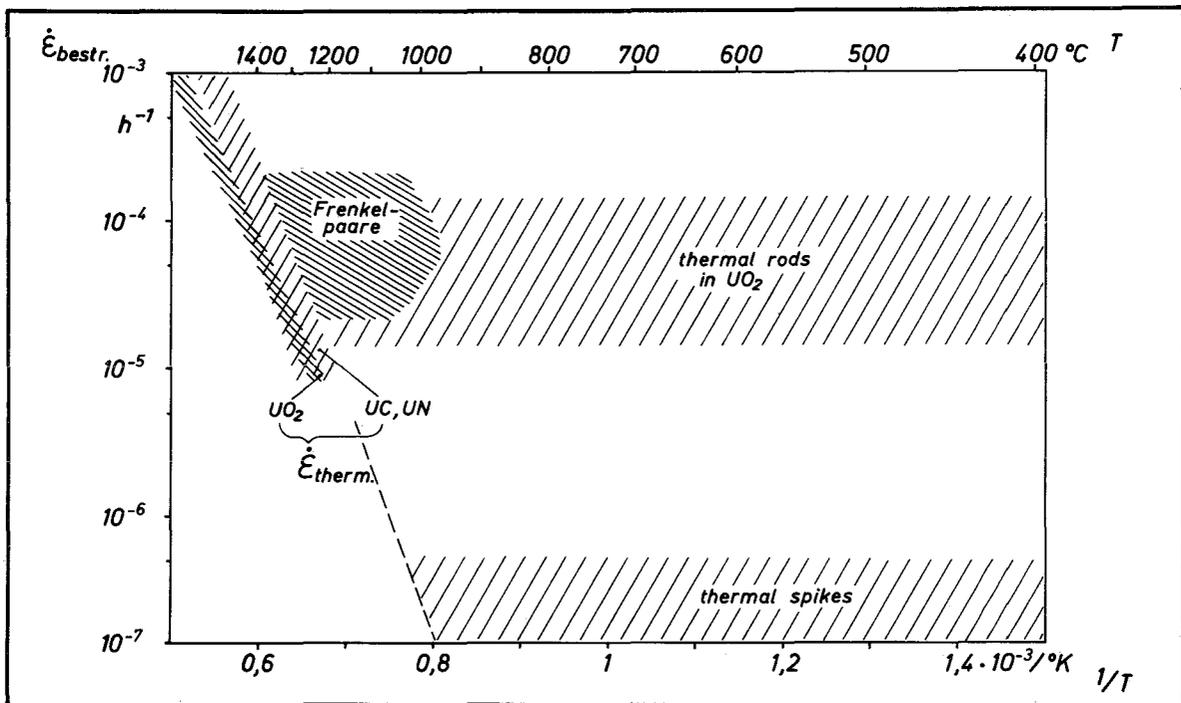


Abb. 2: Theoretisch abgeschätzte Kriechgeschwindigkeit unter Bestrahlung in UO_2 (z.T. UN, UC) bei einer Spaltungsrate von $10^{-8}/\text{s}$ unter einer Druckspannung von $2 \text{ kp}/\text{mm}^2$

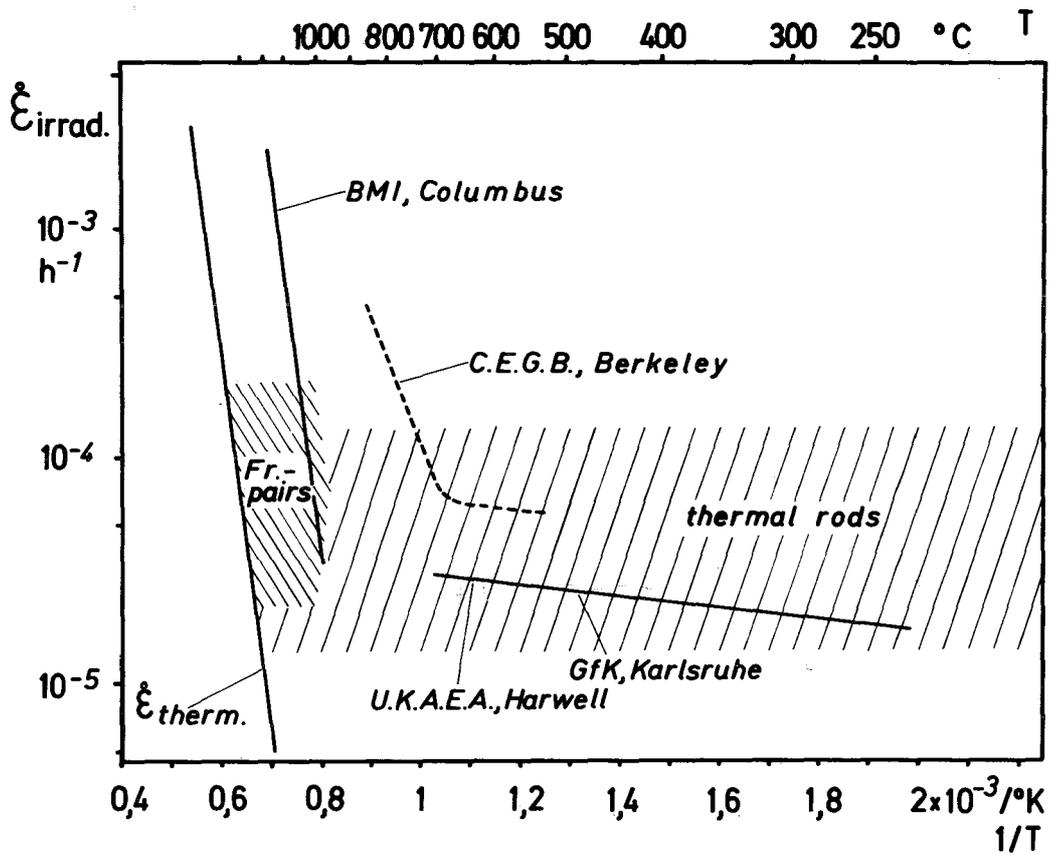


Abb. 3: Kriechgeschwindigkeit unter Bestrahlung in UO_2 bei einer Spaltungsrate von $10^{-8}/\text{s}$ unter einer Druckspannung von 2 kp/mm^2

The first part of the document discusses the importance of maintaining accurate records of all transactions and activities. It emphasizes that this is essential for ensuring transparency and accountability in the organization's operations.

In the second section, the author outlines the various methods and tools used to collect and analyze data. This includes the use of surveys, interviews, and focus groups to gather insights from stakeholders. The analysis of this data is then used to identify trends and patterns that can inform decision-making.

The third part of the document focuses on the implementation of strategies and programs. It details the steps involved in developing a plan, allocating resources, and monitoring progress. The author notes that successful implementation requires strong leadership and effective communication.

Finally, the document concludes by discussing the importance of evaluation and feedback. Regular assessments are conducted to measure the impact of the implemented strategies and to identify areas for improvement. This continuous process of learning and adaptation is crucial for long-term success.

XXI. Mechanische Eigenschaften unbestrahlter oxidischer
Brennstoffe

von

D. Vollath

Inhalt:

1. Einleitung
2. Elastische Eigenschaften
3. Bruchverhalten
4. Plastisches Verhalten
5. Kriechverhalten

- C = Konstante
 ρ_v = Versetzungsdichte
 Q_0 = Aktivierungsenergie
 v = Aktivierungsvolumen
 σ = Fließspannung
 σ_1 = innere Spannung
 $\dot{\epsilon}$ = Verformungsgeschwindigkeit
 R = allgem. Gaskonstante
 T = Absolute Temperatur

Relaxationsmessungen, die in Argonne an UO_2 durchgeführt wurden, zeigen, daß der Ausdruck

$$W = v (\sigma - \sigma_1) = \text{const.} = 18 \text{ kcal/mol} \quad [11, 12]$$

ist. Des weiteren wird angegeben, daß $\sigma_1 = 0$ ist. Die mechanische Aktivierungsarbeit W ist unabhängig von der Spannung und weitgehend unabhängig von der Temperatur.

Für die praktische Verwendung werden für die Proportionalitätsgrenze und die Fließgrenze des UO_2 die folgenden Formeln angegeben [13]:

$$\dot{\epsilon} = \frac{2}{T (^{\circ}K)} \left(\sigma_{\text{Prop}} \left(\frac{\text{kp}}{\text{cm}^2} \right) \right)^{4,23} e^{-\frac{82000 \text{ cal}}{R \cdot T (^{\circ}K)}} \quad (1/h)$$

$$\dot{\epsilon} = \frac{2}{T (^{\circ}K)} \left(\sigma_{\text{Fließ}} \left(\frac{\text{kp}}{\text{cm}^2} \right) \right)^{4,23} e^{-\frac{87000 \text{ cal}}{R \cdot T (^{\circ}K)}} \quad (1/h)$$

σ_{Prop} = Proportionalitätsgrenze

$\sigma_{\text{Fließ}}$ = Fließgrenze

Ergänzend zu diesen Ergebnissen müssen die Meßwerte von Nadeau [14] diskutiert werden. Nadeau fand bei Fließversuchen von UO_2 ein Maximum der Aktivierungsenergie im Bereich von etwa $1300^{\circ}C$. In diesem Maximum lag die Aktivierungsenergie für das plastische Fließen bei 184 kcal/mol . Dieses Maximum der Aktivierungsenergie wird auf eine Wechselwirkung zwischen Versetzungen und Verunreinigungen zurückgeführt. Ein ähnlicher Effekt wurde auch von Solomon [15] bei Kriechversuchen an UO_2 gefunden. Ein weiteres wesentliches Ergebnis der Nadeauschen Arbeit ist die Erkenntnis, daß mit steigendem Sauerstoffgehalt des UO_2 die Fließspannung stark absinkt, gleichzeitig sinkt auch die Aktivierungsenergie des plastischen Fließens bei $1400^{\circ}C$ von 98 kcal bei UO_2 auf 16 kcal bei $UO_{2,1}$ ab.

5. Kriechverhalten

Das Kriechverhalten folgt den gleichen Gesetzen wie das Fließverhalten im Bereich kleiner Spannungen.

Die wohl umfangreichste Studie wurde von General Electric Company [16] durchgeführt. Dort findet man für UO_2

$$\dot{\epsilon} = \frac{1,43 \cdot 10^8}{(D (\%) - 87) G (\mu m)^2} \sigma \left(\frac{kp}{cm^2} \right) e^{-\frac{90000 \text{ cal}}{RT (^{\circ}K)}} + \frac{2,46 \cdot 10^1}{(D (\%) - 90,5)} \left(\sigma \left(\frac{kp}{cm^2} \right) \right)^{4,5} e^{-\frac{132000 \text{ cal}}{RT (^{\circ}K)}} \left(\frac{1}{h} \right)$$

D = Dichte, Prozent theoretische Dichte

G = Korngröße (μm)

Für UO_2 mit 20 % PuO_2 von 92,8 % th.D. wird folgende Gleichung angegeben [27]:

$$\dot{\epsilon} = 7,82 \cdot 10^5 \sigma \left(\frac{kp}{cm^2} \right) e^{-\frac{110000 \text{ cal}}{RT (^{\circ}K)}} + 3,28 \cdot 10^2 \left(\sigma \left(\frac{kp}{cm^2} \right) \right)^{4,5} e^{-\frac{140000}{RT}} \left(\frac{1}{h} \right)$$

Eigene Messungen an unterstöchiometrischem UO_2 mit 20 % PuO_2 bestätigen diese Gesetzmäßigkeit, geben jedoch die Aktivierungsenergien von 115 kcal/mol für den Bereich der kleinen Spannungen und 175 kcal/mol für den Bereich der größeren Spannung [17, 18, 19].

Durch Aufspalten der Kriechformel in zwei Terme, in einen Term mit linearer und einen mit erhöhter Spannungsabhängigkeit kann man die Abhängigkeit des Spannungsexponenten von der Spannung und der Temperatur gut erklären.

Marpels und Hough [20] geben für das Kriechen von UO_2 ebenfalls zwei Spannungsbereiche an. Im Bereich kleiner Spannungen liegt der Spannungsexponent zwischen 1,0 und 2,0, im Bereich hoher Spannungen zwischen 5 und 6. Da diese Autoren für die beiden Spannungsbereiche keine stark unterschiedlichen Aktivierungsenergien finden (die Aktivierungsenergie liegt zwischen 93 und 127 kcal/mol), ist es möglich, eine Übergangsspannung zu definieren, bei der der Übergang zwischen den beiden Kriechmechanismen stattfindet. Diese Übergangsspannung liegt im Bereich von 320 - 350 kp/cm^2 . Für UO_2 - PuO_2 Mischoxide werden ebenfalls erste Ergebnisse gebracht. Dort wurden etwa die gleichen Aktivierungsenergien wie für UO_2 gefunden. Es wurde auch gezeigt, daß die Aktivierungsenergie beim Übergang von $(U,Pu)O_{2,00}$ zu $(U,Pu)O_{1,995}$ ansteigt.

In einer zusammenfassenden Literaturstudie fanden Clauer, Seltzer und Wilcox [21], daß sich die Spannungsabhängigkeit des Kriechens von UO_2 durch eine Kombination von zwei Kriechgesetzen mit den Spannungsexponenten 1 und 4,3 gut darstellen läßt.

Bei der Verwendung der Kriechdaten oxidischer Kernbrennstoffe muß man sich über die extrem starke Abhängigkeit der Kationenselbstdiffusion von der Stöchiometrie im klaren sein. Die Beachtung dieser Abhängigkeit ist wesentlich, da die Kationenselbstdiffusion die geschwindigkeitsbestimmende Größe beim Kriechen unter hohen Spannungen ist. Nach Lidiard [22] ist der temperaturabhängige Term des Selbstdiffusionskoeffizienten proportional x^2 , wobei x die Abweichung von der Stöchiometrie in der Form UO_{2+x} ist. Nach Matzke [24] findet bei $x = 0$ kein Übergang von einer Leerstellen- zu einer Zwischengitterdiffusion statt, so daß im unterstöchiometrischen Bereich eine Abhängigkeit mit $1/x^2$ anzunehmen ist. Bei UO_2 verläuft nach dieser theoretischen Deutung die Aktivierungsenergie von etwa 40 kcal bei überstöchiometrischem, über 110 kcal bei stöchiometrischem, zu etwa 180 kcal bei unterstöchiometrischem Material [24]. Faßt man diese beiden Einflußgrößen zusammen, so findet man bei konstanter Temperatur eine Änderung des Diffusionskoeffizienten um mehrere Größenordnungen, wenn man nur die Stöchiometrie stark genug ändert. Die Stöchiometrieabhängigkeit des σ^1 Termes scheint nicht so stark ausgeprägt zu sein. Jedoch führt hier die quadratische Korngrößenabhängigkeit in Verbindung mit einem ungleichmäßigen Kornwachstum während des Kriechversuches [18, 19, 23] zu erheblichen Unsicherheiten. Ähnlich ist auch der Einfluß der Porosität zu beurteilen, da während des Kriechversuches eine ungleichmäßige Verdichtung des Materials in der Probe stattfindet [18, 19, 23].

Literatur:

- [1] M.S. Seltzer, J.S. Perrin, A.H. Clauer, B.A. Wilcox; Reactor Technology Journal, demnächst
- [2] D. Vollath, KFK 1111, Teil V
- [3] R.J. Beals, ANL 7577, p. 160 ff (1969)
- [4] A. W. Nutt, A.W. Allen, J.H. Handwerk, J.Am.Ceram.Soc. 53 (1970) 205
- [5] R. S. Forlano, A. W. Allen, R.S. Beals, ANL 7101, 1965
- [6] R. J. Beals, ANL 7553 p. 88 (1969)
- [7] J.T.A. Roberts, ANL private Mitteilung (1970)
- [8] J.T.A. Roberts, B.J. Wrona, ANL 7737, p. 129 (1970)
- [9] " " " " ANL 7742, p. 112 (1970)
- [10] " " " " ANL7753, p. 126 (1970)
- [11] J.T.A. Roberts, ANL 7553, p. 92 (1969)
- [12] " " ANL 7679, p.128 (1969)
- [13] J.T.A. Roberts, B. J. Wrona, ANL 7688
- [14] J.S. Nadeau, J. Am. Ceram. Soc. 52 (1969) 1
- [15] A.A. Solomon, ANL private Mitteilung (1970)
- [16] P.E. Bohaboy, R.R. Asomoto, A.E. Conti, GEAP 10054 (1969)
- [17] K. Kummerer, Reaktortagung 1970, Tagungsbericht 575 (1970)
- [18] K. Kummerer, D. Vollath, Proc. of the Int. Meeting on Fast Reactor Fuel and Fuel Elements, Karlsruhe, Sept. 1970, p. 369, ATW 16 (1971) 29
- [19] D. Vollath, Reaktortagung 1971 Bonn, Tagungsbericht
- [20] J.A.C. Marples, A. Hough, AERE-R-6421 (1970)
- [21] M.S. Seltzer, A. H. Clauer, B.A. Wilcox, J.Nucl. Mat. 34 (1970) 351
- [22] A.B. Lidiard, Journ. Nucl. Materials 30 (1969) 26
- [23] M.D. Houston, O. L. Kruger, W.M. Pardue, EMI-1878, p. C12
- [24] H.J. Matzke, Journ. Nucl. Materials 30 (1969) 26
- [25] J.T.A. Roberts, B. J. Wrona, J. Nucl. Mat. demnächst
- [26] J.F. Byron, J. Nucl. Mat 27 (1968) 48
- [27] P.E. Bohaboy, S.K. Evans, Nucl. Metallurgy Vol. 17, Part I (1970), p. 478

XXII. Experimentelle Befunde zum Wärmeübergang zwischen
Brennstoff und Hülle

von
Hans-E. Schmidt

Inhalt:

1. Einleitung
2. Untersuchungsmethoden
 - 2.1 Ohne Bestrahlung
 - 2.2 Mit Bestrahlung
3. Diskussion der Einflußgrößen
 - 3.1 Übersicht
 - 3.2 Spaltweite
 - 3.3 Kontaktdruck
 - 3.4 Füllgas
 - 3.5 Oberflächenbeschaffenheit
 - 3.6 Temperaturverteilung im Brennstab
 - 3.7 Bestrahlungsdauer
4. Gebrauchsgleichungen
5. Zusammenfassung

1. Einleitung

Ein wichtiger Parameter für die Berechnung von Brennstab-Temperaturen ist die Wärmedurchgangszahl Brennstoff-Hülle h . Sie bestimmt bei vorgegebener Stableistung χ und Hüllinnenradius R die Höhe des Temperaturabfalls ΔT zwischen Hüllinnenwand und Brennstoffoberfläche gemäß

$$\Delta T = \frac{\chi}{q \cdot 2\pi R} \quad (1)$$

Der Wärmeübergang zwischen Brennstoff und Hülle ist sowohl in Laborexperimenten als auch direkt im Reaktor von zahlreichen Autoren untersucht worden; die Durchsicht der einschlägigen Literatur ergibt jedoch noch immer ein sehr unbefriedigendes Bild: Für oxidische Schnellbrüter-Brennstäbe wurden unter realistischen Fabrikations- und Einsatzbedingungen Wärmedurchgangszahlen zwischen $h = 0.5 \text{ W/cm}^2\text{deg}$ und $h = 1.5 \text{ W/cm}^2\text{deg}$ gemessen, woraus sich bei einem Stabdurchmesser von 5,2 mm und einer Belastung von 500 W/cm Temperatursprünge zwischen 600°C und 200°C errechnen lassen. Dabei ist es nur in seltenen Fällen möglich, bei vergleichbaren Untersuchungen beobachtete Diskrepanzen mit den für die Versuchsbedingungen und die beteiligten Materialien charakteristischen Parametern zu korrelieren. Das liegt einmal daran, daß die für das Verständnis des Wärmeübergangsmechanismus entwickelten Modelle noch unvollkommen sind. Zum anderen wurden die Versuchsbedingungen häufig nicht genau genug charakterisiert und wichtige Kenngrößen (wie z.B. Rauigkeitsparameter) nicht gemessen oder nicht mitgeteilt. Dies erschwert natürlich nachträgliche Versuche einer Deutung vorliegender Befunde.

2. Untersuchungsmethoden

2.1. Ohne Bestrahlung

Physikalisch orientierte Untersuchungen über den Einfluß der verschiedenen den Wärmeübergang zwischen zwei in Kontakt befindlichen Materialien bestimmenden Faktoren werden vorzugsweise in Versuchsanordnungen mit ebener Geometrie ausgeführt. Hier liegen flache Proben aus den interessierenden Stoffen

auf- oder nebeneinander, und man mißt die von einer zur anderen Probe übertragene Wärmemenge und den resultierenden Temperatursprung, wobei man die Oberflächenbeschaffenheit der Prüflinge, den Anpreßdruck und die Füllgaszusammensetzung variieren kann.

Weniger klar überschaubar, aber praxisnäher sind Versuche an zylindrischen Proben mit radialem Wärmefluß. Hier dient ein zentrales Heizelement als Wärmequelle. Bei kleinen Prüfkörpern mit realistischen Brennstababmessungen ist es experimentell etwas problematisch, die wahre Brennstoffoberflächentemperatur zu ermitteln. Auf Vorteile, die die zylindrische gegenüber der radialen Geometrie bietet, haben J. Arrighi et al [1] hingewiesen. Bei Versuchen ohne Bestrahlung wird natürlich der Effekt der Oberflächenveränderungen während des Abbrandes (z.B. durch Spaltprodukt-Korrosion) nicht erfaßt.

2.2. Mit Bestrahlung

Unter Bestrahlung ist es wiederum sehr schwierig, die Versuchsbedingungen genau zu kontrollieren. Hier setzt man bei den meisten Wärmedurchgangs-Bestimmungen die Kenntnis der Wärmequellenverteilung über den Stabquerschnitt und der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs in allen Stabzonen voraus. Die Temperaturverteilung über den Stabquerschnitt wird aus dem Radius der aufgeschmolzenen Zone, aus der Korngrößenverteilung oder direkt mittels Thermoelementen in verschiedenen radialen Positionen bestimmt. In gewissen Fällen kann man auch mit instationären Verfahren den thermischen Widerstand im Spalt direkt im Reaktor messen [2, 3].

3. Diskussion der Einflußgrößen

3.1. Übersicht

Bei großen Fabrikationsspalten und zu Beginn des Reaktoreinsatzes erfolgt der Wärmeübergang zwischen Brennstoff und Hülle im wesentlichen über die Gasphase. Dieser Fall des "offenen Spaltes" beherrscht man theoretisch (s. Beitrag XXI). Abhängig von den Auslegungsbedingungen kann sich der Spalt

schon nach kurzer Bestrahlungszeit als Folge der thermischen Ausdehnung schließen und der Brennstoff gegen die Hülle drücken. Dieser Effekt kann sich nach längerem Abbrand wegen des Brennstoffschwellens noch verstärken. Der Wärmeaustausch erfolgt dann zu einem Teil über Kontaktstellen (deren Summe nach Robertson et al [4] in typischen Fällen nur etwa ein Hundertstel der gesamten makroskopischen Kontaktfläche ausmacht), zum anderen über das Füllgas.

In einer vereinfachten Behandlung des Problems (z.B. von Ross und Stouté [5]) werden die beiden Übertragungsmechanismen als unabhängig voneinander angesehen. Die totale Übergangszahl ergibt sich dann als Summe der Beiträge über die Füllgasphase und die Kontakte. Die Theorien von Cetinkale und Fishenden [6] und von Fenesh und Rohsenow [7] berücksichtigen auch die Wechselwirkung zwischen den beiden Prozessen, sie führen aber auf unhandlichere Endformeln.

Die für die Berechnung der Wärmedurchgangszahl im Kontaktfall benötigten Größen sind

- Härte und Wärmeleitfähigkeiten von Hülle und Brennstoff,
- die Wärmeleitfähigkeit des Füllgases,
- der Anpreßdruck,
- Parameter, die die Oberflächenstruktur der sich berührenden Materialien charakterisieren.

Während des Reaktoreinsatzes eines Brennstabes werden sich alle diese Größen in schwer kontrollierbarer Weise verändern, wodurch genaue Vorhersagen nahezu unmöglich werden.

Im folgenden wird die Wirkung verschiedener Einflußgrößen auf den Wärmeübergang Brennstoff-Hülle besprochen. Die vorgenommene Unterteilung hat dabei eher formalen Charakter, da die einzelnen Effekte im allgemeinen natürlich nicht unabhängig voneinander auftreten.

3.2. Spaltweite

Die Weite des Fabrikationsspaltens bestimmt zusammen mit anderen Größen die Weite des "heißen" Spaltens bzw., im Kontaktfall, den Anpreßdruck. Sie beeinflusst also innerhalb gewisser Grenzen den Wärmedurchgang im Betriebszustand.

Einen typischen Zusammenhang zwischen Fabrikationsspaltweite und in-pile gemessener Wärmedurchgangszahl zeigt Fig.1. Danach bleibt bei den angegebenen Versuchsbedingungen oberhalb eines Wertes von $p = 0,015$ für das Verhältnis Fabrikationsspalt zu Probendurchmesser die Wärmedurchgangszahl nahezu konstant, während sie bei niedrigeren p -Werten schnell ansteigt. Dieses Ergebnis ist auch numerisch konsistent mit den Resultaten von Simulationsversuchen in zylindrischer Brennstabgeometrie von Anthony et al [8], Fig.2. Baily et al [9] beobachteten bei In-pile-Messungen an Schnellbrüter-Brennstäben nach mehreren Tagen Bestrahlungsdauer ein ähnliches Verhalten (Kurve 2 in Fig.3).

Offenbar bleibt bei niederen Abbränden der Spalt oberhalb $p = 0,01$ bis $p = 0,015$ (das sind bei Stäben von 6 mm Durchmesser etwa 60 bis 90 μ diametrale Fabrikationsspaltweite) offen, während darunter schon nach kurzer Verweilzeit im Reaktor der Brennstoff die Hülle berührt. Diese Vermutung wird durch Ergebnisse der Untersuchungen von Mikailoff et al [10] an Schnellbrüterbrennstäben gestützt, die nach mehreren Tagen Bestrahlung bei unterschiedlichen Fabrikationsspalten zwischen 10 μ und 100 μ in allen Fällen nahezu identische Nachbestrahlungs-Spaltweiten maßen. Bei der Dounreay-Bestrahlung DD1 [11], die im Institut für Transurane analysiert wurde, stellte man an drei Stäben unterschiedlicher Schmierdichte fest, daß der Spalt in jedem Fall nach 4000 MWd/t Abbrand geschlossen war.

Die beschriebenen Ergebnisse wurden bei Stableistungen von 300 bis 500 W/cm gewonnen. Bei höheren Belastungen tritt wegen der durch die höhere Temperatur bedingte stärkere thermische Ausdehnung der Kontaktfall auch bei Kurzzeitbestrahlungen um 100 h schon bei höheren Fabrikationsspaltweiten auf, wie Versuche von Lawrence et al [12] mit Schnellbrüterstäben unterschiedlicher Gasfüllung bei Stableistungen von 1000 W/cm zeigten (Fig.4).

3.3. Kontaktdruck

Die Wärmedurchgangszahl nimmt mit steigendem Anpreßdruck zu; es besteht jedoch nicht völlige Klarheit darüber, nach welchem Gesetz und von welchen Faktoren diese Abhängigkeit beeinflusst wird.

Bei Festkörperkontakt ist die Wärmedurchgangszahl proportional der Flächendichte n und dem mittleren Radius a der Berührungsstellen [20]:

$$h = 2 n a \lambda_m, \quad (2)$$

wobei sich
$$\lambda_m = \lambda_1 + \lambda_2 \quad (3)$$

aus den Wärmeleitfähigkeiten der sich berührenden Materialien errechnet. Weiterhin läßt sich zeigen, daß der Kontaktdruck P und die Mikrohärtigkeit H (des weicheren Materials) über Gesamtzahl und Fläche der Berührungsstellen miteinander verknüpft sind:

$$P = \eta H \cdot \pi \cdot a^2 \cdot n \quad (4)$$

(Für den Anpassungsfaktor η wurde experimentell 0,6 gefunden). Kombiniert man (2) und (3), so folgt für

$$a = \text{const.} \quad h \approx \frac{\lambda_m \cdot P}{aH} \quad (5a)$$

bzw.
$$n = \text{const.} \quad h \approx \lambda_m \sqrt{\frac{n P}{H}} \quad (5b)$$

Demnach wird die Druckabhängigkeit von h dadurch bestimmt, daß entweder, bei konstanter Fläche der Einzelkontakte, ihre Zahl variiert (Fall 5a) oder daß, bei konstantem n , eine Verformung der Kontaktspitzen, also eine Änderung von a , eintritt (Fall 5b). Im Realfall wird beides vorkommen, doch wird sich bei niederen Drucken vorzugsweise die Kontaktzahl vergrößern, was eine lineare Druckabhängigkeit von h zur Folge hat, während bei höheren Drucken die Kontaktspitzen deformiert werden und die Wärmedurchgangszahl dann mit \sqrt{P} anwachsen sollte.

In der Tat beobachtete Dean [13] bei Simulationsversuchen mit UO_2 -Zircaloy-Kombinationen (18 bis 48 kp/cm^2 Anpreßdruck, Oberflächen-Rauhtiefe zwischen 0,3 und $1,3 \cdot 10^{-4}$ cm, Kontaktflächen-Temperaturen zwischen 200°C und 285°C) stets einen

linearen Zusammenhang zwischen h und P , wobei die Nullkomponente (h bei $P = 0$) durch Füllgasdruck und -zusammensetzung und die Rauigkeit der Berührungsflächen bestimmt wurde (s. Fig. 5). Ross und Stoute [5] fanden in Laborversuchen mit UO_2 -Zirkaloy-Paaren zwischen 50 und 550 kp/cm^2 (bei Oberflächenrauigkeiten zwischen 0,2 und $3,5 \cdot 10^{-4}$ cm und Kontaktflächentemperaturen von 200 bis 350°C) ebenfalls in den meisten untersuchten Fällen eine lineare Abhängigkeit der Wärmedurchgangszahl vom Druck (Fig. 6).

Für die Berechnung von h bei höheren Drücken empfiehlt Dean [13] die Anwendung des \sqrt{P} -Gesetzes. Die Theorie von Cetinkale und Fishenden [6] sagt dagegen über weite Druckbereiche hinweg Wärmedurchgangszahlen voraus, die annähernd mit $P^{4/3}$ ansteigen. Wenn der Wärmeaustausch ausschließlich über Festkörperkontakte erfolgt, ergibt sich h nach Cetinkale und Fishenden (in der von Cohen et al [14] benutzten expliziten Schreibweise) zu

$$h = \frac{\lambda_m \cdot \sqrt{\frac{P}{M}}}{r_e \cdot \arctg \left(\sqrt{\frac{M}{P}} - 1 \right)} \quad (5)$$

Hier ist λ_m durch Gl. 3 definiert. r_e bezeichnet den halben mittleren Abstand zwischen den Kontaktstellen. Nach (5) wird h für sehr hohe Drucke, also wenn P in die Größenordnung der Mikrohärtigkeit des weicheren Kontaktmaterials kommt, stark ansteigen. Dies ist tatsächlich bei In-Pile-Versuchen von Cohen et al [14] mit stahlumhüllten UO_2 -Elementen bei berechneten Anpreßdrücken um 2000 kp/cm^2 beobachtet worden (Fig. 7). In unsystematischer Weise fanden auch Ross und Stoute bei Simulationsversuchen mit UO_2 -Zirkaloy-Kombinationen einen ungewöhnlich steilen Anstieg von h mit P ab 400 kp/cm^2 unter Vakuum. [5].

Mehrere Beobachter stellen fest, daß die Druckabhängigkeit von h bei glatten Oberflächen stärker ausgeprägt ist als bei rauhen Oberflächen im Kontakt [4, 13, 18, 20].

Die Füllgaskomponente der Wärmedurchgangszahl für den Kontaktfall sollte nach Überlegungen von Robertson et al [4] in erster Näherung unabhängig vom Anpreßdruck sein.

3.4. Füllgas

Der Wärmefluß, der bei Festkörperkontakt durch Wärmeleitung über das den Raum zwischen den Kontaktstellen füllende Gas übertragen wird, ist umso größer, je höher unter sonst gleichen Bedingungen die Wärmeleitfähigkeit des Füllgases und je kleiner die wirksame Weite δ des Gasraumes ist. Zur Berechnung der Wärmedurchgangszahl über die Gasphase muß δ um die Temperatursprungdistanz f erweitert werden, die für jede Kombination Festkörper-Gas-Festkörper einen spezifischen Wert hat und mit dem Gasdruck und der Temperatur variiert. Es gilt also

$$h_g = \frac{\lambda_g}{\delta + f} \quad (6)$$

Bei Wärmeübergangsexperimenten an UO_2 -Zircaloy maßen Ross und Stoute [5] bei 1 kp/cm^2 Füllgasdruck und 200°C bis 300°C Oberflächentemperatur die folgenden f -Werte:

10^{-3} cm	in	He
$5 \cdot 10^{-4}$ cm	in	Ar
$1 \cdot 10^{-4}$ cm	in	Kr
$< 1 \cdot 10^{-4}$ cm	in	Xe

Nach dem Gesagten wird im Kontaktfall der Austausch des Füllgases unter sonst gleichen Bedingungen den Wert von h um weniger, als das Verhältnis der Gasleitfähigkeiten angibt, beeinflussen. Dies wurde in mehreren Untersuchungen bestätigt.

Ross und Stoute [5] fanden, daß der Einfluß des Füllgases mit steigendem Anpreßdruck immer geringer wird, in Übereinstimmung mit den obigen Überlegungen.

Horn [15] studierte den Einfluß einer Änderung des Xe/He-Verhältnisses im Füllgas auf die Temperaturverteilung und beobachtete die in Fig.8 dargestellten Änderungen, die im praktisch interessierenden Bereich relativ unbedeutend sind.

G.Mestdagh et al [16] behaupten, daß bei der Verwendung nichtentgaster Proben die Art der Gasfüllung auf die Wärmeübertragung fast ohne Einfluß ist, da die Leitfähigkeit des wärmeübertragenden Mediums im wesentlichen durch den Anteil desorbierter Restgase bestimmt wird, die beim ersten Aufheizen im Reaktor aus dem Brennstoff freigesetzt werden.

3.5. Oberflächenbeschaffenheit

Man kann nach Ascoli und Germagnoli [17] den schwer meßbaren mittleren Radius a der Kontaktspitzen mit der mittleren Glättungstiefe*) $R = \sqrt{\frac{1}{2}(R_1^2 + R_2^2)}$ der sich berührenden Oberflächen in Verbindung bringen:

$$a = a_0 \sqrt{R} \quad (7)$$

wobei a um $1 \text{ cm}^{1/2}$ liegen sollte. Ross und Stoute [5] konnten diesen Zusammenhang bestätigen, sie ermittelten jedoch mit UO_2 -Zircaloy-Paaren unterschiedlicher Rauigkeit unter Vakuum und bei Drucken zwischen 50 und 500 kp/cm^2 einen Wert von $a_0 \approx 0,5 \text{ cm}^{1/2}$.

Von Kiss [18] stellte bei der Analyse von Meßdaten über den Wärmefluß durch Metall-Metall-Kontakt fest, daß in der den Gleichungen (4) analogen Beziehung

$$h \sim \left(\frac{P}{H} \right)^n$$

der Exponent n von der Oberflächenbearbeitung der Kontaktpartner abhängt. Er errechnete für Stahl-Stahl-Kontakte bei $1,5 \text{ kp/cm}^2$ Anpreßdruck n -Werte zwischen 1 (für sehr glatte) und 0,3 (für gratige) Oberflächen.

Die wirksame Weite δ des Gasspaltens im Kontaktfall ist nach Cetinkale und Fishenden [6] gemäß

$$\delta = c (R_1 + R_2)$$

mit den Glättungstiefen der Kontaktflächen 1 und 2 verknüpft. Während nach [6] $c = 1,2$ sein sollte, fanden Ross und Stoute [5] für UO_2 -Zircaloy-Kontakte c -Werte zwischen 1,5 (für hohe Drucke um 500 kp/cm^2) und 2,5 (für niedere Drucke). Sie deuteten diese Abweichungen mit dem - von der Theorie nicht erfaßten - Einfluß der Oberflächenwelligkeit.

*) Beim Vergleich der Arbeiten verschiedener Autoren ist die Definition des Rauigkeitsmaßes zu beachten: Cetinkale und Fishenden [6], Dean [13] und von Kiss [18] rechnen mit der Rauhtiefe (peak-to-trough-roughness) β , die sich von der z.B. von Ross und Stoute [5] und von Robertson et al [4] verwendeten Glättungstiefe (arithmetic mean roughness) R etwa um den Faktor 2 unterscheidet ($\beta = 2 R$).

Auch von Kiss [18] fand für verschiedenartig oberflächenbearbeitete Kontaktflächen $c = 1,2$; nur im Fall von gratig gedrehten und gekerbten Oberflächen erniedrigte sich c auf 0.6.

3.6. Temperaturverteilung im Brennstoff

Von Kiss [18] fand in Laborversuchen mit Metall-Metall-Kontakten zwischen 50° und 100°C keinen merklichen Einfluß der Temperatur auf die Wärmedurchgangszahl. Ross und Stoute [5] maßen h -Werte an UO_2 -Zircaloy-Paaren unter Vakuum, Argon und Helium zwischen $\sim 100^{\circ}\text{C}$ und $\sim 350^{\circ}\text{C}$. Auch sie fanden keinen eindeutigen Zusammenhang zwischen Temperatur und Wärmedurchgangszahl. Bei noch höheren Temperaturen sollte jedoch wegen der Verminderung der Härte der Metalloberfläche eine Erhöhung von h eintreten.

Eine Erhöhung der Wärmedurchgangszahl mit der Stabileistung wurde sowohl in Simulationsexperimenten mit Zylindergeometrie [8] als auch bei In-Pile-Messungen an UO_2 -Zircaloy-Stäben [19] und an stahlumhüllten Schnellbrüter-Mischoxidstäben gemessen, doch wird dieser Effekt im wesentlichen wohl auf der Vergrößerung des Kontaktdruckes durch thermische Ausdehnung des Brennstoffes beruhen.

Von W.E.Baily et al [9] stammen folgende Werte, die in-pile an Mischoxid-Brennstäben gemessen wurden:

- bei 250 W/cm^2 : $h = 0,376 \text{ W/cm}^2\text{dy}$
- bei 655 W/cm^2 : $h = 0,655 \text{ W/cm}^2\text{dy}$

3.7. Bestrahlungsdauer

Bain [19] hat bei Bestrahlungen von UO_2 -Zircaloy-Stäben über Zeiträume von 10 h bis zu 2 Monaten keine merkliche Änderung der Wärmedurchgangszahl beobachtet, in Übereinstimmung mit Überlegungen von Robertson et al [4].

Dagegen fanden J.Arrighi et al [1] an UC-SAP-Brennstäben einen deutlichen Anstieg der Wärmedurchgangszahl schon nach kurzen Bestrahlungszeiten (Fig.9), und W.E.Baily et al [9] extrapolierten ihre an Schnellbrüter-Brennstoff (Mischoxid-

Stahl) gemachten Beobachtungen auf hohe Abbrände (Fig.3). Demnach wird sich nach einer anfangs schnellen Vergrößerung von h bei Abbränden um 50.000 MWd/t ein Wert von $h = 1 \text{ W/cm}^2 \text{ deg}$ einstellen, der von der Ausgangsspaltweite weitgehend unabhängig ist.

Wegen der Komplexität der bei längeren Bestrahlungen ablaufenden Vorgänge (Brennstoffschwellen, Rißbildungen, Korrosion, Spaltproduktanreicherung, Änderung der elastischen Eigenschaften, Änderung der Füllgaszusammensetzung) ist es sehr schwierig, eine klare Aussage über den Einfluß der Bestrahlungsdauer auf den Wärmedurchgang im Spalt zu machen. Hier ist noch ein weites Feld für Experimentatoren.

4. Gebrauchsgleichungen

Boeschoten und van der Held [20] haben für grobe Abschätzungen der Wärmedurchgangszahl die Beziehung

$$h_t = 350 \lambda_m \frac{P}{H} + \frac{\lambda_g}{15 \cdot 10^{-4}} \quad (8)$$

(h_t in $\text{W/cm}^2 \cdot \text{deg}$, λ in $\text{W/cm} \cdot \text{deg}$)

empfohlen, die als Versuchsparameter nur die Härte H (des weicheren Materials), den Anpreßdruck P und die Wärmeleitfähigkeiten λ_m und λ_g der Kontaktmaterialien und des Füllgases enthält. Man kann (8) verfeinern, indem man

$$h_t = K \cdot \lambda_m \cdot \frac{P}{H} + \frac{\lambda_g}{15 \cdot 10^{-4}} \quad (8a)$$

setzt, wobei nach Ross und Stoute [5], K über

$$K = (a_0 \sqrt{R})^{-1}$$

mit der Glättungstiefe R verknüpft ist, also

$$h_t = \frac{\lambda_m \cdot P}{a_0 \cdot \sqrt{R} \cdot H} + \frac{\lambda_g}{15 \cdot 10^{-4}} \quad (8b)$$

Beziehung (8) wurde durch Messung der Wärmedurchgangszahl zwischen sehr fein bearbeiteten Metall-Metall-Kontakten bei Drucken unterhalb 10 kp/cm^2 und Temperaturen bis 100°C bestätigt [18].

Ross und Stoute [5] und, ihnen folgend, Robertson et al [4] verwenden einen Ausdruck der Form

$$h_t = \frac{\lambda_m P}{a_0 \sqrt{R \cdot H}} + \frac{\lambda_g}{c(R_1 + R_2) + f} \quad (9)$$

wobei gegenüber (8b) der Term für den Wärmeaustausch durch die Gasphase gemäß den Überlegungen von Cetinkale und Fishenden [6] geschrieben wurde.

Mit $a_0 = 0,5 \text{ cm}^{1/2}$ und $c = 2,5$ (außer bei sehr hohen Drucken, wo $c = 1,5$ wurde) konnten sie damit die Mehrzahl der an UO_2 -Zircaloy-Paaren gemessenen Wärmedurchgangszahlen mit den Versuchsparametern verknüpfen.

In Fig.10 sind die von Ross und Stoute [5] bei verschiedenen Oberflächenrauigkeiten in Vakuum, Helium und einem schweren Edelgas gemessenen Wärmedurchgangszahlen als Funktion des Druckes schematisch dargestellt.

Diese Ergebnisse decken sich im wesentlichen (vgl. Fig.5) mit den Befunden von Dean [13], der bei niedrigeren Kontaktdrucken (zwischen 18 und 50 kp/cm^2) die Wärmedurchgangszahl zwischen UO_2 und Zircaloy unter Argon gemessen hat. Dean [13] beschreibt seine Ergebnisse mit

$$h_t = 280 \frac{P}{M} \lambda_m (l_1 \cdot l_2)^{1/2} + \frac{\lambda_g}{0,52 \cdot f} \quad (10)$$

wobei l_1 und l_2 die Wellenlängen der Oberflächenwelligkeiten der beiden Kontaktflächen bezeichnen.

Die von Cetinkale und Fishenden [6] abgeleitete Beziehung für die Wärmedurchgangszahl ist in ihrer allgemeinsten Form unpraktisch zu handhaben. Sie führt im Fall, daß der Gasanteil klein ist gegenüber dem durch Festkörperkontakte übertragenen Anteil des gesamten übertragenen Wärmeflusses auf eine Beziehung ähnlich wie Gl.(9).

5. Zusammenfassung

Die obigen Betrachtungen führen zu dem Schluß, daß es keine zuverlässige allgemeingültige Beziehung gibt, die die Wärmedurchgangszahl zwischen Hülle und Brennstoff aus den Versuchsparametern (wie Druck, Härte, Oberflächenbeschaffenheit, Temperatur, Anfangsspaltbreite, Hüllgas-Wärmeleitfähigkeit, Abbrand und Stabileistung) streng zu berechnen gestattet. Alle Experimentatoren geben an, daß die von ihnen verwendeten Formeln nur mit Einschränkungen gelten und daß die berechneten h -Werte mit großen Unsicherheiten behaftet sind.

Am ehesten scheint Gl.(9) zur Berechnung der Wärmedurchgangszahl zwischen Hülle und Brennstoff geeignet zu sein, obwohl auch hiermit, nach Ross und Stoute [5] nicht alle Versuchsergebnisse erklärt werden konnten.

Wärmedurchgangszahlen für realistische Schnellbrüterstäbe scheinen bei $h = (1 \pm 0,5) \text{ W/cm}^\circ\text{C}$ zu liegen, wobei die angegebene Variationsbreite Unsicherheiten in der Brennstofftemperatur bis zu $\pm 200^\circ\text{C}$ zur Folge hat. Bei genauer Kenntnis der Einflußgrößen kann diese Unsicherheit durch eine Beziehung der Art von Gl.(9) verkleinert werden.

Referenzen

- [1] J.ARRIGHI, C.MUSTACCHI und S.ZANELLA, EUR-3155.e (1966) Fuel Clad Contact Conductance
- [2] C.E.BURDG, J.R.PARRETTE, R.I.BROCKETT, U.P.CHERNOCK Development and Testing of a Temperature Transient Method for Performing In-Pile Thermal Conductance Testing, CEND-3336-260 (1966)
- [3] W.DAENNER, Bestimmung der betriebsmäßigen Wärmeleitfähigkeit von keramischen Kernbrennstoffen und der Wärmedurchgangszahl des Gasspaltes zwischen Brennstoff und Hüllrohr nach der Ballanced Oscillator Method KfK-1125 (1970)
- [4] J.A.ROBERTSON, A.M.ROSS, M.J.F.NOTLEY und J.R.MACEWAN J.Nucl.Mat., 7 (1962) 225
- [5] A.M.ROSS und R.L.STOUTE, Heat Transfer Coefficient between UO_2 and Zircaloy-2, AECL-1552 (1962)
- [6] T.N.CETINKALE und M.FISHENDEN, Thermal Conductance of Metal Surfaces in Contact; Proc.Gen.Disc.on Heat Transfer, The Institution of Mech.Engineers and ASME, 1951, 271
- [7] H.FENESH und W.M.ROHSENOW, Thermal Conductance of Metallic Surfaces in Contact; USAEC-Report NYO-2136, 1959
- [8] A.J.ANTHONY, CH.E.BURDG and R.J.SANDERSON, Out-of-Pile Testing Thermal Testing of UO_2 Fuel Elements, Transactions of the American Nucl.Soc.Vol.5 (1962)
- [9] W.E.BAILY, C.N.CRAIG, E.L.ZEBROSKI, Effect of Diametral Gap Size on the In-Pile-Performance of Fast Ceramic Reactor Mixed Oxide Fuel, Trans.Am.Nucl.Soc. Vol.9, No.1 (1966)
- [10] H.MIKAILOFF, J.P.MUSTELLIER, J.BLOCH, M.CONTE, L.HAYET, J.C.LAUTHIER, J.LECLERC, Resultats d'Irradiation d'Echantillons en Oxyde UO_2 - PuO_2 pour Elements Combustibles de Réacteurs à Neutrons Rapides CEA-R-3878 (1968)
- [11] M.COQUERELLE, J.GABOLDE, G.SAMSEL, P.WERNER, Erste Ergebnisse aus Oxid-Bestrahlungsversuchen im DFR, Bericht Reaktortagung Berlin 1970, p.423
- [12] L.A.LAWRENCE, G.R.HORN und J.A.CHRISTENSEN, Fuel-Clad Gap Conductance in Fast Reactor Oxide Fuels, Trans.Am.Nucl.Soc. 13 (1970) 572
- [13] R.A.DEAN, Thermal Contact Conductance between UO_2 and Zircaloy 2, CVNA-127 (1962)
- [14] J.COHEN, B.LUSTMAN and J.D.EICHENBERG, Measurement of the Thermal Conductivity of Metal Clad Uranium Oxide Rods During Irradiation, J.Nucl.Mater. 3 (1961) 331
- [15] G.R.HORN, The Effect of Xenon on Fuel-to-Clad Gap Conductivity, Trans.Am.Nucl.Soc. 12 (1969) 607

- [16] G.MESTAGH, A.J.FLIPOT und A.SMOLDERS, Considérations sur la nature et l'importance d'intervalles UO_2 -gaine sous irradiation, J.Nucl.Mat.26 (1968) 2 300
- [17] A.ASCOLI und E.GERMAGNOLI, Considerazioni sulla resistenza termica di contatto tra superficie metalliche piane affacciate, Energia Nucleare 3 (1956) 2
- [18] M.von KISS, Der Wärmeübergang zwischen sich berührenden metallischen Oberflächen, EUR-47 (1963)
- [19] A.S.BAIN, Microscopic, Autoradiographic and Fuel/Sheath Heat Transfer Studies on UO_2 Fuel Elements, AECL-2588 (1966)
- [20] F.BOESCHOTEN und E.F.M.v.d.HELD, The Thermal Conductance of Contacts between Al and other materials, Physica 23 (1957) 37

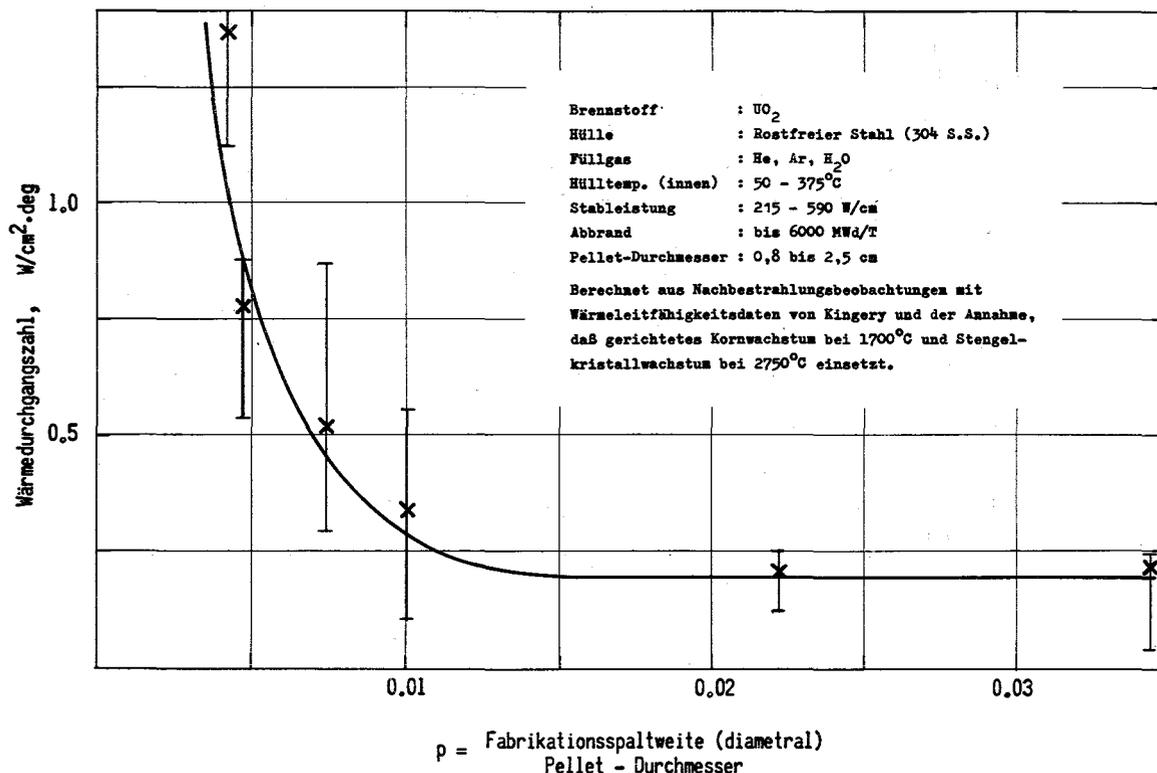


Fig.1 Abhängigkeit der unter Bestrahlung gemessenen Wärmedurchgangszahl von der Fabrikationsspaltweite. (nach Cohen, Lustman und Eichenberg [14]).

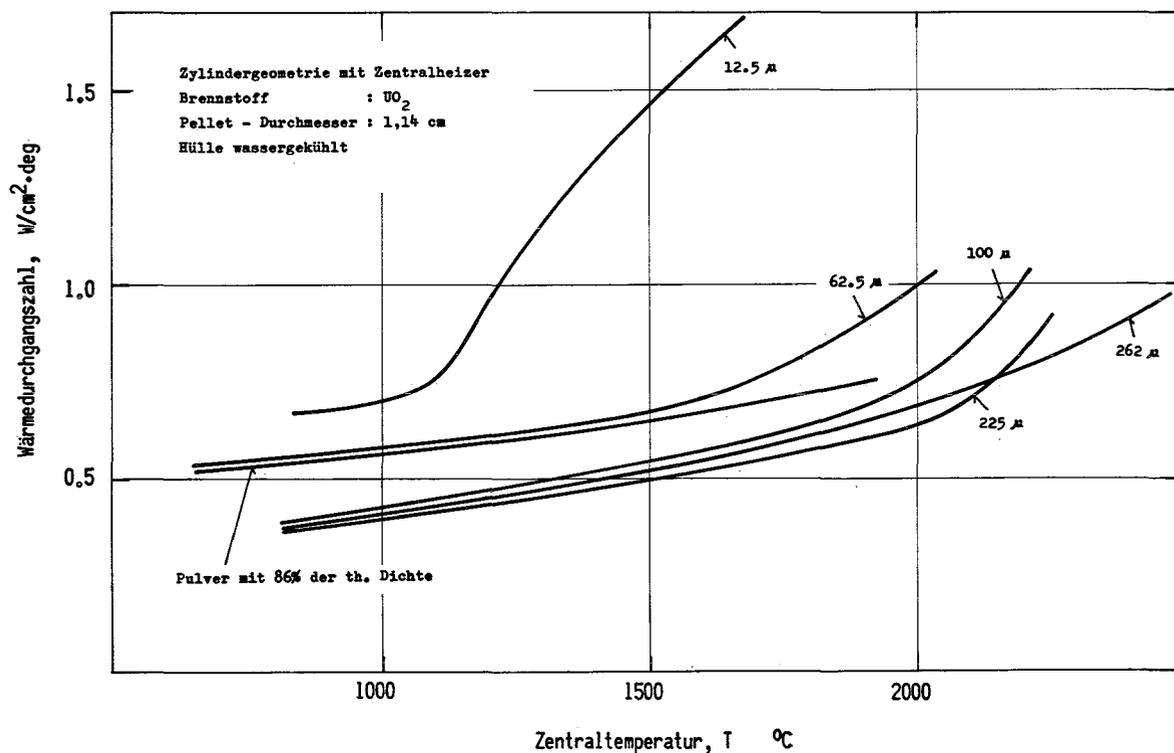


Fig.2 Einfluß der Zentraltemperatur bei Simulationsversuchen auf die Wärmedurchgangszahl zwischen Brennstoff und Hülle bei verschiedenen Fabrikationsspaltweiten. (nach Anthony et al. [8]).

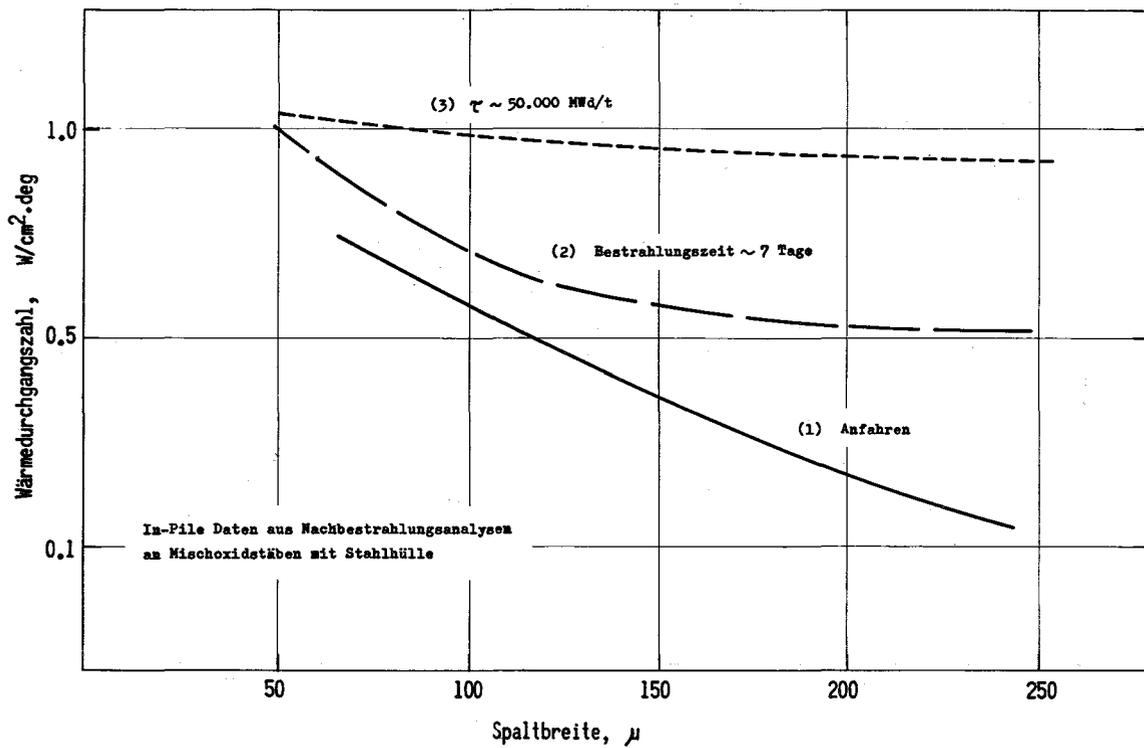


Fig.3 Einfluß der Bestrahlungsdauer auf die Wärmedurchgangszahl in Schnellbrüter-Brennstäben. (nach Baily et al. [9])

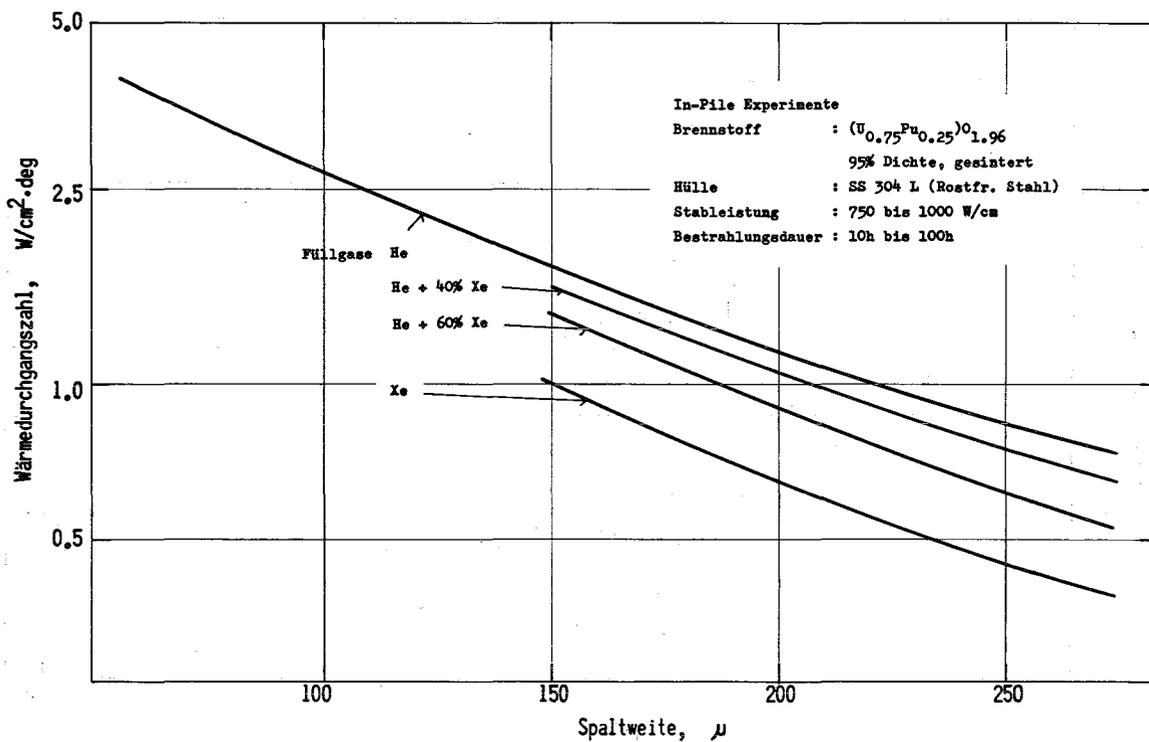


Fig.4 Einfluß der Spaltweite auf den Wärmeübergang in Schnellbrüter-Stäben bei verschiedenen Gasfüllungen (nach Lawrence et al. [12])

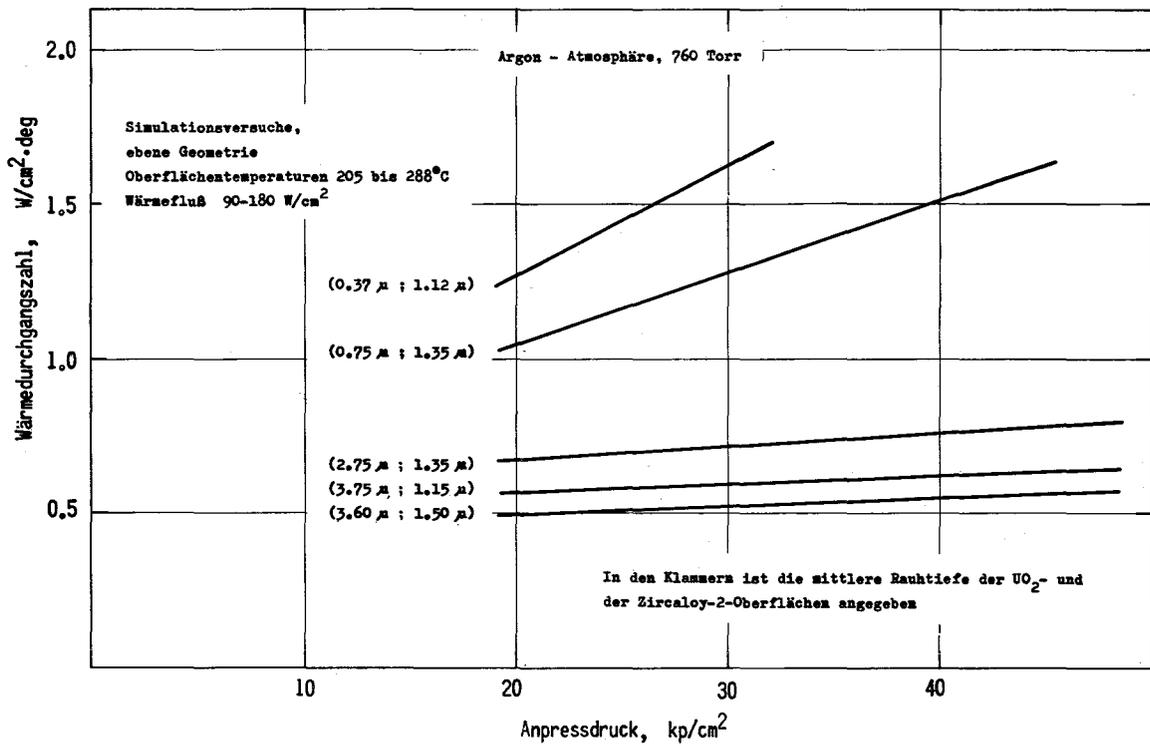


Fig.5 Die Wärmedurchgangszahl zwischen UO₂ und Zircaloy-2 als Funktion des Anpreßdrucks für verschiedene Rauheitskombinationen. (nach Dean [13])

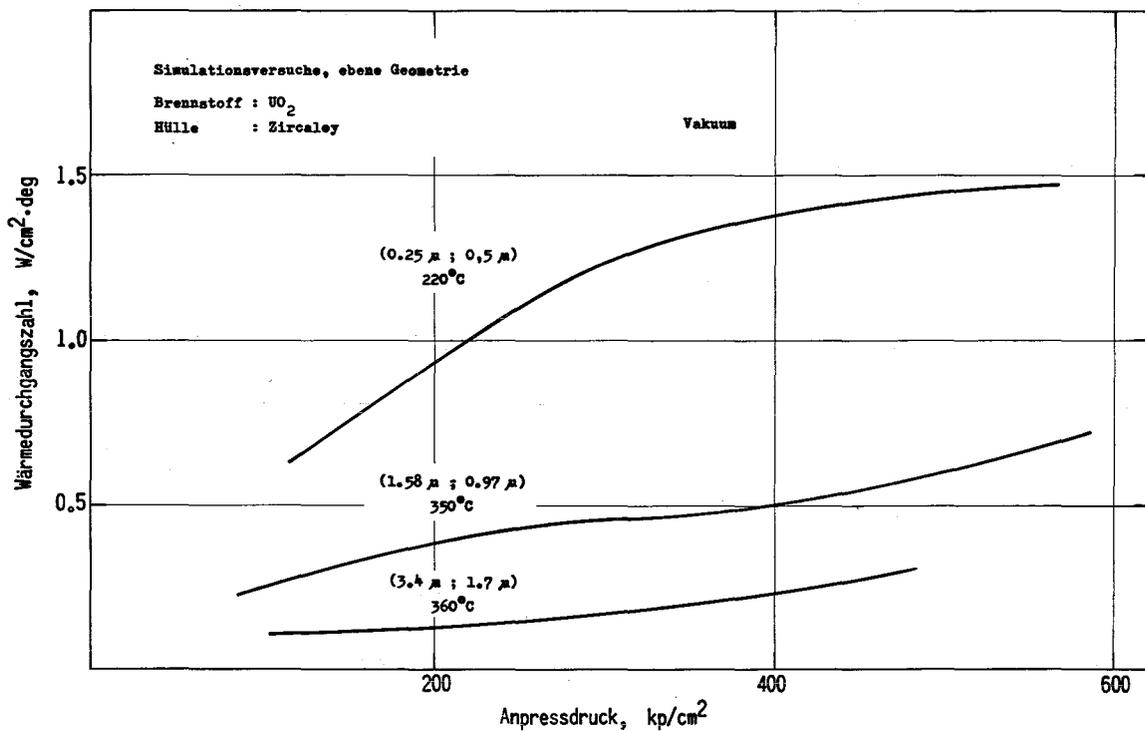


Fig.6 Einfluß des Kontaktdruckes auf die Wärmedurchgangszahl bei unterschiedlicher Oberflächenrauigkeit. (nach Robertson et al. [4])

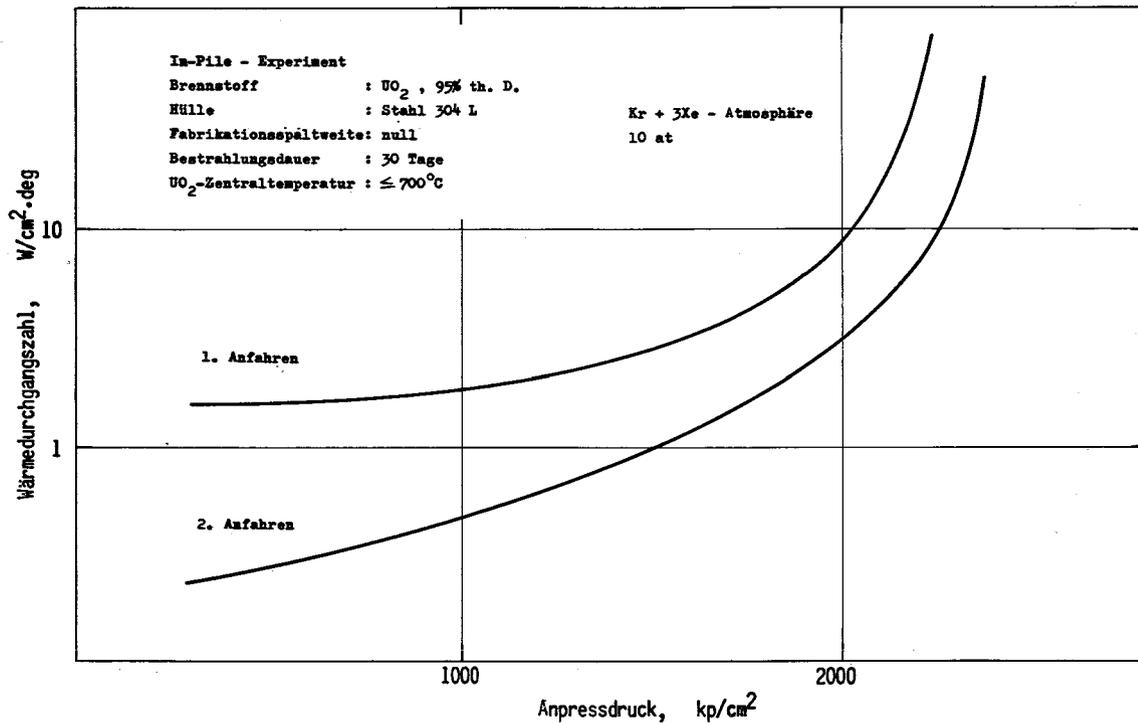


Fig.7 Abhängigkeit der Wärmedurchgangszahl vom Kontaktdruck.
 (nach Cohen et al. [14])

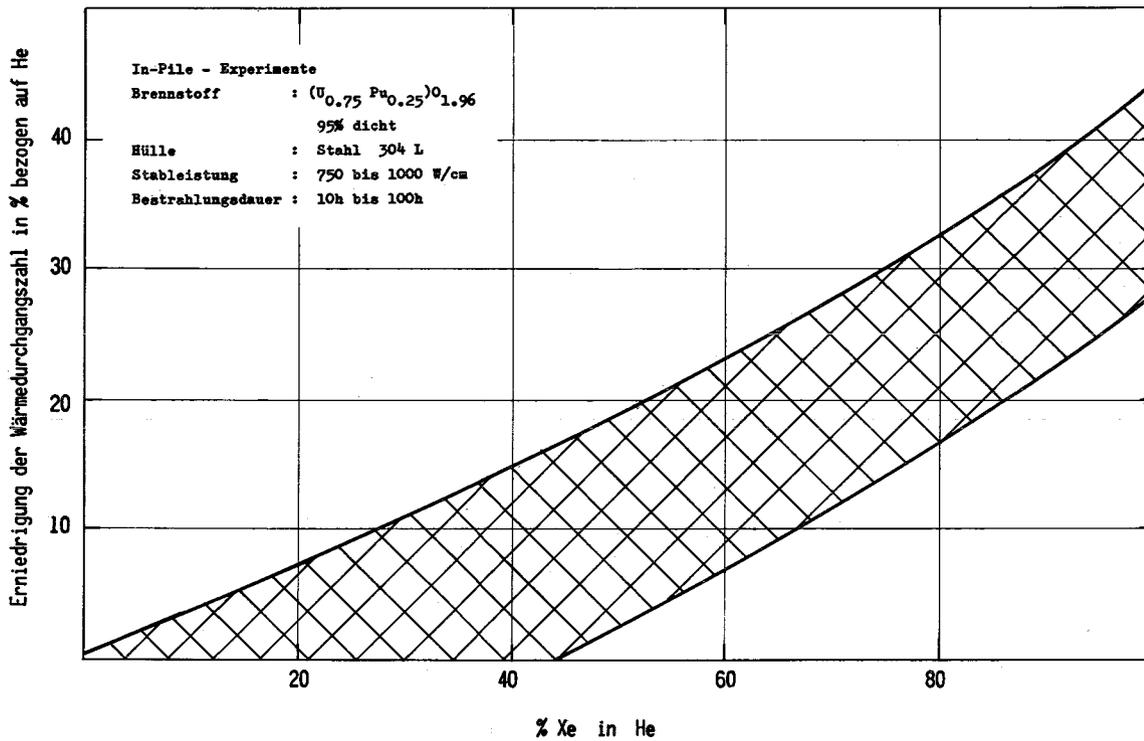


Fig.8 Die relative Änderung der Wärmedurchgangszahl in Schnellbrüter-Brennstäben mit Xe-He-Füllgas unterschiedlicher Zusammensetzung. (nach Horn [15])

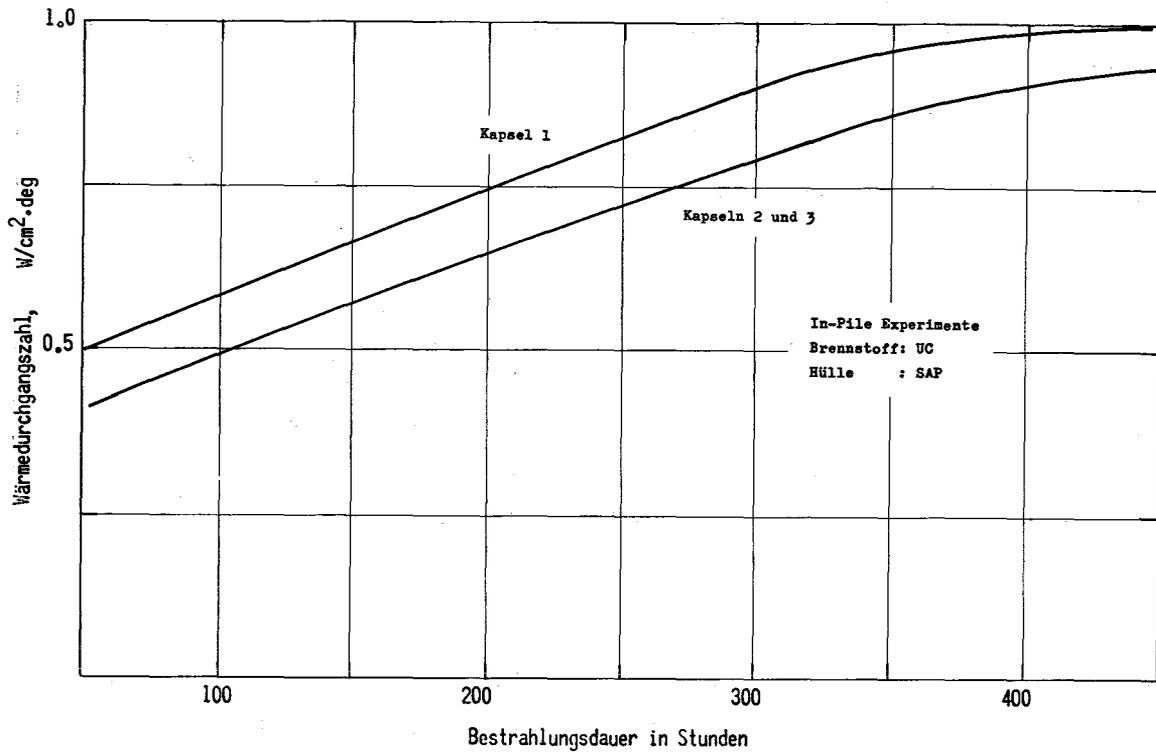


Fig.9 Die Abhängigkeit der Wärmedurchgangszahl zwischen UC und SAP von der Bestrahlungsdauer. (nach Arrighi et al. [1])

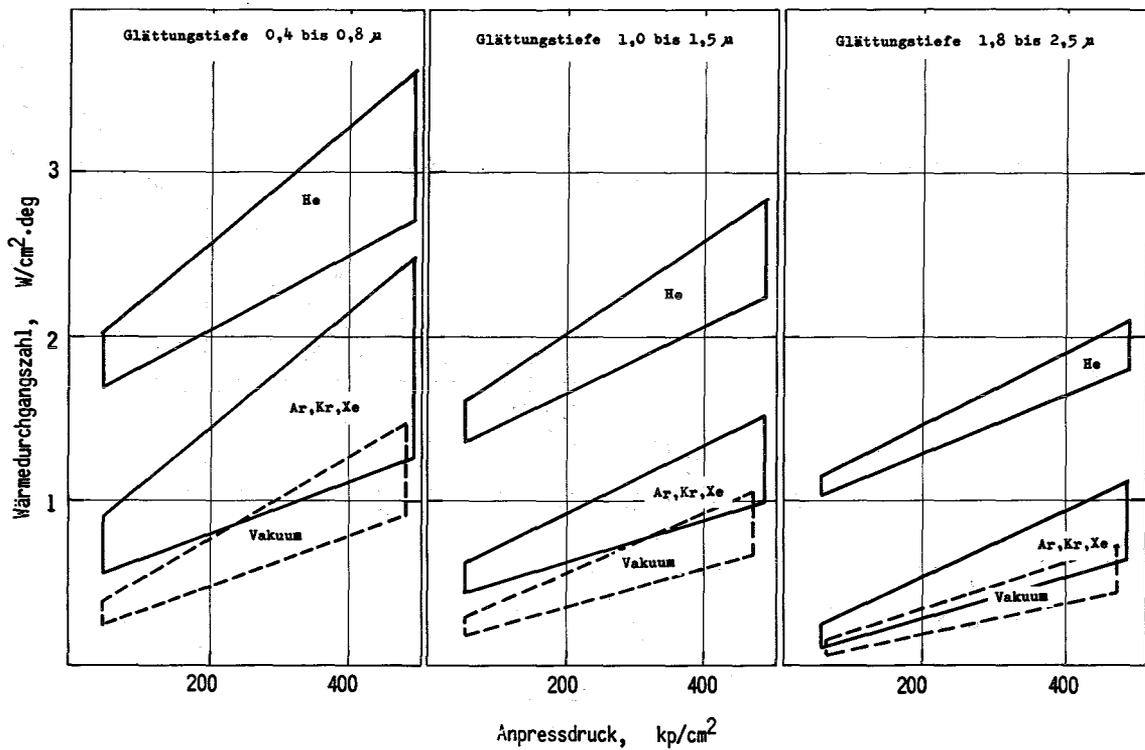


Fig.10 Der Einfluß des Füllgases auf die Wärmedurchgangszahl bei verschiedenen Anpreßdrücken. (Simulationsexperimente mit UO_2 -Zircaloy nach Robertson et al. [4])

XXIII. Geometrische Erfassung der Oberflächenprofile und Modelle zum
Wärmedurchgang durch den Kontakt Brennstoff-Hülle

von
R. Godesar

Inhalt

1. Geometrische Erfassung der Oberflächenprofile
 - 1.1 Maximale Rauhtiefe R_{\max}
 - 1.2 Mittlere Linie des Rauheitsprofils
 - 1.3 Arithmetischer Mittenrauhwert R_a
 - 1.4 Geometrischer Mittenrauhwert R_s
 - 1.5 Glättungstiefe R_p

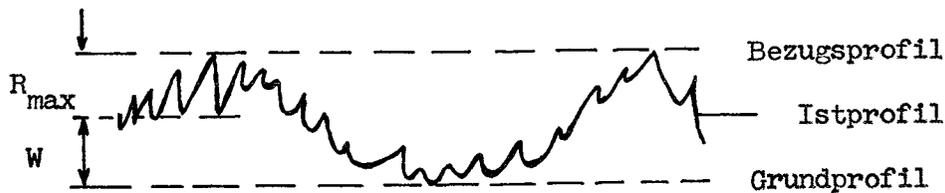
2. Modelle zum Wärmedurchgang durch den Kontakt Brennstoff-Hülle
 - 2.1 Modell von Cetinkale und Fishenden
 - 2.2 Modell von Fenesh und Rohsenow
 - 2.3 Modell von Ross und Stoute
 - 2.4 Modell von Clausing und Chao
 - 2.5 Modell von Greenwood
 - 2.6 Modell von Cooper und Jovanovitch

1. Geometrische Erfassung der Oberflächenprofile

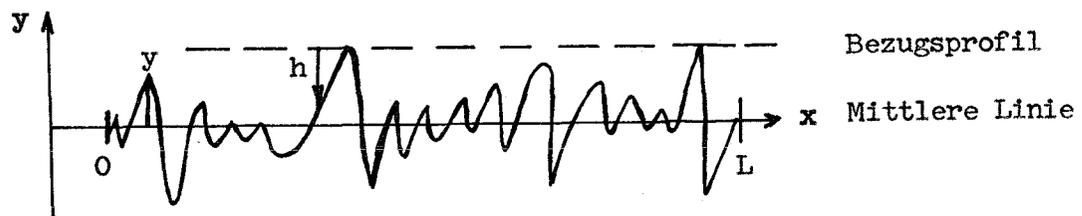
Die Oberflächenprofile können als eine Überlagerung von Welligkeiten, d.h. langwellige Unebenheiten und Rauigkeiten, d.h. relativ kurzwellige Unebenheiten, aufgefaßt werden. Dabei werden Unebenheiten mit größeren Wellenlängen als $0,76 \text{ mm} = 3/100''$ als Welligkeiten bezeichnet. Die Trennung beider Anteile erfolgt mit dem Wellenfilter, bzw. "Cut-off". Meßtechniken und Apparaturen sind in [1] beschrieben. Die nach einer Filterung mit einem Wellenfilter übrig bleibende Rauigkeit wird durch folgende Definitionen erfaßt [2].

1.1 Maximale Rauhtiefe R_{max}

Abstand zwischen zwei Parallelen, eine davon über die höchsten Profilsitzen, die andere durch die tiefsten Profiltrillen gezogen. Die Welligkeit W ist durch den Cutoff ausgefiltert.



1.2 Mittlere Linie des Rauigkeitsprofils



$y(x)$ = Rauigkeitsprofil bezüglich der mittleren Linie, die durch folgende Gleichung definiert ist

$$\int_0^L y(x) dx = 0 \quad (1)$$

L = die betrachtete Meßstrecke des Rauigkeitsprofils.

1.3 Arithmetischer Mittenrauhwert R_a

Arithmetischer Mittelwert der absoluten Beträge der Abstände y des Rauheitsprofils von der mittleren Linie innerhalb der Meßstrecke L .

$$R_a = \frac{1}{L} \int_0^L |y| dx \quad (2)$$

1.4 Geometrischer Mittenrauhwert R_s

Wurzel aus dem Mittelwert der Quadrate der Abstände des Rauheitsprofils von der mittleren Linie

$$R_s = \sqrt{\frac{1}{L} \int_0^L y^2 dx} \quad (3)$$

1.5 Glättungstiefe R_p

Mittlerer Abstand des Bezugsprofils vom Istprofil

$$R_p = \frac{1}{L} \int_0^L h dx \quad (4)$$

2. Modelle zum Wärmedurchgang durch den Kontakt Brennstoff-Hülle

Die Erfassung der Oberflächenprofile ist besonders wichtig für die Berechnung des Wärmedurchgangs durch die Kontaktfläche zweier sich berührender Festkörper, insbesondere von Brennstoff und Hülle eines Brennstabes. Im folgenden sollen die bekanntesten Arbeiten auf diesem Gebiet kurz dargestellt werden.

2.1 Modell von Cetinkale und Fishenden

Die Autoren haben die Einschnürung der Wärmestromlinien an einem mikroskopischen Kontakt mittels der Relaxationsmethode berechnet, unter Berücksichtigung eines leitenden Mediums in den Wellentälern. Sie ermittelten den Wärmedurchgangskoeffizient h_c zu

$$h_c = \frac{\lambda_f}{\delta} + \frac{\lambda_s \left(\frac{p_k}{H} \right)^{\frac{1-\xi}{2}}}{\psi (w_1+w_2) \operatorname{arctg} \left\{ \left(\frac{H}{p_k} \right)^{1/2} \left(1 - \frac{\lambda_f}{h_c \delta} \right)^{1/2} - 1 \right\}} \quad (5)$$

wobei

λ_f = Wärmeleitfähigkeit des Mediums zwischen den Kontakten

$\lambda_s = 2 \lambda_1 \lambda_2 / (\lambda_1 + \lambda_2)$ mittlere Wärmeleitfähigkeit der beiden Festkörper mit den Wärmeleitfähigkeiten λ_1 und λ_2

p_k = makroskopischer Festkörperdruck

H = Meyer-Härte des weicheren Materials

w_1, w_2 = Wellenlänge der Welligkeit der beiden Festkörper

$\delta = \varepsilon (\beta_1 + \beta_2) + l_1 + l_2$ = effektiver Spalt zwischen den Festkörpern

β_1, β_2 = Summe aus Welligkeit und maximaler Rauhtiefe beider Oberflächenprofile

l_1, l_2 = Akkomodationslängen

ε, ψ, ξ = empirische Konstanten

Die iterative Lösung dieser transzendenten Gleichung ergab gute Übereinstimmung mit in Versuchen gemessenen Wärmeübergangszahlen. Die drei verwendeten Konstanten ε, ψ und ξ wurden experimentell als materialunabhängig ermittelt [3].

2.2 Modell von Fenesh und Rohsenow

Die Autoren haben dasselbe Problem wie Cetinkale und Fishenden mathematisch anders zu lösen versucht und zwar durch die Lösung der stationären Wärmeleitungsgleichung in verschiedenen Bereichen mit geeigneten Randbedingungen. Sie kamen zu folgender Beziehung für den Wärmedurchgang im Kontakt

$$h_c = \frac{\frac{\lambda_f}{\delta} \left[(1-\epsilon^2) \left(\frac{2,4 \frac{\delta_1}{c} + 1}{\lambda_1} + \frac{2,4 \frac{\delta_2}{c} + 1}{\lambda_2} \right) + 1,1 \cdot \epsilon \cdot f(\epsilon) \cdot \left(\frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \right) \right] + 2,4 \frac{\epsilon}{a}}{(1-\epsilon^2) \left[1 - \frac{\lambda_f}{\delta} \left(\frac{\delta_1}{\lambda_1} + \frac{\delta_2}{\lambda_2} \right) \right] \cdot \left[\frac{2,4 \frac{\delta_1}{c} + 1}{\lambda_1} + \frac{2,4 \frac{\delta_2}{c} + 1}{\lambda_2} \right]} \quad (6)$$

Neue Symbole in dieser Gleichung bedeuten:

- $\delta = \delta_1 + \delta_2$
- $\epsilon = \frac{c}{a} =$ Einschnürfaktor
- $c =$ Radius des Festkörperkontaktes
- $a =$ Radius der Kontaktzelle
- $f(\epsilon) =$ Einschnürfunktion
- $\delta_1, \delta_2 =$ Glättungstiefen

Fenech und Rohsenow fanden, daß die Berücksichtigung der Wärmequellen in einem der Kontaktpartner keine nennenswerte Verbesserung des Wärmedurchgangs ergibt. Ihr Verdienst ist es, eine Rekursionsformel entwickelt zu haben, die es ermöglicht, Rauigkeiten verschiedener Wellenlängen zu überlagern. Sorgfältig durchgeführte Messungen bestätigen ihre Theorie sehr gut. Der Nachteil ihrer Methode ist, daß die Anzahl der Kontaktstellen graphisch aus den gezeichneten Oberflächenprofilen ermittelt werden muß [4].

2.3 Modell von Ross und Stoute

Die Autoren haben die Materialpaarung UO_2 -Zircaloy 2 eingehend untersucht und die gemessenen Werte für den Wärmedurchgang im Kontakt mit einer vereinfachten Theorie verglichen:

$$h_c = \frac{\lambda_f}{c (R_1 + R_2) + \ell_1 + \ell_2} + \frac{\lambda_s \cdot p_k}{a_o R^{1/2} H} \quad (7)$$

Neue Symbole in dieser Gleichung bedeuten:

- $R = \left(\frac{R_1^2 + R_2^2}{2} \right)^{1/2}$
- $R_1, R_2 =$ arithmetische Mittenrauhwerte beider Oberflächen
- $c, a_o =$ empirische Konstanten

Die Konstanten c und a_0 sind den Messungen entnommen worden. Da sie keinerlei universellen Charakter besitzen, hat obige Gleichung nur beschränkte Gültigkeit [5].

2.4 Modell von Clausing und Chao

Die Autoren haben den Kontaktwiderstand in Vakuum näher untersucht. Sie verglichen die Einschnürung des Wärmestromes an Mikrokontakten

$$h_s = \frac{2}{\pi} \cdot \frac{p_k}{\xi H} \cdot \frac{\lambda_s}{a_s g(x_s)} \quad (8)$$

mit der Einschnürung des Wärmestromes durch die makroskopischen Kontaktzonen

$$h_\ell = \frac{2}{\pi} \cdot \xi \cdot \frac{\lambda_s}{b_\ell g(\xi)} \quad (9)$$

Neue Symbole in diesen Gleichungen bedeuten:

- a_s = Radius eines Mikrokontaktes
- $x_s = \frac{a_s}{b_s}$ mikroskopische Einschnürung
- b_ℓ = Radius der makroskopischen Kontaktzone
- b_s = Radius einer Mikrokontaktzelle
- ξ = empirischer Faktor, der die Abweichung vom idealen, plastischen Verhalten berücksichtigt
- $\xi = 1,285 \left(p_k b_\ell / E_m d_t \right)^{1/3}$
- E_m = mittlerer Elastizitätsmodul der Festkörper
- d_t = Gesamtkrümmung beider Oberflächen
- $g(y) = 1 - 1,40925 \cdot y + 0,29591 \cdot y^3 + 0,05254 \cdot y^5 + \dots$
Einschnürfaktor nach Ross, wobei $y = x_s, \xi$

Aus dem Verhältnis $\frac{h_s}{h_\ell}$ geht hervor, daß in den meisten Fällen der makroskopische Wärmewiderstand um 2 Größenordnungen höher ist als der mikroskopische. Einschränkend ist jedoch zu bemerken, daß Clausing und Chao diese Feststellung anhand von Experimenten trafen, in denen jeweils nur eine Kontaktzone existierte [6].

2.5 Modell von Greenwood

Greenwood leitete her, daß der Wärmeleitwiderstand einer Gruppe von Mikrokontakten gleich ist der Parallelschaltung der Wärmeleitwiderstände dieser Kontakte plus einem Widerstand, der sich aus der Größe der Kontaktzone und nicht aus der Größe oder Anzahl der Mikrokontakte ergibt [7].

$$R_c = \frac{1}{\lambda_s} \left(\frac{1}{2 n \bar{a}} + \frac{1}{2 \alpha} \right) \quad (10)$$

$$\text{mit } \alpha = \frac{3 \tilde{\pi}}{16 n^2} \sum_{i=1}^n \sum_{\substack{j=1 \\ i \neq j}}^n \frac{1}{s_{ij}}$$

Darin bedeuten:

- R_c = thermischer Widerstand
- \bar{a} = mittlerer Radius der Mikrokontakte
- s = Abstand zwischen zwei Mikrokontakten
- n = Anzahl Mikrokontakte in der Kontaktzone
- α = Holm'scher Radius

2.6 Modell von Cooper und Yovanovitch

Die Autoren haben in ihrer hervorragenden Arbeit die Kontaktleitfähigkeit im Vakuum im Hinblick auf die Entwicklung einer praktisch anwendbaren Gleichung eingehend untersucht.

Unter der Annahme, daß die Rauigkeitsspitzen **gauß verteilt** sind mit der Standardabweichung σ , ergibt sich für die Berechnung der Kontaktleitfähigkeit im Vakuum folgende Beziehung

$$h_c = 1,45 \left(\frac{p}{H} \right)^{0,985} \cdot \frac{\lambda_s \cdot \sqrt{\text{tg}\theta}}{\sigma}$$

mit $\sqrt{\text{tg}\theta} = \sqrt{\text{tg}\theta_1^2 + \text{tg}\theta_2^2}$ = mittlere Steigung des Oberflächenprofilpaares

$\sigma = \sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}$ = mittlere Varianz des Oberflächenprofilpaares

Der Vergleich dieser Theorie mit den in der Literatur vorhandenen Versuchen, die die benötigten Angaben beinhalten, zeigt, daß die gemessenen Werte für den Wärmeübergang im Spalt zwischen dem 0,5- und dem 1,0-fachen der berechneten liegen [8].

Literatur:

- [1] H.J. Becker
Fehlerquellen der vergleichenden Rauheitsmessung und ihre Beseitigung in der Praxis, TZ f. prakt. Meßtechnik, 1969, Heft 7
- [2] DIN 4768, Blatt 1
Ermittlung der Rauheitsmeßgrößen R_a , R_z , R_{max} mit elektrischen Tastschnittgeräten
- [3] T.N. Cetinkale, M. Fishenden
Thermal Conductance of Metal Surface in Contact
Gen. Disc. Heat Transfer Inst. Mech. Eng. 1951, p 271 - 275
- [4] H. Fenech, W.M. Rohsenow
Thermal Conductance of Metallic Surfaces in Contact
Report NYO-2136, May 1959
- [5] A.M. Ross, R.L. Stoute
Heat transfer coefficient between UO_2 and Zircaloy 2
AECL-1552, June 1962
- [6] A.M. Clausing, B.T. Chao
Thermal Contact Resistance in a Vacuum Environment
Journ. of Heat Transfer, May 1965
- [7] J.A. Greenwood
Constriction Resistance and the real area of contact
Brit. J. Appl. Phys., 1966, Vol. 17
- [8] M.G. Cooper, B.B. Mikic, M.M. Jovanovitch
Thermal contact conductance
Int. J. Heat Mass. Transfer, Vol. 12, pp 279-300, 1969

XXIV. Die Wärmeleitfähigkeit unbestrahlter keramischer
Kernbrennstoffe

Einige Bemerkungen zum derzeitigen Kenntnisstand

von

H. E. Schmidt

Inhalt:

1. Die Wärmeleitfähigkeit oxidischer Brennstoffe
 - 1.1 Urandioxid
 - 1.2 Mischoxid
 - 1.2.1 Allgemeine Bemerkungen
 - 1.2.2 Stöchiometrieabhängigkeit
 - 1.2.3 Konzentrationsabhängigkeit
2. Die Wärmeleitfähigkeit von Hochleistungsbrennstoffen
 - 2.1 Karbide
 - 2.2 Nitride
3. Zusammenfassung

1. Die Wärmeleitfähigkeit oxidischer Brennstoffe

1.1. Uranoxyd

Während im Bereich zwischen Raumtemperatur und etwa 1200 °C die Wärmeleitfähigkeit von dichtem stöchiometrischem UO₂ schon seit Jahren gut bekannt ist [1], unterscheiden sich die selbst von als verlässlich geltenden Autoren (z.B. [2], [3, 4, 5]) angegebenen Hochtemperaturwerte erheblich.

Erst vor kurzem erbrachte eine gemeinschaftliche Untersuchung in den U.S.A., das GE-Round Robin Program [6], an dem sich sieben qualifizierte Laboratorien beteiligten, eine gute Übereinstimmung der Wärmeleitfähigkeitsdaten, die auf verschiedene Weise an einem 98 % dichten stöchiometrischen Standard-UO₂ bis 2500 °C bestimmt wurden. Abweichungen zwischen den Resultaten der verschiedenen Beiträge liegen unterhalb 15 %.

Nach unseren Überlegungen [7] läßt sich der Hochtemperaturverlauf der Wärmeleitfähigkeit von UO₂ mit dem anomalen Verhalten der spezifischen Wärme dieses Materials oberhalb etwa 1500 °C in Zusammenhang bringen. Danach ist die Wärmeleitfähigkeit durch folgenden Ausdruck gegeben

$$\lambda = \frac{1}{A + B \Theta} (1 + F(T)) \quad (1)$$

wobei $\Theta = T$ für $T < T_0$ und $\Theta = T_0$ für $T \geq T_0$
als gute Näherung von $\Theta = \frac{1}{2} (T+T_0) - \frac{1}{2} (T-T_0) \operatorname{tgh}(T-T_0)$
und $F(T) = \frac{c_v - c_{v0}}{c_{v0}}$ die relative Abweichung der tatsächlichen spezifischen Wärme des Materials bei konstantem Volumen, c_v , vom theoretisch erwarteten Dulong-Petit-Wert c_{v0} (=18 kcal/mol deg) bezeichnen. T_0 ist die Temperatur, bei der die mittlere freie Weglänge der Phononen gleich dem kleinsten Atomabstand im Gitter ist.

Die Wärmeleitfähigkeit von UO_2 mit 2% Porosität läßt sich im Bereich zwischen $600^\circ C$ und $2500^\circ C$ durch (1) beschreiben, wenn $A = 10.80$; $B = 0.0218$; , $T_0 = 2050$ sowie

$$F(T) = -4,61 \cdot 10^{-8} T^2 + 2,82 \cdot 10^{-14} T^4$$

gesetzt werden (wobei T in $^\circ C$ und λ in $W/cm \text{ deg}$ ausgedrückt sind).

Die Abweichung der $\lambda(T)$ -Kurven vom erwarteten hyperbolischen Verlauf oberhalb $1200^\circ C$ wurde gelegentlich durch ein T^3 -Glied berücksichtigt, wobei man das Wirksamwerden eines internen Strahlungsmechanismus voraussetzte. Auf dieser Basis wurde durch Mittelung der Ergebnisse vieler Autoren die folgende Beziehung für die Wärmeleitfähigkeit von stöchiometrischem UO_2 und von $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_2$ erhalten [8] :

$$\lambda = \left(\frac{41.2}{T+4.9} + 6.55 \cdot 10^{-13} T^3 \right) (1 - P^{2/3}) \quad (2)$$

wobei P die Porosität und T die Temperatur (in $^\circ K$) bedeuten.

Der nach (2) berechnete Temperaturgang der Wärmeleitfähigkeit stimmt bis etwa $2000^\circ C$ gut mit den gemäß (1) ermittelten Werten überein. Bei höheren Temperaturen liegen die nach (2) ermittelten Daten tiefer (s. Fig. 1).

Nach neueren Überlegungen [9] ist der Wärmetransport durch Strahlung im UO_2 auch bei hohen Temperaturen verschwindend gering.

In Tab. I sind die Mittelwerte der Round-Robin-Messungen und die davon nur geringfügig abweichenden nach (1) berechneten Wärmeleitfähigkeiten für 98 % und 95 % dichtes UO_2 zusammengestellt, wobei für die Umrechnung von einer Dichte auf die andere die bekannte Loebische Koorekturformel $\lambda = \lambda_0 (1 - 2,5P)$ verwendet wurde (λ_0 ist dabei die Wärmeleitfähigkeit des

theoretisch dichten Brennstoffs). Zum Vergleich sind die mit (2) erhaltenen Werte aufgeführt.

1.2. Mischoxid

1.2.1. Allgemeine Bemerkungen

Mischoxidproben aus koprezipitiertem Ausgangsmaterial haben im allgemeinen eine höhere Wärmeleitfähigkeit als Prüfkörper, die aus mechanisch gemischten Pulvern hergestellt wurden [10]. Es muß in diesem Zusammenhang darauf hingewiesen werden, daß für Wärmeleitungsmessungen an plutoniumhaltigen Proben meist nur kleine Prüflinge zur Verfügung stehen, und daß es sehr schwierig ist, deren Homogenität in Bezug auf Zusammensetzung und Dichteverteilung zu gewährleisten. Auch sind Analysemethoden, die bei derart kleinen Testmengen angewandt werden, notwendigerweise ungenau. Im Hochtemperaturbereich kommt erschwerend hinzu, daß die in den meisten experimentellen Anordnungen nicht gegebene Möglichkeit, den Sauerstoffpartialdruck über der Probe mit der Temperatur zu variieren, während der Messung zu Änderungen der Probenzusammensetzung führt. Außerdem muß ein eventuelles Sintern des Probenkörpers während der Messung in Betracht gezogen werden.

1.2.2. Stöchiometrieabhängigkeit

Über die Wärmeleitfähigkeit der unbestrahlten Mischoxide mit 15 bis 25 % Plutonium besteht für den Temperaturbereich zwischen 20 °C und etwa 1500 °C weitgehende Einigkeit (s. Gibby [11], Van Craeynest et al. [12], Serizawa et al. [13] und Schmidt et al. [14]). Geringe Meinungsunterschiede bezüglich der Stöchiometrieabhängigkeit sind wohl auf Schwierigkeiten bei der genauen Bestimmung des Sauerstoffgehaltes zurückzuführen. Alle Beobachter messen jetzt bei einer festen Temperatur an stöchiometrischem Material die höchste Wärmeleitfähigkeit und stellen für Abweichungen nach der überwie nach der unterstöchiometrischen Seite Wärmeleitfähigkeitserniedrigungen fest.

An unterstöchiometrischem Material , $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2-x}$, mit 95 % Dichte läßt sich die Wärmeleitfähigkeit nach unseren Beobachtungen als Funktion von Temperatur und Sauerstoffgehalt (ausgedrückt in x) wie folgt darstellen

$$\lambda = \frac{1}{A(x) + B\Theta} (1+F(T)) \quad (3)$$

wobei $A(x) = 10.8 + 360 x$; $B = 0.0235$;

$$F(T) = -2,74 \cdot 10^{-8} T^2 + 2,50 \cdot 10^{-14} T^4.$$

Θ ist wie oben definiert, jedoch variiert T_0 mit der Stöchiometrie gemäß $T_0 = 2050 - 5000 x$.

Dieser Zusammenhang ist bis etwa 1700 °C experimentell gesichert. Die Extrapolation zu höheren Temperaturen erscheint in Analogie zu dem Vorgehen beim UO_2 gerechtfertigt. Leitfähigkeitsdaten, die nach (3) für verschiedene x-Werte errechnet wurden, sind in Tab. II und Fig. 2 dargestellt.

Im überstöchiometrischen Mischoxid, $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2+y}$, liegen einige vorläufige Ergebnisse zwischen Raumtemperatur und 850°C vor [15] die erkennen lassen, daß für $0 < y < 0.02$ der thermische Restwiderstand A stärker als im unterstöchiometrischen Bereich bei Abweichungen von der Stöchiometrie variiert, während der Temperaturkoeffizient B kleiner ist als im sauerstoffarmen Material.

Ungefähr gilt $A(y) = 10.8 + 675 y$; $B = 0.0145$. Über die das Hochtemperaturverhalten der Wärmeleitfähigkeit bestimmenden Parameter F(T) und T_0 und ihre Variation mit dem Sauerstoffgehalt können hier noch keine Aussagen gemacht werden.

1.2.3. Konzentrationsabhängigkeit

Fig. 3 zeigt den Einfluß des Plutoniumgehaltes auf die Wärmeleitfähigkeit der Mischoxide, der bei tiefen Temperaturen, d.h. unterhalb etwa 600°C, stark ausgeprägt ist und oberhalb rund 1000°C praktisch verschwindet. Die Konzentrationsabhängigkeit

der Leitfähigkeit läßt sich durch die Anwesenheit geordneter magnetischer Bereiche in uranreichen Proben und ihr allmähliches Verschwinden mit steigender Temperatur und steigendem Plutoniumgehalt deuten. Diese Beobachtungen stehen im Widerspruch zu einer Mitteilung von Gibby [16] sie wurden jedoch für Pu-Konzentrationen bis 30 % durch unabhängige Messungen in Fontenay-aux-Roses [17] bestätigt. Diskrepanzen bezüglich der Wärmeleitfähigkeit bei hohen Plutoniumkonzentrationen mögen mit Meßschwierigkeiten zusammenhängen, die durch Selbstbestrahlungseffekte hervorgerufen werden.

1.2.4. Abbrandsimulation

Schmitz et al. [18] kamen aufgrund von Experimenten an unbestrahlten Mischoxidproben mit simulierten Spaltproduktzusätzen zu dem Schluß, daß ein wesentlicher den Abbrandeinfluß auf die Wärmeleitfähigkeit bestimmender Faktor die durch Bildung dreiwertiger Metalle hervorgerufene Vergrößerung der Leerstellendichte im Sauerstoffteilgitter sein müßte. In der Tat wurde sowohl in Fontenay-aux-Roses [18] als auch im Institut für Transurane [19] gefunden, daß Simulationsproben mit einem gegebenen O/M-Verhältnis (wobei $M = U + Pu + SP$) oberhalb $800^{\circ}C$ annähernd die gleiche Wärmeleitfähigkeit haben wie reine Mischoxidkörper mit dem gleichen O/U+Pu-Verhältnis (Fig.4). Diese Beobachtungen wurden unlängst von Y.Yokouchi et al. [20] bestätigt. Die starke Herabsetzung der Wärmeleitfähigkeit unterhalb $800^{\circ}C$ gegenüber den nicht-dotierten Proben ist wohl ein Verunreinigungseffekt, der auf die Vermehrung der Phononenstreuungszentren durch Spaltprodukte zurückzuführen ist. Nach Schmitz et al. [18] errechnet sich das einem Abbrand τ (definiert durch das Verhältnis der gespaltenen zu den schweren Atomen) entsprechende O/M-Verhältnis allgemein aus

$$O/M = \frac{1}{1 - 0.33 \tau} \left[(1-\tau) \frac{O}{U+Pu} + 1,17 \tau \right] \quad (4)$$

wobei O/U+Pu das zum Abbrand gehörende Sauerstoff-zu-Schwermetallverhältnis ist. Diese Beziehung gilt allerdings nur für isolierte isotherme Bereiche und berücksichtigt nicht die im Temperaturgradienten auftretende Wanderung von Sauerstoff und Spaltprodukten.

Bei der Beurteilung des In-Pile-Verhaltens ist zu berücksichtigen, daß sich das anfängliche O/M-Verhältnis örtlich verändert [21] , und zwar wird bei ursprünglich unterstöchiometrischem Material während des Reaktorbetriebes die Stabmitte noch sauerstoffärmer, während die Randzone aufoxidiert. Dies hat sicher einen Einfluß auf das radiale Temperaturprofil. Nach Lallement und Marin [22] hat diese Verschiebung allerdings nur eine geringe Wirkung auf das Wärmeleitungsintegral über den Stabradius.

2. Die Wärmeleitfähigkeit von Hochleistungsbrennstoffen

2.1. Karbide

Publizierte Wärmeleitfähigkeitsdaten für unbestrahlte Uran- und Plutoniumkarbide wurden mehrfach zusammengestellt und kritisch analysiert [23] , [24] , [25] . Dabei ergab sich Übereinstimmung in folgenden Punkten :

- Die Wärmeleitfähigkeit von 95 % dichtem stöchiometrischem Urankarbid nimmt oberhalb 0°C mit steigender Temperatur zunächst ab, sie bleibt zwischen 600°C und 800°C annähernd konstant und steigt dann schwach wieder an. Die wahrscheinlichsten Werte liegen bei 200°C zwischen 0.20 und 0.24 W/cm deg, bei 900°C zwischen 0.18 und 0.20 W/cm deg, bei 1800°C zwischen 0.19 und 0.21 W/cm deg.
- Unterhalb etwa 1200°C nimmt die Wärmefähigkeit von Urankarbid zwischen $\text{UC}_{0.92}$ und $\text{UC}_{1.05}$ mit steigendem Kohlenstoffgehalt zu. Bei höheren Temperaturen bewirkt eine Erhöhung der Kohlenstoffkonzentration, zumindest im überstöchiometrischen Bereich, eine Abnahme der Wärmeleitfähigkeit.
- Sauerstoffzugaben setzen die Wärmeleitfähigkeit von Urankarbid in der in Fig. 5 dargestellten Weise herab (vgl. [23 und 26].)

- Wird im UC Uran teilweise durch Plutonium ersetzt, so sinkt die Wärmeleitfähigkeit. Die wahrscheinlichsten Werte für 95 % dichtes $U_{0.8}Pu_{0.2}C_{1.0}$ liegen bei $200^{\circ}C$ zwischen 0.14 und 0.16 W/cm deg, bei $900^{\circ}C$ zwischen 0.145 und 0.165 W/cm deg, bei $1800^{\circ}C$ zwischen 0.17 und 0.19 W/cm deg.

2.2. Nitride

Die Wärmeleitfähigkeit von Urannitrid variiert offenbar stärker mit der Temperatur als die des Urankarbids. Bei hohen Temperaturen leitet Urannitrid eindeutig besser [25]. Wie im Falle der Carbide findet man auch bei Mischnitriden niedrigere Leitfähigkeiten als im reinen Urannitrid. Oberhalb ca. $1000^{\circ}C$ leiten $U_{0.8}Pu_{0.2}C$ und $U_{0.8}Pu_{0.2}N$ etwa gleich gut [27].

3. Zusammenfassung

Ziel aller Wärmeleitungsuntersuchungen an Kernbrennstoffen ist es, die Berechnung des Temperaturprofils in einem Brennstab und speziell die Voraussage der unter gegebenen Einsatzbedingungen zu erwartenden Zentraltemperatur zu ermöglichen. Wie bereits angedeutet, sind derartige Rechnungen zur Zeit noch recht ungenau. Konfrontiert man die Aufgabenstellung, Brennstofftemperaturen bei hohen Stabileistungen bis zu hohen Abbränden zu berechnen, mit dem derzeitigen Stand unserer Kenntnisse, so erkennt man Art und Umfang der noch zu bearbeitenden Probleme. Hierbei kann die Wichtigkeit der einzelnen Effekte, also eine Rangfolge der Prioritäten, durch Parameterstudien ermittelt werden.

Die dringlichsten Aufgaben, die sich auf diesem Gebiet noch stellen sind folgende :

- a. Die Messung der Wärmeleitfähigkeit von Urandioxid und von Uran-Plutonium-Mischoxiden unterschiedlicher Stöchiometrie bis zu höchsten Temperaturen, um die Gültigkeit der Beziehungen (1) und (3) auch für den experimentell noch nicht erfaßten Bereich zu prüfen,

- b. Messungen zur Ermittlung des Einflusses von Spaltprodukten auf die Wärmeleitfähigkeit an simulierten Abbrandproben bis zu höchsten Temperaturen, die durch Testmessungen an wirklich abgebrannten Brennstoffprüflingen ergänzt werden sollten,
- c. eine systematische Untersuchung der Wärmeleitfähigkeit der Mischkarbide und Mischnitride in Abhängigkeit von ihrer Zusammensetzung (C/M-, N/M-, O-Gehalt und Spaltproduktkonzentration) bis zu höchsten Temperaturen,
- d. In-Pile-Tests zur Prüfung der über Einzelmessungen und Modellrechnungen gewonnenen Ergebnisse.

Referenzen

- [1] Thermal Conductivity of Uranium Dioxide, IAEA Technical Report Series No. 52, Wien 1966.
- [2] J.C. Christensen, Heat Transfer in Nearly Stoichiometric Uranium Dioxide, Trans. ANS 7 (1964) 128 (WCAP-2531)
- [3] J.P. Stora, Conductibilité Thermique de l'Oxyde d'Uranium Frittée dans les Conditions d'Utilisation en Pile, CEA-R 2586 (1964)
- [4] A.D. Feith, The Thermal Conductivity of UO_2 to $2500^{\circ}C$, J.Nucl.Mater. 16 (1965) 231
- [5] J.L. Bates, Thermal Conductivity of UO_2 improves at high Temperatures, Nucleonics 19 (1961) 83
- [6] J.B. Conway und A.D. Feith, An Interim Report on a Round Robin Experimental Program to Measure the Thermal Conductivity of Stoichiometric Uranium Dioxide, GEMP - 715 (1969)
- [7] H.E. Schmidt, Some Considerations on the Thermal Conductivity of Stoichiometric Uranium Dioxide at High Temperatures, J.Nucl. Mater. 39 (1971) 234
- [8] G. Karsten, H. Kämpf und A. Gerken, Theoretical and Computer Analysis on the Behaviour of Fast Reactor Fuel Pins and Related Parts of the Core under Optimal Conditions, KfK-878 (1968)
- [9] J.P. Moore und D.L. McElroy, Thermal Conductivity of Nearly Stoichiometric Single Crystal and Polycrystalline UO_2 , J.Am.Cer.Soc. 54(1971) 40
- [10] H.E. Schmidt, unveröffentlicht
- [11] R.L. Gibby, The effect of Oxygen Stoichiometry on the Thermal Diffusivity and Conductivity of $(U_{0.75}Pu_{0.25})O_{2-x}$, BNWL-927 (1969)

- [12] J.C. Van Craeynest und J.C. Weilbacher, Etude de la Conductibilité Thermique des Oxydes Mixtes d'Uranium et de Plutonium, J.Nucl.Mater. 26(1968)132
- [13] M.Serizawa et al., Thermal Diffusivity and Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Dioxide, J.Nucl.Mater. 34 (1970)224
- [14] H.E. Schmidt und F. Caligara, Wärmeleitfähigkeit und Wärmeleitungsintegrale von Uran-Plutonium Mischoxiden Reaktortagung Berlin, 20.-22.4.1970
- [15] H.E. Schmidt, Thermal Conductivity, im III. Halbjahresbericht, Europäisches Institut für Transurane, Karlsruhe 1967
- [16] R.L. Gibby, The Effect of Plutonium Content on the Thermal Conductivity of (U,Pu)O₂ Solid Solutions, J.Nucl.Mater. 38 (1971) 163
- [17] J.C. Van Craeynest, pers. Mitteilung
- [18] F.Schmitz, G.Dean, M.Housseau, F.De Keroulas und J.C.Van Craeynest, Influence des Produits de Fission sur les Propriétés des Oxydes Mixtes (UPu)O_{2-x}, International Meeting on Fast Reactor Fuel Elements, 28.-30.9.1970, Karlsruhe
- [19] H.E. Schmidt, im X.Halbjahresbericht, Europ.Institut für Transurane, Karlsruhe 1971
- [20] Y.Yokouchi, S. Masaguma und K. Matsumoto, Thermal Diffusivity Measurements of PuO₂ - UO₂ Fuel Simulated to Pellets Irradiated at High Burn-Up, PNCPU-Report 059 (1970)
- [21] P.O.Perron, Oxygen Redistribution in Uranium Dioxide Fuels, J.Nucl.Mater. 27 (1968) 237
- [22] R. Lallement und P. Marin, pers. Mitteilung
- [23] J.L.Bates, Thermal Conductivity and Electrical Resistivity of Uranium Oxycarbide, BNWL-989 (1969)

- [24] H.E. Schmidt in Karbidische Brennstoffe für Schnelle Brutreaktoren, Wärmeleitfähigkeit, in KfK-1111 (1969)
- [25] W. Fulkerson et al., Electrical and Thermal Properties of NaCl-structured Metallic Actinide Compounds, Plutonium 1970, 5.-9.10-1970, Santa Fe, N.M.
- [26] B.A. Hayes und M.A. DeCrescente, Thermal Conductivity and Electrical Resistivity of Uranium Monocarbide, PWAC-480 (1965)
- [27] C.A. Alexander, J.S. Ogden, W.M. Pardue, Thermophysical Properties of (U,Pu)N, Plutonium 1970, 5.9.10.1970, Santa Fe, N.M.

Temperatur °C	Wärmeleitfähigkeit UO ₂ , 98% th. Dichte			[W/cm deg] 95 % th.D.	
	(a)	(b)	(c)	(d)	(e)
600.	0.0405	0.04133	0.04380	0.04092	0.03989
700.	0.0375	0.03776	0.03951	0.03692	0.03642
800.	0.0350	0.03477	0.03609	0.03372	0.03353
900.	0.0325	0.03225	0.03332	0.03113	0.03111
1000.	0.0300	0.03012	0.03106	0.02902	0.02908
1100.	0.0282	0.02833	0.02921	0.02730	0.02737
1200.	0.0264	0.02684	0.02771	0.02589	0.02595
1300.	0.0250	0.02561	0.02650	0.02476	0.02479
1400.	0.0240	0.02463	0.02554	0.02386	0.02385
1500.	0.0234	0.02388	0.02480	0.02317	0.02312
1600.	0.0227	0.02335	0.02427	0.02267	0.02259
1700.	0.0220	0.02303	0.02391	0.02234	0.02225
1800.	0.0222	0.02291	0.02373	0.02217	0.02210
1900.	0.0226	0.02300	0.02371	0.02215	0.02212
2000.	0.0234	0.02328	0.02384	0.02227	0.02232
2100.	0.0247	0.02424	0.02412	0.02253	0.02315
2200.	0.0265	0.02590	0.02454	0.02292	0.02463
2300.	0.0286	0.02784	0.02510	0.02345	0.02636
2400.	0.0304	0.03009	0.02580	0.02410	0.02834
2500.	0.0325	0.03268	0.02663	0.02488	0.03061

Tab. I Wärmeleitfähigkeit als Funktion der Temperatur.

Stöchiometrisches UO₂; 98% th.D.

(a) Mittelwerte der Round-Robin Messungen

(b) berechnet nach (1)

(c) berechnet nach (2)

Stöchiometrisches UO₂; 95% th.D.

(d) berechnet nach (1) mit Loeb-Korrektur

Stöchiometrisches U_{0.8}Pu_{0.2}O₂; 95% th.D.

(e) berechnet nach (2)

Temperatur [°C]	Wärmeleitfähigkeit [W/cm deg]					
	x = 0.00	x = 0.01	x = 0.02	x = 0.04	x = 0.055	x = 0.07
100	0.07602	0.05968	0.04912	0.03628	0.03034	0.02606
200	0.06444	0.05230	0.04400	0.03340	0.02829	0.02454
300	0.05589	0.04651	0.03982	0.03093	0.02650	0.02317
400	0.04931	0.04185	0.03635	0.02879	0.02490	0.02194
500	0.04411	0.03803	0.03343	0.02692	0.02348	0.02083
600	0.03989	0.03485	0.03094	0.02527	0.02222	0.01982
700	0.03642	0.03217	0.02881	0.02383	0.02109	0.01892
800	0.03353	0.02990	0.02697	0.02256	0.02009	0.01811
900	0.03111	0.02796	0.02539	0.02145	0.01921	0.01739
1000	0.02908	0.02632	0.02403	0.02048	0.01843	0.01676
1100	0.02737	0.02493	0.02288	0.01965	0.01777	0.01622
1200	0.02595	0.02376	0.02191	0.01895	0.01721	0.01576
1300	0.02479	0.02280	0.02111	0.01838	0.01676	0.01540
1400	0.02385	0.02203	0.02047	0.01794	0.01641	0.01512
1500	0.02312	0.02144	0.01999	0.01761	0.01617	0.01494
1600	0.02259	0.02103	0.01967	0.01741	0.01603	0.01486
1700	0.02225	0.02078	0.01949	0.01733	0.01601	0.01487
1800	0.02210	0.02069	0.01946	0.01738	0.01623	0.01545
1900	0.02212	0.02077	0.01958	0.01786	0.01696	0.01615
2000	0.02232	0.02101	0.02021	0.01878	0.01784	0.01699
2100	0.02315	0.02223	0.02139	0.01988	0.01888	0.01797
2200	0.02563	0.02366	0.02276	0.02115	0.02009	0.01913
2300	0.02636	0.02532	0.02435	0.02263	0.02149	0.02046
2400	0.02834	0.02722	0.02619	0.02434	0.02311	0.02200
2500	0.03061	0.02940	0.02828	0.02628	0.02496	0.02376
2600	0.03318	0.03187	0.03066	0.02849	0.02706	0.02576
2700	0.03609	0.03467	0.03335	0.03099	0.02943	0.02802
2800	0.03936	0.03781	0.03637	0.03380	0.03210	0.03057

Tabelle II. Die Wärmeleitfähigkeit von $U_{0.8}Pu_{0.2}O_{2-x}$ mit 95% der theoretischen Dichte bei verschiedenen Sauerstoffgehalten (ausgedrückt in x) ; gerechnet nach (3)

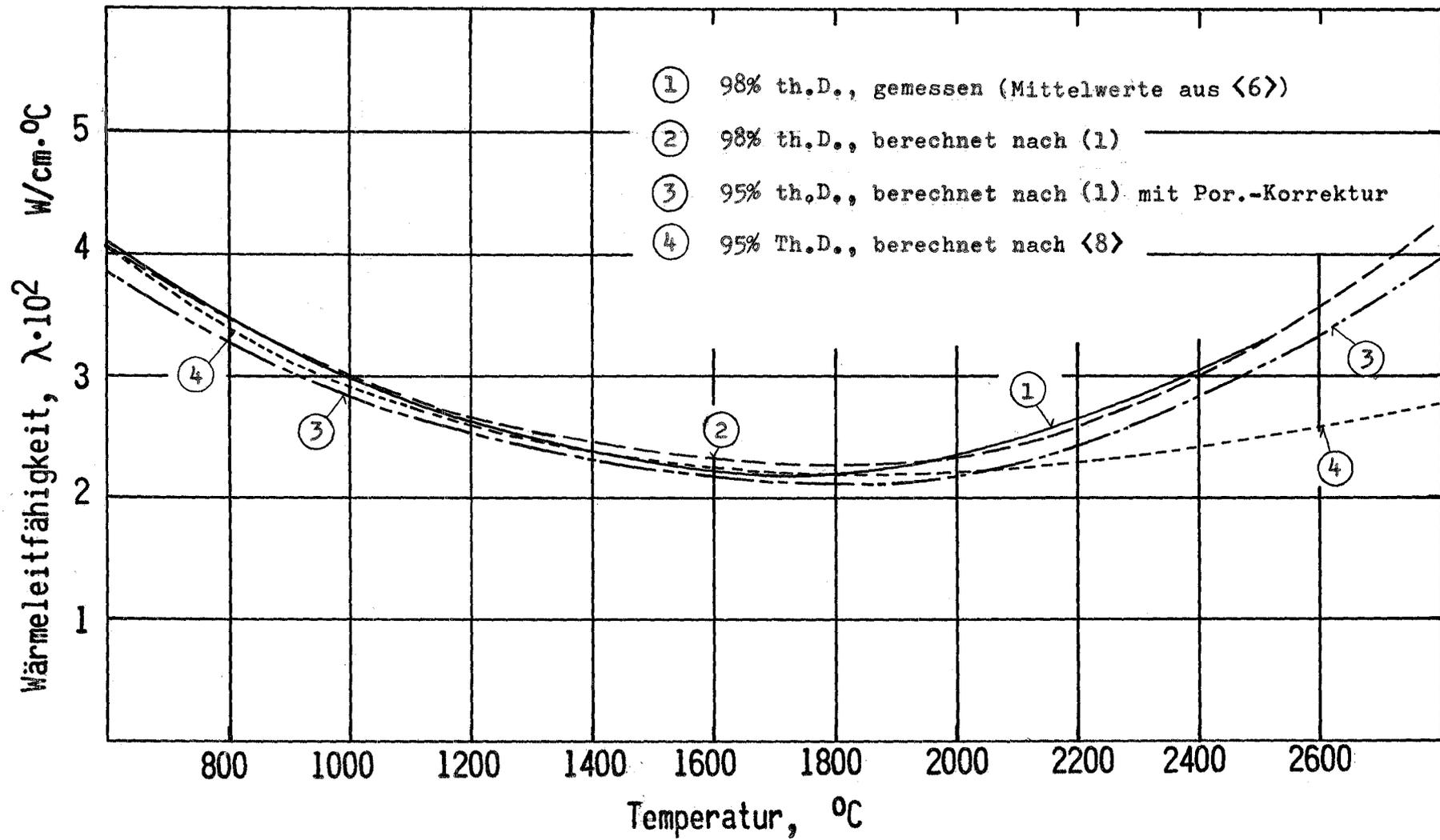
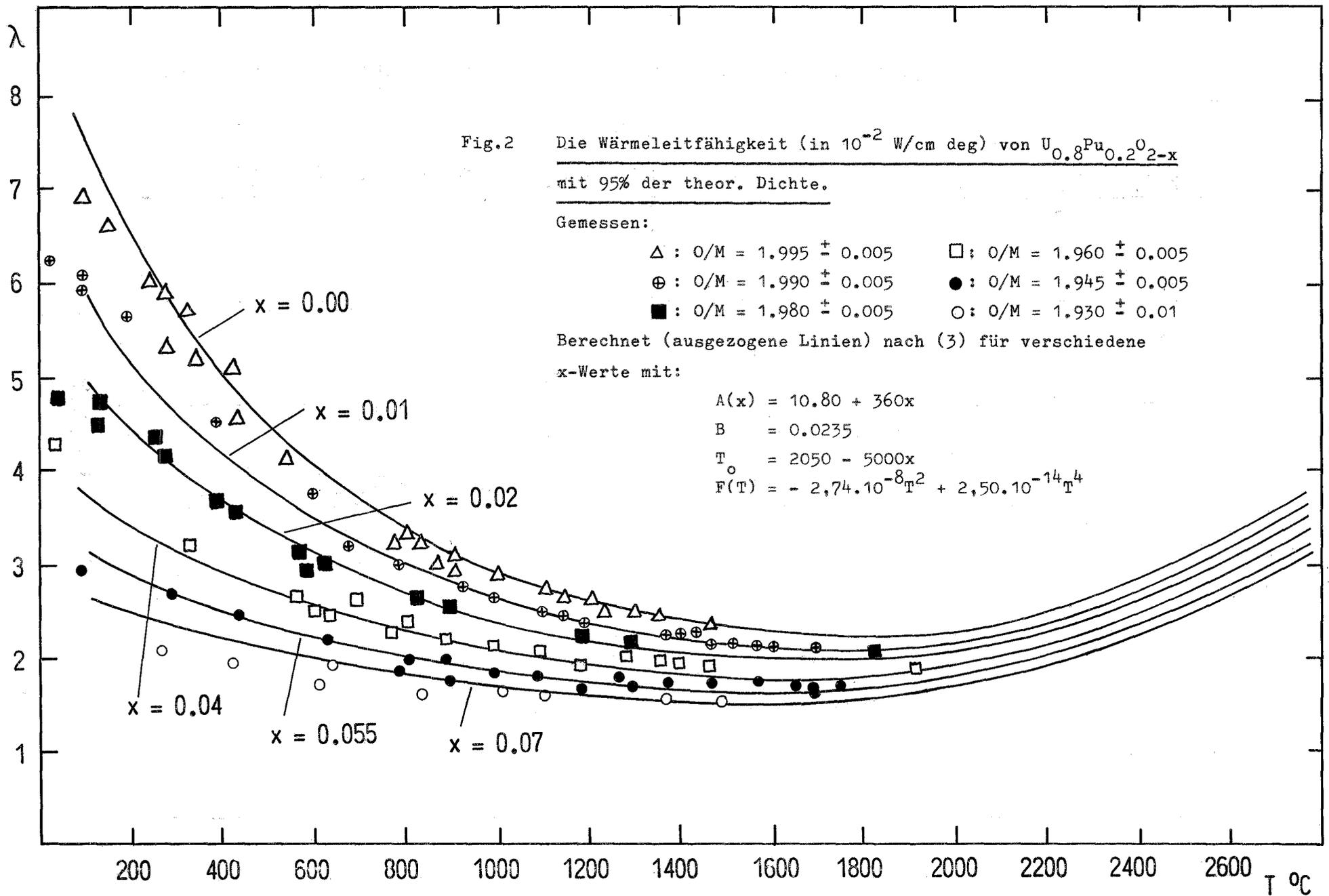


Fig. 1 Die Wärmeleitfähigkeit von stöchiometrischem Uran-Dioxid.



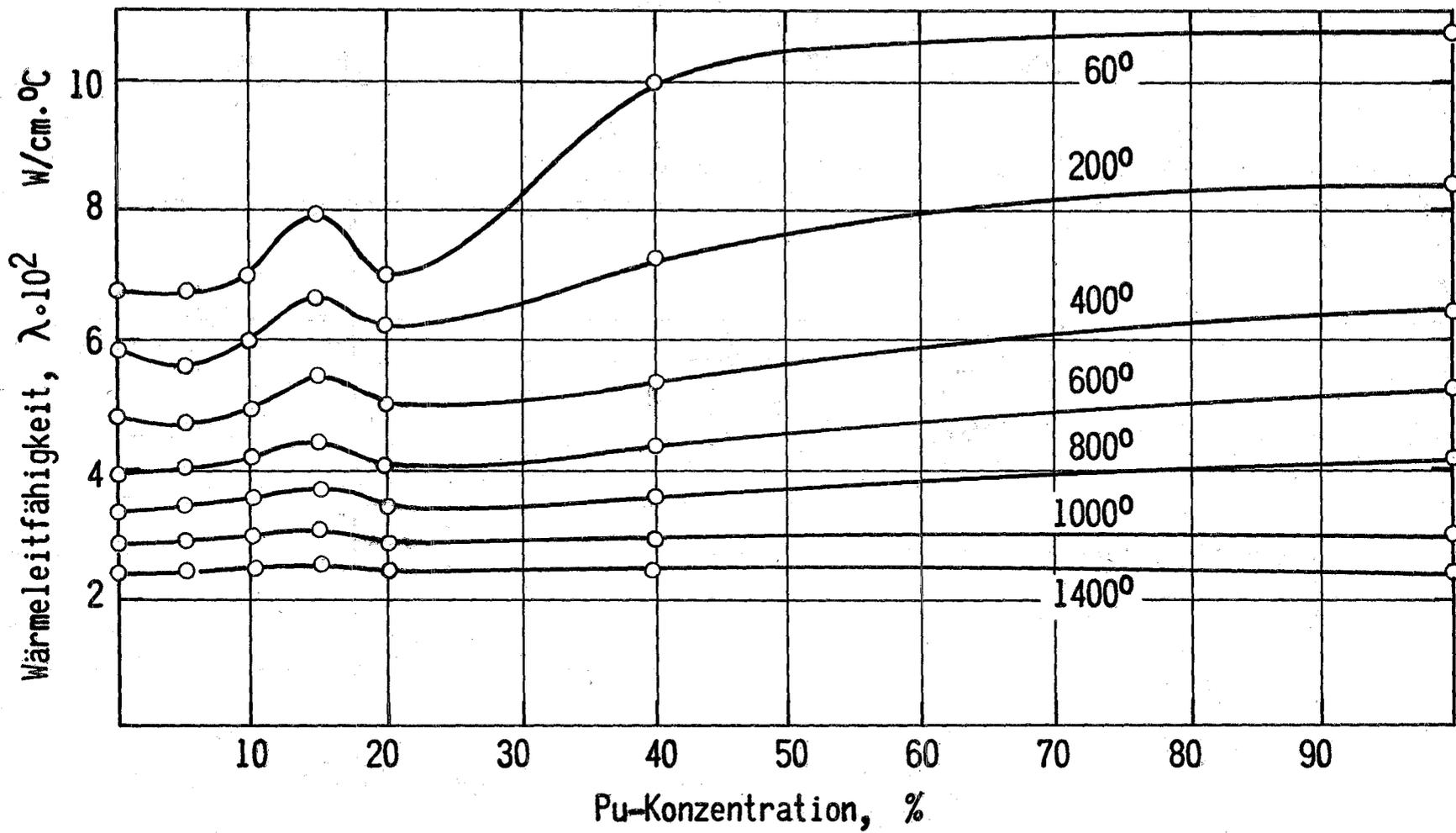


Fig. 3 Die Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit der stöchiometrischen Mischoxide von der Plutoniumkonzentration

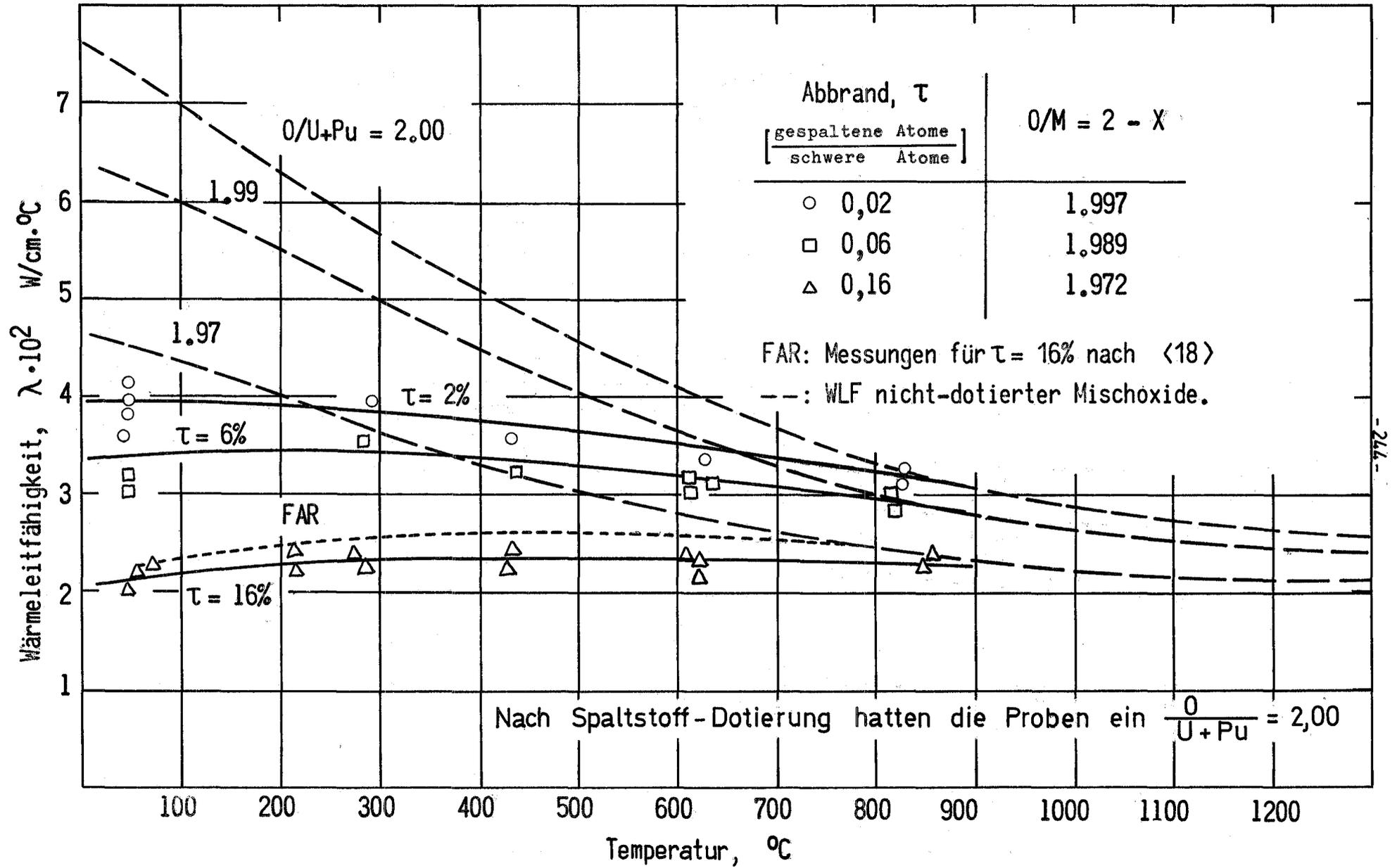


Fig.4 Die Wärmeleitfähigkeit von Mischoxidproben (20% Pu, 95% th.D.) mit Spaltstoffzusätzen verschiedener Konzentration.

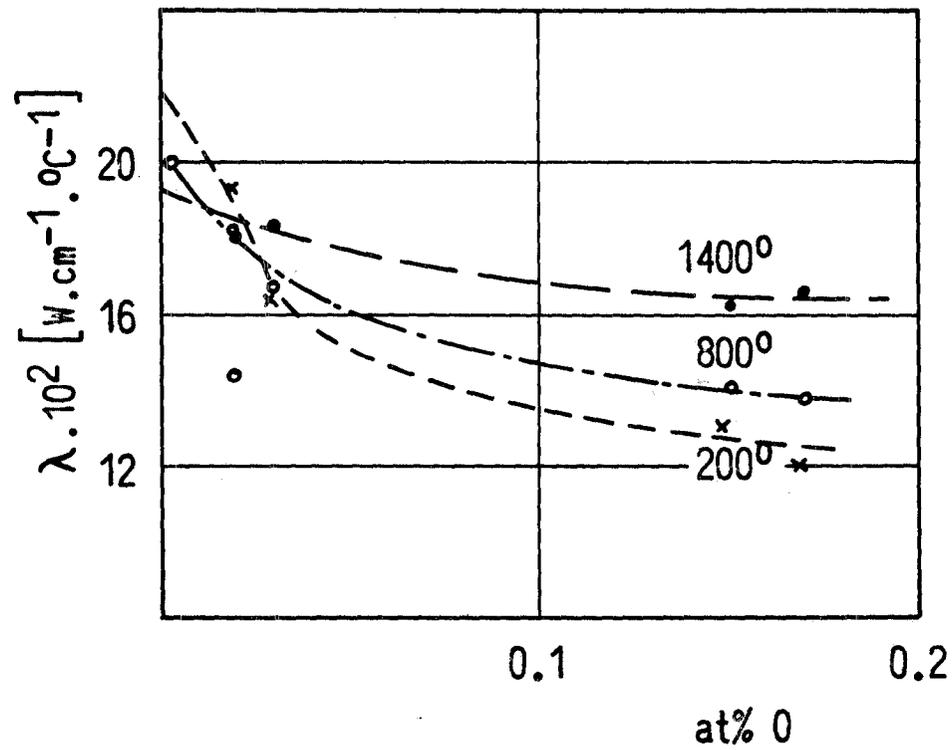


Fig.5 EINFLUSS DES SAUERSTOFFGEHALTES AUF DIE WÄRMELEITFÄHIGKEIT VON UC NACH BATES <23> UND HAYES et al. <26>

XXV. Zur Abbrandabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit
von UO_2 und $(\text{U,Pu})\text{O}_2$

von
B. Schulz

Inhalt:

1. Allgemeines
2. Temperaturbereich $600^\circ\text{C} < T < 1300^\circ\text{C}$
 - 2.1 Experimentelle Ergebnisse
 - 2.2 Schlußfolgerungen
3. Temperaturbereich $1300^\circ\text{C} < T < 2700^\circ\text{C}$
4. Zusammenfassung

1. Allgemeines

Die Kenntnis der Wärmeleitfähigkeit von UO_2 und $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ unter Bestrahlung bedeutet die Beantwortung folgender Fragen:

- a. Wie werden durch Neutronenbestrahlung die Mechanismen der Wärmeübertragung beeinflusst?
- b. Welche Folgen haben die unter Bestrahlung auftretenden Gefügeänderungen?
- c. Wie verändern die nicht im Gitter gelösten Spaltprodukte die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes?
- d. Wie verändern die im Gitter gelösten Spaltprodukte die Wärmeleitfähigkeit?

2. Temperaturbereich $600^\circ\text{C} < T < 1300^\circ\text{C}$

2.1 Experimentelle Ergebnisse

Die strahlungsinduzierten Gitterdefekte, die zu einer Erniedrigung der Wärmeleitfähigkeit bei Temperaturen unter 400°C führen, heilen zwischen 400 und ca. 800°C aus [1]. Bis zu Abbränden von 3000 MWd/t ist ein Einfluß des Abbrandes auf die Wärmeleitfähigkeit nicht meßbar [2]. In [3] wurden Simulationsexperimente angestellt. Spaltprodukte, die nach ihrer Menge einem Abbrand von $150\,000 \text{ MWd/t}$ entsprachen, wurden $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ beigegeben. Die Proben waren nach einer Sinterung bei 1750°C vierphasig. Die Matrix bestand aus festen Lösungen U-, Pu-, Seltene Erd-, Zr-, Y-Oxiden. Eine graue Phase bestand im wesentlichen aus Barium und Zirkon. Ferner waren intermetallische Phasen wie Mo, Ru, Re und Pd und eine weitere metallische Phase anwesend.

Messungen bis zu Temperaturen um 850°C ergaben, daß bei einem festen O/U+Pu-Verhältnis die Temperaturleitfähigkeit von Simulationsproben durch die Anwesenheit der festen Spaltprodukte

erniedrigt wurde [3]. Oberhalb etwa 800°C leiten Abbrandproben mit einem vorgegebenen O/U+Pu+Sp-Verhältnis etwa so gut wie reine Mischoxide, bei denen das Verhältnis O/U+Pu den gleichen Wert hat. Diese Beobachtungen wurden in [4] bestätigt. Dabei bedeutet Sp Spaltproduktatome. Es sei jedoch gesagt, daß die Stöchiometrieberechnungen in [3] wesentlich größere Verschiebungen im O/M-Verhältnis ergeben, als in [8]. Z.B. entspricht in [8] einem Ausgangswert O/U+Pu = 1,90 ein Endwert von O/U+Pu+Sp = 1,947 nach 10 % Abbrand, dagegen entspricht derselbe Endwert in [3] einem Ausgangswert O/U + Pu = 1,766.

2.2 Schlußfolgerungen

Auf Grund der experimentellen Daten scheint es gerechtfertigt, anzunehmen, daß die Neutronenbestrahlung im Temperaturbereich zwischen $600^{\circ}\text{C} < T < 1300^{\circ}\text{C}$ keinen Einfluß auf die Wärmeleitfähigkeit hat. Gefügeänderungen (hier sind nur Veränderungen des UO_2 -Gefüges gemeint) treten im Brennstoff bei diesen Temperaturen nicht ein. Die im Gitter gelösten Spaltprodukte sind im wesentlichen Oxide der Seltenen Erden, die sehr schlechte Leiter sind ($\lambda_{\text{CeO}_2} = 1,6 \cdot 10^{-2} \text{ W } ^{\circ}\text{C}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ bei 1000°C [5]). Messungen an festen Lösungen aus ThO_2 - CeO_2 (12 Mol.% CeO_2) ergaben eine Abnahme der Wärmeleitfähigkeit von $0,13 \text{ W } ^{\circ}\text{C}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ für reines ThO_2 auf $0,040 \text{ W } (^{\circ}\text{C})^{-1} \text{ cm}^{-1}$ für ThO_2 - 12 Mol.% CeO_2 bei Raumtemperatur [6]. Dieser Effekt wird allerdings mit steigender Temperatur geringer (Messungen an ThO_2 - UO_2 -Mischungen von Raumtemperatur bis 500°C [6]). Die nicht im Gitter gelösten Spaltprodukte sind im wesentlichen intermetallische Phasen hoher Leitfähigkeit (Größenordnung $\sim 0,4 \text{ W cm}^{-1} ^{\circ}\text{C}^{-1}$ [5]). Behandelt man den Brennstoff als Cermet [Matrix (U,Pu,Seltene Erden) O_2 mit intermetallischen Phasen als eingelagerte Phase], so ist eine Verbesserung der Leitfähigkeit zu erwarten [7]; d.h. der Einfluß der gelösten und nichtgelösten Spaltprodukte auf die Wärmeleitfähigkeit ist gegenläufig, was die Ergebnisse aus den Simulationsversuchen (s.o.) erklären könnten.

3. Temperaturbereich $1300^{\circ}\text{C} < T < 2700^{\circ}\text{C}$

Über den Einfluß der Bestrahlung auf die Wärmeleitfähigkeit bei höheren Temperaturen kann nicht viel ausgesagt werden, weil die wirksamen Mechanismen nicht bekannt sind. Sicher ist nur, daß die thermisch erzeugten Gitterdefekte oberhalb ca. 1200°C , die strahlungsinduzierten überwiegen [9]. Das gleiche gilt für den Einfluß der Gefügeänderungen. Experimentell liegen nur Ergebnisse bis 3000 MWd/t vor [2], die auch bei höheren Temperaturen keinen Einfluß des Abbrandes auf die Wärmeleitfähigkeit erkennen lassen. Möglicherweise kompensieren sich auch hier der Einfluß von gelösten und nichtgelösten Spaltprodukten. Da jedoch weder in-pile Messungen an UO_2 oder $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ bei hohen Temperaturen und hohen Abbränden vorliegen, noch Messungen der Wärmeleitfähigkeit an festen Lösungen von Oxiden bei hohen Temperaturen durchgeführt wurden, kann eine Annahme über die Abbrandabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit bei hohen Temperaturen nicht gemacht werden.

4. Zusammenfassung

Auf der Basis der Simulationsexperimente in [3] und [4] und mit den Stöchiometrieberechnungen in [3] kann eine Abbrandabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit durch Stöchiometriever-schiebungen bis 1300°C angenommen werden. Oberhalb von 1300°C kann eine numerische Abschätzung der Änderung der Wärmeleitfähigkeit mit dem Abbrand mangels experimenteller Ergebnisse nicht vorgenommen werden.

Hinsichtlich der Karbide und Nitride liegen keine experimentellen Ergebnisse vor.

Literatur

- [1] D.J. Clough, AERE-R- 4690 (1964)
- [2] J.P. Stora et al., EURAEC-1095 (1964)
- [3] F. Schmitz et al. International Meeting on Fast Reactor Fuel Elements, Sept 28 - 30, 1970, Karlsruhe
- [4] H.E. Schmidt, F. Schmitz, J.C. van Craeynest, im Druck
- [5] Y.S. Toulouikan, Thermophysical Properties of High Temperatures, New York, 1967
- [6] M. Murabayashi, J. Nucl. Science and Technology, 7 (1970) 559
- [7] G. Ondracek, B. Schulz, F. Thümmler, KFK 1282 (1970)
- [8] H. Holleck, H. Kleykamp, KFK 1181 (1970)
- [9] W. Dienst, KFK 1215 (1970)

XXVI. Thermische Ausdehnung oxidischer Brennstoffe

von
G. Ondracek, H. Kämpf

Inhalt:

1. Einleitung
2. Die Temperatur-, Konzentrations- und Stöchiometrie-abhängigkeit des integralen thermischen Ausdehnungs-koeffizienten von UO_2 , PuO_2 und $(\text{U,Pu})\text{O}_2$
3. "Thermischer Ausdehnungskoeffizient eines Brenn-stabes" für spezielle Bedingungen
4. Schlußfolgerungen

1. Einleitung

Falls ein freier Körper von einer homogenen Temperatur T_1 auf eine andere homogene Temperatur T_2 gebracht wird, treten spannungsfreie Volumen- und damit lineare Dimensionsänderungen auf. Im Falle isotroper Körper erfolgt die Ausdehnung isotrop.

Der differentielle lineare thermische Ausdehnungskoeffizient α_D ist wie folgt definiert

$$\alpha_D (T) = \frac{1}{\ell_0} \frac{d\ell}{dT} \quad (1)$$

Dabei ist $d\ell$ die durch die Temperaturänderung dT bewirkte Längenänderung, bezogen auf eine feste Bezugslänge ℓ_0 bei der Temperatur T_0 , die häufig 0°C ist.

Durch Integration von (1) zwischen T_0 und T erhält man die zu T gehörige Länge $\ell (T)$ wie folgt

$$\ell (T) = \ell_0 \left(1 + \int_{T_0}^T \alpha_D dT \right) \quad (2)$$

Der integrale lineare thermische Ausdehnungskoeffizient α ist wie folgt definiert

$$\alpha (T) = \frac{1}{T - T_0} \int_{T_0}^T \alpha_D dT \quad (3)$$

Während der differentielle Ausdehnungskoeffizient α_D nur von der lokalen Temperatur abhängt, hängt der integrale Ausdehnungskoeffizient zusätzlich von der Bezugstemperatur T_0 ab. Wenn T_0 nicht weiter angegeben ist, wird α immer auf 273°K bezogen.

Zu beachten ist, daß die thermischen Ausdehnungskoeffizienten auch vom Druck abhängen. Diese Abhängigkeit ist allerdings bei festen Körpern in relativ engen Druckbereichen i.a. zu vernachlässigen.

Die angegebenen Definitionen beziehen sich auf homogene Temperaturänderungen freier Körper, die spannungsfreie Volumenänderungen bewirken. In diesem Fall hat die Porosität keinen Einfluß auf die thermische Ausdehnung. Wenn dagegen inhomogene Temperaturänderungen auftreten bzw. wenn die Ausdehnung nicht frei erfolgt, ist die thermische Ausdehnung porositätsabhängig.

Die Messung des thermischen Ausdehnungskoeffizienten erfolgt entweder dilatometrisch oder röntgenographisch über Gitterparameterbestimmung in Hochtemperaturröntgenkammern.

2. Die Temperatur-, Konzentrations- und Stöchiometrieabhängigkeit des integralen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von UO_2 , PuO_2 und $(U,Pu)O_2$

Die thermische Ausdehnung von Uranoxid und Plutoniumdioxid ist durch zwei nicht zu erwartende Anomalien gekennzeichnet. Einerseits treten Anomalien in bestimmten Temperaturbereichen auf, andererseits sind die Ausdehnungskoeffizienten stöchiometrieabhängig. Abb. 1 zeigt diese Anomalie für UO_2 [1, 2]. Weiterhin bilden die in Abb. 1 dargestellten Werte die einzigen zur Zeit verfügbaren Daten für den Hochtemperaturbereich oberhalb ca. $1300^\circ C$.

Es kann erwartet werden, daß sich dieses anomale Ausdehnungsverhalten auf UO_2 - PuO_2 -Mischkristalle überträgt. Tatsächlich wurde dies auch experimentell an $(U_{0,8}Pu_{0,2})O_2$ -Mischkristallen gefunden, allerdings für einen wesentlich niedrigeren Temperaturbereich ($400 - 800^\circ C$) [3].

Die Änderung der thermischen Ausdehnung durch Stöchiometrieverschiebung ist für Uranoxid aus dem Unterschied der empirischen Gleichungen (4) und (5) in Tab. 1 klar ersichtlich [4]. Bei Plutoniumdioxid ergeben sich Unterschiede im Ausdehnungsverhalten, wenn das Material auf verschiedene Weise dargestellt wurde. Gleichung (12) in Tab. 1 gilt beispielsweise für Plutoniumdioxid, das über ein Oxalat, Gleichung (13) in Tab. 1 für ein solches, das über ein Hydroxid gewonnen wurde [4]. Vermutlich ist dies auf unterschiedliche Stöchiometrie zurückzuführen.

Erwartungsgemäß überträgt sich der Stöchiometrieinfluß auf die UO_2 - PuO_2 -Mischkristalle. Für Proben mit $UO_2 + 20 \text{ Gew.-% } PuO_2$ wurde für $1500^\circ C$ ein Zusammenhang zwischen dem linearen integralen thermischen Ausdehnungskoeffizienten und dem Stöchiometrieverhältnis z (d.h. Sauerstoff zu Metallverhältnis) wie folgt angegeben [5]:

$$\alpha (1500^\circ C) = (125,9 - 57,3 \cdot z) \cdot 10^{-6} \frac{1}{^\circ C} \quad (14)$$

Diese Beziehung soll auch für PuO_2 gültig sein. Sie stimmt allerdings nicht überein mit Werten, die sich aus Tab. 1 ergeben.

Bei der Ermittlung von empirischen Gleichungen der Temperaturabhängigkeit des thermischen Ausdehnungskoeffizienten ist man insofern in einer günstigen Lage, als die Dichte der Proben keinen Einfluß hat. Man kann daher die Meßergebnisse von Proben verschiedener Porosität unkorrigiert zur Aufstellung solcher Gleichungen verwenden. Die umfangreichste Zusammenstellung solcher empirischen Gleichungen enthält Tab. 1 [4] (Allerdings gelten diese Gleichungen nur bis ca. 1300°C.) Die mit ihnen errechenbaren thermischen Ausdehnungen ergeben Werte, die hinreichend auch mit von anderen Autoren veröffentlichten Meßdaten an Urandioxid [6 - 10] und Plutoniumdioxid [1, 11] übereinstimmen. Ein mathematisch erfaßbarer Zusammenhang mit der Konzentration ergibt sich aus diesen Daten allerdings bislang nicht.

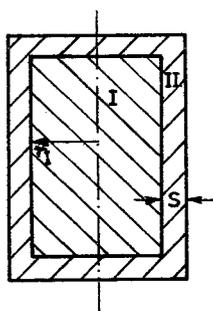
3. "Thermischer Ausdehnungskoeffizient eines Brennstabes" für spezielle Bedingungen

Die Berechnung der thermischen Ausdehnung von umhüllten Brennstoffen, d.h. insbesondere von Brennstäben, in denen kein Spalt zwischen Brennstoff und Hülle besteht, ist ein relativ schwieriges Problem. Die allgemeine Behandlung ist Aufgabe der Brennstab-Modelltheorie.

Für die folgenden speziellen Voraussetzungen soll ein "thermischer Ausdehnungskoeffizient eines vollständig umhüllten Brennstabes" ermittelt werden:

- a) Ein Brennstoffvollzylinder ist
- b) vollständig umhüllt, d.h. weder ein radialer Spalt noch ein axiales Plenum ist vorhanden.
- c) Die Hülle ist dünnwandig.
- d) Isotherme Temperaturänderungen
- e) Rein elastisches Verhalten.

Folgende Anordnung liegt dann im Längsschnitt vor:



- I = Brennstoff
- II = Hülle
- r_I = Brennstoffradius =
Hüllinnenradius
- S = Hülldicke

Wegen der vollständigen Umhüllung, insbesondere wegen des nicht vorhandenen axialen Plenums kann bei isothermen Volumenänderungen keine axiale Relativverschiebung zwischen Brennstoff und Hülle stattfinden. Das bedeutet, daß keine Reibung in der Grenzfläche auftritt, d.h. es liegt ein reiner Kontaktdruck vor. Zusammen mit der isothermen Volumenänderung bedeutet das, daß die axiale Dehnung ϵ_Z im Brennstoff über den Querschnitt konstant ist. Wegen des Vorhandenseins eines Vollzylinders folgt aus elastizitätstheoretischen Überlegungen, daß im Brennstoff ein hydrostatischer Druckzustand vorliegen muß.

$$\sigma_r^I = \sigma_\theta^I = \sigma_Z^I = -p \quad (15)$$

wobei

$\sigma_r^I, \sigma_\theta^I, \sigma_Z^I$ = radiale, tangentiale, axiale Spannungskomponente im Brennstoff

p = Kontaktdruck

Da die Hülle als dünnwandig vorausgesetzt wurde, ergeben sich in bekannter Weise folgende Spannungen in der Hülle:

$$\sigma_\theta^{II} = \frac{p \cdot r_I}{s} \quad \sigma_Z^{II} = \frac{p \cdot r_{II}}{2 \cdot s} = \frac{\sigma_\theta^{II}}{2} \quad \sigma_r^{II} = 0 \quad (16)$$

Durch Einsetzen dieser Spannungen in das dreiaxiale Hookesche Gesetz erhält man folgende Gleichungen für die axialen und tangentialen elastischen Dehnungen:

$$\frac{\epsilon_Z^I}{\epsilon_Z^{II}} = -\frac{E_{II}}{E_I} \cdot \frac{1 - 2\mu_I}{1 - 2\mu_{II}} \cdot \frac{2s}{r_{II}} \approx -\frac{E_{II}}{E_I} \frac{2s}{r_I} \quad (17)$$

(wegen $\mu_I \approx \mu_{II} \approx 0,3$)

und

$$\frac{\epsilon_\theta^I}{\epsilon_\theta^{II}} = -\frac{E_{II}}{E_I} \cdot \frac{1 - 2\mu_I}{2 - \mu_{II}} \cdot \frac{2s}{r_I} \approx 0,23 \frac{E_{II}}{E_I} \frac{2s}{r_I} \quad (18)$$

zusammen mit den Bedingungen

$$\epsilon_Z^I = \epsilon_Z^{II} \quad \text{wobei} \quad \epsilon_Z^i = \epsilon_Z^i + \alpha_i t$$

$i = I, II$

und

$$\epsilon_{\theta \text{ tot}}^{\text{I}} = \epsilon_{\theta \text{ tot}}^{\text{II}} \quad \text{wobei} \quad \epsilon_{\theta \text{ tot}}^{\text{i}} = \epsilon_{\theta}^{\text{i}} + \alpha_{\text{i}} \cdot t$$

wobei angenommen wird, daß die Erwärmung von 0°C auf die homogene Temperatur t erfolgt, erhält man folgende Ausdrücke für den radialen und axialen integralen thermischen Ausdehnungskoeffizienten dieses "speziellen Brennstabes"

$$\alpha_{\text{Z tot}} = \epsilon_{\text{Z tot}}^{\text{II}} = \alpha_{\text{II}} + \frac{\alpha_{\text{I}} - \alpha_{\text{II}}}{1 + \frac{E_{\text{II}}}{E_{\text{I}}} \cdot \frac{1 - 2 \mu_{\text{I}}}{1 - 2 \mu_{\text{II}}} \cdot \frac{2s}{r_{\text{I}}}} \quad (19)$$

$$\alpha_{\text{r tot}} = \epsilon_{\theta \text{ tot}}^{\text{II}} = \alpha_{\text{II}} + \frac{\alpha_{\text{I}} - \alpha_{\text{II}}}{1 + \frac{E_{\text{II}}}{E_{\text{I}}} \cdot \frac{(1 - 2 \mu_{\text{I}})}{(2 - \mu_{\text{II}})} \cdot \frac{2s}{r_{\text{I}}}} \quad (20)$$

4. Schlußfolgerungen

Abgesehen von Hochtemperaturmessungen an Urandioxid sind die Maximaltemperaturen, bis zu denen Ausdehnungskoeffizienten von Mischoxiden und Plutoniumdioxid zur Zeit vorliegen, viel zu niedrig. Über die Abbrandabhängigkeit des thermischen Ausdehnungskoeffizienten liegen keine Ergebnisse vor. Die bisherigen Ergebnisse gestatten auch nicht, eine Aussage über einen Zusammenhang zwischen Konzentration und Ausdehnung beim Mischoxid zu machen. Da die Meßwerte vielfach röntgenographisch gewonnen wurden, wäre ihre Bestätigung durch andere Meßmethoden wie mechanische bzw. optische Dilatometrie wünschenswert [18]. Daher sollten folgende Fragen durch gezielte Experimente beantwortet werden:

- a) Lassen sich die vorliegenden Temperaturfunktionen des thermischen Ausdehnungskoeffizienten auf den Bereich hoher Temperaturen erweitern?
- b) Welche Ergebnisse liefern Messungen an simulierten Proben für die Abbrandabhängigkeit?
- c) Welcher Zusammenhang besteht zwischen thermischer Ausdehnung und Konzentration bei Mischoxiden?
- d) Wie ist die Stöchiometrieabhängigkeit der thermischen Ausdehnung?

Literatur:

- [1] J.S.Touloukian, Thermophysical Properties of High Temperature Solid Materials, Vol. 4, 1967
- [2] J. Belle, USAEC, Naval Reactors Division of Reactor Development, 1961
- [3] J.Roth, Trans, Am. Nucl. Soc. 9, p. 414, 1966
- [4] J. Roth, E.K. Haltemann, NUMEC-2389-9, 1965
- [5] J.Roth, M.E.Hubert, J.R. Cherry, C.S. Caldwell, Trans. Am. Nucl. Soc. 10, p.457, 1967
- [6] P.Murray, R.W. Thackray, AERE M/M22
- [7] M.D. Burdick, H.S. Parker, J. Am. Ceram. Soc. 39, S.181, 1956
- [8] J.P. Bell, S.M.Makin RDB (C) /TN-70, 1954
- [9] W.R. Lambertson, J.H. Handwerk, ANL-5053, 1956
- [10] F.A. Halden, H.C. Wohlers, R.H. Reinhart, SRI-A-6 Stanford Research Institute, 1959
- [11] R.P. Nelson, BNWL-473, p. 4.1, 1968
- [12] P.G. Hansen, Diss. Washington University, 1963
- [13] N.D. Kingery, Property Measurements at high Temperatures, John Wiley New York, p. 185, 1959
- [14] A.M. Freudenthal in Bonilla, Nuclear Engineering, Chapt. 11, McGraw Hill, 1957
- [15] D.Weyl, Ber. DKG, Bd.36, H. 10, S. 319, 1959
- [16] E.Gebhardt, G.Ondracek, F.Thümmeler, J. Nucl. Mat. 13, Nr. 2, S.229, 1964
- [17] J.Selsing, J. Am. Ceram. Soc. 44, p. 419, 1961

- [18] E. Fitzer, AGARD Final Report TX44, 1971

Tabelle I: Empirische Gleichungen des linearen integralen thermischen Ausdehnungskoeffizienten zur Temperatur- und Konzentrationsabhängigkeit im (UO₂-PuO₂-System [4])

Material	integraler linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient α (1/°C) t in °C	Temperaturbereich (°C)	Gleichung Nr.
UO _{2,24}	$\alpha = 11,1442 \cdot 10^{-6} (1 + 0,0187 \cdot 10^{-4} t)$	34 - 1260	4
UO _{2,08}	$\alpha = 9,6985 \cdot 10^{-6} (1 + 0,9796 \cdot 10^{-4} t)$	55 - 1257	5
5 Gew.% PuO ₂ +UO ₂	$\alpha = 7,4189 \cdot 10^{-6} (1 + 7,8943 \cdot 10^{-4} t)$	35 - 1355	6
12,5 Gew.% PuO ₂ +UO ₂	$\alpha = 9,0176 \cdot 10^{-6} (1 + 2,9693 \cdot 10^{-4} t)$	24 - 1318	7
20 Gew.% PuO ₂ +UO ₂	$\alpha = 7,5353 \cdot 10^{-6} (1 + 13,8453 \cdot 10^{-4} t)$	35 - 1140	8
35 Gew.% PuO ₂ +UO ₂	$\alpha = 7,7180 \cdot 10^{-6} (1 + 6,3313 \cdot 10^{-4} t)$	24 - 1304	9
50 Gew.% PuO ₂ +UO ₂	$\alpha = 7,9772 \cdot 10^{-6} (1 + 5,9733 \cdot 10^{-4} t)$	55 - 1183	10
80 Gew.% PuO ₂ +UO ₂	$\alpha = 7,7176 \cdot 10^{-6} (1 + 10,4012 \cdot 10^{-4} t)$	85 - 1200	11
PuO ₂ (über Oxalat dargestellt)	$\alpha = 6,7614 \cdot 10^{-6} (1 + 3,2460 \cdot 10^{-4} t)$	31 - 1240	12
PuO ₂ (über Hydroxid dargestellt)	$\alpha = 6,7046 \cdot 10^{-6} (1 + 14,7319 \cdot 10^{-4} t)$	31 - 1240	13

$$\frac{l - l_0}{l_0} = \alpha (T - 273)$$

l = Länge bei Temperatur T in $^{\circ}\text{K}$

l_0 = Länge bei 0°C

α = integraler linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient

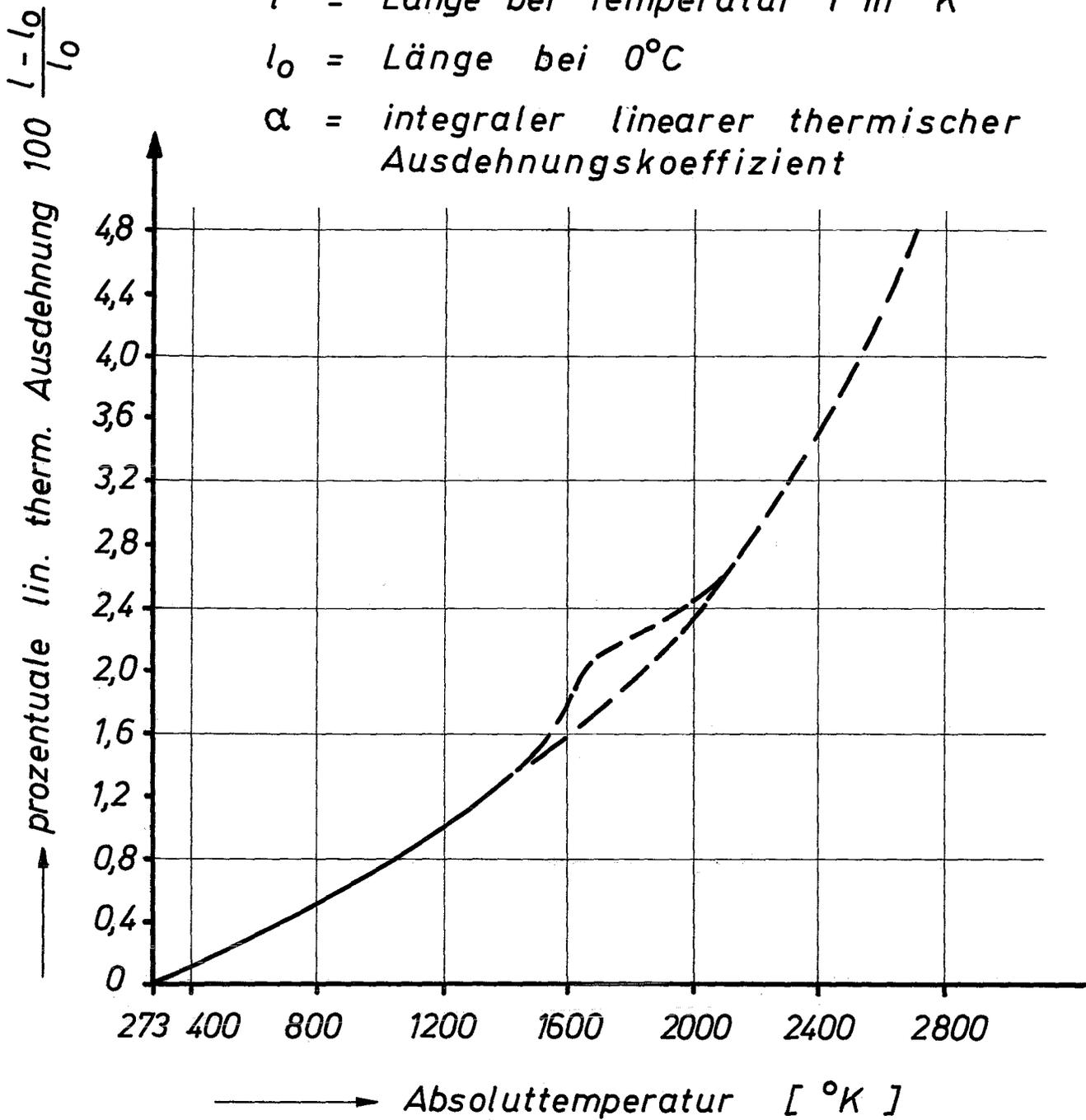


Abb.1 Prozentuale lineare thermische Ausdehnung von UO_2 in Abhängigkeit der Temperatur [1,2]

XXVII. Kriechverhalten von Hüllmaterialien für
schnelle Na-gekühlte Reaktoren

von

K.D. Closs

Inhalt:

1. Einleitung
2. Kriechverhalten ohne Bestrahlung
 - 2.1 Kriechen unter stationären Bedingungen
 - 2.2 Kriechen unter instationären Bedingungen
3. Kriechen unter Neutronenbestrahlung
4. Schlußfolgerungen

1. Einleitung

Für die Brennelemente schneller Na-gekühlter Brutreaktoren kommen wegen ihrer guten Korrosionsbeständigkeit bei hohen Temperaturen vor allem austenitische Stähle in Frage. Während Amerikaner, Engländer und Franzosen unstabilmisierte Stähle vom Typ AISI 304 und 316 bevorzugen, werden in Deutschland vorwiegend Untersuchungen an stabilisierten austenitischen Stählen durchgeführt. Tabelle 1 gibt einen Überblick über die zur Zeit favorisierten Werkstoffe mit ihren Hauptlegierungskomponenten. Neben den als konventionelle Werkstoffe zu bezeichnenden austenitischen Stählen werden darüber hinaus für eine zweite Generation Na-gekühlter Reaktoren auch Vanadin-Basislegierungen ins Auge gefaßt, die gegenüber den austenitischen Stählen eine bessere Warmfestigkeit aufweisen.

Um Brennelemente von schnellen Reaktoren sicher einsetzen zu können, muß für die Auslegung der Brennelementhüllrohre das Langzeitverhalten der Werkstoffe unter den auftretenden hohen Spannungen, Temperaturen und Neutronenflüssen hinreichend bekannt sein. Neben Korrosion, Kompatibilität und Porenbildung spielt dabei vor allem das Kriechverhalten der einzusetzenden Materialien eine wesentliche Rolle.

2. Kriechverhalten ohne Bestrahlung

Unter Kriechen versteht man zeitabhängige Verformungsvorgänge, die in einem Werkstück unter einer angelegten Spannung bevorzugt bei höheren Temperaturen ablaufen. Hier soll das Kriechverhalten von Hüllwerkstoffen bei Temperaturen um $0,5 \cdot T_s$ (T_s = absolute Schmelztemperatur) betrachtet werden. Da das Kriechverhalten der einzelnen Werkstoffe äußerst komplex ist, soll hier vor allem eine ingenieurmäßige Betrachtungsweise, weniger eine festkörperphysikalische gewählt werden.

Folgende Vorgänge laufen im wesentlichen während des Kriechens im Material ab:

- a) Eine Verfestigung infolge der Kriechverformung.
- b) Eine Entfestigung infolge von Erholungsvorgängen.
- c) Änderungen des Gefügestandes infolge von Diffusions- und Ausscheidungsvorgängen.

Die beiden ersten Prozesse lassen sich im allgemeinen durch versetzungs- theoretische Ansätze [1, 2] oder den Aufbau von inneren Spannungen [3, 4] zumindest für reine Metalle mit genügender Genauigkeit beschreiben, während es zur Zeit noch keine theoretischen Ansätze gibt, um die Auswirkungen von Ausscheidungen auf das Kriechverhalten mit ausreichender Genauigkeit zu erfassen. Während kleine, fein verteilte Ausscheidungen als Hindernisse für das Wandern von Versetzungen dienen und somit eine Verfestigung des Materials bewirken, führen größere Ausscheidungen i.A. nach Erreichen einer kritischen Größe zu einer Entfestigung. Die Art, Größe und Verteilung der Ausscheidungen sind dabei außer von den Legierungselementen und der Vorbehandlung besonders stark von der angelegten Spannung, der Temperatur und der Zeit abhängig.

2.1 Kriechung unter stationären Bedingungen

Im folgenden Abschnitt soll das Kriechverhalten unter stationären Bedingungen, also bei konstanten Temperaturen und Belastungen, betrachtet werden. - Eine Kriechkurve läßt sich im allgemeinen in drei Bereiche einteilen, den Primär-, Sekundär- und Tertiärbereich. Der Primärbereich ist dadurch gekennzeichnet, daß die Kriechgeschwindigkeit aufgrund der Verfestigung, also z.B. aufgrund des Auflaufens von Versetzungen an Hindernissen, laufend abnimmt. Da dazu parallel jedoch auch entfestigende Vorgänge ablaufen, wie z.B. das Klettern von Versetzungen, wird schließlich ein Zustand erreicht, bei dem ein Gleichgewicht zwischen Verfestigung und Entfestigung besteht, d.h. die Kriechgeschwindigkeit nimmt einen konstanten Wert an. Dieser Zustand ist charakteristisch für den Sekundärbereich der Kriechkurve. Der Tertiärbereich schließlich zeichnet sich durch eine Zunahme der Kriechgeschwindigkeit aus. Für das Einsetzen des Tertiärkriechens können mehrere Vorgänge verantwortlich gemacht werden: z.B. Spannungserhöhung aufgrund von Einschnürung und Bildung von interkristallinen Rissen sowie Gefügeänderungen im Werkstoff, z.B. Überalterungseffekte.

Brennelemente wurden bisher im allgemeinen so ausgelegt, daß man das Primärkriechen vernachlässigte und nur das stationäre Kriechen, also das Sekundärkriechen, berücksichtigte. Da aufgrund der Hochtemperaturversprödung jedoch nur sehr geringe Kriechverformungen der Hülle zugelassen werden dürfen - man rechnet etwa mit 0,2 bis 0,3 % tangentialer Aufweitung

von Hüllrohren entsprechend einer einachsigen Kriechverformung von etwa 0,25 bis 0,4 % - ist zunächst zu klären, ob diese geringe Verformung nicht allein durch Primärkriechen hervorgerufen wird.

Zu diesem Zweck wurde in Abb. 1 die im Primärbereich bzw. im Primär- und Sekundärbereich erfolgte Kriechverformung in Abhängigkeit von der angelegten Spannung für einen 15/15 CrNi-Stahl mit der Werkstoff-Nr. 1.4970 aufgetragen. Extrapoliert man die Versuchsergebnisse auf die am Ende der Standzeit eines Brennstabes zu erwartenden Spannungen von 6 bis 8 kp/mm², so stellt man fest, daß in diesem Spannungsbereich das Primärkriechen von untergeordneter Bedeutung ist. Gleichzeitig erkennt man, daß bei diesen Spannungen bis weit über die Auslegungsgrenze von 0,4 % hinaus sekundäres Kriechen auftritt, was hier als Abstand zwischen den beiden eingezeichneten Geraden abzulesen ist. Bei diesem Werkstoff ist es also vollkommen ausreichend, die Brennelementhüllrohre nach der sekundären Kriechgeschwindigkeit auszulegen.

Anders liegen jedoch die Verhältnisse beim Werkstoff-Nr. 1.4988, wie aus Abb. 2 zu entnehmen ist. Bei diesem 16/13 CrNi-Stahl macht das Primärkriechen im interessierenden Spannungsbereich etwa ein Drittel der zulässigen Dehnung aus. Wie man außerdem aus der oberen Kurve entnehmen kann, ist das Sekundärkriechen bereits beendet, bevor man die Auslegungsgrenze von 0,4 % erreicht hat. Im vorliegenden Fall muß also der gesamte Verlauf der Kriechkurve mit Primär-, Sekundär- und Tertiärkriechen für Auslegungsrechnungen berücksichtigt werden. Dazu muß die gesamte Kriechkurve analysiert und mathematisch formuliert werden.

Als nächstes muß die Frage geklärt werden, wie sich die einzelnen Bereiche der Kriechkurve mathematisch erfassen lassen. Die zeitliche Abnahme der Kriechgeschwindigkeit im primären Kriechbereich $\dot{\epsilon}_I$ läßt sich im allgemeinen befriedigend durch einen Ansatz der Form

$$\dot{\epsilon}_I = \dot{\epsilon}_{II} + n \cdot A \cdot t^{n-1} \quad (1)$$

beschreiben. Dabei sind $\dot{\epsilon}_{II}$ die sekundäre, zeitunabhängige Kriechgeschwindigkeit und n und A Konstanten, wobei der Wert von n zwischen 1/4 und 2/3 liegt [5].

Bei der sekundären Kriechgeschwindigkeit spielt vor allem die Spannungs- und Temperaturabhängigkeit eine wesentliche Rolle.

Zunächst zur Spannungsabhängigkeit: F.H. Norton [6] hat bereits im Jahre 1929 festgestellt, daß die Abhängigkeit der sekundären Kriechgeschwindigkeit von der Spannung in doppellogarithmischer Darstellung über einen gewissen Bereich nahezu linear ist. Dieses Verhalten läßt sich durch das Nortonsche Kriechgesetz

$$\dot{\epsilon}_{II} = k \cdot \sigma^n \quad (2)$$

beschreiben, wobei k und n die i.a. temperaturabhängigen Nortonschen Kriechparameter sind. Eine genauere Analyse zeigt jedoch, daß bei einigen Werkstoffen im allgemeinen mehrere Bereiche zu unterscheiden sind. Besonders deutlich kommt dieses Verhalten in Abb. 3 zum Ausdruck, in der Versuchsergebnisse für einen 20/35 CrNi-Stahl wiedergegeben sind [7]. Dieser Werkstoff steht zwar als Hüllmaterial für einen Na-gekühlten schnellen Brutreaktor nicht zur Diskussion, jedoch ist ein ähnliches Verhalten bei den favorisierten Hüllwerkstoffen nicht auszuschließen. Man erkennt deutlich, daß hier mehrere Spannungsbereiche zu unterscheiden sind und die Kurven im allgemeinen einen oder mehrere Knicke aufweisen.

Die physikalische Begründung für ein derartiges Abknicken ist darin zu suchen, daß in den einzelnen Spannungsbereichen verschiedene Kriechmechanismen auftreten, wobei bei niedrigen Spannungen das Korngrenzengleiten gegenüber der Kornverformung vorherrscht. Die Kriechparameter k und n des Nortonschen Kriechgesetzes müssen entsprechend für mehrere Spannungsbereiche angegeben werden. Das Problem liegt nun darin, daß Zeitstand- und Kriechuntersuchungen aus Zeitgründen vorwiegend bei höheren Spannungen im Bereich von 10 - 20 kp/mm² durchgeführt werden. Dabei treten bereits Standzeiten bis zu einigen tausend Stunden auf. Um auch Kriechgeschwindigkeiten bei niedrigen Spannungen im Bereich von 1 bis 10 kp/mm² messen zu können, müssen teilweise Versuchszeiten bis zu einigen Jahren in Kauf genommen werden, was sich natürlich nur begrenzt durchführen läßt. Bisher behilft man sich daher im allgemeinen mit einer linearen Extrapolation der bei höheren Spannungen angefallenen Versuchsergebnisse. Man muß sich jedoch darüber klar sein, daß die so ermittelten Kriechgeschwindigkeiten für niedrige Spannungen teilweise um 1 bis 2 Zehnerpotenzen zu optimistisch angesetzt sind.

Will man die abknickenden Kurvenverläufe durch eine zusammenhängende Kurve ersetzen, so läßt sich die Spannungsabhängigkeit der sekundären

Kriechgeschwindigkeit durch eine Gleichung der Form

$$\dot{\epsilon}_{II} = A (\sinh (\alpha \cdot \sigma))^n \quad (3)$$

beschreiben. Dieses Auswertungsverfahren wurde in Abb. 4 für den austenitischen Stahl AISI 316 gewählt, wobei Werte für die Konstanten A, α und n ebenfalls in dieses Diagramm eingetragen sind [8]. Bemerkenswert an dieser Darstellung ist vor allem, daß durch dieses Auswertungsverfahren die Spannungsabhängigkeit der sekundären Kriechgeschwindigkeit bei niedrigen Spannungen realistischer wiedergegeben wird, als wenn man linear von höheren Spannungen aus extrapoliert.

Bei den meisten bisher durchgeführten Zeitstanduntersuchungen wurde bisher jedoch eine Auswertung nach Gleichung (3) nicht vorgenommen, sondern die Spannungsabhängigkeit der sekundären Kriechgeschwindigkeit nur nach Norton berechnet. Die entsprechenden Kriechparameter für einige konventionelle und futuristische Hüllwerkstoffe sind in Tabelle 2 zusammengestellt, wobei nach Möglichkeit auch der Spannungsbereich angegeben wurde, in dem diese Werkstoffe untersucht wurden.

Die Temperaturabhängigkeit der sekundären Kriechgeschwindigkeit läßt sich bei vielen Werkstoffen durch eine Arrhenius-Gleichung

$$\dot{\epsilon} = f(\sigma) \cdot \exp(-Q_k/RT) \quad (4)$$

beschreiben [5]. Dabei entspricht die Aktivierungsenergie des Kriechens Q_k in den meisten Fällen und innerhalb gewisser Spannungsbereiche der Aktivierungsenergie der Selbstdiffusion, was darauf hindeutet, daß das sekundäre Kriechen vorwiegend ein diffusionsgesteuerter Prozeß ist. In Abb. 5 wurde für den austenitischen Stahl AISI 304 der Ausdruck $\dot{\epsilon} \cdot \exp(Q_k/RT)$, also eine temperaturkompensierte Kriechgeschwindigkeit, in Abhängigkeit von der Spannung aufgetragen [4]. Man erkennt, daß sich die Temperaturabhängigkeit der sekundären Kriechgeschwindigkeit bei diesem Werkstoff über einen großen Temperaturbereich gut durch Gleichung (4) beschreiben läßt.

Bei den austenitischen Stählen 1.4988 und 1.4970 wurde ebenfalls versucht, die Spannungs- und Temperaturabhängigkeit der sekundären Kriechgeschwindigkeit nach Gleichung (3) und (4) anzugeben. Hier traten jedoch bei der Beschreibung der Temperaturabhängigkeit insofern Schwierigkeiten

rigkeiten auf, als sich im Temperaturbereich zwischen 600 und 750°C kein geschlossener Kurvenverlauf einstellte. Dieses Werkstoffverhalten deutet darauf hin, daß in den einzelnen Temperaturbereichen verschiedene Kriechmechanismen zu verzeichnen sind, die durch verschiedene Aktivierungsenergien berücksichtigt werden müssen. Es erscheint daher sinnvoll, bei diesen Werkstoffen die Temperatur- und Spannungsabhängigkeit in den Nortonschen Kriechparametern k und n nach Gleichung (2) oder in den Konstanten A , α und n nach Gleichung (3) zu berücksichtigen.

Aus Abb. 2 war zu entnehmen, daß der Werkstoff Nr. 1.4988 bei niedrigen Spannungen bereits vor Erreichen der Auslegungsgrenze von 0,4 % Dehnung Tertiärkriechen aufweist. Eine analytische Erfassung des Tertiärbereiches von Kriechkurven hat jedoch bis heute noch zu keiner allgemeingültigen Formulierung geführt, da sich die einzelnen Werkstoffe im Verlauf ihres tertiären Kriechbereiches sehr stark unterscheiden.

Die bisher diskutierten Ergebnisse gelten für einen einachsigen Spannungszustand. Für die mehrachsige Beanspruchung in einem Brennelementhüllrohr muß jedoch eine Umrechnung in eine Vergleichsspannung und Vergleichsdehnung vorgenommen werden. Wie in [10] gezeigt wurde, kann für wenig kaltverformte Werkstoffe, bei denen keine Anisotropie auftritt, die Umrechnung nach dem "von Mises-Kriterium" durchgeführt werden. Die Verwendung des Tresca-Kriteriums brachte dagegen eine weniger gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Rechnung. Ob auch bei stärker kaltverformten Materialien dieses Kriterium ohne weiteres angewendet werden kann, kann bisher nicht eindeutig geklärt werden. Es ist durchaus denkbar, daß sich bei einer Kaltverformung von ca. 15 bis 20 % eine gewisse Anisotropie in Form von Texturen ausbildet, die unter Umständen zu einem unterschiedlichen Kriechverhalten von Rohren im Längszug- und Innendruckversuch führen können. So haben Untersuchungen an Flachproben mit 20 % Kaltverformung aus dem Werkstoff Nr. 1.4988, die senkrecht zur Walzrichtung eingesetzt wurden, eine geringere Duktilität gezeigt als Proben, die parallel zur Walzrichtung untersucht wurden [11].

2.2 Kriechen unter instationären Bedingungen

Da schnelle Leistungsreaktoren auch für einen eventuellen Lastfolgebetrieb ausgelegt werden müssen, muß das Kriechverhalten der einzusetzenden Werkstoffe unter wechselnden Betriebsbedingungen bekannt sein.

Zunächst muß man sich vor Augen halten, daß die Spannungsverteilung in einem Brennelementhüllrohr selbst bei einem konstanten Betrieb des Reaktors nicht konstant ist. Erst recht wird sich durch einen linearen Spaltgasdruckaufbau in einem Brennelement die Spannungsverteilung zeitlich ändern. In diesem Zusammenhang muß die Frage geklärt werden, ob durch den linearen Druckanstieg nicht Kriecheffekte durch Primärkriechen verstärkt auftreten. In einer englischen Arbeit [12] wird berichtet, daß am austenitischen Stahl AISI 316 L bei 650°C kein wiederholtes Primärkriechen bei linearer zeitlicher Belastungserhöhung festgestellt wurde, so daß man unter diesen Umständen mit den Gleichungen für sekundäres Kriechen rechnen kann. In Karlsruhe selbst wurden noch keine derartigen Messungen mit kontinuierlichem Druckaufbau durchgeführt. Es wurde aber festgestellt, daß bei Versuchen am Werkstoff Nr. 1.4981 mit stufenweiser Lasterhöhung die Standzeit um etwa 50 % niedriger war, als aufgrund von Rechnungen erwartet worden ist [13].

Wenn Leistungsreaktoren auch im Lastfolgebetrieb eingesetzt werden, variiert die Hüllrohrtemperatur bei Lastwechseln zwischen 30 % und 100 % um etwa 50°C . Um einen einwandfreien Betrieb des Reaktors zu gewährleisten, muß sichergestellt werden, daß das Material unter den wechselnden Temperaturen nicht schneller kriecht als bei der maximal auftretenden Temperatur, die als konstant wirkend angesehen wird und nach der das Hüllrohr ausgelegt wird. So gibt es Literaturhinweise [14], daß beim austenitischen Stahl AISI 304 L die Kriechgeschwindigkeit bei einer Temperaturzyklisierung von $\pm 28^{\circ}\text{C}$ um eine mittlere Temperatur von 704°C etwa um den Faktor 2 höher liegt als bei der maximal auftretenden Temperatur von 732°C . Als Ursache für die erhöhte Kriechgeschwindigkeit wird eine Koagulation von karbidischen Ausscheidungen an den Korngrenzen angesehen, die zu einer Herabsetzung der Festigkeit führt [15].

Eine weitere Möglichkeit für eine Erhöhung der Kriechgeschwindigkeit durch wechselnde Temperaturen besteht darin, daß ein verstärkter Anteil Primärkriechen auftreten kann. Durch die Temperaturwechsel wird unter Umständen nie oder nur in einem sehr begrenztem Maße ein stationärer Kriechzustand erreicht, d.h. das Primärkriechen spielt dann gegenüber dem Sekundärkriechen eine wesentliche Rolle und müßte damit unbedingt für Auslegungsrechnungen berücksichtigt werden. So wird in einer amerikanischen Arbeit berichtet [16], daß bei innendruckbeaufschlagten Rohren aus dem Stahl AISI 304 durch Zyklieren der Stableistung die

Standzeit etwa um den Faktor 2,5 geringer war als aufgrund von Rechnungen unter Zugrundelegung von sekundärem Kriechen zu erwarten war. Ein Ausmessen der Rohre ergab ferner eine um etwa 20 % höhere Bruchdehnung gegenüber stationären Betriebsbedingungen. Beide Effekte deuten darauf hin, daß unter den hier vorliegenden Versuchsbedingungen ein starker Anteil Primärkriechen aufgetreten ist, was zu einer größeren Dehnung und verkürzten Standzeit führte.

Betrachtet man weiterhin die betriebsmäßige Beanspruchung eines Brennelementhüllrohres, dann muß man sich darüber im klaren sein, daß vor allem bei einem neuartigen Reaktorsystem bei Aufnahme des Reaktorbetriebes sehr oft Schnellabschaltungen, sogenannte Scrams, auftreten können. Diese Scrams werden beim kleinsten anormalen Verhalten des Reaktors ausgelöst. Wegen der guten Wärmeleitfähigkeit und der geringen Wärmekapazität des Kühlmittels Natrium können dabei thermische Schockbeanspruchungen auftreten. So rechnet man beim natriumgekühlten Prototypreaktor SNR bei einer Schnellabschaltung mit Temperaturänderungen von etwa 30°C/s über 10 sec, die voll auf das Hüllrohr und andere Strukturteile wirken. Vor dem Bau eines solchen Reaktors muß sichergestellt werden, daß das Material etwa 100 derartige Schocks ohne Schaden auszuhalten vermag.

3. Kriechen unter Neutronenbestrahlung

Von der Theorie her sollte im Temperaturbereich zwischen 500°C und 700°C keine Beeinflussung der sekundären Kriechgeschwindigkeit durch eine Neutronenbestrahlung eintreten, solange keine bestrahlungsinduzierten Ausscheidungen eine wesentliche Rolle spielen. Wie bereits erwähnt wurde, basiert das stationäre Kriechen auf einem diffusionsgesteuerten Prozeß, und zwar ist das Klettern von Versetzungen in neue Gleitebenen mit einer Diffusion von Leerstellen verbunden. Da bei den hier betrachteten Temperaturen die thermische Leerstellenkonzentration bedeutend größer ist als die bestrahlungsinduzierte, sollte man keine wesentliche Beeinflussung der sekundären Kriechgeschwindigkeit erwarten. Die bisher vorliegenden Versuchsergebnisse an den Stählen AISI 304 und 316 scheinen diesen Überlegungen recht zu geben [17, 18]. So erkennt man aus Abb. 6, daß beim Stahl AISI 316 keine wesentliche Beeinflussung der sekundären Kriechgeschwindigkeit durch eine Neutronenbestrahlung bei 700°C zu verzeichnen ist. Interessant ist

hier ferner, daß keine Unterschiede zwischen in-pile und Nachbestrahlungsuntersuchungen gemessen wurden.

Ob die Werkstoffe 1.4988, 1.4981 und 1.4970 unter Neutronenbestrahlung ebenfalls keine Beeinflussung der sekundären Kriechgeschwindigkeit aufweisen, kann z.Zt. noch nicht gesagt werden. Da die Legierungen thermodynamisch weniger stabil zu sein scheinen als die austenitischen Stähle AISI 304 und 316, kann man hier eine Bildung von bestrahlungsinduzierten Ausscheidungen und damit eine Erhöhung der sekundären Kriechgeschwindigkeit durch Neutronenbestrahlung nicht vollständig ausschließen. So haben Nachbestrahlungsuntersuchungen am Werkstoff Nr. 1.4988 mit 10 % Kaltverformung und einer Auslagerung 850°C/1h eine Erhöhung der Kriechgeschwindigkeit etwa um den Faktor 4 gegenüber unbestrahlten Proben gezeigt [19]. Solange daher noch keine in-pile Kriechergebnisse an diesen Werkstoffen vorliegen, sollte man sicherheitshalber bei Auslegungsrechnungen mit einer gegenüber den out-of-pile Untersuchungen um den Faktor 10 erhöhten Kriechgeschwindigkeit rechnen.

Die bisher durchgeführten in-pile Kriechuntersuchungen wurden vorwiegend in thermischen oder gemischten thermisch/schnellen Reaktoren durchgeführt. Dabei lagen die Neutronendosen bedeutend unter dem Wert von 10^{22} n/cm² (>0,1 MeV), von dem ab ein deutlicher Einfluß der Porenbildung auf das Werkstoffverhalten zu erwarten ist. Wahrscheinlich werden auch in absehbarer Zeit wegen der Schwierigkeiten der Instrumentierung kaum Untersuchungen in schnellen Reaktoren durchgeführt werden können. Es ist jedoch möglich, daß bei hohen Neutronendosen aufgrund von stabilen Versetzungsnetzwerken und Leerstellenclustern die Kriechgeschwindigkeit unter Bestrahlung abnimmt [20]. Über die Größenordnung läßt sich jedoch z.Zt. noch keine Angabe machen.

4. Schlußfolgerungen

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß auf dem Gebiet des Kriechverhaltens von Hüllrohren, die in schnellen natriumgekühlten Brutreaktoren eingesetzt werden sollen, noch einige offene Probleme existieren. Hierzu gehören besonders das Verhalten von Werkstoffen bei oder nach hohen Neutronendosen sowie unter mechanischer und thermischer Wechselbeanspruchung. Auch die bei sehr niedrigen Spannungen auftretenden Kriechmechanismen und ihre

mathematische Formulierung bedürfen noch einer eingehenden Untersuchung. Ferner muß auch in Zukunft dem Primärkriechen eine verstärkte Bedeutung beigemessen werden, da für einige Werkstoffe die Beschreibung des Kriechverhaltens nach dem Nortonschen Kriechgesetz nicht ausreichend ist. Es wäre daher wünschenswert, wenn die Materialexperten in Zukunft vollständige Kriechkurven veröffentlichen, da die Modelltheoretiker dann neue und für die einzelnen Werkstoffe besser geeignete Kriechgesetze formulieren könnten.

Literatur:

- [1] J. Weertman, J.Appl. Phys. 26 (1955) 1213; 28 (1957) 1185
- [2] N.F. Mott; Conf. on Creep and Fracture of Metals at High Temperatures H.M. Stationary Office, London (1956), 21
- [3] R. Gasca-Neri, C.N. Ahlquist, W.D. Nix; Acta Metallurgica 18 (1970) 655 und 663
- [4] L.J. Cuddy; Metallurgical Transactions 1 (1970) 395
- [5] H. Böhm; Zeitstandverhalten metallischer Werkstoffe, Zeitschrift für Metallkunde 61 (1970) 949
- [6] F.H. Norton; Creep of Steels at High Temperature Mc. Graw-Hill Book Co, New York 1929
- [7] R. Lagneborg, R. Attermo; J.of Mat. Science 4 (1969) 195
- [8] WARD 3791-32, p. 9
- [9] M. Schirra; persönliche Mitteilung
- [10] K.D. Closs, L. Schäfer; Proceedings International Meeting on Fast Reactor Fuel and Fuel Elements, Karlsruhe 1970, 675
- [11] H. Böhm et al; Journal of Nuclear Materials 33 (1969) 347
- [12] P.T. Nettley et al; British Nuclear Energy Society, Proceedings of the London Conference (1966), Paper 5 B/3
- [13] L. Schäfer; persönliche Mitteilung
- [14] G.V. Smith, E.G. Houston; ASTM-Stp No. 165 (1954) 67
- [15] H.S. Avery; Trans ASME 30 (1942) 1130
- [16] J.H. Shively, M.W. Mahoney; AI-AEC-12896 (1970)
- [17] J.A. Williams, J.W. Carter; ASTM Stp 426 (1967) 149
- [18] J.P. Andre et al; ANL-7520 Part I (1968) 55
- [19] Ch. Wassilew; persönliche Mitteilung
- [20] H. Böhm; KFK 838 (1968)

Werkstoff	Hauptlegierungsbestandteile (Gew.-%)						
	Cr	Ni	Mo	Nb	Ti	Fe	V
AISI 304	19	10	-	-	-	Basis	-
AISI 316	17	12	-	-	-	Basis	-
1.4988	16	13	1,3	0,8	-	Basis	0,7
1.4981	16	16	1,8	0,8	-	Basis	-
1.4970	15	15	1,2	-	0,45	Basis	-
V-3Ti-15Cr	15	-	-	-	3,0	-	Basis

Tabelle 1 Werkstoffe für Brennelementhüllrohre
Na-gekühlter schneller Reaktoren

Tabelle 2: Kriechparameter einiger Hüllwerkstoffe [8, 9]

Werkstoff	Zustand	Temperatur (°C)	n	k	Spannungsbereich (kp/mm ²)
AISI 316	lösungs- geglüht	537	3,2	$4,7 \times 10^{-11}$	≤ 21
		594	3,2	$1,1 \times 10^{-10}$	≤ 17
		648	3,2	$6,0 \times 10^{-10}$	≤ 14
		704	3,2	$3,7 \times 10^{-9}$	≤ 8
AISI 316	20 % kalt- verformt	550	3,9	$4,5 \times 10^{-13}$	≤ 17
		650	4,0	$8,4 \times 10^{-12}$	≤ 14
		700	4,1	$1,2 \times 10^{-10}$	≤ 12
1.4988	lösungs- geglüht + ausge- lagert	600	15,0	$3,0 \times 10^{-28}$	25 - 40
		650	8,0	$9,0 \times 10^{-15}$	12 - 36
		700	7,0	$5,0 \times 10^{-13}$	10 - 24
		750	4,0	$3,0 \times 10^{-8}$	6 - 14
1.4981	lösungs- geglüht	650	(12,5)	$(3,0 \times 10^{-21})$	
		700	(5,2)	$(1,0 \times 10^{-10})$	
		750	(5,0)	$(7,4 \times 10^{-9})$	
1.4981	15 % kalt- verformt	650	(14,0)	$(9,0 \times 10^{-25})$	
		700	(6,5)	$(4,9 \times 10^{-13})$	
		750	(4,6)	$(2,0 \times 10^{-9})$	
1.4970	15 % kalt- verformt + 830°C/20h	650	21,0	$8,7 \times 10^{-35}$	20 - 30
		700	16,0	$3,8 \times 10^{-26}$	16 - 25
		750	(11,5)	$(1,5 \times 10^{-20})$	15 - 18
V-3Ti-15Cr		700	15	$3,0 \times 10^{-29}$	40 - 50

() Versuchsprogramm noch nicht abgeschlossen

Für die Gültigkeit der angegebenen Kriechparameter muß das Nortonsche Kriechgesetz in folgender Form angewandt werden

$$\dot{\epsilon} \left(\frac{1}{h} \right) = k \left[\sigma \left(\frac{\text{kp}}{\text{mm}^2} \right) \right]^n$$

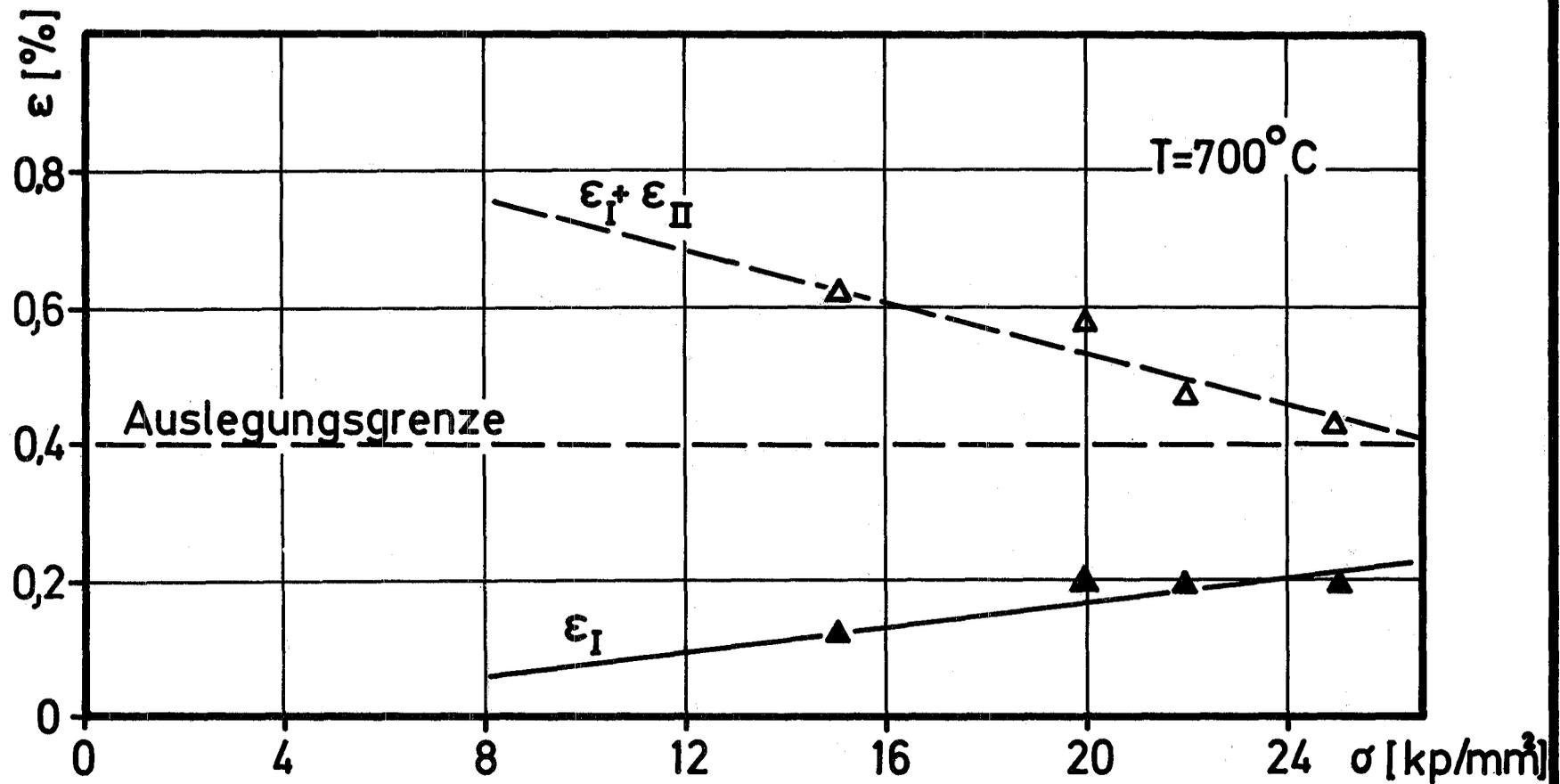


Abb. 1

Kriechdehnung im Primär- ϵ_I u. Sekundärbereich ϵ_{II} der Kriechkurve in Abhängigk. v. der Spannung (W.Nr. 4970)

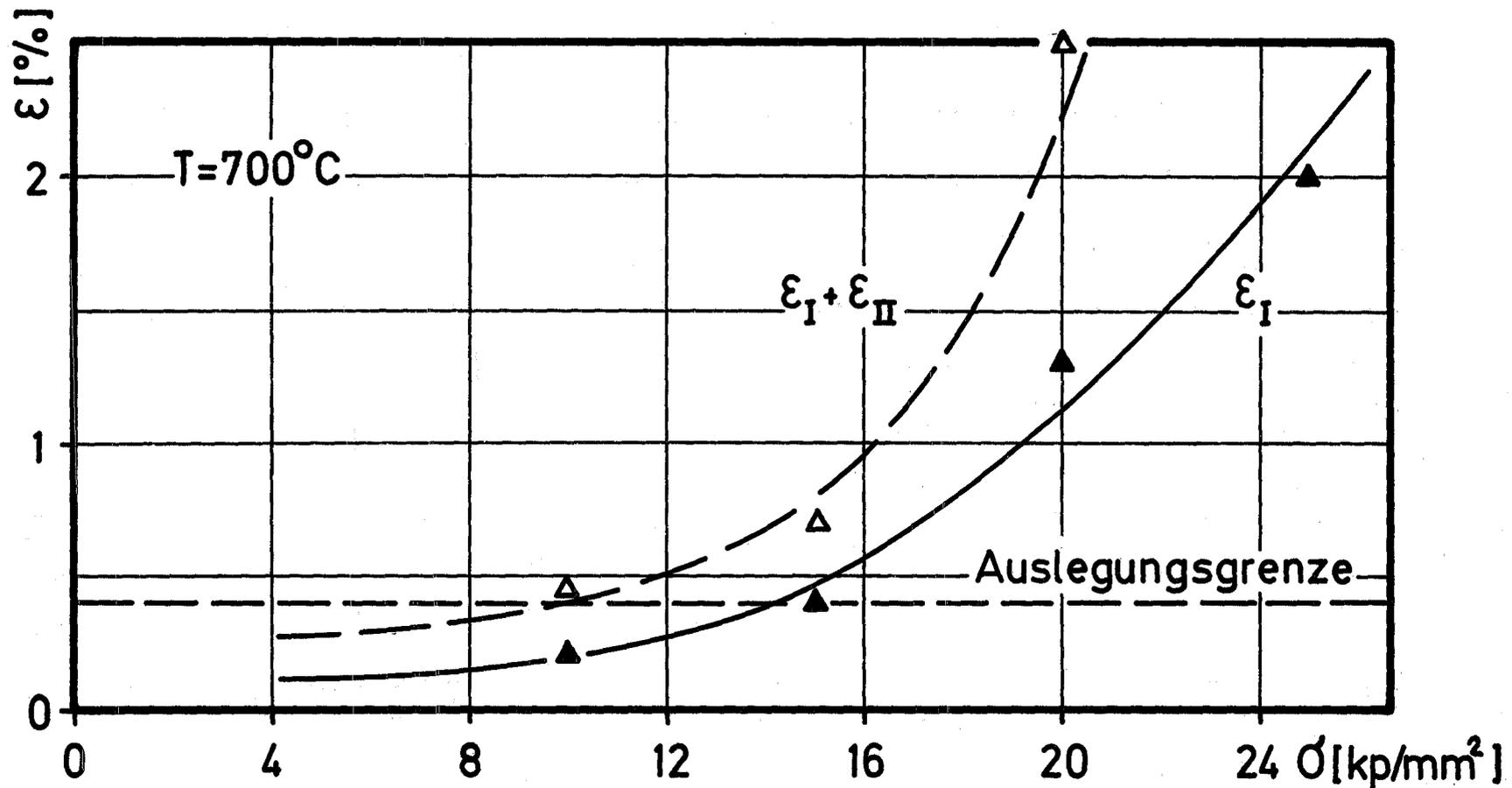


Abb. 2

Kriechdehnung im Primär- ϵ_I u. Sekundärbereich ϵ_{II} der Kriechkurve in Abhängigkeit v. d. Spannung (W.Nr.4988)

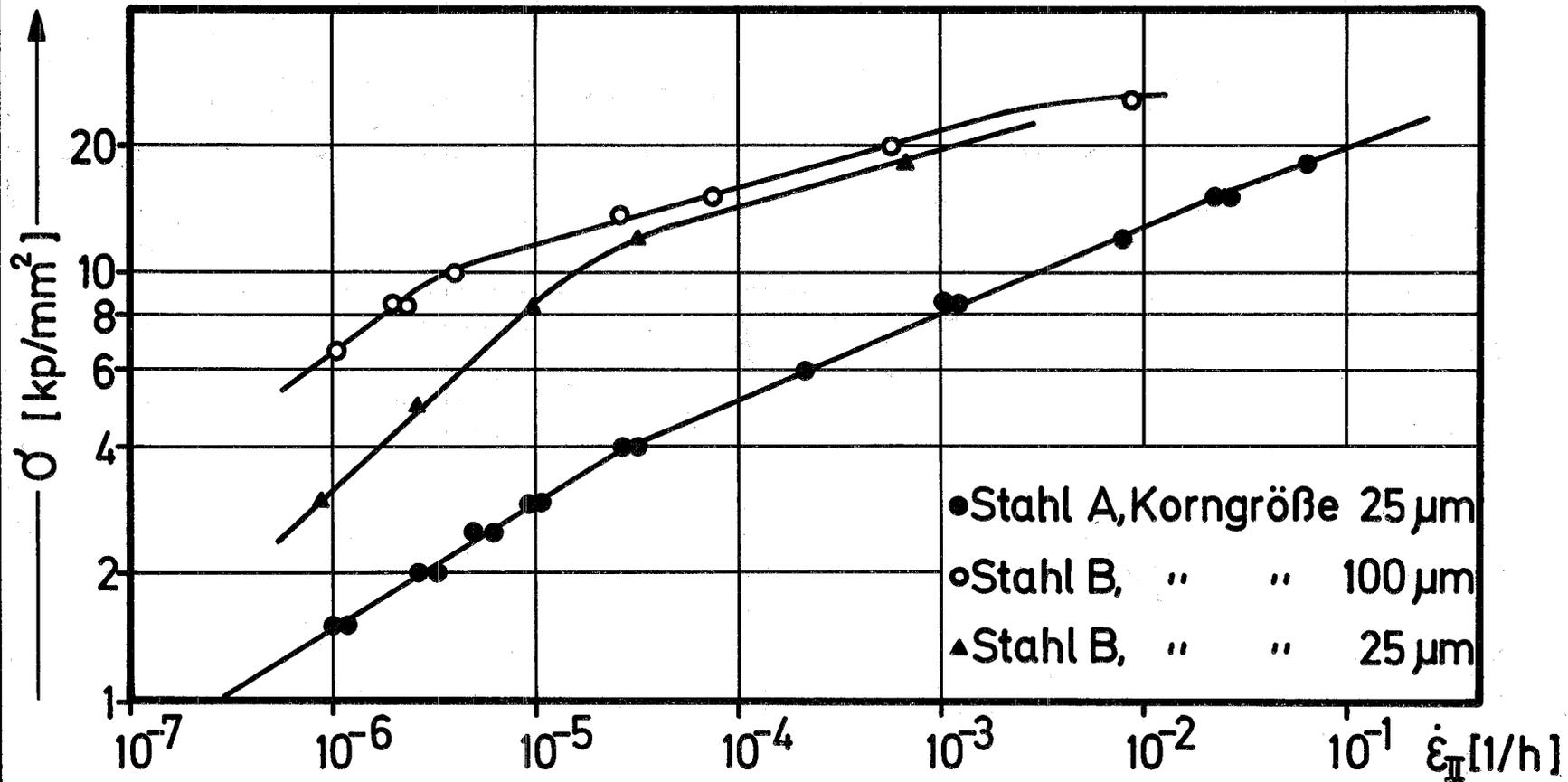


Abb. 3

Spannungsabhängigkeit der sek. Kriechgeschwindigkeit für einen 20/35 CrNi Stahl bei 700°C [7]

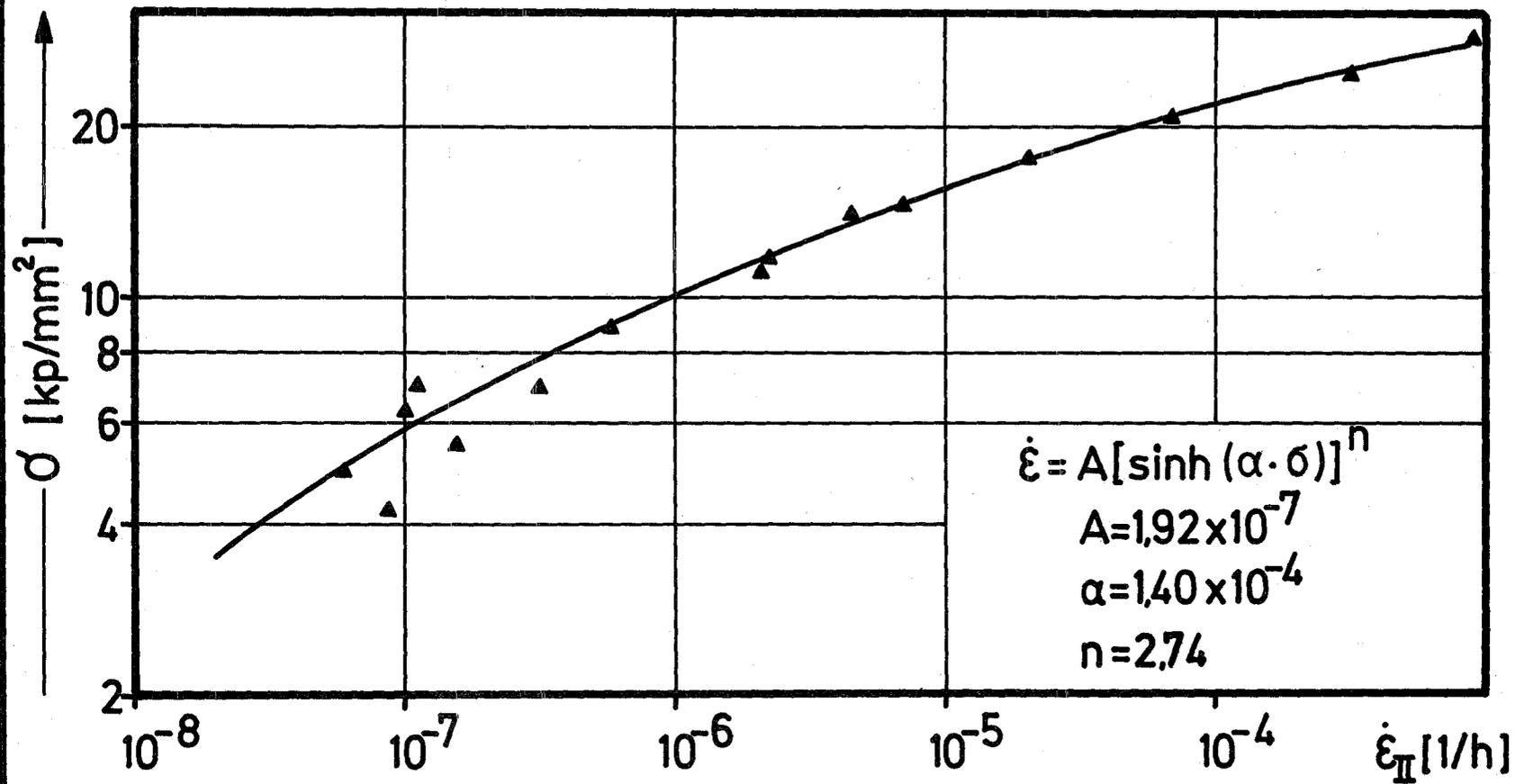


Abb. 4

Spannungsabhängigkeit der sekundären Kriechgeschwindigkeit für den Stahl AISI 316 bei 648°C [8]

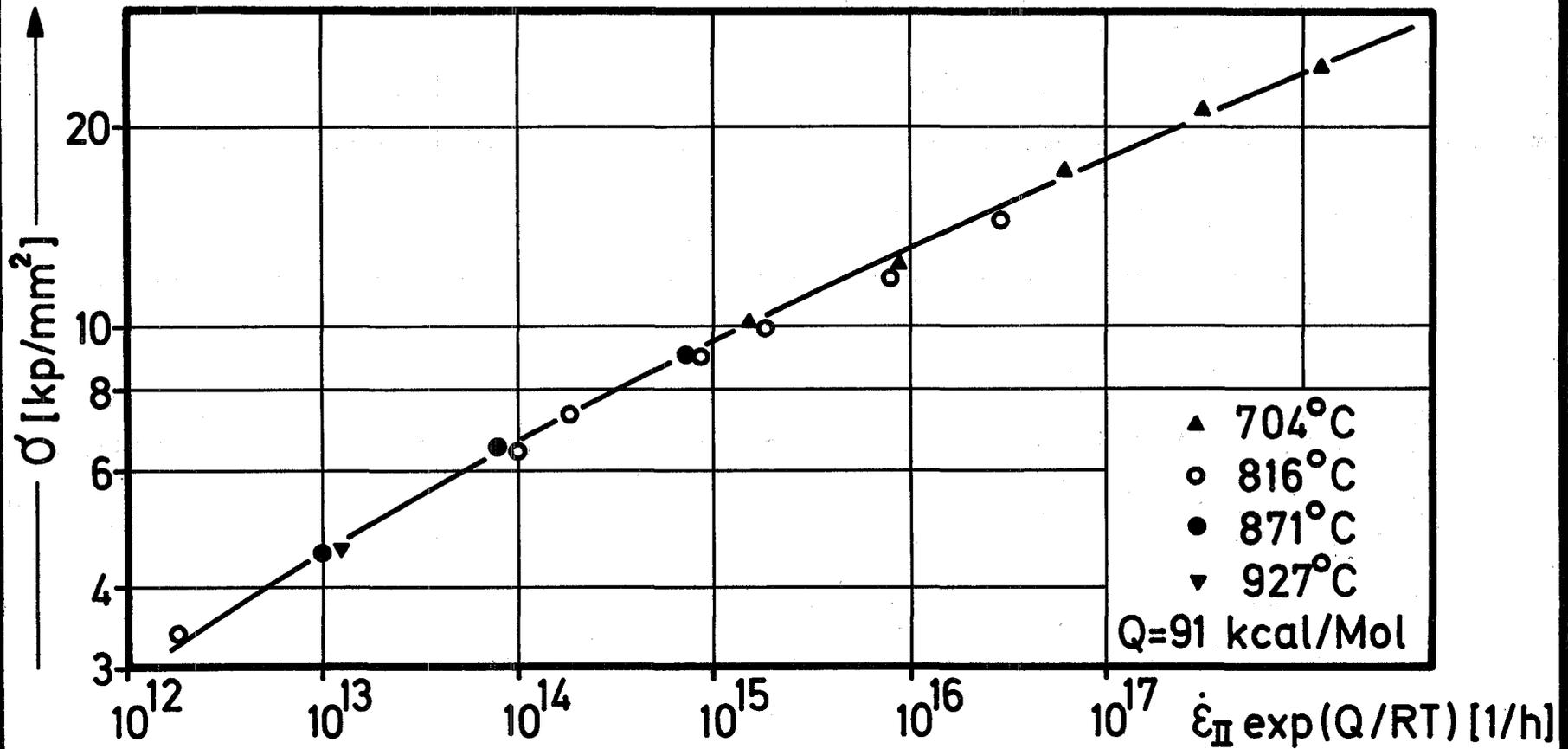


Abb. 5

Temperaturkompensierte sekund. Kriechgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Spannung für den Stahl AISI 304 [4]

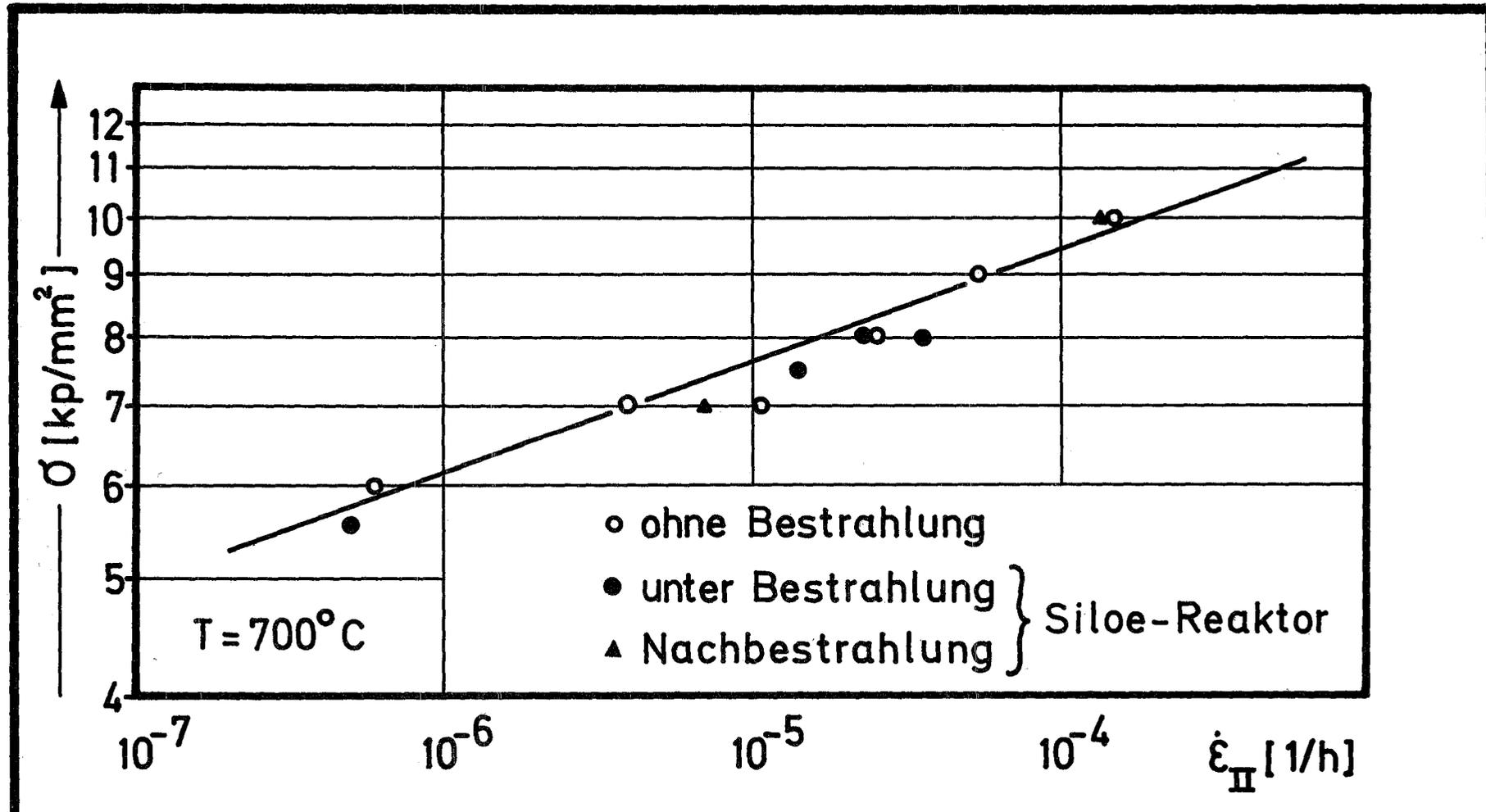


Abb. 6

Beeinflussung der Kriechgeschwindigkeit durch Neutronenbestrahlung beim Stahl AISI 316 [18]

XXVIII. Porenbildung in Hüllmaterialien

von
K. Ehrlich

Inhalt:

1. Einleitung
2. Phänomenologie
3. Modellvorstellungen
4. Formelmäßige Erfassung und Schlußfolgerungen

1. Einleitung

Seitdem Cawthorne und Fulton [1] erstmals im Jahre 1967 das Phänomen der Porenbildung in dem neutronenbestrahlten Stahl 316 entdeckten, wurde eine Fülle von Daten bekannt, die das Schwellverhalten von Metallen und Legierungen unter Bestrahlung als eine allgemein auftretende Strahlenschädigung kennzeichnen. Heute wird insbesondere versucht, die grundlegenden Mechanismen der Porenbildung aufzuklären und die technische Bedeutung dieses Effektes auf die Auslegungsdaten fortgeschrittener Reaktoren auszuloten. Auch die Frage einer eventuellen Sättigung der Porenbildung ist in diesen Problembereich mit einbezogen.

2. Phänomenologie

Porenbildung wurde bisher im wesentlichen in einem Temperaturbereich von $0,3 T_s$ bis $0,5 T_s$ gefunden, wobei T_s = absolute Schmelztemperatur. Neue Ergebnisse in einigen raumzentrierten Metallen weisen darauf hin, daß auch bei Temperaturen $T < 0,3 T_s$ Poren in sehr hohen Konzentrationen auftreten können [3]. Bekannt ist auch, daß der Temperaturbereich in dem Poren existieren, abhängig ist vom Neutronen- oder Teilchenfluß. So wurde z.B. beobachtet, daß bei Erhöhung der Defekterzeugungsrate K um drei Zehnerpotenzen im Stahl 316 der Existenzbereich der Porenbildung um etwa 100°C zu höheren Temperaturen hin verschoben wird [2].

Eine der wenigen, klar erkennbaren Tendenzen ist, daß Reinstmaterialien bei vergleichsweise niedrigen schnellen Neutronendosen

$$(\phi t \approx 5 \times 10^{19} - 5 \times 10^{20} \text{ nvt } E > 0,1 \text{ MeV})$$

meßbare Volumenänderungen durch Porenbildung erfahren, was an Nickel, Eisen, Vanadin, Aluminium und Molybdän [3, 4, 5, 6] nachgewiesen wurde. Durch Dotierung von Verunreinigungen, bzw. Übergang zu Legierungen, wird generell die Neutronendosis, welche zu meßbaren Schwellbeträgen führt, erhöht. Von theoretischen Überlegungen her ist allgemein zu erwarten, daß hohe Stapelfehlerenergie ein frühes Einsetzen der Porenbildung begünstigt. Auch die sog. Mikrostruktur des Materials hat grundsätzliche Bedeutung für den physikalischen Ablauf der Porenbildung. Im folgenden soll deshalb schematisch die Wirkung von Kaltverformung und von Ausscheidungen auf das Schwellverhalten angedeutet werden.

Der Einfluß der Kaltverformung auf die Porenbildung ist nicht eindeutig. Holmes [7] z.B. fand, daß eine 50 %-ige Kaltverformung bei Nickel und Inconel 600 zu keiner Änderung des Schwellverhaltens gegenüber dem rekristallisierten bzw. lösungsgeglühten Material führt. Andererseits geht aus einer Reihe von Zusammenstellungen hervor, daß in den Stählen 304 und 316 die Kaltverformung einen günstigen Einfluß auf die Porenbildung hat. Kontrovers ist bisher die von Bullough und Perrin [8] vertretene Meinung, daß bei hohen Neutronendosen der anfänglich positive Effekt der Kaltverformung sich umkehrt. Nach den Vorstellungen beider Autoren beruht dies darauf, daß der Exponent n der Neutronendosis, der in die Berechnung der relativen Volumenzunahme $\frac{\Delta V}{V}$ eingeht, sehr stark von der Versetzungsdichte ρ abhängt. Bei niedrigen Versetzungsdichten, d.h. lösungsgeglühten Zustand ist demnach ein Exponent n von 0,75, bei mittleren Dichten etwa 1,5 und bei sehr hohen Versetzungsdichten ein n -Wert von etwa 3 zu erwarten. Soweit bisher übersehbar, bleibt jedoch der Vorteil der Kaltverformung in den Stählen bis zu mittleren Neutronendosen hin erhalten.

Bisher liegen nur wenige Ergebnisse über das Schwellverhalten von ausscheidungsfähigen Legierungen vor. Zumindestens in einem Falle - nämlich der γ' -härtenden Legierung Nimonic PE16 - wird die Porenbildung z.B. im Vergleich zu den Stählen 304 und 316 stark reduziert [9].

3. Modellvorstellungen

Die bekanntesten theoretischen Ansätze [10, 11, 12] sollen hier nicht im Detail erörtert werden. Hingegen soll auf die wesentlichen physikalischen Vorgänge bei der Porenbildung, die Keimbildung und das Wachstum kurz eingegangen werden.

Es ist theoretisch vorstellbar, daß unter den gegebenen Reaktorbedingungen - wenigstens bei relativ niedrigen Temperaturen die Porenkeime homogen gebildet werden, d.h. bei bestehender Leerstellenübersättigung durch statistische Vorgänge kritische Keimgrößen erreicht werden. Das als Transmutationsprodukt gebildete und in der Matrix praktisch nicht lösbares Helium kann Porenkeime in dem folgenden Sinne stabilisieren: Ein teilweise mit Helium gefüllter Porenkeim besitzt - bei gleicher Leerstellenübersättigung - einen

kleineren kritischen Keimradius. Viel wahrscheinlicher ist jedoch eine sog. heterogene Keimbildung. In diesem Falle sind die neben den Frenkeldefekten während der Bestrahlung entstehenden mehrdimensionalen Defektcluster selbst, oder deren Überlappungen die Porenkeime, welche durch Helium stabilisiert werden. Mit gleich hoher Wahrscheinlichkeit können aber Heliumbläschen selbst als Porenkeime der erforderlichen Größe fungieren. In die Berechnungen des Porenwachstums gehen neben den Erzeugungsraten K an singulären Defekten vor allem die Folgeprozesse - wie Rekombinationen der Gitterfehler und Ausheilung der Defekte an konservativen Senken (Versetzungen, Ausscheidungen und Korngrenzen) ein. Da Porenwachstum nur möglich ist, wenn die Differenz aus Leerstellenstrom und Zwischengitteratomstrom in die Pore größer Null bleibt, muß angenommen werden, daß die verschiedenen Senken im System unterschiedlich auf Leerstellen und Zwischengitteratome wirken.

Im Temperaturbereich maximaler Schwellraten können wir davon ausgehen, daß bereits in lösungsgeglühten Stählen die Annihilation der Punktdefekte an Senken dominant ist. Eine Kaltverformung des Materials wird deshalb zunächst eine sinkende Wachstumsrate der Poren bewirken.

4. Formelmäßige Erfassung und Schlußfolgerungen

Die bisherigen Modelle sind nur partiell verwendbar. Im wesentlichen werden deshalb qualitative Argumente bei der Aufstellung sog. Schwellformeln benutzt. So kann man zeigen, daß bei heterogener Keimbildung - Helium eingeschlossen - eine Dosisabhängigkeit mit einem Exponenten $n \sim 1,5$ zu erwarten ist. Temperaturabhängigkeit und Einfluß der Kaltverformung werden dann durch Anpassung an die experimentellen Daten beschrieben. Damit ist bereits das Problem der Extrapolation bisher vorliegender Ergebnisse auf höhere Neutronendosen klar umrissen, sobald man solche Formeln zu Hilfe nimmt. Trotzdem besteht natürlich die Notwendigkeit einer rechnerischen Erfassung der experimentellen Werte, die sukzessive verbessert werden.

Für den Stahl 316 kann nach den neuesten Daten mit den folgenden Formeln für die relative Volumenänderung $\frac{\Delta V}{V}$ gerechnet werden [13]:

a) Stahl 316 - lösungsgeglüht:

$$\frac{\Delta V}{V} = A \cdot (\phi t)^n \cdot e^{-B} \quad (1)$$

$$\text{wobei } A = (T-40) \cdot 10^{-10}$$

$$n = 2,05 - \frac{27}{T-623} + \frac{78}{(T-623)^2}$$

$$B = 0,015 \cdot T + \frac{5100}{T} - 32,6$$

mit T = Temperatur ($^{\circ}\text{K}$)

$$\phi t = \text{Neutronendosis} \left(\frac{n}{\text{cm}^2} \cdot 10^{22}, E > 0,1 \text{ MeV} \right)$$

b) Stahl 316 - 20 % kaltverformt:

$$\frac{\Delta V}{V} = 9 \cdot 10^{-35} \cdot (\phi t)^{1,5} \cdot c \quad (2)$$

wobei

$$c = 4,028 - 3,712 \cdot 10^{-2} (T-273) + 1,014 \cdot 10^{-4} (T-273)^2 - 7,879 \cdot 10^{-8} (T-273)^3$$

Für den Stahl 1.4988 gilt zunächst weiter die von IMF und Interatom vorgeschlagene Formel

$$\frac{\Delta V}{V} = 8,5 (\phi t)^{1,6} \cdot \exp \left(- \frac{(T-490)^2}{10\,000} \right) \quad (3)$$

Die relativen Durchmesseränderungen $\Delta D/D$ aus den Trefoil-Bestrahlungen DFR 304/1 führen jedoch zu Schwellwerten, welche darunter liegen und gleichzeitig ein Schwellmaximum bei etwa tieferen Temperaturen andeuten. Eine Änderung obiger Formel sollte jedoch erst nach Abschluß der Nachuntersuchungen vorgenommen werden. Sicherer als eine rechnerische Extrapolation der Schwellformeln zu höheren Neutronendosen ($> 10^{23}$ nvt, $E > 0,1$ MeV) hin, erscheint es, die bereits publizierten Simulationsversuche mit Schwerionen auf Reaktorverhältnisse zu übertragen. Diese Versuche sind bis zu mehr

als 100 Verlagerungen/Gitteratom durchgeführt worden, was Neutronendosen $> 2 \times 10^{23}$ nvt ($E > 0,1$ MeV) entspricht. Sie zeigen, daß mit einer Sättigung der Porenbildung im Simulationsversuch beim Stahl 316 und Reinnickel gerechnet werden kann [8].

Literatur:

- [1] Cawthorne, C., Fulton, E.J., Nature 216 (1967) 575
- [2] Williams, T.M.; Proc. Conf. on voids formed by irradiation of Reactor Mat. Reading (1971) p.205
- [3] Elen, J.D.; Septieme Congres International de Microscopie Electronique, Grenoble 1970, 351
- [4] Mastel, B., Brimhall, J.L.; Journ. Nucl. Mat. 28 (1968) 115
- [5] Kulcinski, G.L., Brimhall, J.L., Mastel, B.; Radiation effects, Vol. 2 (1969) 57
- [6] Rau, R.C., Ladd, R.L., Moteff, J.; Journ. Nucl. Mat. 33 (1969) 324
- [7] Holmes, J.J.; ANS Transactions 12, Nov. 1 (1969) 117
Seattle Conference 15. - 19. Juni 1969
- [8] Bullough, R., Perrin, R.C.; Radiation damage in Reactor Materials Vol. 2 (1969), 233, IAEA-Wien
- [9] Hudson, J.A. Mazey, D.J., Nelson, R.S.; Proc. of the BNES, European Conference Reading (1971), p 213
- [10] Claudson, T.T. et al.; Radiation damage in Reactor Materials Vol. 2 (1969) 168, IAEA-Wien
- [11] Harkness, S.D., Che-YuLi; Radiation damage in Reactor Materials Vol. 2 (1969) 189
- [12] Bullough, R., Eyre, B.L.; AERE-Report - R 6284 Harwell
- [13] Boltax, A., et al.; ANS-Conference New Orleans, April 13 - 15, 1971

XXIX. Einfluß der Hochtemperaturversprödung auf das Zeitstand-
und Kriechverhalten metallischer Werkstoffe

von

Ch. Wassilew

Inhalt:

1. Einleitung
2. Vorstellungen zur Hochtemperaturversprödung
3. Beeinflussung der Hochtemperaturversprödung durch
mechanische Vorbehandlungen
4. Schlussfolgerungen

1. Einleitung

Bei bestrahlten austenitischen Stählen und Nickel-Basis-Legierungen, beobachtet man, neben einer durch Stoßprozesse hervorgerufenen "Tieftemperaturversprödung", deren Ausheiltemperatur zwischen $0,3$ und $0,5 T_s$ (T_s = Schmelztemperatur in $^{\circ}K$) liegt, eine oberhalb ca. $0,5 T_s$ auftretende von der Bestrahlungstemperatur weitgehend unabhängige Hochtemperaturversprödung. Die Hochtemperaturversprödung zeigt sich vor allem in einem Abfall der Bruchdehnung ohne Änderung der Streckgrenze im Zugversuch oberhalb einer Prüftemperatur von 500 bis $600^{\circ}C$ sowie einer Erniedrigung der Standzeit bzw. der Zeitstandfestigkeit und ebenfalls einem starken Abfall der Bruchdehnung im Zeitstandversuch. Als Ursache der Versprödung ist das durch (n, α) -Reaktionen gebildete Helium anzusehen, das sich auf Grund der geringen Löslichkeit in Form von Blasen vorwiegend an den Korngrenzen ansammelt und so zur Verminderung der Duktilität bei hohen Temperaturen führt. Die Tatsache, daß die Versprödung auch durch eine Hochtemperaturglühung nicht rückgängig gemacht werden kann und dieser Duktilitätsverlust meist ohne Streckgrenzerhöhung auftritt, schließt andere Möglichkeiten, wie z.B. Bildung von feinverteilten Ausscheidungen durch Entmischungsvorgänge aus.

Bei einer Bestrahlung der austenitischen Stähle und Nickel-Basis-Legierungen mit thermischen Neutronen ist die Heliumproduktion vorwiegend über die $^{10}B(n, \alpha) ^7Li$ -Reaktion möglich. Bei einer Bestrahlung mit schnellen Neutronen dagegen tragen alle anderen Elemente wie Ni, Cr und Fe über (n, α) -Reaktionen mehr oder weniger zur Heliumbildung bei.

Eine deutliche Identifizierung des Heliums als verantwortliches Element für die Versprödung erbrachten Zyklotron - Bestrahlungen [1]. Die Ergebnisse dieser Versuche, bei denen getrennt

unterschiedliche Mengen von Helium und Lithiumkernen in Stahlfolien eingeschossen wurden, ließen eine deutliche Versprödung nur bei den mit Helium beschossenen Proben erkennen. Damit wird die beobachtete Versprödung nach einer Neutronenbestrahlung verständlich, da alle Stähle oder Nickellegierungen, wie die Analysen zeigen, Bor in Form von Verunreinigungen oder in geringer Konzentration als Legierungselement enthalten. Überraschend jedoch ist der Befund, daß diese Versprödung bereits bei 10^{-7} bis 10^{-8} Atom - % He einsetzt.

2. Vorstellungen zur Hochtemperaturversprödung

Da nun die austenitischen Stähle und Nickel-Basis-Legierungen bei hohen Temperaturen zur Ausbildung interkristalliner Risse vom "Wedge Typ" neigen, während sie bei tiefen Temperaturen transkristallin brechen, deutet darauf hin, daß die Korngrenzenfestigkeit mit steigender Temperatur stärker abnimmt als die Kornfestigkeit. Diese Aussage gibt zwar noch keine Hinweise auf die im einzelnen ablaufenden Vorgänge, sie zeigt aber, daß sich die Hochtemperaturversprödung ausschließlich auf die Vorgänge beim interkristallinen Bruch auswirkt. Ein interkristalliner Bruch entsteht dadurch, daß sich an den Korngrenzen, während der Verformung, kleinste Hohlräume bilden, die Ausgangspunkt für einen Riß sind. Die Versprödung, d.h. Herabsetzung der Bruchdehnung und Zeitstandfestigkeit infolge Helium - Ausscheidungen ist darauf zurückzuführen, daß die Hohlräume, zu deren Bildung im unbestrahlten Material je nach Werkstoff eine mehr oder weniger große plastische Verformung notwendig ist, im bestrahlten Werkstoff in Form der Helium-Blasen sehr viel früher vorliegen und so das Einsetzen des Bruches erheblich beschleunigen. Aus den gleichen Gründen führt das Vorhandensein der Heliumblasen, wie die Versuche zeigen, zu einer Verschiebung des Übergangs transkristalliner - interkristalliner Bruch zu tieferen Temperaturen. Damit solche Hohlräume wachsen und zu einem Riß führen können, müssen sie eine bestimmte Größe haben, wenn man voraussetzt, daß das Wachstum

über eine Leerstellenkondensation erfolgt, was zumindest für den Bruch im Kriechversuch angenommen wird.

Dieser kritische Blasenradius für eine angelegte Spannung σ ergibt sich zu

$$r_k = \frac{0,77 \gamma}{\sigma}$$

wo γ die Grenzflächenenergie zwischen Blase und Matrix ist ($\gamma = 1500 \text{ erg/cm}^2$).

Es ist denkbar, daß die an den Korngrenzen liegenden He-Blasen mit $r > r_k$ unter der angelegten Spannung durch Leerstellenkondensationen weiterwachsen und schließlich bei Berührung mehrerer Blasen einen Bruch in der Korngrenze auslösen. Zweifellos zeigen die austenitischen Stähle und die Nickellegierungen eine besonders ausgeprägte Tendenz zum interkristallinen Bruch, die nicht nur durch die chemische Zusammensetzung, sondern offensichtlich auch noch eine Folge der Gitterstruktur ist, wie aus Abb. 1 ersichtlich [2]. Das Auftreten der Hochtemperaturversprödung oberhalb der α - γ -Umwandlung dokumentiert sich auch in einem deutlichen Übergang vom transkristallinen zum interkristallinen Bruch.

Sicherlich erfaßt die hier bisher in kurzer Form geschilderten Vorstellungen über den Mechanismus der Hochtemperaturversprödung nicht völlig die ablaufenden komplizierten Vorgänge dieser Erscheinung. Diese Modellvorstellungen wurden aus diesem Grunde auch schon verschiedentlich modifiziert. Trotz allem ist es mit Hilfe dieser Vorstellungen möglich, Schlüsse mit dem Ziel zu ziehen, die Hochtemperaturversprödung zu vermeiden oder zumindest ihr Ausmaß zu verringern.

3. Beeinflussung der Hochtemperaturversprödung durch mechanisch-thermische Vorbehandlungen

Da es nicht möglich ist, die Erzeugung von Helium zu verringern, muß man zur Verminderung der Hochtemperaturversprödung entweder versuchen die Neigung des Werkstoffes zum interkristallinen Bruch zu verringern oder die Helium-Konzentration in den Korn -

grenzen herabzusetzen, da nur die in den Korngrenzen ausgeschiedenen Heliumblasen versprödet wirken.

Durch eine geeignete mechanisch-thermische Vorbehandlung kann man bei den ausscheidungsfähigen austenitischen Stählen die Hochtemperaturversprödung verringern, insbesondere dann, wenn das Helium über (n, α)-Reaktionen homogen verteilt erzeugt wird [3, 4, 5]. Das Ziel einer solchen mechanisch-thermischen Vorbehandlung ist es, feinverteilte Ausscheidungen zu erzeugen, die das gebildete Helium im Korn fixieren und damit seine Anreicherung an den Korngrenzen erschweren.

An Hand von Versuchsergebnissen des Stahles 4988 sollen die verschiedenen Möglichkeiten zur Beeinflussung der Hochtemperaturversprödung diskutiert werden. Sehr gut lassen sich die Ergebnisse der 10% kaltverformten, bzw. 10% kaltverformten und anschließend bei 850°C/1h vor der Bestrahlung ausgelagerten Proben hier einordnen. Im ersten Fall (Abb. 2), bei nur 10%iger Kaltverformung, beobachten wir gegenüber einer 10%igen Kaltverformung mit Auslagerung bei 850°C/1h eine stärkere Abnahme der Zeitstandfestigkeit und Duktilität durch die Bestrahlung. Die ermittelten Bruchdehnungen liegen unter 0,5%. Zusätzlich lassen die Ergebnisse erkennen, daß der Einfluß der Bestrahlung sich in einer beträchtlichen Zunahme der minimalen Kriechgeschwindigkeit bemerkbar macht.

Im zweiten Fall wurden die Proben nach 10%iger Kaltverformung noch zusätzlich bei 850°C/1h ausgelagert. Die dabei im Korn gebildeten Karbidausscheidungen wirken als Fallen für die Helium-Atome und führen auf diese Weise zu einer Verringerung der Hochtemperaturversprödung. Dies zeigt sich in einem geringeren Zeitstandfestigkeitsverlust gegenüber der nur 10%igen kaltverformten Proben und einer etwas besseren Nachbestrahlungsduktilität. Während die unbestrahlten Vergleichsproben Bruchdehnungen zwischen 8 und 4% mit einer in Richtung niedrigeren Spannungen abnehmender Tendenz zeigten, liegen die Werte für die bestrahlten Proben bei 0,4 bis 1,6% mit einer zu niedrigeren Spannungen zunehmender Tendenz. Im Gegensatz zu den nur

10% kaltverformten Proben ist die Zunahme der minimalen Kriechgeschwindigkeit nur geringfügig.

Eine weitere Möglichkeit zur Verringerung der Hochtemperaturversprödung besteht in einer Verminderung der Korngröße, da hierdurch sowohl die He-Konzentration in den Korngrenzen als auch die Bruchneigung günstig beeinflusst werden sollten [6].

Die Ergebnisse, die in dieser Richtung am Stahl 4988 durchgeführten Untersuchungen, bestätigen die obige Annahme, doch macht sich der Korngrößeneinfluss erst bei Korngrößen $< 10 \mu m$ deutlich bemerkbar. In unserem Fall liegt die Korngröße des untersuchten Stahles 4988, welcher vor der Bestrahlung 50% kaltverformt bzw. zusätzlich bei $850^{\circ}C/1h$ ausgelagert wurde, bei ca. $5 \mu m$ verglichen mit $30 \mu m$ im normalen Zustand. In Abb. 3 ist die Zeitstandfestigkeit vor und nach Bestrahlung des Stahles 4988 in den beiden Zuständen wiedergegeben. Es ist keine nennenswerte Beeinflussung der Zeitstandfestigkeit durch die Bestrahlung festzustellen. Hier ist allerdings darauf hinzuweisen, daß die Warmfestigkeit und die Kriecheigenschaften durch ein sehr feines Korn negativ beeinflusst werden, sodaß die auf diese Weise erreichte hohe Duktilität nach Bestrahlung mit einem erheblichen Verlust an Festigkeit erkauft werden muß. Zwar tritt auch hier eine gewisse Duktilitätsabnahme auf, doch liegt die Nachbestrahlungsduktilität noch zwischen 10 und 20%, wie aus Abb. 4 ersichtlich. In beiden Fällen zeigte sich eine geringfügige Abnahme der minimalen Kriechgeschwindigkeit nach der Bestrahlung.

4. Schlußfolgerungen

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß die bisherigen Vorstellungen über den Mechanismus der Hochtemperaturversprödung in der Lage sind, experimentell gefundene Zusammenhänge zu erklären. Die sich aus diesen Vorstellungen ergebenden Möglichkeiten der Verbesserung des Bestrahlungsverhaltens konnten experimentell bestätigt werden und führten teilweise zu guten Ergebnissen.

Literatur:

- [1] P.R.B. Higgins and C. Roberts,
Nature Vol 206 (1965) p. 1249
- [2] H. Böhm und H. Hauck
ASTM-Conf. San Francisco (1968)
- [3] D. Krammer et al.
J. of the Iron and Steel Inst.,
Aug. 1969) Vol. 207, page 1141
- [4] H. Böhm, H. Hauck und H.J. Laue
Metall, Oktober (1968)
- [5] J.S. Levy and K.R. Wheeler
BNWL - 211 (1966)
- [6] W.R. Martin and I.R. Weir
J. Nuclear Mat. 18 (1966), 108

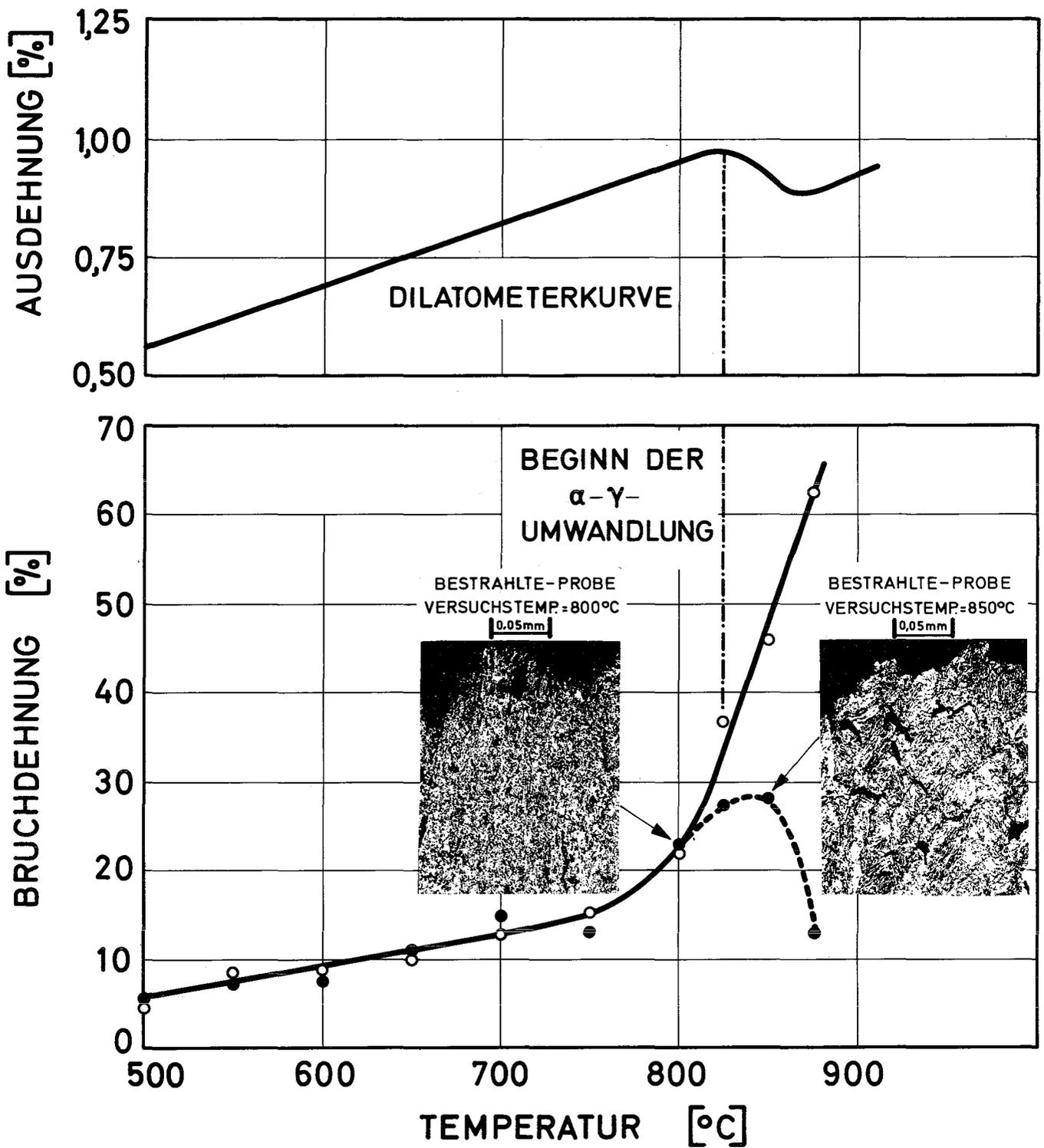


Abbildung 1 : EINFLUß DER NEUTRONENBESTRAHLUNG AUF DIE BRUCHDEHNUNG EINES FERRITISCHEN Cr - STAHLSES.

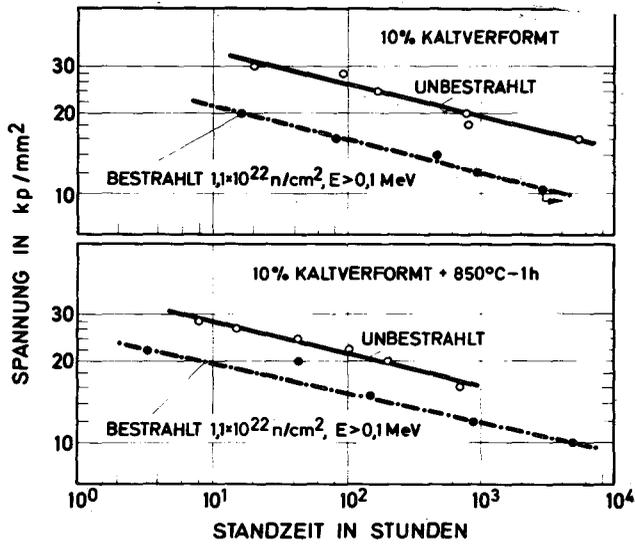


Abb. 2

Zeitstandfestigkeit von X8CrNiMoVNb1613 bei 650°C vor und nach Bestrahlung.

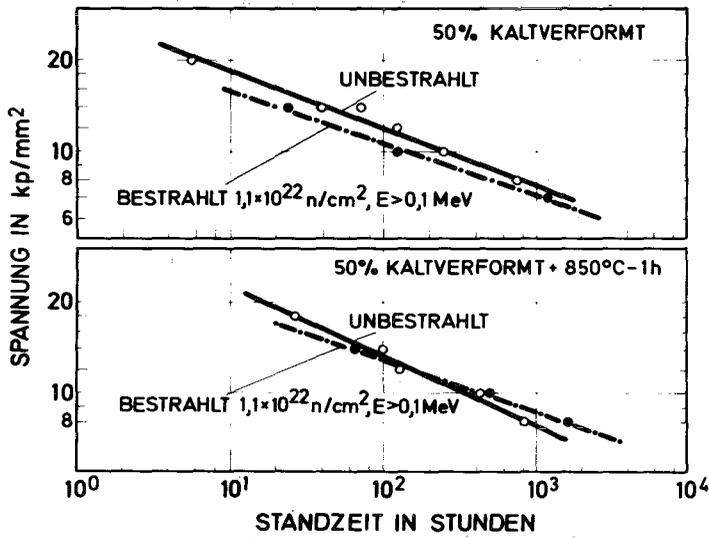


Abb. 3

Zeitstandfestigkeit von X8CrNiMoVNb1613 bei 650°C vor und nach Bestrahlung.

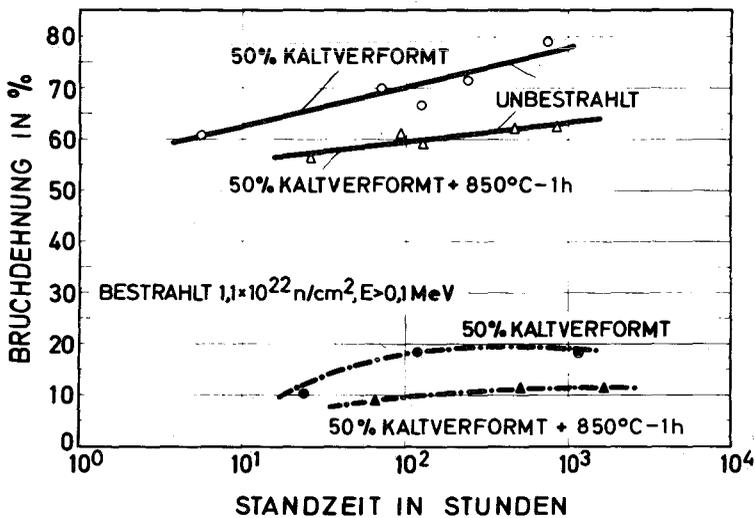


Abb. 4

Bruchdehnung von X8CrNiMoVNb1613 bei 650°C vor und nach Bestrahlung.

XXX. Kurzzeiteigenschaften von austenitischen Stählen
für natriumgekühlte schnelle Brüter

von
G. Heß

Inhalt:

1. Einleitung
2. Möglichkeiten zur Verminderung der Strahlenschäden
der mechanischen Kurzzeiteigenschaften von austenitischen Stählen
3. Ergebnisse aus Hochtemperaturbestrahlungen
4. Zusammenfassung

1. Einleitung

Die Kurzzeiteigenschaften eines Werkstoffes werden am einfachsten durch den einachsigen Zugversuch ermittelt, bei dem die Verformungsgeschwindigkeit während des Versuches konstant gehalten wird. Als Zugproben werden sowohl Rund- als auch Blechproben verwendet. Das Kurzzeitverhalten wird dann anhand eines Spannungs-Dehnungsdiagrammes gemäß Abb. 1 dargestellt. Die Verformungsgeschwindigkeiten betragen bei diesen Versuchen zwischen 0,1 % und 10 % der Zugprobenlänge pro Minute.

Durch Neutronenbestrahlung kommt es in metallischen Werkstoffen zu Schädigungen, die die mechanischen Kurzzeiteigenschaften wesentlich verändern können [1, 2, 3].

Man unterscheidet gewöhnlich zwei Arten von Strahlenschäden, die nach dem Temperaturbereich, in dem sie auftreten, als Tieftemperaturversprödung oder als Hochtemperaturversprödung bezeichnet werden.

Der Übergang von der Tieftemperaturversprödung zur Hochtemperaturversprödung liegt bei austenitischen Stählen im Bereich der halben absoluten Schmelztemperatur. Die Tieftemperaturversprödung beruht auf der Erzeugung von Gitterdefekten durch schnelle Neutronen. Solche Gitterdefekte bewirken eine Streckgrenzenerhöhung, oft auch eine Erhöhung der Zugfestigkeit und immer eine Verminderung der Bruchdehnung.

Bei höheren Temperaturen heilen diese Gitterdefekte teilweise aus, ohne daß jedoch der unbestrahlte Ausgangszustand wieder erreicht wird.

Es kommt vielmehr zu sogenannten Sekundäreffekten, wie die Bildung von Versetzungsnetzwerken usw. Außerdem kann durch die Gitterdefekte das gesamte Ausscheidungsverhalten durch die erhöhte Anzahl von Keimstellen je nach Gefügestand deutlich verändert werden.

Die Hochtemperaturversprödung erfolgt durch die Bildung von Helium durch (n, α) -Reaktionen besonders mit Bor und Stickstoff im thermischen Fluß und durch (n, α) -Reaktionen von insbesondere Chrom, Nickel und Eisen im schnellen Fluß.

Das so erzeugte Helium koaguliert bei höheren Temperaturen in den Korngrenzen zu Blasen und führt zu einem vorzeitigen Aufreißen der Korngrenzen, d.h. der Übergang vom duktilen transkristallinen Bruch zum interkristallinen Spröbruch wird durch die Bestrahlung zu niedrigeren Temperaturen ver-

schohen. Das bedeutet, daß sich die Hochtemperaturversprödung im Gegensatz zur Tieftemperaturversprödung nur auf die Bruchdehnung auswirkt.

Da sich jedoch im Temperaturbereich der Hochtemperaturversprödung auch die Sekundäreffekte bemerkbar machen, ist es oft nur sehr schwer möglich, eine Trennung zwischen der Versprödung durch Helium und der Versprödung durch Gitterdefekte durchzuführen.

2. Möglichkeiten zur Verringerung der Strahlenschäden der mechanischen Kurzzeiteigenschaften von austenitischen Stählen

Es erhebt sich nun die Frage, welche Möglichkeiten sich zur Verminderung der Strahlenschäden in austenitischen Stählen anbieten.

Bei den für einen natriumgekühlten schnellen Brüter in Betracht kommenden stabilisierten austenitischen Stählen 1.4981, 1.4988 und 1.4970 brachten besonders thermisch-mechanische Vorbehandlungen gute Ergebnisse [4]. Aufgrund der sehr komplexen Zusammensetzung dieser Stähle gibt es jedoch keine allgemeingültige optimale Vorbehandlung für alle Stähle. Es hat sich vielmehr herausgestellt, daß schon bei verschiedenen Chargen einer Legierung durch leichte Abweichungen in der chemischen Zusammensetzung unterschiedliche Ergebnisse nach gleichen Vorbehandlungen erzielt wurden.

Im folgenden seien jedoch am Beispiel des Sandvik-Stahles 12R72HV = 1.4970 = X10CrNiMoTiB 1515 einige Möglichkeiten zur Verbesserung des Nachbestrahlungsverhaltens aufgezeigt. Während aus Kurzzeitversuchen nach Bestrahlung keinerlei quantitative Aussagen über die mechanischen Eigenschaften unter Reaktorbedingungen gemacht werden können, ist auf diese Weise aber die Ermittlung des optimalen Werkstoffzustandes möglich. Dieser Stahl wurde im BR 2 in Mol bei einer Bestrahlungstemperatur von etwa 50°C bis zu einer schnellen Dosis von $\phi t \approx 2 \times 10^{21}$ ns/cm² und einer thermischen Dosis von $1,5 \times 10^{21}$ nth/cm² bestrahlt [5]. Der Stahl wurde dabei in den folgenden fünf verschieden vorbehandelten Zuständen eingesetzt:

- a) 1150°C - 15 Stunden
- b) 1150°C - 15 Stunden + 1025°C - 5 Stunden
- c) 1150°C - 15 Stunden + 900°C - 5 Stunden
- d) 1150°C - 15 Stunden + 15 % kaltverformt
- e) 1150°C - 15 Stunden + 15 % kaltverformt + 750°C - 20 Stunden.

Betrachtet man zunächst die Streckgrenzen und Zugfestigkeiten der Zustände a) bis c) (Abb. 2), so stellt man im lösungsgeglühten Zustand a) eine starke Streckgrenzenerhöhung fest, die etwa einer 15 %-igen Kaltverformung entspricht. Dieser Effekt ist eindeutig auf Gitterdefekte zurückzuführen. Mit steigender Testtemperatur nimmt diese Erhöhung noch zu. Hier wird der Sekundäreffekt deutlich. Es kommt in diesem Bereich zu bestrahlungsinduzierten feinverteilten Ausscheidungen, welche als Hindernisse für die Wanderung von Versetzungen wirken. Bei den Zuständen b) und c), bei denen die Karbidausscheidung durch die Vorbehandlung vorweggenommen wurde, werden diese Bestrahlungseffekte geringer. Auch die Bruchdehnungen zeigen den günstigen Einfluß von feinverteilten Karbidausscheidungen nach Auslagerungen bei 1025°C bzw. 900°C (Abb. 3).

Während im lösungsgeglühten Zustand a) schon bei 600°C eine sehr starke Versprödung auftritt, werden bei dem Zustand c) selbst bei 750°C noch Dehnungen von etwa 20 % erreicht.

Autoradiographische Untersuchungen ergaben, daß bei dem bei 900°C ausgelagerten Zustand eine hinsichtlich der Verminderung der Heliumversprödung günstige gleichmäßige Borverteilung vorliegt.

Von den beiden kaltverformten Zuständen d) und e) sei hier nur der Zustand d) kurz erwähnt. Man beobachtet eine nur geringe Streckgrenzenerhöhung durch Bestrahlung, was auf die starke Verfestigung durch die 15 %-ige Kaltverformung zurückzuführen ist. Da aber durch diese Kaltverformung die Duktilität schon im unbestrahlten Zustand sehr herabgesetzt wird, kommt es nach der Bestrahlung zu einer totalen Versprödung (Abb. 4). Aus diesen Ergebnissen lassen sich folgende Schlüsse ziehen:

Um ein günstiges Nachbestrahlungsverhalten austenitischer Stähle zu erreichen, sollten schon im unbestrahlten Ausgangszustand folgende Bedingungen erfüllt sein:

- a) Geringe Neigung zum interkristallinen Bruch.
- b) Günstige Ausscheidungen in den Korngrenzen zur Verfestigung der Korngrenzen.
- c) Feinverteilte Ausscheidungen im Korn, die als Senken für Helium wirken.
- d) Homogene Borverteilung.
- e) Ausreichende Duktilität im unbestrahlten Zustand.
- f) Ein möglichst thermisch stabiler Zustand.

Aufgrund solcher Ergebnisse wurden die Zustände für die im folgenden beschriebenen Hochtemperaturbestrahlungen festgelegt. Vom Sandvik-Stahl liegen zur Zeit noch keine Ergebnisse aus Hochtemperaturbestrahlungen vor.

3. Ergebnisse aus Hochtemperaturbestrahlungen

In den Tabellen 1 und 2 sind Kurzzeiteigenschaften der Stähle 1.4988 und 1.4981 nach Hochtemperaturbestrahlungen aufgeführt. Es fällt auf, daß beim Bestrahlungsprojekt Mol 3C die Streckgrenzen des Stahles 1.4988 im bestrahlten Zustand teilweise niedriger liegen als die vergleichbaren Werte der unbestrahlten Proben. Das ist dadurch zu erklären, daß die Bestrahlungstemperatur von 650°C nicht immer eingehalten werden konnte und teilweise erheblich höher lag.

Abb. 5 zeigt die Veränderungen der Streckgrenzen und Gleichmaßdehnungen des Stahles AISI 304 nach Bestrahlung im EBR II [6]. Man sieht die sehr starke Streckgrenzenerhöhung durch die Neutronenbestrahlung. Bei Testtemperaturen oberhalb 760°C deutet sich eine Versprödungsverminderung und ein Abbau der Streckgrenzenerhöhungen an. Den Einfluß der Neutronendosis zeigen die Abb. 6 und 7 [7].

Man stellt fest, daß die Dosisabhängigkeit der Streckgrenzenerhöhungen mit zunehmender Testtemperatur geringer wird.

Die Abb. 8 und 9 verdeutlichen den Einfluß unterschiedlicher Bestrahlungstemperaturen auf die Kurzzeiteigenschaften des Stahles AISI 304 im Temperaturbereich zwischen 370°C und 700°C nach einer EBR II-Bestrahlung [8]. Besonders auffallend ist die erhebliche Streckgrenzenerhöhung (über 600%) und die fast völlige Versprödung nach einer Bestrahlung bei 400°C ($\phi t = 3,3 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2 \text{ E} > 0.1 \text{ MeV}$).

Auch der Stahl AISI 316 wurde nach einer EBR II-Bestrahlung in zwei verschiedenen Gefügeständen geprüft [9]. Abb. 10 zeigt die Veränderungen der Bruchdehnungen und der Streckgrenzen. Im lösungsgeglühten Zustand erfolgte auch hier eine sehr starke Streckgrenzenerhöhung. Im kaltverformten Zustand kommt es erwartungsgemäß nur noch zu sehr geringen Streckgrenzenerhöhungen durch Bestrahlung. Allerdings wurden in diesem Zustand nur sehr geringe Bruchdehnungen gemessen.

4. Zusammenfassung

Am Beispiel des Sandvik-Stahles 12R72HV wird erläutert, wie sich die Strahlenschädigung der mechanischen Kurzeiteigenschaften nach Bestrahlung im BR 2 in Mol durch geeignete Vorbehandlungen vermindern läßt.

Es zeigt sich, daß besonders Glühungen, die zu einer homogenen Borverteilung und zu feinverteilten Ausscheidungen im Korn, sowie zu Korngrenzen gleiten hemmenden Ausscheidungen in den Korngrenzen führen, die Kurzzeitversprödung merklich verkleinern. Der Einfluß mechanisch-thermischer Vorbehandlungen wird aus den Ergebnissen des Bestrahlungsprojektes Mol 3C am Stahl 1.4988 deutlich. Man sieht, daß nach geringer Kaltverformung durch eine nachfolgende Glühung bei 850°C die Duktilität nach Bestrahlung erhöht wird. Demgegenüber wird die Bruchdehnung in einem 50 % kaltverformten Zustand durch eine Glühung bei 850°C verschlechtert.

Einen direkten Vergleich der Stähle 1.4988 und 1.4981 gibt es im Bestrahlungsprojekt Mol 3B/1. Beide Stähle wurden im Zustand "10 % kaltverformt + 850°C - 1 Stunde" bei 650°C bestrahlt. Obwohl der Stahl 1.4988 in diesem Zustand unbestrahlt eine höhere Bruchdehnung hatte, zeigt der Stahl 1.4981 nach Bestrahlung höhere Dehnungswerte. Dieser Stahl wurde auch im Bestrahlungsprojekt DIDO M 4 in verschiedenen thermisch-mechanisch vorbehandelten Zuständen bestrahlt. Auch hier brachte der oben erwähnte Zustand "10 % kaltverformt + 850°C - 1 Stunde" gute Ergebnisse.

Übersichtshalber sind noch einige Literaturwerte der Legierungen AISI 304 und AISI 316 aufgeführt, jedoch ist ein direkter Vergleich wegen der sehr unterschiedlichen Bestrahlungsbedingungen nicht möglich.

Literatur:

- [1] A.C. Roberts, D.R. Harries "Effects of Irradiation on the High Temperature Tensile Properties of Austenitic Stainless Steel" ASTM Spec. Techn. Publication No. 426
- [2] J.R. Weir, Jr. "Radiation Damage at High Temperatures" SCIENCE Vol. 156 No. 3783, June 1967
- [3] Harries, D.R. "Neutron Irradiation Embrittlement of Austenitic Stainless Steels and Nickel Base Alloys" Journ. British Nucl. Energy Society, Vol. 5, 1966
- [4] H. Böhm, H. Hauck, G. Heß "Untersuchungen über die Hochtemperaturversprödung nach Neutronenbestrahlung von 16/13-CrNi-Stählen Journ. of Nucl. Mat. 24 (1967)
- [5] H. Böhm, G. Heß "Einfluß thermisch-mechanischer Vorbehandlungen auf das Bestrahlungsverhalten eines Titan-stabilisierten 15/15 CrNiB-Stahles" International Meeting on Fast Reactor Fuel and Fuel Element, Karlsruhe 1970, paper 732.
- [6] J.J. Holmes, J.E. Irvin (BNW) "Effect of Fast Reactor Irradiation on the Tensile Properties of Type - 304 Stainless Steel" Transactions of the ANS, Vol. 10, 1967
- [7] R. Carlander, S.D. Harkness, F.L. Yaggee "Fast Neutron Effects on Type - 304 Stainless Steel" Nucl.Appl.and Techn. Vol. 7, July 1969
- [8] A.L. Ward, J.J. Holmes "Ductility Loss in Fast Reactor Irradiated Stainless Steel" Nucl. Appl. and Techn. Vol. 9, Nov. 1970
- [9] A.L. Ward, L.D. Blakburn, A.J. Lovell (WADCO) "Mechanical Properties of EBR II - Irradiated 20 % Coldworked Type - 316 Stainless Steel" Transactions of the ANS, Vol. 13, No. 2, Nov. 1970

Tabelle 1: Mechanische Kurzzeiteigenschaften von Stahl 1.4988

Bestrahlungsbedingungen Gefügestand	Testtemperatur 650°C			Testtemperatur 700°C			Testtemperatur 750°C		
	$\sigma_{0,2}$ (kp/mm ²)	σ_B (kp/mm ²)	δ (%)	$\sigma_{0,2}$ (kp/mm ²)	σ_B (kp/mm ²)	δ (%)	$\sigma_{0,2}$ (kp/mm ²)	σ_B (kp/mm ²)	δ (%)
Mol 3C: T = 650°C (6 768 h) $\phi = 1,1 \times 10^{22}$ n/cm ² (schnell) $7,1 \times 10^{21}$ n/cm ² (thermisch)									
<u>10 % kaltverformt</u> bestrahlt	35,2	36,6	0,75	-	-	-	(24,0) ⁺	(24,0) ⁺	0
unbestrahlt	35,3	-	8,60	-	-	-	27,6	30,1	7,2
<u>10 % kaltverformt</u> <u>+ 850°C - 1 h</u> bestrahlt	25,6	28,7	1,5	-	-	-	23,4	23,8	0,4
unbestrahlt	31,0	33,7	12,4	-	-	-	26,9	28,0	9,1
<u>50 % kaltverformt</u> bestrahlt	23,3	30,7	6,6	-	-	-	12,7	16,8	8,0
unbestrahlt	21,2	26,8	47,3	-	-	-	15,6	15,9	67,7
<u>50 % kaltverformt</u> <u>+ 850°C - 1 h</u> bestrahlt	19,8	28,0	5,0	-	-	-	13,1	18,4	6,5
unbestrahlt	22,1	27,0	51,0	-	-	-	17,3	18,4	54,3
Mol 3B: T = 650°C (3 770 h) $\phi t = 7 \times 10^{21}$ n/cm ² > 0,1 MeV									
<u>10 % kaltverformt</u> <u>+ 850°C - 1 h</u> bestrahlt	33,0	37,0	2,6	23,3	23,3	0,3	(13,8) ⁺	(13,8) ⁺	0
unbestrahlt	30,5	38,5	19,7	13,7	35,4	22,2	14,3	28,2	16,0
DIDO M1: T = 650°C (2 900 h) $\phi t = 4,5 \times 10^{20}$ n/cm ² (schnell) $1,2 \times 10^{21}$ n/cm ² (thermisch)									
<u>1050°C - 1 h</u> <u>+ 750°C - 3-5 h</u> bestrahlt	26,4	31,2	1,9	-	-	-	-	-	-
unbestrahlt	19,9	37,5	23,5	-	-	-	-	-	-

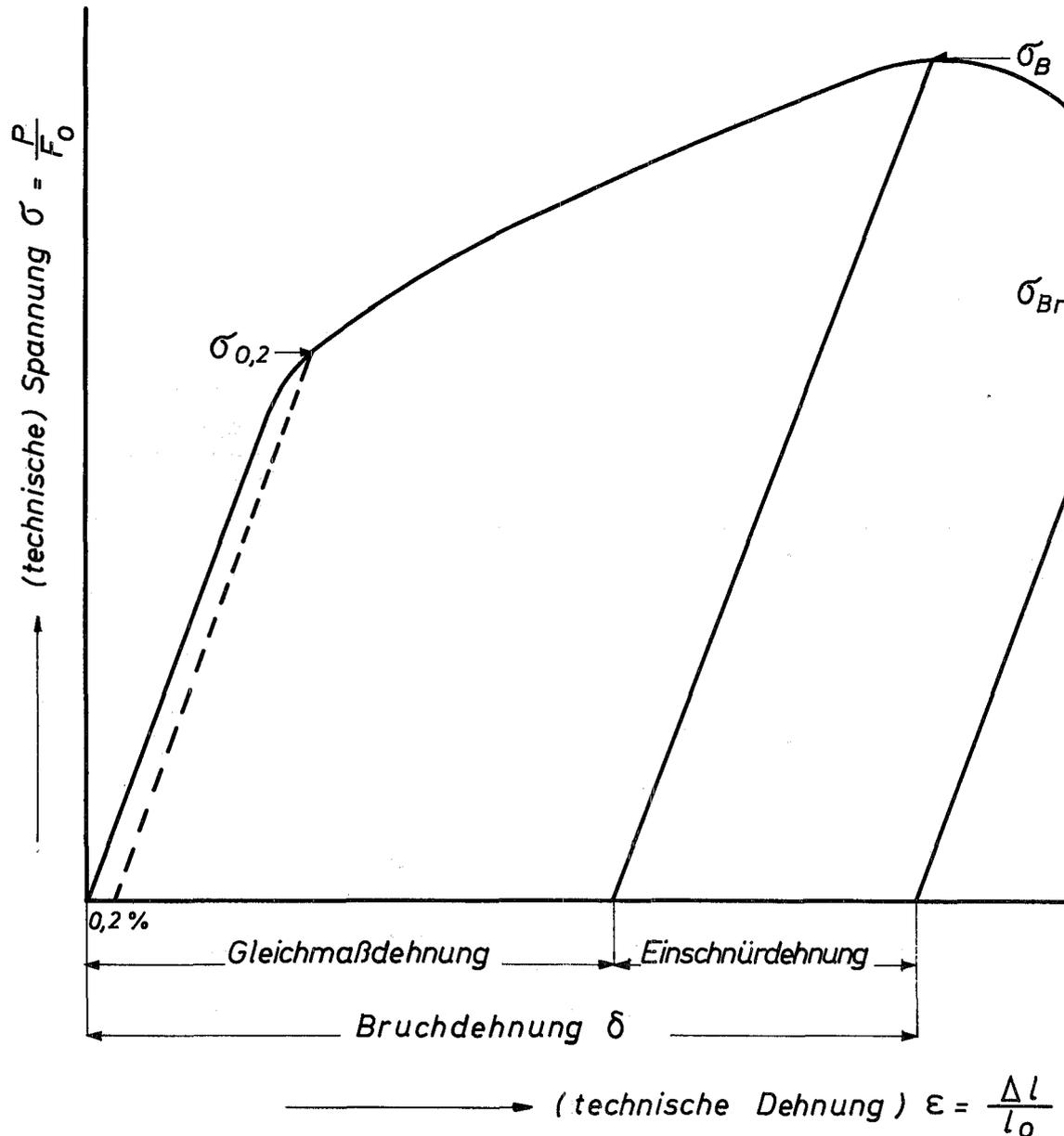
Verformungsgeschwindigkeit 0,01/min

⁺Streckgrenze wurde nicht erreicht!

Tabelle 2: Mechanische Kurzzeiteigenschaften von Edelstahl 1.4981

Bestrahlungsbedingungen Gefügestand	Testtemperatur 650°C			Testtemperatur 700°C			Testtemperatur 750°C			Testtemperatur 800°C		
	$\sigma_{0,2}$ (kp/mm ²)	σ_B (kp/mm ²)	δ (%)	$\sigma_{0,2}$ (kp/mm ²)	σ_B (kp/mm ²)	δ (%)	$\sigma_{0,2}$ (kp/mm ²)	σ_B (kp/mm ²)	δ (%)	$\sigma_{0,2}$ (kp/mm ²)	σ_B (kp/mm ²)	δ (%)
DIDO M4: T = 650°C (3.000 h) $\phi t = 4 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ (schnell) $= 6 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ (thermisch)												
<u>1050°C - 1 h</u> bestrahlt	23,0	30,5	7,6	22,1	26,5	6,9	17,3	19,8	6,5	11,9	12,7	0,5
unbestrahlt	15,5	28,4	22,0	15,8	22,7	16,2	13,6	17,8	14,5	11,6	11,9	8,6
<u>1050°C - 1 h</u> <u>+ 10% kaltverf.</u> bestrahlt	40,5	43,1	3,0	37,2	37,8	1,3	32,5	32,9	0,9	(5,6)	(5,6)	0
unbestrahlt	36,1	38,2	11,9	31,7	33,6	5,5	28,6	28,9	3,3	19,0	19,3	4,1
<u>1050°C - 1 h</u> <u>+ 10% kaltverf.</u> <u>+ 850°C - 1 h</u> bestrahlt	32,5	36,2	4,5	31,8	32,0	1,6	29,8	30,0	1,2	Probe bei 5 kp gerissen		
unbestrahlt	29,8	33,5	9,9	29,0	30,9	5,0	28,7	29,1	1,8	17,8	18,1	1,8
Mol 3B/1: T = 650°C (3.770 h) $\phi t = 7 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ 0,1 MeV												
<u>10 % kaltverformt</u> <u>+ 850°C - 1 h</u> bestrahlt	28,6	32,0	2,7	21,6	23,8	1,6	21,7	22,7	1,5	-	-	-
unbestrahlt	23,3	29,5	15,2	22,9	27,0	11,7	23,5	26,7	9,0	-	-	-

Verformungsgeschwindigkeit: 0,01/min



$$\sigma = \frac{P}{F_0} = \text{(technische) Spannung}$$

$$P = \text{Last}$$

$$F_0 = \text{Ausgangsquerschnittsfläche}$$

$$\epsilon = \frac{\Delta l}{l_0} = \text{(technische) Dehnung}$$

$$\Delta l = \text{Längenänderung}$$

$$l_0 = \text{Ausgangslänge}$$

$$\sigma_{0,2} = \frac{P_{0,2}}{F_0} = \text{(technische) Streckgrenze}$$

$$\sigma^x_{0,2} = \sigma_{0,2} (1 + \epsilon) = \text{wahre Streckgrenze}$$

$$\sigma_B = \frac{P_{\max}}{F_0} = \text{Zugfestigkeit}$$

$$\sigma_{\text{Bruch}} = \frac{P_{\text{Bruch}}}{F_0} = \text{(technische) Bruchspannung}$$

$$\sigma^x_{\text{Bruch}} = \frac{P_{\text{Bruch}}}{F_1} = \text{wahre Bruchspannung}$$

$$F_1 = \text{Querschnittsfläche beim Bruch der Probe}$$

$$E = \ln(1 + \epsilon) = \text{wahre Dehnung}$$

Abb.1 Spannungs - Dehnungs - Diagramm für den einachsigen Zugversuch

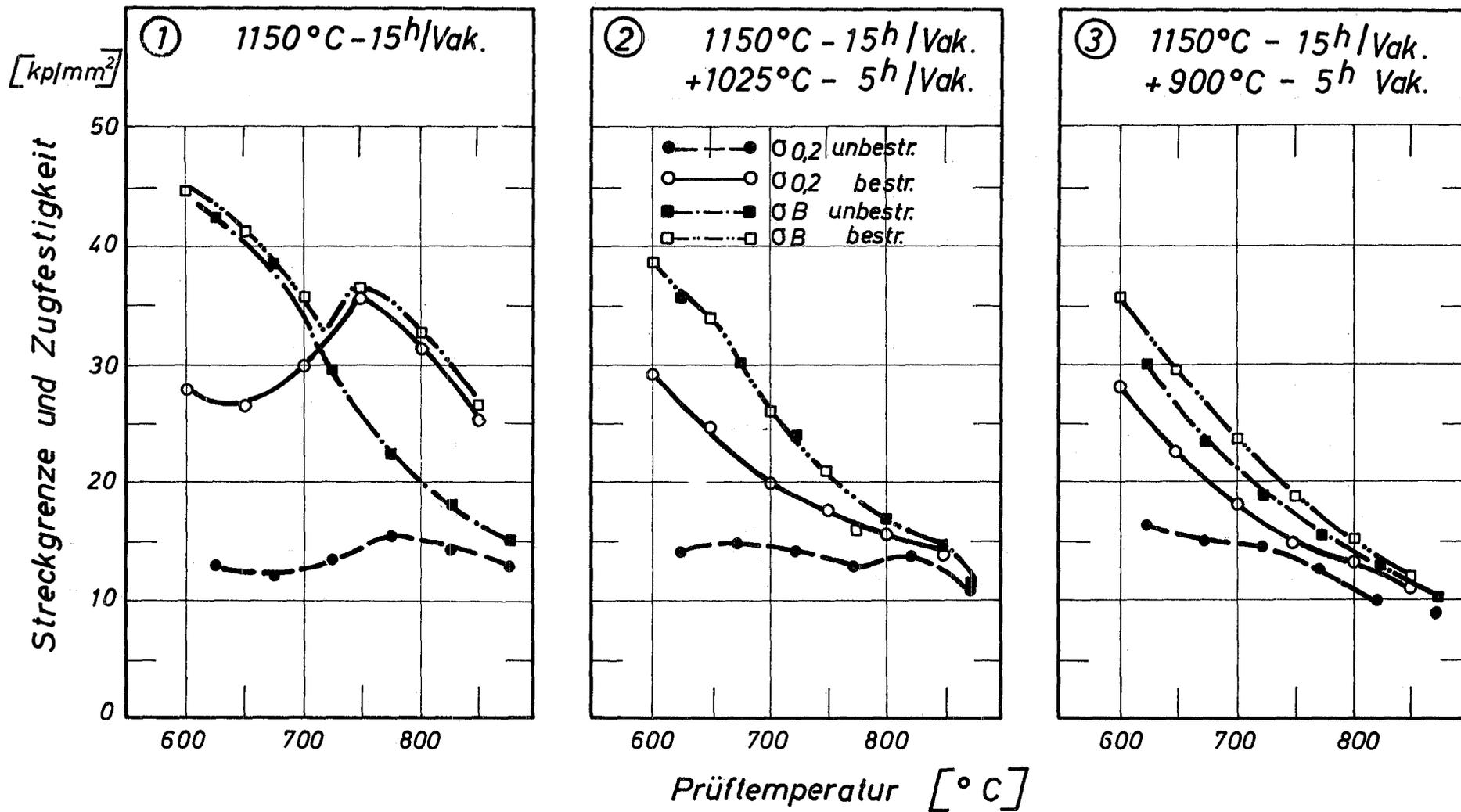


Abb. 2 Einfluß einer Neutronenbestrahlung auf Streckgrenze und Zugfestigkeit des Stahles Sandvik 12R 72HV BR2-Bestrahlung [$\approx 50^\circ\text{C}$] schnelle Dosis $\approx 10^{21} \text{ n/cm}^2$

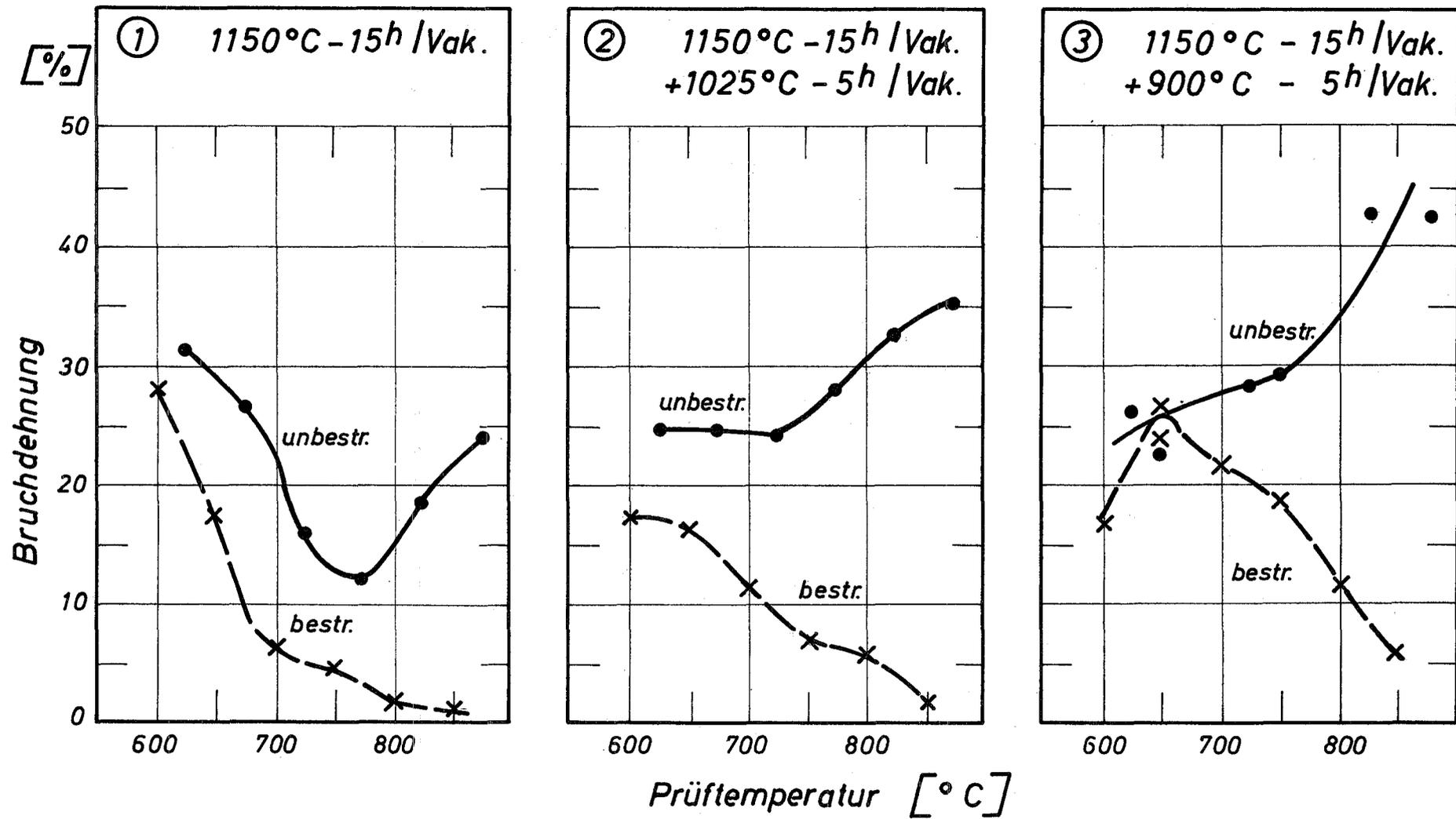


Abb. 3 Einfluß einer Neutronenbestrahlung auf die Bruchdehnung des Stahles Sandvik 12R 72HV BR2-Bestrahlung [≈ 50°C] schnelle Dosis ≈ 10²¹ n/cm²

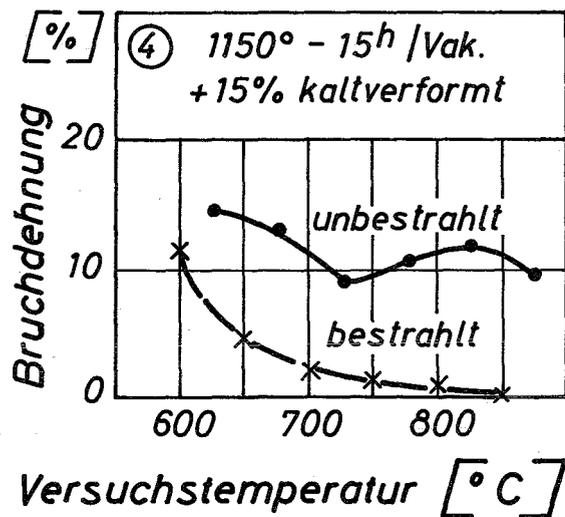
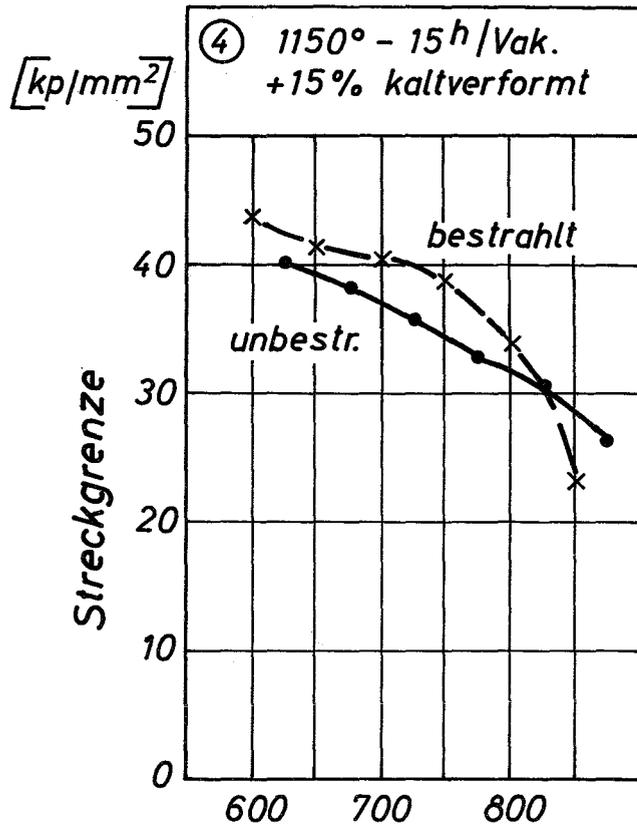


Abb.4: Einfluß einer Neutronenbestrahlung auf Streckgrenzen und Bruchdehnungen des Sandvik - 15Cr 15Ni - Stahles 12 R 72 HV Mol - Bestrahlung [50°C] Dosis $\approx 10^{21} \text{ n/cm}^2$

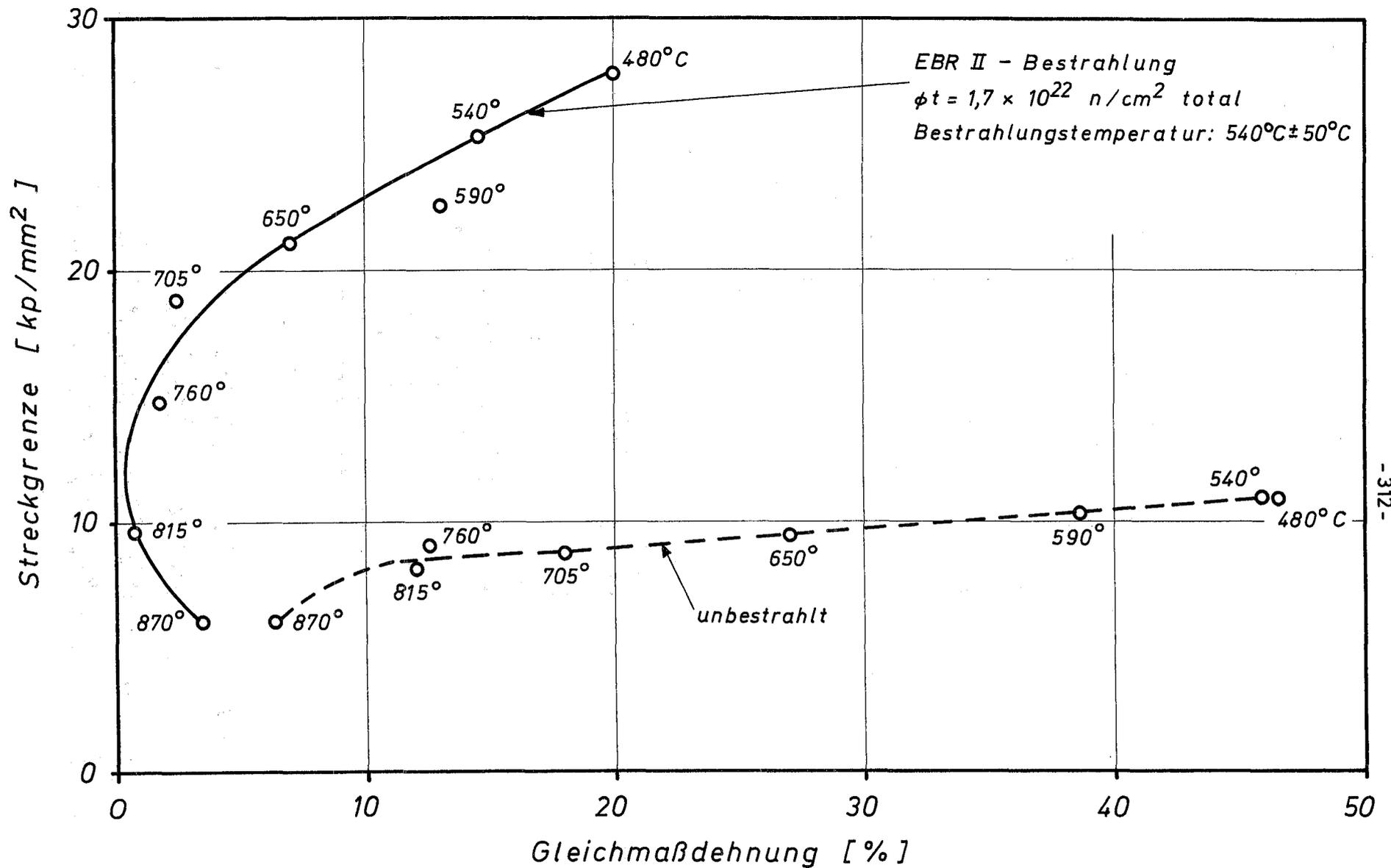


Abb. 5 Einfluß der Neutronenbestrahlung im EBR II auf Streckgrenze und Gleichmaßdehnung von AISI 304 [6]

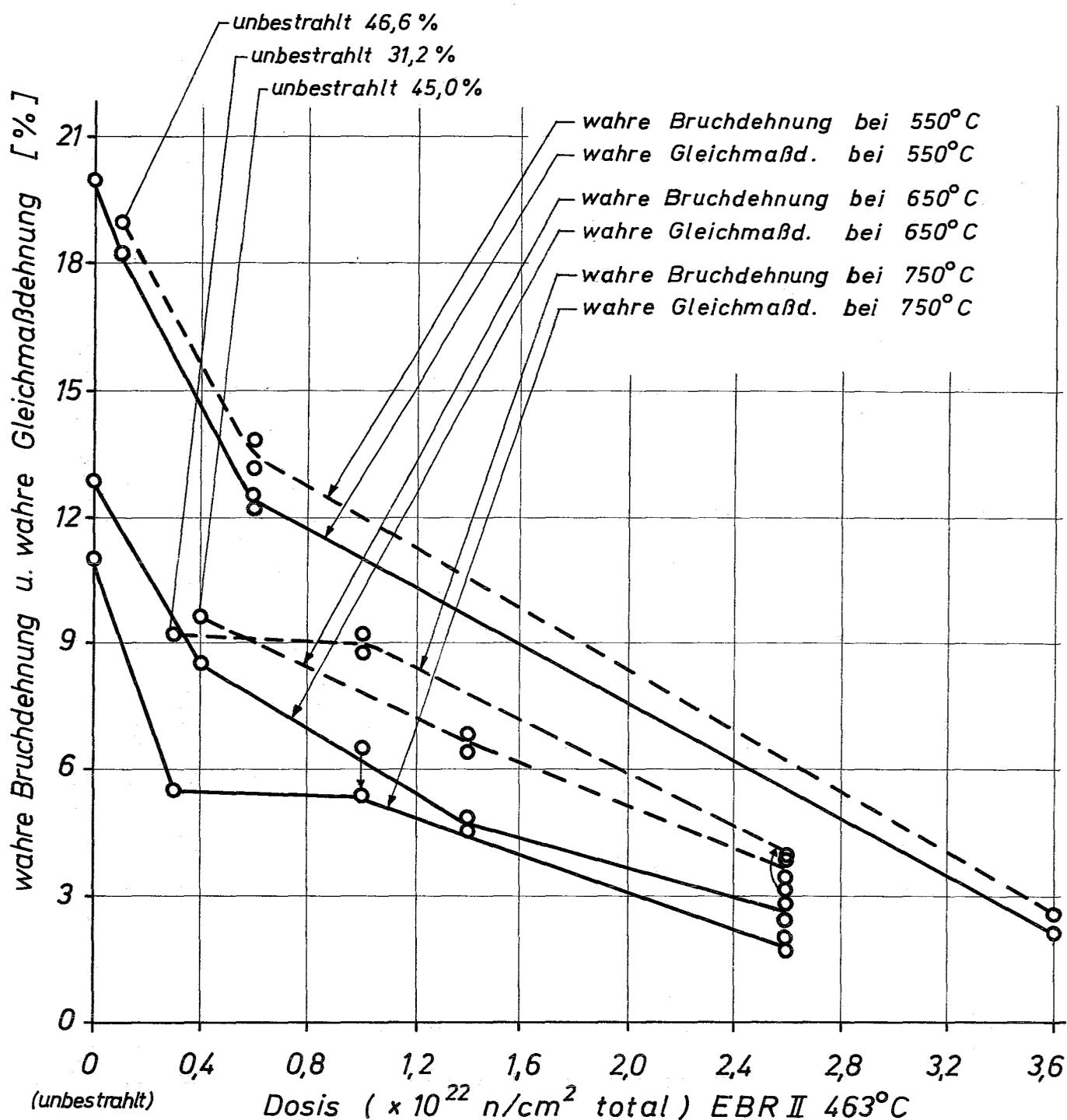


Abb. 6 Abhängigkeit der wahren Gleichmaßdehnung und der wahren Bruchdehnung des Stahles AISI 304 von der Bestrahlungsdosis bei verschiedenen Testtemperaturen [7]

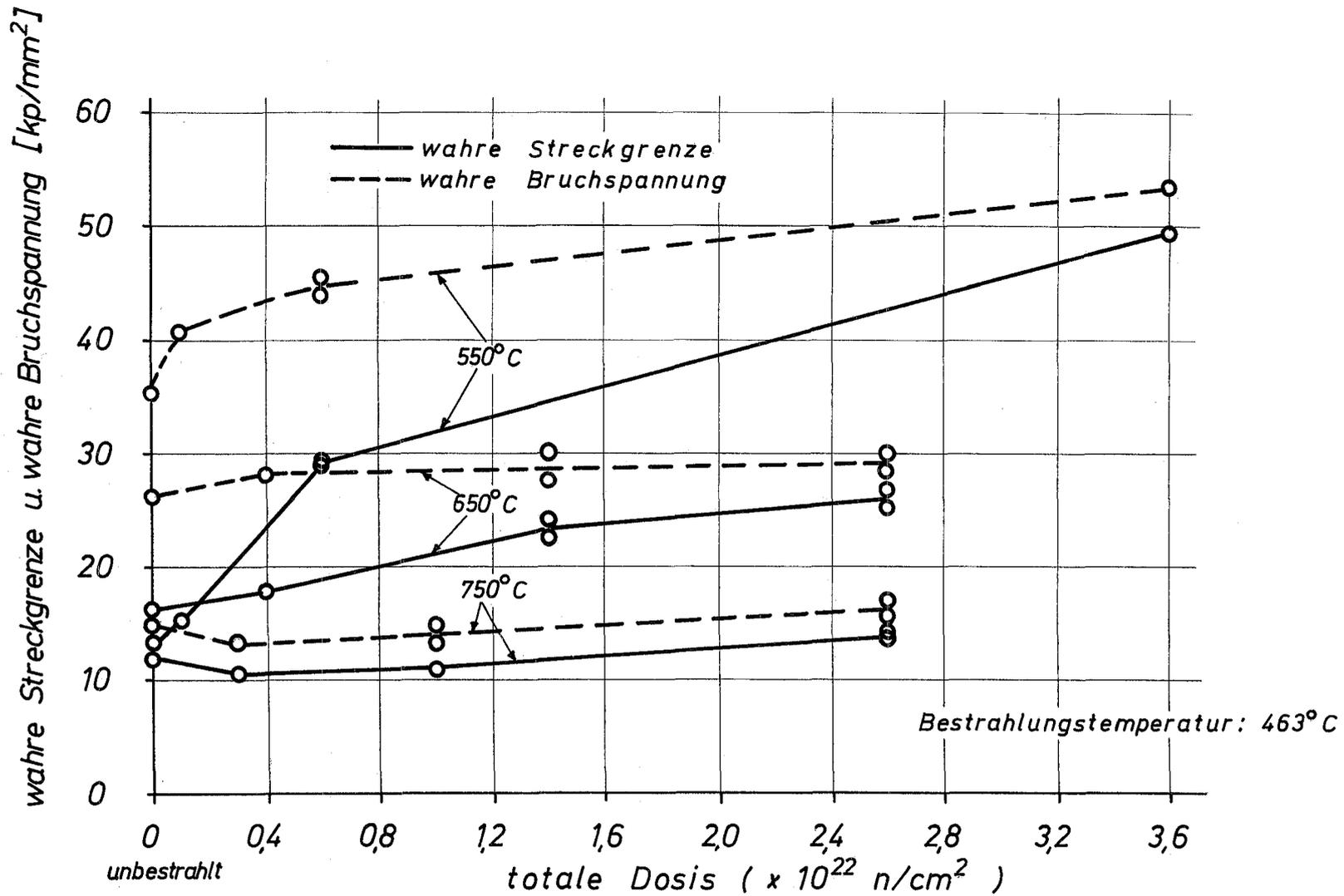


Abb.7 Einfluß der Neutronenbestrahlung im EBR 2 auf die wahre Streckgrenze und wahre Bruchspannung des Stahles AISI 304 bei verschiedenen Testtemperaturen [7]

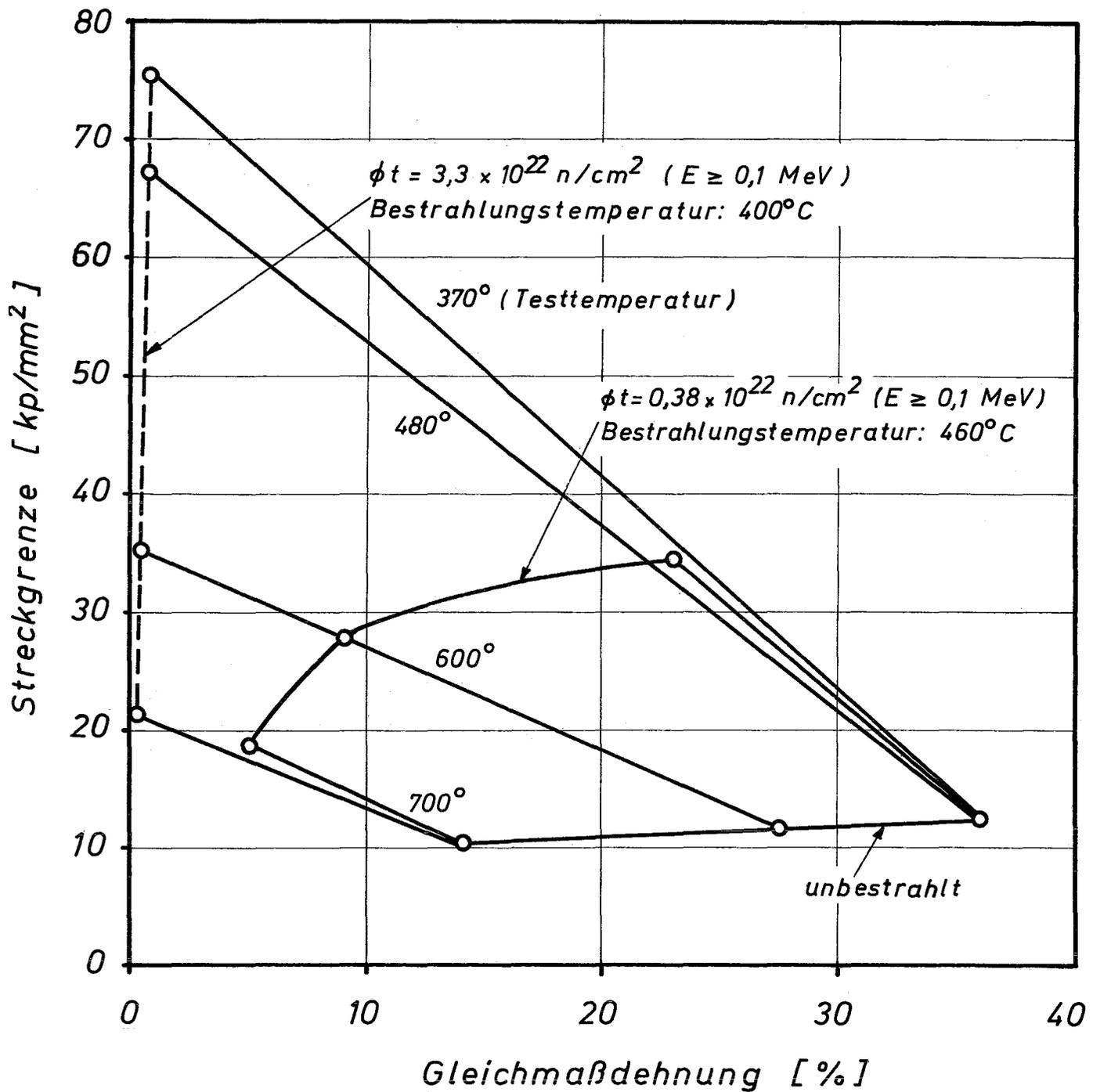


Abb. 8 Einfluß der Neutronenbestrahlung im EBR II auf Streckgrenzen und Gleichmaßdehnungen von AISI 304 bei verschiedenen Testtemperaturen [8]

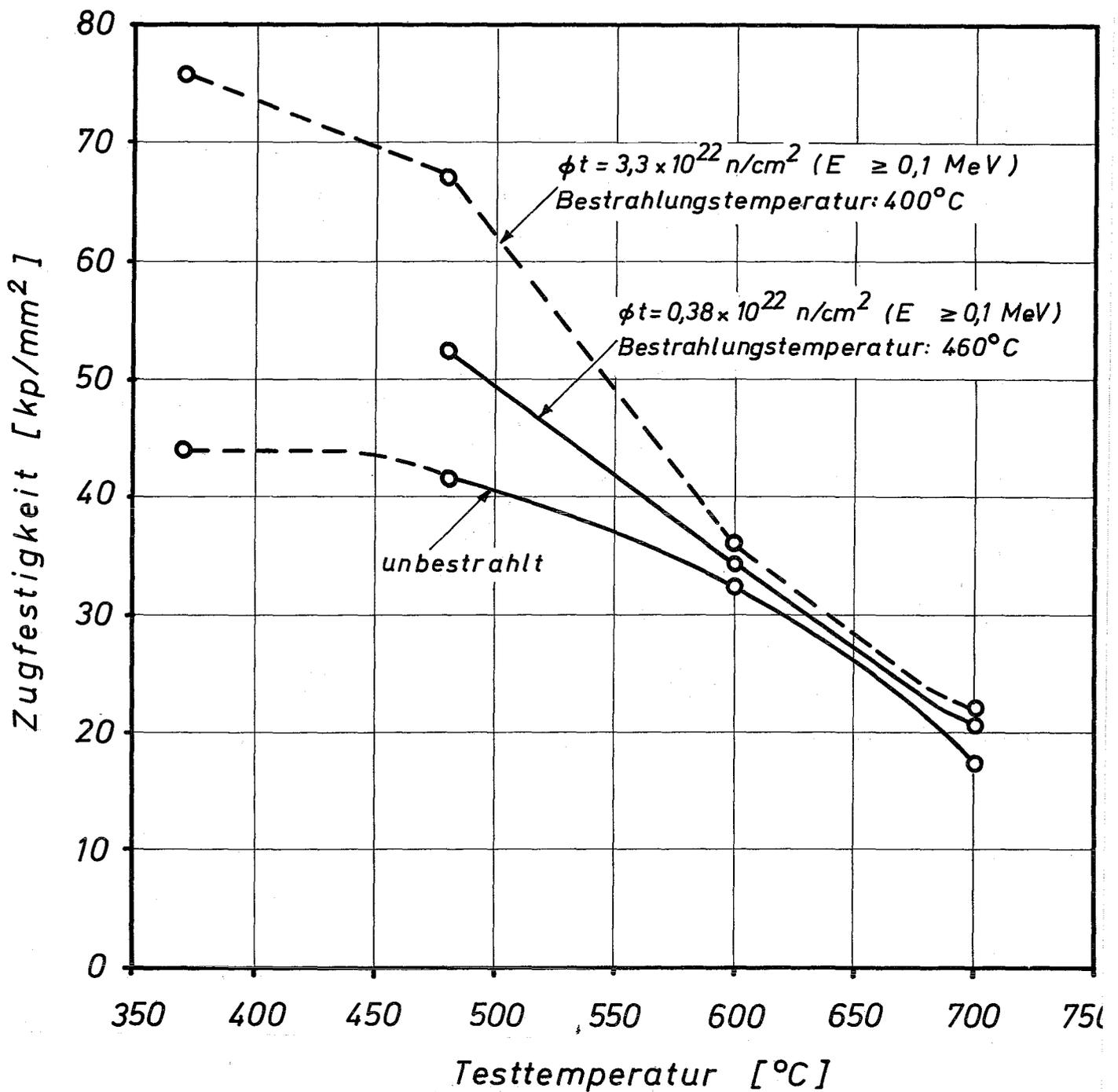


Abb.9 Veränderung der Zugfestigkeiten von AISI 304 nach Neutronenbestrahlung im EBR II [8]

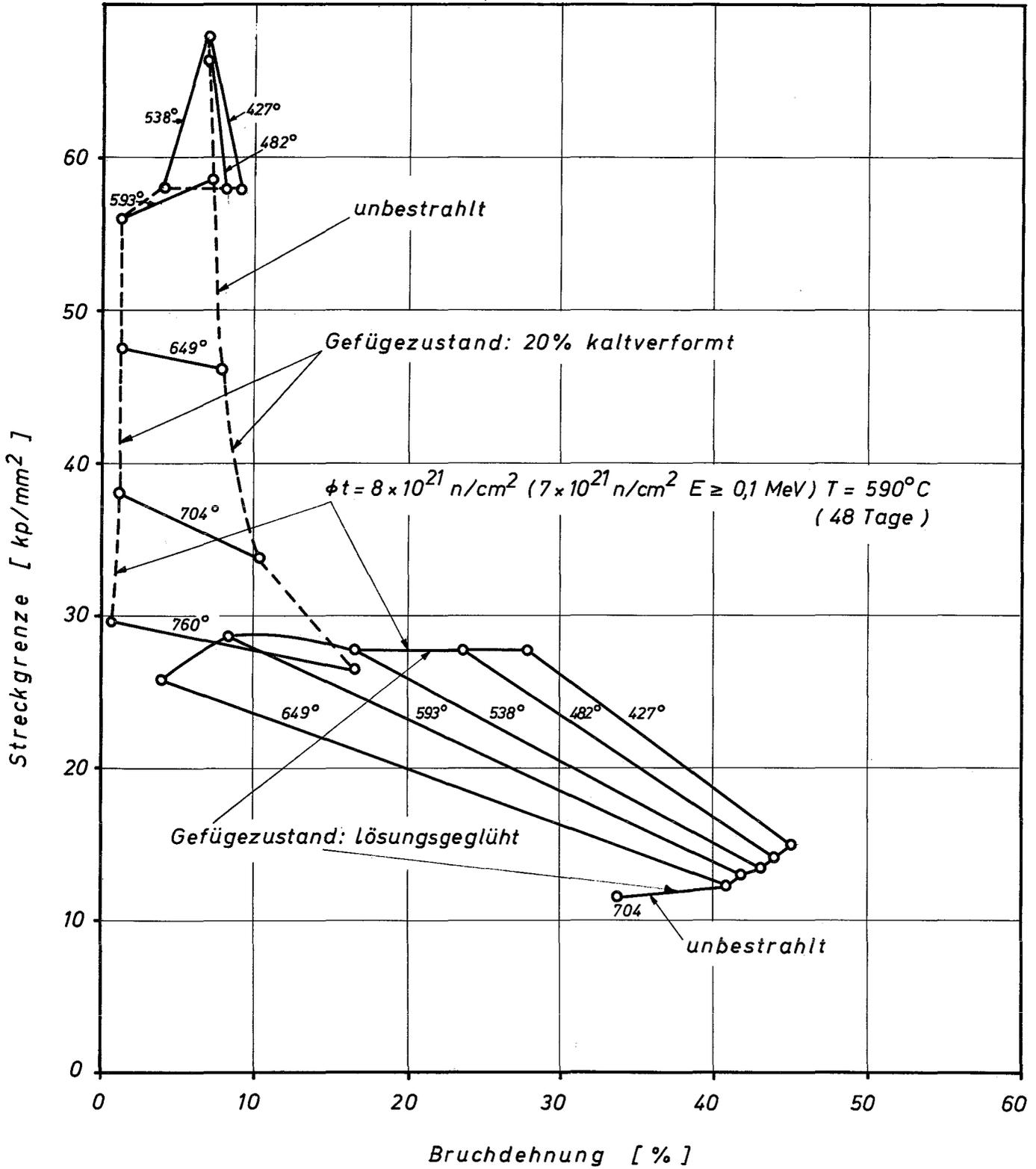


Abb. 10 Einfluß der Neutronenbestrahlung im EBR II auf die Streckgrenzen und Bruchdehnungen zweier Gefügestände von AISI 316 [9]

XXXI. Zur Verträglichkeit keramischer Brennstoffe
mit metallischen Hüllmaterialien

von
O. Götzmann

Inhalt:

1. Einleitung
2. Die Verträglichkeit ohne Bestrahlung
 - 2.1 Oxidischer Brennstoff
 - 2.2 Nitridischer Brennstoff
 - 2.3 Karbidischer Brennstoff
3. Die Verträglichkeit unter Bestrahlung
 - 3.1 Allgemeines
 - 3.2 Oxidischer Brennstoff
 - 3.3 Karbidischer und nitridischer Brennstoff

1. Einleitung

In Brennstäben wird der Brennstoff in Form einer keramischen Verbindung - UO_2 bzw. $(\text{U,Pu})\text{O}_2$, UN bzw. $(\text{U,Pu})\text{N}$ oder UC bzw. $(\text{U,Pu})\text{C}$ - eingebracht. Als Hüllmaterialien dienen hauptsächlich Stähle, Nickellegierungen und möglicherweise Vanadinlegierungen. Das Verträglichkeitsverhalten dieser Materialkombinationen soll hier betrachtet werden.

Die Verträglichkeit umfaßt die Beschreibung folgender chemischer Wechselwirkungen zwischen Hüllmaterial und Brennstoff unter Betriebsbedingungen:

- a) Die Bildung neuer Phasen in der Kontaktfläche zwischen Brennstoff und Hülle.
- b) Diffusion von Spaltprodukten und Metalloiden (O,N,C) in die Hülle, die zu Ausscheidungen in der Hülle bzw. zu ihrer Versprödung führen.
- c) Die Diffusion von Hüllmaterialkomponenten in den Brennstoff, die eine Schwächung der Hülle und eine Veränderung des Brennstoffes (neue Phase, Sintern) zur Folge hat.

Ziel von Verträglichkeitsuntersuchungen ist es, aufgrund der Beobachtung dieser Wechselwirkungserscheinungen die Betriebseignung eines Brennstoff-Hüllmaterial-Systems, d.h. eines Brennstabes für geforderte Betriebsbedingungen festzustellen und/oder Grenztemperaturen zu ermitteln, bis zu denen diese Systeme eingesetzt werden können.

Manche Reaktionserscheinungen an oder in der Hülle sind vergleichbar mit jenen, die bei der "äußeren Korrosion" (Verträglichkeit Hülle/Kühlmittel) auftreten. Ein Abtrag der Korrosionsprodukte oder des Hüllmaterials, wie man es bei der äußeren Korrosion durch das Kühlmittel beobachten kann, findet bei Unverträglichkeitsreaktionen zwischen Brennstoff und der Hülle nicht statt. Die Kinetik der Reaktionen wird daher im wesentlichen durch ein parabolisches Zeitgesetz bestimmt.

Bei den hier betrachteten Brennstoffen - UO_2 , UN und UC bzw. den Mischbrennstoffen mit den entsprechenden Plutoniumverbindungen - handelt es sich bei den auftretenden Wechselwirkungen im wesentlichen um Metalloidaustauschreaktionen. Uran- bzw. Plutoniumaustauschreaktionen und Komplexreaktionen - also beide Austauschreaktionen zusammen - spielen eigentlich nur beim nitridischen und - in verstärktem Maß - beim karbidi-schen Brennstoff in Verbindung mit den hier behandelten Hüllmaterialien eine größere Rolle.

2. Das Verhalten ohne Bestrahlung

2.1 Oxidischer Brennstoff

2.1.1 UO_2

Die Verträglichkeit von oxidischem Brennstoff schien zunächst nicht sehr problematisch. Das Urandioxid ist eine sehr stabile Verbindung - auch im Vergleich mit anderen Metalloxiden. Außer Zirkon ist kein anderes Element der hier in Frage kommenden Hüllmaterialkomponenten in der Lage, Urandioxid zu reduzieren. Uranaustauschreaktionen sind wenig wahrscheinlich, weil die Stabilität der möglichen uranhaltigen intermetallischen Verbindungen (UNi_5 , UFe_2) nicht so groß ist. Eine Analogie zu der bekannten Komplexreaktion mit Aluminium zu Aluminiumoxid und Uranaluminid, die bei etwa $500^\circ C$ stattfindet, ist mit Hüllmaterial für Hochtemperaturbrennelemente nicht zu erwarten.

Urandioxid ist jedoch eine Verbindung mit einem großen Homogenitätsgebiet. Die Sauerstoffaktivität steigt von sehr geringen Werten für unterstöchiometrisches UO_2 bis zu hohen Werten für überstöchiometrisches UO_2 an. Die Wahrscheinlichkeit von Reaktionen hängt daher sehr stark von der Stöchiometrie des Brennstoffs ab. Für stöchiometrisches oder nur leicht überstöchiometrisches Urandioxid genügen jedoch geringe Sauerstoffreaktionen mit der Hülle, um mit dieser im thermodynamischen Gleichgewicht zu stehen, so daß diese Reaktionen in kurzer Zeit zum Stillstand kommen.

Out-of-pile-Untersuchungen ergaben fast durchweg gute Verträglichkeitsergebnisse von stöchiometrischem und unterstöchiometrischem UO_2 mit Stählen, Nickellegierungen und Vanadinlegierungen mit Titangehalten bis etwa 10 Gew.-% [1]. Stähle und Nickellegierungen zeigten bis $1300^\circ C$ mit UO_2 keine Reaktionen. Bei etwa $1400^\circ C$ schmolzen die Proben. Vanadium und Vanadinlegierungen mit niederen Titangehalten blieben bis $1500^\circ C$ mit UO_2 stabil. Überstöchiometrisches UO_2 dagegen ist in der Lage, hochchromhaltige Stähle (20 Gew.-%) und Nickellegierungen schon bei $800^\circ C$ aufzuoxidieren [2]. Vanadinlegierungen nehmen ebenfalls vom überstöchiometrischen UO_2 Sauerstoff auf [3].

Die Reaktionserscheinungen sind bei den einzelnen Hüllmaterialtypen unterschiedlich. Stähle und Eisenbasislegierungen vom Typ Incoloy 800 neigen zu Korngrenzenausscheidungen. Bei den Nickelbasislegierungen bilden sich eher Schichten an der Phasengrenze zwischen Hülle und Brennstoff. Bei den Vanadinlegierungen kommt es zu Ausscheidungen der Legierungspartner im Korn und in den Korngrenzen des Hüllmaterials.

2.1.2 $(U,Pu)O_2$

Der Zusatz von Plutonium erhöht die Sauerstoffaktivität des unterstöchiometrischen Oxids erheblich. Es sind daher mit dem stöchiometrischen und auch unterstöchiometrischen $(U,Pu)O_2$ Reaktionen möglich, die mit UO_2 nicht stattfinden. Bei Stählen und Nickelbasislegierungen ist der Unterschied nicht sehr groß. Out-of-pile-Untersuchungen mit Mischoxid und Stählen ergaben selbst bei Temperaturen bis zu $1000^\circ C$ über 1000 Stunden gute Verträglichkeit [5, 6, 7]. Größere Reaktionen sind bei diesen Materialkombinationen in-pile beobachtet worden. Hierbei spielen jedoch andere Einflüsse noch eine Rolle, auf die später eingegangen wird.

Von größerer Bedeutung ist der Einfluß des Plutoniumzusatzes bei Vanadinwerkstoffen. Die thermodynamischen Daten lassen selbst mit stark unterstöchiometrischem $(U,Pu)O_2$ noch Reaktionen mit Vanadium erwarten, erst recht mit Legierungselementen wie Ti, Zr, Ta und Nb. Glühungen von $(U_{0,8}Pu_{0,2})O_{1,97}$ mit Vanadium und titan- und chromhaltigen Vanadinlegierungen bei $700^\circ C$ und $800^\circ C$ über 1000 Stunden ergaben deutliche Härtesteigerungen in den Hüllmaterialien, die auf eine Sauerstoffaufnahme zurückgeführt werden [8]. Vanadinoxid scheint sich dabei jedoch nicht gebildet zu haben. Möglicherweise ist die Aufoxydation der Vanadinhülle nicht so kritisch, wie sie sich aus der Thermodynamik darstellt. Bei einem Kühlmedium niedriger Sauerstoffaktivität (Natrium < 15 ppm O) ist es denkbar, daß der Sauerstoff durch die Hülle hindurch wandert und vom Kühlmittel aufgenommen wird, ohne daß sich in der Hülle eine Sauerstoffkonzentration einstellt, durch die diese unzulässig stark versprödet wird bzw. mehr versprödet wird als durch die Reaktionen mit dem Kühlmittel selbst.

2.2 Nitridischer Brennstoff

2.2.1 UN

Uranmononitrid ist eine Verbindung ohne nennenswerten Homogenitätsbereich. Es läßt sich jedoch leicht einphasig darstellen. Komplikationen aufgrund von nichtstöchiometrischer Zusammensetzungen ergeben sich daher praktisch nicht. Seine Stabilität ist erheblich geringer als die von UO_2 , so daß Uranaustauschreaktionen eher wahrscheinlich sind. Auch im Vergleich mit anderen Metallnitriden schneidet es schlechter ab als UO_2 (gegenüber anderen Oxiden), so daß auch Metalloidaustauschreaktionen hier eher stattfinden können.

Mit austenitischen Stählen ist UN bis $1000^\circ C$ gut verträglich [1] [9]. Eine leichte Nitrierung ist möglich, wenn der Stahl titanstabilisiert ist. Bei Incoloy 800 sind feine Titanausscheidungen schon bei 760° nach 1000 Stunden zu erkennen [2]. Reaktionen zu UNi_5 treten, je nach Nickelgehalt der Legierung, erst über 1100° oder $1200^\circ C$ auf. Mit Nickelbasislegierungen findet man schon bei $900^\circ C$ oder leicht darüber die kritische Reaktion zu UNi_5 [1, 9].

Die Verträglichkeit mit Vanadinlegierungen hängt vom Titangehalt ab. Legierungen mit 20 % Ti reagieren schon bei $800^\circ C$ mit UN. Nach 144 Stunden sind Diffusionen von Stickstoff und Uran in die Hülle gemessen worden [1]. Legierungen mit geringen Titangehalten (≤ 5 Gew.-%) können bis $900^\circ C$ mit UN verträglich sein. Ab $1000^\circ C$ ist die Uran- und Stickstoffdiffusion jedoch schon erheblich. Reinvanadin erwies sich bei $1000^\circ C$ nach 144 Stunden noch gut verträglich. Hier ist jedoch eine verstärkte Aufoxydation des Brennstoffs durch Sauerstoff aus der Hülle zu beobachten [1].

2.2.2 (U,Pu)N

Ein unterschiedliches Verträglichkeitsverhalten von (U,Pu)N gegenüber UN ist nicht zu erwarten. Die thermodynamischen Daten geben sogar eine höhere Stabilität für PuN als für UN an.

Mehrere Untersuchungen an Mischnitrid ergaben eine gute Verträglichkeit mit Stahl vom Typ 304, Incoloy 800 und Inconel 625 bei Temperaturen bis zu $1000^\circ C$ über Glühzeiten von 1000 und 5000 Stunden [10, 11]. Bei $700^\circ C$ und $800^\circ C$ zeigte sich (U,Pu)N sogar über

10 000 Stunden als voll verträglich mit Stahl vom Typ 304 bei Natriumbindung [12]. In einigen Fällen wurden Reaktionen bei 1000°C beobachtet, die auf überschüssige Anteile an Uran bzw. Plutonium oder an Stickstoff zurückgeführt werden [13].

Auch zwischen Vanadin und $(U_{0,8}Pu_{0,2})N$ wurden bei 1000°C nach 1000 Stunden keine Reaktionen beobachtet, die auf eine Unverträglichkeit zurückgeführt werden konnten. Wie beim UN wurde auch hier eine Oxydation des Brennstoffs durch Sauerstoff aus der Hülle gefunden [13].

2.3 Karbidischer Brennstoff

2.3.1 UC

Allgemein ist die Verträglichkeit von karbidischem Brennstoff mit Hüllmaterialien schlechter als die von oxidischem und nitridischem Brennstoff. Der Wert der freien Bildungsenthalpie von UC ist wesentlich geringer als der des Oxids und unter üblichen Versuchsbedingungen auch geringer als der des Nitrids. Reaktionen zu uranhaltigen Phasen sind deshalb noch wahrscheinlicher als beim Nitrid. Die Affinität des Kohlenstoffs ist zu einer Reihe von Hüllmaterialbestandteilen, wie Ta, Nb, Zr, Ti und V, größer als zu Uran. Die Affinität von Chrom ist nur wenig geringer. Kohlenstoffaustauschreaktionen sind daher in vielen Fällen wahrscheinlich.

Neben der geringen thermodynamischen Stabilität des Urankarbids kommt für das Verträglichkeitsverhalten dieses Brennstoffs noch erschwerend hinzu, daß UC unter 1000°C einen eng begrenzten Homogenitätsbereich hat und sich nicht ohne größeren Aufwand einphasig herstellen läßt. Abweichungen von der stöchiometrischen Zusammensetzung führen bei Kohlenstoffüberschuß zur Bildung von UC_2 oder U_2C_3 und bei Kohlenstoffmangel zu freiem Uran. Die Anwesenheit der zweiten Phase bedeutet einen erheblichen Anstieg des chemischen Potentials der überschüssigen Komponente (Kohlenstoff bzw. Uran) und damit höhere Reaktionswahrscheinlichkeit. Das Verträglichkeitsverhalten hängt daher wesentlich von der Zusammensetzung des Brennstoffs ab. Am besten verhält sich stöchiometrisches, einphasiges UC (Sauerstoff- und Stickstoffanteile müssen dabei als Kohlenstoffäquivalent gerechnet werden). Unterstöchiometrisches UC führt im Kontakt mit

Eisen- und Nickelbasislegierungen zu erheblichen Reaktionen zu UFe_2 bzw. UNi_5 . Überstöchiometrisches UC verursacht eine raschere Aufkohlung der Hülle.

Die Angaben aus der Literatur ergeben kein einheitliches Bild des Verträglichkeitsverhaltens [14]. Viele Berichte lassen ein gutes Verhalten von stöchiometrischem UC mit austenitischen Stählen bis zu $800^\circ C$ über längere Zeit (5000 Stunden) bei Helium-Bindung erkennen. Mit überstöchiometrischem UC werden im allgemeinen schon bei tieferen Temperaturen Reaktionen gefunden. Es gibt jedoch auch Angaben über gute Verträglichkeit bis zu $900^\circ C$ und über Reaktionen auch unter $800^\circ C$. Bei den Versuchen, die über gute Verträglichkeit mit understöchiometrischem UC bei Temperaturen von $800^\circ C$ und darüber berichten, wird sehr wahrscheinlich die Oxydation des Urans durch Sauerstoff aus dem System (Natrium, Hüllmaterial) die Reaktivität des Urans abgebaut haben. Bei $900^\circ C$ reagiert UC, in dem sich noch freies Uran befindet, schon nach kurzen Zeiten (144 Stunden) katastrophal [15]. Überstöchiometrisches UC führt bei $800^\circ C$ bei den austenitischen Stählen nach 500 Stunden zu Ausscheidungen entlang den Korngrenzen bis zu Tiefen zwischen 400 und $800 \mu m$ [16]. Höher nickelhaltige Legierungen (> 30 Gew.-% Ni) sind schon bei $700^\circ C$ mit UC nicht mehr verträglich [16].

Natrium als Bindemittel erhöht im allgemeinen die Geschwindigkeit der Kohlenstoffreaktion. Der Effekt ist vor allem beim überstöchiometrischen UC und bei Temperaturen unter $800^\circ C$ deutlich erkennbar. Die Verhältnisse bei Helium-Bindung sind denen bei direktem Kontakt ähnlich.

Die Vanadinlegierungen mit Titangehalten bis etwa 5 Gew.-% scheinen nach [16] vor allem bei Temperaturen über $800^\circ C$ mit UC besser verträglich zu sein als die austenitischen Stähle. Am deutlichsten zeigt sich der Unterschied bei $1000^\circ C$, wo die Stähle schon nach kurzer Zeit (100 Stunden) vollkommen durchreagieren, während sich bei den Vanadinlegierungen nur Reaktionszonen von 30 bis 50μ nach 700 Stunden bilden.

2.3.2 (U,Pu)C

Das Verhalten von (U,Pu)C dürfte direkt mit dem von UC vergleichbar sein [14]. PuC ist zwar nach den thermodynamischen Daten noch

etwas weniger stabil als UC. Da man es jedoch meist mit einem nicht-stöchiometrischen Brennstoff zu tun hat und die betrachteten Systeme fast durchweg thermodynamisch instabil sind, das Verträglichkeitsverhalten also im wesentlichen durch die Kinetik der Reaktionen bestimmt wird, dürfte die geringere Stabilität des PuC am Verhalten des Mischkarbids nichts ändern. Die Phasenzusammensetzung des Mischkarbids ist bei überstöchiometrischer Zusammensetzung z.T. anders als beim UC: Beim Mischkarbid liegt als zweite Phase im allgemeinen das Sesquikarbid vor.

Beim reinen Urankarbid dagegen haben wir beim geschmolzenen, überstöchiometrischen Brennstoff UC_2 als zweite Phase und nur nach einer Wärmebehandlung bzw. Sintern entsteht das U_2C_3 . In vielen Fällen, vor allem bei Na-Bindung, hat sich gezeigt, daß die Kohlenstoffabgabe des Brennstoffs und damit die Aufkohlung der Hülle bei Anwesenheit von Dikarbid wesentlich höher ist als bei Anwesenheit des Sesquikarbids, so daß als verträglichkeitsverbessernde Maßnahme eine Wärmebehandlung des Brennstoffs zur Verringerung des Dikarbidanteils vorgeschlagen worden ist.

In der Literatur [14, 17] werden über viele Verträglichkeitsuntersuchungen mit dem Mischkarbid berichtet, sie geben im wesentlichen das bei UC beschriebene Bild wieder.

3. Zum Verhalten unter Bestrahlung

3.1 Allgemeines

Die bisher gemachten Ausführungen stützen sich im wesentlichen auf out-of-pile-Untersuchungen und beschreiben nicht umfassend das Verhalten, das im Reaktor zu erwarten ist. Während des Betriebes eines Reaktors kommen noch Einflüsse auf das Verträglichkeitsverhalten hinzu, die bei den üblichen out-of-pile-Untersuchungen nicht berücksichtigt werden. Im wesentlichen sind dies die Spaltprodukte, der Temperaturgradient und die Strahlung. Über den Einfluß der Strahlung auf die chemischen Wechselwirkungsvorgänge ist man sich noch nicht ganz im klaren. Allgemein wird eine Beschleunigung der Reaktion bei den niederen Temperaturen erwartet. Überlegungen darüber, ob die Strahlung am Zustandekommen von Transportreaktionen

im Brennstoff beteiligt ist, sind schon angestellt worden [18]. Gravierender auf das Verträglichkeitsverhalten scheinen die Einflüsse des Temperaturgradienten und der Spaltprodukte zu sein. Der Temperaturgradient im Brennstoff bewirkt allgemein eine Erhöhung der Aktivität des Metalloids im Brennstoff an der Phasengrenze Brennstoff/Hülle. Eine Ausnahme macht das überstöchiometrische Oxid. Eine Sauerstoffverteilung im Brennstoff, die sich über das Gleichgewicht mit der CO/CO_2 Gasphase einstellt, bewirkt beim überstöchiometrischen Oxid eine Erhöhung des O/M-Verhältnisses in der heißen Zentralzone und eine Erniedrigung in der kalten Außenzone des Brennstoffs. Umgekehrt ist es beim unterstöchiometrischen Brennstoff: Die Sauerstoffverteilung über das CO/CO_2 Verhältnis bewirkt hier eine Erniedrigung der Stöchiometrie im Innern und eine Erhöhung außen. An der Übergangszone Brennstoff/Hülle wird man es aus diesem Grunde praktisch immer mit einem stöchiometrischen Oxid zu tun haben.

Die Spaltprodukte können zu erheblichen Reaktionen führen, wie aus Verträglichkeitsuntersuchungen zwischen simulierten Spaltprodukten und verschiedenen Hüllmaterialien geschlossen werden kann [19]. Auch in hochabgebrannten Brennstäben sind Reaktionen beobachtet worden, die in vielen Fällen auf die Wirkung von Spaltprodukten zurückgeführt werden [20]. Als schädlichstes Spaltprodukt in Bezug auf die Hüllmaterialverträglichkeit erscheint das Cäsium. Tellur und Jod können ebenfalls Probleme aufwerfen.

Einen weiteren Einfluß auf das Bestrahlungsverhalten bewirkt die Stöchiometrieverschiebung infolge des Abbrandes von Uran- bzw. Plutoniumatomen. Die bei der Spaltung der Schwermetallatome freiwerdenden Metalloidatome werden von den Spaltprodukten nicht vollständig abgebunden, so daß sie zu Reaktionen mit der Hülle zur Verfügung stehen.

3.2 Oxidischer Brennstoff

In der Praxis wird man es immer mit unterstöchiometrischem Brennstoff zu tun haben, da mit überstöchiometrischem Oxid die Stahlhüllen aufoxidiert werden können. Schwach unterstöchiometrisches U-Pu-Mischoxid ($\text{O/M} \sim 1,98$) läßt sich leicht durch eine reduzierende Sinteratmosphäre herstellen. Für ein gutes Verträglichkeitsverhalten

für höhere Abbrände sollte jedoch ein stärker unterstöchiometrischer Brennstoff verwendet werden, da die Stöchiometrieverschiebung beim Mischoxid beträchtliche Werte erreichen kann. Ein stark unterstöchiometrischer Brennstoff ($O/M \sim 1,90$) kann erhalten werden bei höherem Plutoniumanteil ($\sim 30 \text{ Mol.-% PuO}_2$) und bei Verwendung von Sauerstoffgettern (Zirkon- oder Titanschwamm) im Sinterraum. Über das Ausmaß der Stöchiometrieverschiebung werden für den oxidischen Brennstoff unterschiedliche Angaben gemacht. Die Diskrepanzen hängen im wesentlichen damit zusammen, daß der Berechnung nicht die gleichen Spaltproduktausbeuten zugrundegelegt werden. Die Art und Menge der Spaltprodukte hängt außer vom Grad des Abbrandes noch vom Spaltstoff (U-235 oder Pu-239), von der Energie der Spaltneutronen und von der Zeit nach der Spaltung ab [21]. Eine weitere Ursache für Diskrepanzen ist die Bewertung der Seltenen Erden. Obwohl sie sowohl im unterstöchiometrischen wie im überstöchiometrischen Oxid in das Uran- bzw. Plutoniumoxidgitter eingebaut werden, sollten sie bei unterstöchiometrischen Zusammensetzungen wie Sesquioxide und erst bei überstöchiometrischen Zusammensetzungen wie Dioxide bewertet werden. Unter Berücksichtigung dieser Umstände ergibt sich für unterstöchiometrisches UO_2 bei Spaltung von U-235 im thermischen Fluß (0,025 eV), eine Erhöhung des O/M-Verhältnisses um etwa 3,5 bis $4,0 \times 10^{-2}$ nach einem Abbrand von 10 %. Bei unterstöchiometrischem $(U,Pu)O_2$ ist die Erhöhung des O/M-Verhältnisses etwas größer. Sie kann im ungünstigsten Fall nach einem Abbrand von 10 % etwa 0,1 betragen. Die Erhöhung des O/M-Verhältnisses des stöchiometrischen und überstöchiometrischen Brennstoffs ist wesentlich geringer, da bei dem hier herrschenden Sauerstoffpotential Molybdän oxidiert wird und für die Atome der Seltenen Erden, wie schon gesagt, je 2 Atome Sauerstoff statt 1,5 zu verrechnen sind. Das Mischoxid $(U,Pu)O_2$ erfährt dann eine Stöchiometrieerhöhung um etwa $1,5 \times 10^{-2}$ nach einem Abbrand von 10 %. Für reines UO_2 ergibt die Rechnung keine Erhöhung der Stöchiometrie über das Verhältnis $O/M = 2,000$ hinaus.

Die Ergebnisse aus den bisher durchgeführten Nachbestrahlungsuntersuchungen geben kein einheitliches Bild über das Verträglichkeitsverhalten während des Reaktorbetriebes. In früheren Bestrahlungsversuchen (vergl. [20]) wurden keine ernststen chemischen Wechselwirkungen mit der Hülle nachgewiesen, so daß im allgemeinen die

Oxidverträglichkeit als nicht problematisch betrachtet wurde. Die Untersuchungen beschränkten sich jedoch oft auf geringe Abbrände oder hatten nicht das Problem der Hüllmaterialverträglichkeit zum Ziel. Erst in Untersuchungsberichten neuerem Datums (1968/69) werden z.T. starke Reaktionen zwischen oxidischem Brennstoff und Stählen berichtet. Hauptreaktionsprodukt dabei ist Cr_2O_3 oder ein Komplexoxid mit Cr_2O_3 . Über die Beteiligung von Spaltprodukten an den Reaktionen wird vielfach berichtet. Eine spezifische Rolle scheint dabei das Cäsium zu spielen. Es ist eines der häufigeren Produkte, die bei der Spaltung anfallen. Es wird angenommen, daß Wechselwirkungen mit der Hülle erst ab einem bestimmten Sauerstoffpotential im Brennstoff stattfinden, bei dem die Bildung von Cäsium-Chrom-Komplexoiden möglich ist. Zur Klärung der Cäsium-Reaktionsmöglichkeiten bzw. der möglichen Reaktionen mit Spaltprodukten überhaupt, läuft z.Zt. am IMF ein umfangreicheres Untersuchungsprogramm.

Trotz oder wegen der vielen Untersuchungsergebnisse, die aus Nachbestrahlungsuntersuchungen vorliegen, gibt es zur Zeit noch kein einheitlich fundiertes Bild über die Oxidverträglichkeit im Reaktorbetrieb. So kann man aus den Ergebnissen noch keine Angabe über die höchstzulässige Temperatur machen. Schon bei 450°C wurden Reaktionen gefunden, die bei ungefähr gleichem Abbrand bei 650°C nicht beobachtet werden konnten [22]. Es gibt auch Berichte [23], die davon sprechen, daß bis 650°C auch bei hohen Abbränden ($> 10\%$) die Reaktionen auf Zonen bis maximal $25\ \mu$ beschränkt bleiben. Dagegen steht die Aussage [24], daß bei geringeren Abbränden schon unter 600°C starke Reaktionen beobachtet worden sind.

3.3 Karbidischer und nitridischer Brennstoff

Nachbestrahlungsuntersuchungen von Nitriden und Karbiden, auch als Hochleistungsbrennstoffe bezeichnet, sind noch nicht so reichlich vorhanden, wie von Oxiden. Die Ergebnisse deuten jedoch darauf hin, daß sowohl beim Nitrid wie beim Karbid mit keinen anderen Problemen als sie durch die out-of-pile-Untersuchungen schon bekannt sind zu rechnen sind. D.h., UN und (U.Pu)N sind auch unter Reaktorbedingungen mit Hüllen aus austenitischen Stählen gut verträglich. Mit den Karbiden sind je nach Kohlenstoffgehalt mit Aufkohlungserscheinungen zu rechnen.

Die Spaltprodukte scheinen beim Nitrid- und Karbidbrennstoff weniger Schwierigkeiten zu bereiten als beim Oxid. Bei (U,Pu)N sind selbst bei hohen Abbränden ($\sim 10\%$) und Hülltemperaturen von 700°C keine Spaltproduktreaktionen mit der Hülle festgestellt worden [25]. Die gleichen Beobachtungen, allerdings bei geringerem Abbrand, wurden bei (U,Pu)C gemacht [26].

Auch die Stöchiometrieverschiebung ist nach den thermodynamischen Abschätzungen weniger problematisch als beim Oxid. Das Karbid dürfte allenfalls eine geringfügige Aufkohlung während des Abbrandes erfahren. Beim Nitrid ist eine Stickstoffaktivitätserhöhung zu erwarten, sie führt jedoch nicht zu den Reaktionsmöglichkeiten wie beim Oxid.

Literatur:

- [1] O. Götzmann, F. Thümmel, KFK 1081 (1968)
- [2] O. Götzmann, W. Hein, KFK 1086 (1969)
- [3] W. Pollack et al, WCAP-3487-16 (1967)
- [4] T.W. Latimer et al, ANL-7513, -7577 (1968-69)
- [5] T. Lauritzen, GEAP-5633 (1968)
- [6] M. Zambernard, Numec P-102 bis P-105 (1962-63)
- [7] F.M. Smith, BNWL-1101 (1969)
- [8] T.W. Latimer et al, ANL-7513, -7577 (1968-69)
- [9] D.E. Price et al, EMI-1760 (1966)
- [10] D.E. Price, D.P. Moack, EMI-1809 (1967) A 30 ff.
- [11] BNWL-842 (Aug. 1968)
- [12] D.L. Keller et al, EMI-1845 (1968)
- [13] J.C. Hebeisen, D.E. Price, D.P. Moack, Trans.ANS 11 (1968) 104
- [14] O. Götzmann, KFK 1111 (1969) Beitrag VIII
- [15] O. Götzmann, D. Scherbl, KFK 1213 (1970)
- [16] O. Götzmann, P. Hofmann, W. Stumpf, Vortrag Tagung "Fuel and Fuel Elements", Karlsruhe (1970)
- [17] O. Götzmann, GFK, interne Literaturstudie
- [18] C.E. Johnson, C.E. Crouthamel, J.Nucl.Mat. 34 (1970) 101
- [19] P. Hofmann, Vortrag Reaktortagung Berlin 1970
- [20] O. Götzmann, GFK, interne Literaturstudie
- [21] P. Hofmann, GFK, Externer Bericht 6/70-2 (1970)
- [22] K.Q. Bagley, W. Batey, persönliche Mitteilung
- [23] B.F. Rubin, K.J. Perry, GEAP-5760 (1969)
- [24] Andriessen, Belgonucleaire, persönliche Mitteilung
- [25] A.A. Bauer, V.W. Storhok in "Plutonium 1970 and other Actinides" p.532
- [26] J.A. Barner, IA-4669-MS (1971)

XXXII. Natrium-Korrosion von Hüllmaterialien

von
H.U. Borgstedt

Inhalt:

1. Einleitung
2. Korrosionsmechanismen
 - 2.1 Mechanismus der Abtragung von austenitischen Stählen
 - 2.2 Transport interstitieller Elemente im Natrium und Korrosion bei Hüllrohren aus V-15 % Cr - 1 % Ti
 - 2.3 Korrosionsmechanismen anderer potentieller Hüllwerkstoffe
3. Größe der Hüllrohrschädigung durch Natrium
 - 3.1 Hüllrohre aus austenitischen Stählen
 - 3.2 Hüllrohre aus V-15 % Cr-1 % Ti
4. Schlußfolgerungen

1. Einleitung

Unter Korrosion durch flüssiges Natrium soll hier jede Veränderung am Hüllrohr durch die Einwirkung von Natrium und den darin gelösten Stoffen verstanden werden.

Der geschlossene Natriumkreislauf ist gekennzeichnet durch Temperaturgefälle und Systemteile mit unterschiedlichen Strömungsgeschwindigkeiten. An den heißesten Teilen des Kreislaufes mißt man Wandstärkenverminderungen. Die Geschwindigkeit der Reaktion ist temperaturabhängig in der Form von Arrhenius-Gleichungen [1]. Im Kreislauf treten wegen der variierenden Verhältnisse Regionen unterschiedlicher Abtragung und sogar Abscheidung auf [2]. Die Abscheidung ist in kalten Anlageteilen mit hoher Strömungsgeschwindigkeit oder Turbulenz besonders groß [3].

Die Geschwindigkeit der Auflösung und ihre Temperaturabhängigkeit ist für die Hauptelemente der austenitischen Stähle unterschiedlich groß [1, 4]. Dies führt zu Verschiebungen in der Zusammensetzung der Hüllrohre in den äußeren, randnahen Zonen. Die selektive Lösung von Ni und Cr gibt Anlaß zur Bildung einer Diffusionszone zeitlich konstanter Stärke, die auch ferritische Struktur annehmen kann. [4]

Einige Ausscheidungen stabilisierter austenitischer Stähle, die vorzugsweise in Korngrenzen angereichert sind, neigen zur Reaktion mit dem Natrium. Die Folge kann ein interkristalliner Angriff sein [5, 6].

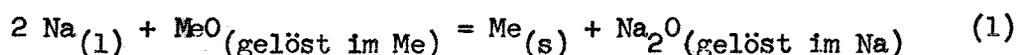
Komponenten, die nur in geringer Konzentration vorliegen, aber zur Festigkeit der Werkstoffe wesentliche Beiträge leisten, können im Temperaturgefälle vom Natrium abtransportiert werden, zum Beispiel der Kohlenstoff [3] oder das Bor [7]. Umgekehrt können Brennelementhüllen aus dem Natrium Elemente wie Sauerstoff, Kohlenstoff, Stickstoff oder Wasserstoff aufnehmen und dadurch verspröden. So neigen zum Beispiel Vanadiumlegierungen zur Aufnahme dieser Stoffe [8, 9]. Die Schäden bestehen in einer Versprödung der Brennelementhüllen.

Die Temperaturabhängigkeit der Korrosionsgeschwindigkeit ist schon genannt worden, weiter ist die Strömungsgeschwindigkeit des Natriums und dessen Gehalt an Verunreinigungen, vorzugsweise an Sauerstoff, ein bedeutsamer Parameter. Ob ein Einfluß der Kreislaufgeometrie gegeben ist, wird vermutet, muß jedoch noch nachgeprüft werden.

2. Korrosionsmechanismen

2.1 Mechanismus der Abtragung von austenitischen Stählen

Die Versuche haben gezeigt, daß die Abtragungsraten sehr stark vom Sauerstoffgehalt des Natriums beeinflußt werden [1, 4] (Abb. 1). Eine thermodynamische Betrachtung hat daher die Reaktionsmöglichkeiten mit dem Sauerstoff in den Vordergrund zu stellen. Einen Versuch in Richtung auf ein derartiges Korrosionsmodell unternahmen Blair und Munir [10]. Die Wirkung des Sauerstoffs ist über die Gl. (1) als eine Austauschreaktion zu verstehen.



Das Reaktionsgleichgewicht ist bestimmt durch die Gleichung (2)

$$\log \frac{N_{\text{O}(\text{Me})}}{N_{\text{O}(\text{Na})}} = \frac{\Delta G^{\circ}(\text{Na}_2\text{O}) - \Delta G^{\circ}(\text{MeO})}{2,303 \text{ RT}} + \log \frac{N_{\text{O}(\text{Me})\text{ges.}} \cdot N_{\text{Me}}}{N_{\text{O}(\text{Na})\text{ges.}} \cdot N_{\text{Na}}^2} \quad (2)$$

wobei

$N_{\text{O}(\text{Me})}, N_{\text{O}(\text{Na})}$ = Molenbruch von Sauerstoff O in Metall Me bzw. Na

$N_{\text{O}(\text{Me})\text{ges.}}, N_{\text{O}(\text{Na})\text{ges.}}$ = Molenbruch von O in Me bzw. Na jeweils im Sättigungszustand

$N_{\text{Me}}, N_{\text{Na}}$ = Molenbruch von Me in MeO bzw. Na in NaO

$\Delta G^{\circ}_{\text{Na}_2\text{O}}, G^{\circ}_{\text{MeO}}$ = freie Standardenthalpie für die Bildungsreaktion von Na_2O bzw. MeO

Die oxydierten Metallanteile werden vom Natrium abgetragen. Das Gleichgewicht ist sehr stark temperaturabhängig [11]; in Anlageteilen mit niedrigeren Temperaturen kann daher Sauerstoff wieder freigesetzt werden. Dieser Mechanismus könnte also die Rolle des Sauerstoffs in der Auflösung von Materialkomponenten ebenso wie den Massetransport in Richtung des Temperaturgefälles erklären. Er macht auch verständlich, daß die Konzentrationen an Fe, Cr und Ni im Natrium des Kreislaufs keinen Zusammenhang zu den Sättigungswerten der Konzentration zeigen [12].

Die thermochemischen Grundlagen, von denen die Lage des Gleichgewichts nach Gleichung (1) bestimmt wird, sind in Abb. 2 nach Ergebnissen von Minushkin und Kissel [13] sowie Jansson und Berkey [11] dargestellt. Je nach Temperatur und Sauerstoffgehalt des Natriums sind also Doppeloxide des Cr oder Fe beständig oder zerfallen unter Freisetzung von Na_2O .

Die Auflösungsgeschwindigkeit verschiedener Elemente in Natrium und ihre Temperaturabhängigkeit sind für verschiedene Komponenten des Stahls, zum Beispiel für Ni oder Fe, unterschiedlich (Abb. 3). Daher verschiebt sich in der Oberflächenzone der Hüllrohre auch die chemische Zusammensetzung je nach der Temperatur der Reaktionszone, generell jedoch in Richtung auf eine relative Anreicherung von Eisen unter Verlust von Chrom und Nickel.

2.2 Transport interstitieller Elemente im Natrium und Korrosion bei Hüllrohren aus V-15 % Cr-1 % Ti

Die Affinität der Komponenten der Vanadiumlegierungen zu den Interstitiellen wie Sauerstoff, Stickstoff und Kohlenstoff ist so groß, daß die Hüllrohre das Natrium gettern und von diesen Nichtmetallen aufnehmen, solange sie im Natrium in genügender Aktivität vorhanden sind. Durch die Aufnahme dieser Elemente erleiden die Hüllrohre aus V-15%Cr-1%Ti eine gewisse Versprödung. Die Aufnahme von Sauerstoff erreicht eine Sättigung, die bei 600°C unter 0,5 Gew.-% liegt [14]. Ist nach Sättigung des Hüllrohres die Sauerstoffaktivität im Natrium noch höher als 0,1 Gew.-ppm, so bilden sich an der Hüllrohroberfläche Oxidschichten, die nicht schützend sind und vom strömenden Natrium abgetragen werden. Für einen Reaktorkühlkreislauf in den Dimensionen der Na-2-Studie [15] tritt die Situation, die äußere Oxidbildung und Wandstärkenverlust verursachen würde, nicht ein, wenn der Ausgangsgehalt des Natriums 10 Gew.-ppm Sauerstoff nicht übersteigt und die Sauerstoffleckage des Kreislaufes auf 1,5 l/h begrenzt bleibt [16]. Die praktisch eintretende Korrosionsreaktion besteht also in der Aufnahme von Interstitiellen nach einem parabolischen Zeitgesetz [8, 14], die Phänomene entsprechen den Erscheinungen der inneren Oxydation [17, 18].

Die Duktilität der mit Sauerstoff gesättigten Hüllrohre bei Einsatztemperatur dürfte noch ausreichend sein, um Hüllrohrschäden als Folge der Sauerstoffaufnahme ausscheiden zu können.

Vorübergehende Sauerstoffexkursionen führen zur Wandstärkenverminderung und müssen durch geeignete Maßnahmen zur Natriumreinhaltung bekämpft werden. Die Größe der anfänglichen Sauerstoffgetterungsreaktion ist in Abb. 4 als Funktion der Temperatur aufgetragen. Die Reaktionsgeschwindigkeit läßt mit der Zeit nach, da das Sauerstoffangebot gemäß der Gettergleichung (3)

$$\Delta C_{O(V)} = \left(\frac{m_{Na}}{m_V} \right) \cdot C_{iO(Na)} \quad (3)$$

wobei

$\Delta C_{O(V)}$ = Zunahme der O-Konzentration der Vanadin-Legierung

$C_{iO(Na)}$ = anfängliche O-Konzentration im Na

m_{Na}, m_V = Masse Natrium bzw. Vanadium im System

durch ständigen Verbrauch kleiner wird.

Da die Vanadiumlegierungen auch andere Nichtmetalle wie Kohlenstoff und Stickstoff binden, muß der Kühlkreislauf so ausgelegt werden, daß ein möglichst kleines Angebot an diesen Elementen zur Verfügung steht. Die Brennelementkästen sollten daher gleichfalls aus Vanadiumlegierungen, die übrigen Teile des primären Kreislaufs aus stabilisierten austenitischen Stählen aufgebaut sein.

2.3 Korrosionsmechanismen anderer potentieller Hüllwerkstoffe

Untersuchungen an verschiedenen reinen Metallen und Legierungen haben gezeigt, daß die Hüllwerkstoffe sich ähnlich den austenitischen Stählen, den Vanadiumlegierungen oder dem Zirkonium und seinen Legierungen [19] verhalten. Die als Hüllwerkstoffe gelegentlich diskutierten Molybdänlegierungen zeigen in Reaktionskinetik und Phänomenologie große Ähnlichkeit zu den austenitischen Stählen [20].

3. Größe der Hüllrohrschädigung durch Natrium

Die an den Hüllrohren aus verschiedenen Werkstoffen zu erwartenden Schädigungen werden im folgenden zusammengestellt. Die vorhandenen Informationen reichen noch nicht zur Gewinnung exakter Auslegungsdaten aus. Daher sind weitere eingehende Untersuchungen in Natriumkreisläufen in Seibersdorf, Mol, Apeldoorn, Bensberg und Karlsruhe in gegenseitiger Abstimmung vorgesehen.

3.1 Hüllrohre aus austenitischen Stählen

3.1.1 Wandstärkenverluste

Für die in den USA gebräuchlichen austenitischen Stähle wie AISI 304 und 316 liegen recht gut übereinstimmende Meßwerte als Funktion der Strömungsgeschwindigkeit, der Temperatur und des Sauerstoffgehaltes des Natriums vor [4, 21]. Die Brauchbarkeit der Werte wird eingeschränkt durch unzuverlässige Angaben über den Sauerstoffgehalt des Natriums. Die Testergebnisse an den Werkstoffen 1.4981, 1.4988 und 1.4970, soweit überhaupt welche vorliegen, lassen sich nicht direkt mit den in Abb. 5 zusammengestellten Werten aus der Literatur vergleichen. Übersichtliche Rechnungen zeigen jedoch, daß die Wandstärkenverluste an diesen Stählen in der gleichen Größe liegen sollten, wenn diese Werkstoffe unter gleichen Bedingungen eingesetzt werden [6, 7, 22].

Danach ist bei den anzustrebenden niedrigen Sauerstoffgehalten um 5 Gew.-ppm bei der Hotspot-Temperatur von 700°C und Strömungsgeschwindigkeiten um 6 m/sec der Abtrag 2×10^{-3} cm/a anzunehmen. Bei der Natriumaustrittstemperatur von 550°C vermindert sich der Wert unter sonst gleichen Bedingungen auf etwa 2×10^{-4} cm/a. Systematische Zusammenhänge zwischen Korrosionsraten und der Zusammensetzung der Legierungen lassen sich aus den vorliegenden Ergebnissen nur schwer ableiten, doch ist in einigen Versuchen ein Zusammenhang mit dem Nickelgehalt der Werkstoffe nachgewiesen worden [1, 4, 23]. Diese Abhängigkeit dürfte jedoch für die Wandstärkenverluste der zur Auswahl stehenden Austenite nur von untergeordneter Bedeutung sein.

3.1.2 Stärke der Diffusionszone

Die sich unter der reagierenden Oberfläche ausbildende Diffusionszone veränderter Zusammensetzung und Struktur trägt möglicherweise nicht

mehr zur Festigkeit des Hüllrohres bei. Ihre Stärke muß daher bei der Hüllrohrauslegung berücksichtigt werden. Unter den Hotspot-Bedingungen dürfte die konstant bleibende Dicke dieser Zone etwa bei 2×10^{-3} cm liegen [24], sie kann jedoch im Bereich von Korngrenzen auch tiefer in das Metall hineinreichen. Bei niedrigeren Temperaturen ist die Diffusionsschicht entsprechend dünner, bei 600°C beträgt ihre Dicke, wie Abb. 6 zeigt, nur etwa 5×10^{-4} cm. [7]

3.1.3 Interkristalline Effekte

Im Gegensatz zu den meisten Beobachtungen an den Stählen AISI 304 und 316 treten an den zur Auswahl stehenden austenitischen Stählen oberflächliche Korngrenzeneffekte auf. Wir beobachten in verschiedenen Versuchen eine trichterförmige Aufweitung der Korngrenzen an der Werkstoffoberfläche [1, 7, 25]. Welche Auswirkungen dieser Effekt auf die Hüllrohereigenschaften haben kann, wird in den geplanten Versuchen geprüft.

3.1.4 Einfluß der Natriumeinwirkung auf die Standzeit

Die Standzeit des Hüllrohres unter Spannung und gleichzeitiger Korrosion durch Natrium unter reaktorähnlichen Bedingungen ist noch nicht gemessen worden. Ein Versuch, der im Kreislauf in Seibersdorf ausgeführt wird, kann Informationen zu dieser Frage liefern.

Das Zeitstandverhalten von austenitischen Stählen wie AISI 304 und 316 in Natrium verschiedener Reinheit ist in umfangreichen Versuchsreihen geprüft worden [26], doch sind die Ergebnisse für die Hüllrohrauslegung nur von bedingtem Wert, da die Messungen an unzutreffenden Geometrien und in relativ zu kurzen Zeiten durchgeführt wurden.

3.2 Hüllrohre aus V-15%Cr-1%Ti

3.2.1 Versprödungserscheinungen

Die Versprödungsreaktionen bewirken zunächst eine Zunahme der Hüllrohrfestigkeit bei abnehmender Duktilität. In dem Bereich der Natriumreinheit, wie er in Abschnitt 2.2 definiert worden ist, tritt ein Duktilitätsproblem nicht auf. Nach den vorliegenden Informationen dürfte für die betrachtete Legierung die Duktilität bei Einsatztemperatur auch nach einer eventuellen Sauerstoffexkursion noch ausreichend sein.

3.2.2 Wandstärkenverluste

Unter den Bedingungen einer langfristigen Sauerstoffexkursion im Kühlkreislauf muß auch mit Abtragungsreaktionen gerechnet werden. Die wenigen vorliegenden Meßwerte lassen unter den Bedingungen im Reaktor in einem solchen Fall Abtragungswerte bis 10^{-2} cm/a als möglich erscheinen. Diese Werte sind aber nicht von praktischem Interesse, da der Sauerstoffgehalt ständig gemessen und nach Feststellung von Zunahmen während des Betriebes laufend reduziert werden kann.

4. Schlußfolgerungen

Für die Auslegung von Hüllrohren kann man nach dem Stand der Kenntnisse nur vorläufige Anweisungen geben, wie die Korrosion zu berücksichtigen ist.

Legt man die Beanspruchung bei Hotspot-Temperatur zugrunde, so muß bei den Hüllrohren aus den austenitischen Stählen für eine Standzeit von zwei Jahren ein Abtrag um 4×10^{-3} cm und eine zusätzliche Diffusionszone von 2×10^{-3} cm in Rechnung gestellt werden.

Das Hüllrohr aus der Legierung V-1%Ti-15%Cr erfährt praktisch keine Schwächung durch Natriumkorrosion, wenn der Kühlkreislauf entsprechend ausgelegt ist.

In der Zeit von 1971 bis Ende 1973 werden die zur Auslegung des Hüllrohres aus Stahl noch benötigten Informationen erarbeitet, anschließend werden die Befunde an den Vanadiumlegierungen unter reaktorähnlichen Bedingungen überprüft.

Literatur:

- [1] A.J. Bogers, E.G. Chirer und H.U. Borgstedt, ANS-KTG Meeting on Fast Reactor Fuel and Fuel Elements, Karlsruhe, Sept. 1970, Paper No. 40
- [2] A.J. Bogers, E.G. Chirer, J.W. Tichler und A.W.J. De Gee, USAEC-Report ANL-7520 (1969) 153-162
- [3] P. Roy, D. Dutina und F.A. Comprelli, "Corrosion by Liquid Metals", Plenum Press, New York 1970, p.1
- [4] A.W. Thorley and C.Tyzack, "Alkali Metal Coolants", Wien 1967, 97-118
- [5] B.A. Nevzorov, "Corrosion of Structural Materials in Sodium", Jerusalem 1970, p.13
- [6] H.U. Borgstedt, G. Frees und G. Drechsler, KFK 991 (EUR 4300d) (1969)
- [7] N. Wieling, ANS-KTG Meeting on Fast Reactor Fuel and Fuel Elements, Karlsruhe, September 1970, Paper No. 39
- [8] G. Whitlow, R.J. Hornack, S.L. Schrock u. E.C. Bishop, J. Less-Common Metals 19 (1969) 357-371
- [9] H.U. Borgstedt u. G. Frees, Corrosion (NACE) 24 (1968) 209-213
- [10] R.C. Blair u. Z.A. Munir, Corrosion (NACE) 26 (1970) 15-18
- [11] S.A. Jansson und E. Berkey, "Corrosion by Liquid Metals", Plenum Press, New York 1970, p. 479
- [12] J.R. Weeks, USAEC-Report ANL-7520 (1969) 21-24
- [13] B. Minushkin und G. Kissel, "Corrosion by Liquid Metals", Plenum Press, New York, p. 515
- [14] H.U. Borgstedt, Corros. Sci., 11 (1971) 89,105
- [15] "Schneller Natriumgekühlter Reaktor Na-2", KFK-660 (1967)
- [16] H. Böhm, H.U. Borgstedt, K. Ehrlich u. M. Schirra, Reaktortagung 1970, Tagungsbericht Seite 454-457
- [17] H.U. Borgstedt, G. Frees, KFK 879 (EUR 4159d) (1968)
- [18] H.U. Borgstedt u. W. Schneider, J.Nucl.Mat. 37 (1970) 114-117
- [19] H.U. Borgstedt, G. Frees u. G. Drechsler, Werkstoff u. Korrosion 21 (1970) 568-573
- [20] H.U. Borgstedt u. G. Frees in KFK 1270/1, 114-1, 1970
- [21] E.L. Zebroski, R.S. Young, F.A. Comprelli u. D. Dutina, "Alkali Metal Coolants", Wien 1967, 195-210
- [22] H. U. Borgstedt u. G. Frees, Werkstoffe u. Korrosion 21 (1970) 435-439
- [23] N.P. Agapowa, A.G. Ioltuchovskij u. V.V. Romaneev, "Alkali Metal Coolants", Wien 1967, 85-95
- [24] P. Roy u. M.F. Gebhardt, USAEC-Report GEAP-13548 (1969)
- [25] H.U. Borgstedt, G. Drechsler u. G. Frees in KFK 1270/3 (1970) 114-1
- [26] R.C. Andrews, R.H. Hiltz, L.H. Kirschler und R.J. Udavcak, MSAR 67-216 (1967)

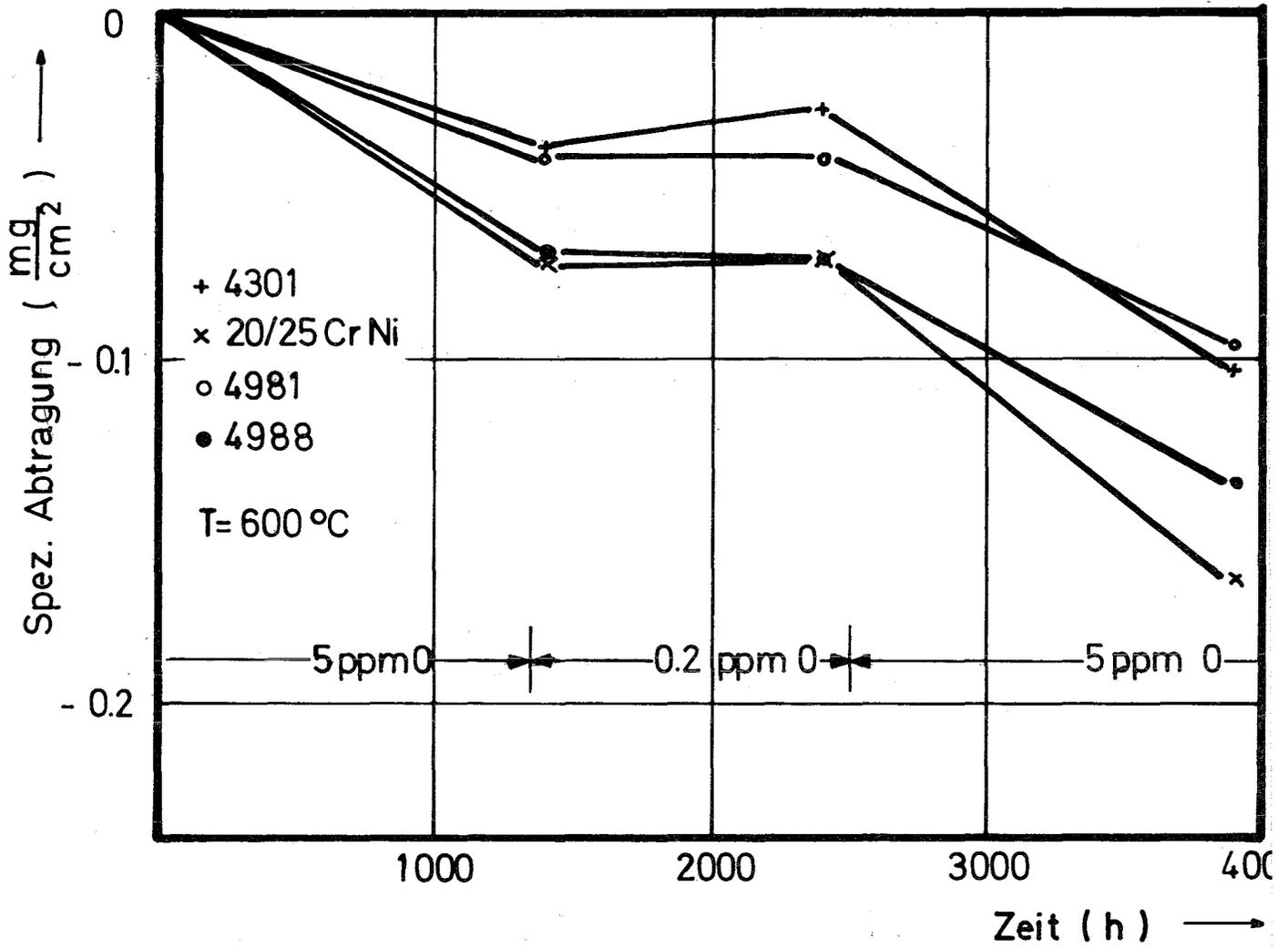


Abb. 1: Spezifische Abtragung von Stählen durch Na bei verschiedenen O-Gehalten in Abhängigkeit der Zeit

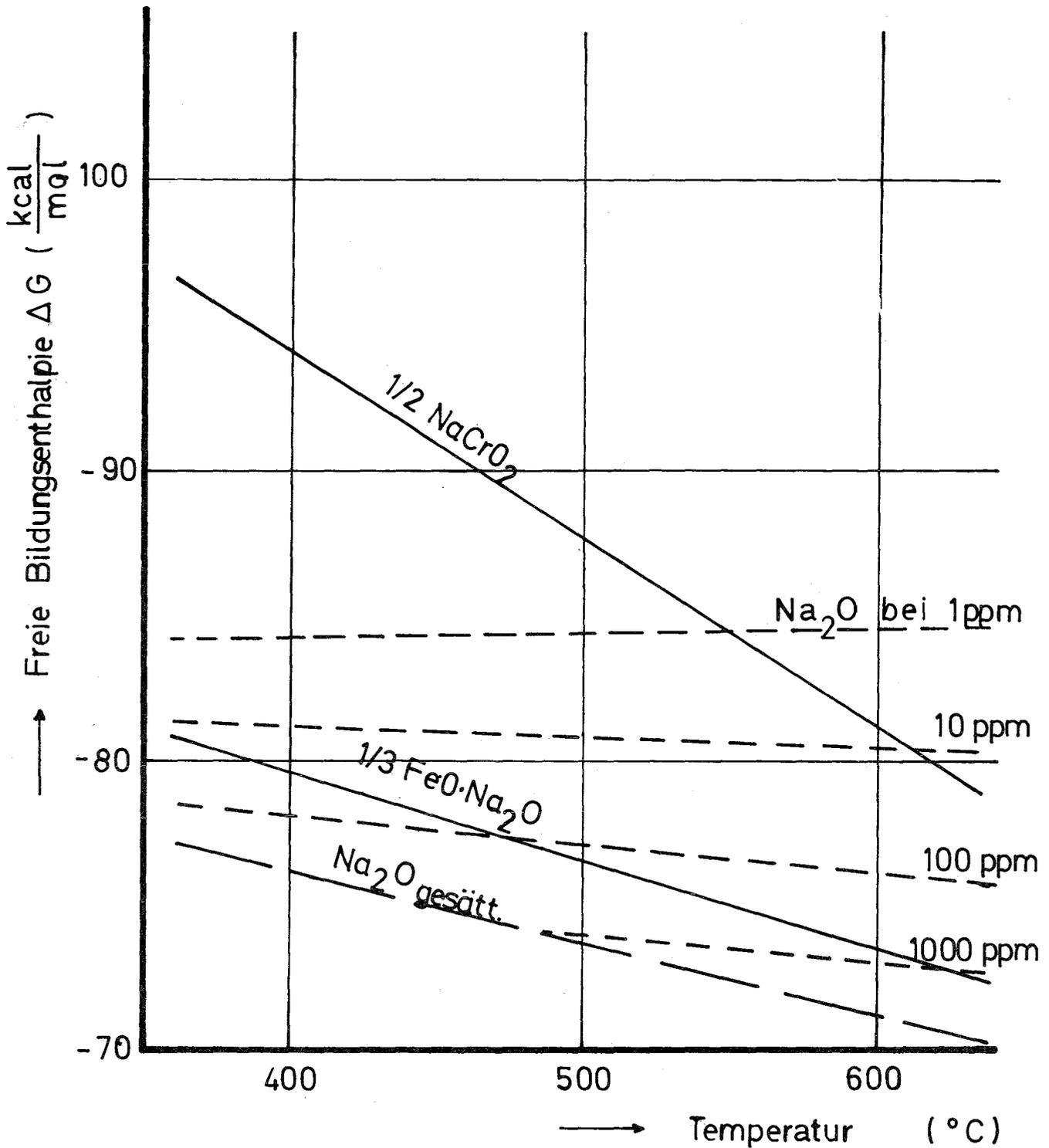


Abb. 2: Freie Bildungsenthalpien der Sauerstoff-Austauschreaktionen zwischen Na und Fe bzw. Cr [11, 13]

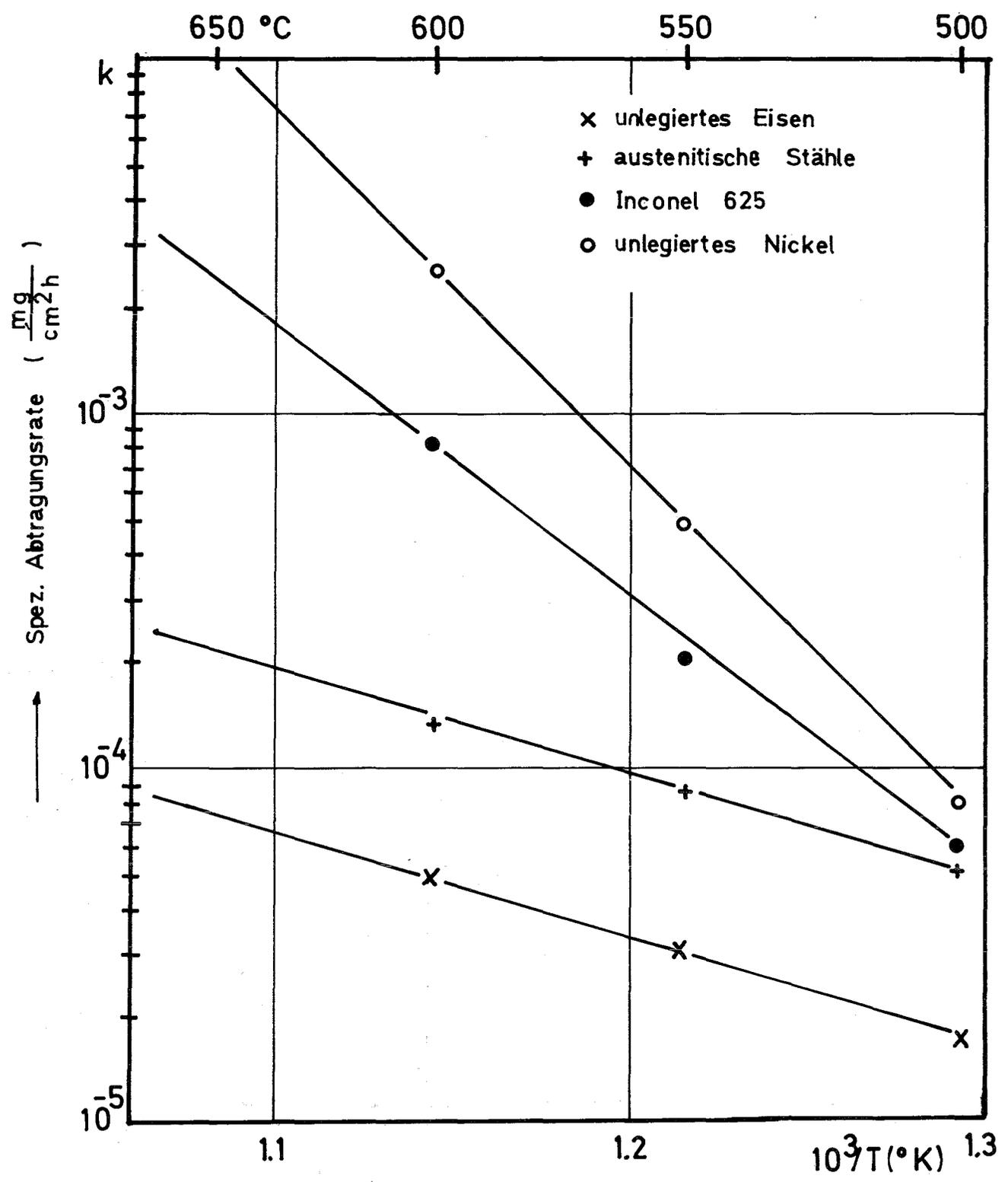


Abb. 3 : Spezifische Abtragungsraten der linearen Na-Korrosion als Funktion der reziproken Temperatur im Kreislauf "Cerberus"

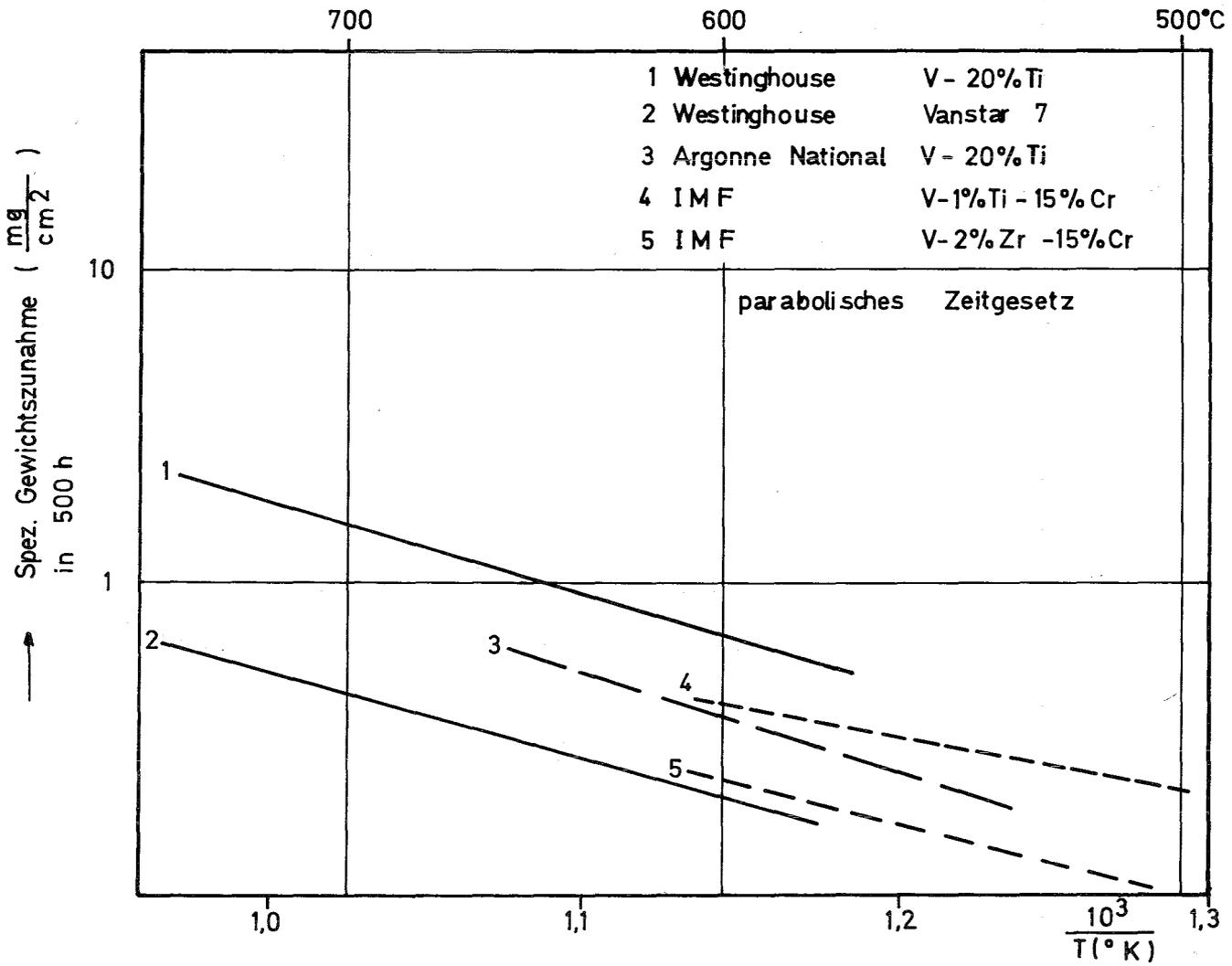


Abb. 4: Spezifische Gewichtszunahme von Vanadin-Legierungen in Na mit wenig O nach 500 h in Abhängigkeit der Temperatur

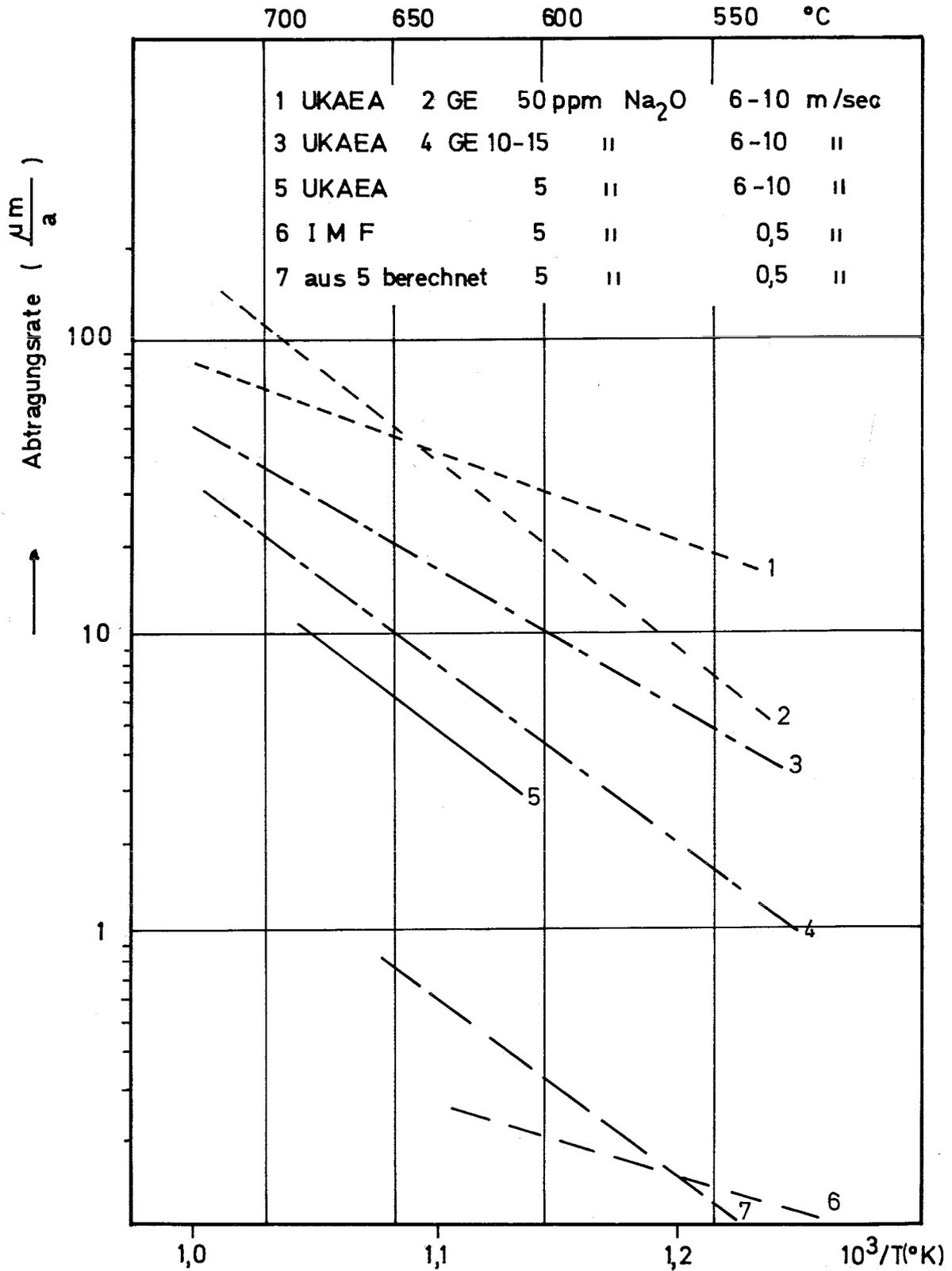


Abb. 5: Abtragung von austenitischen Stählen durch Natrium verschiedener Temperaturen, Strömungsgeschwindigkeiten und Oxidgehalte

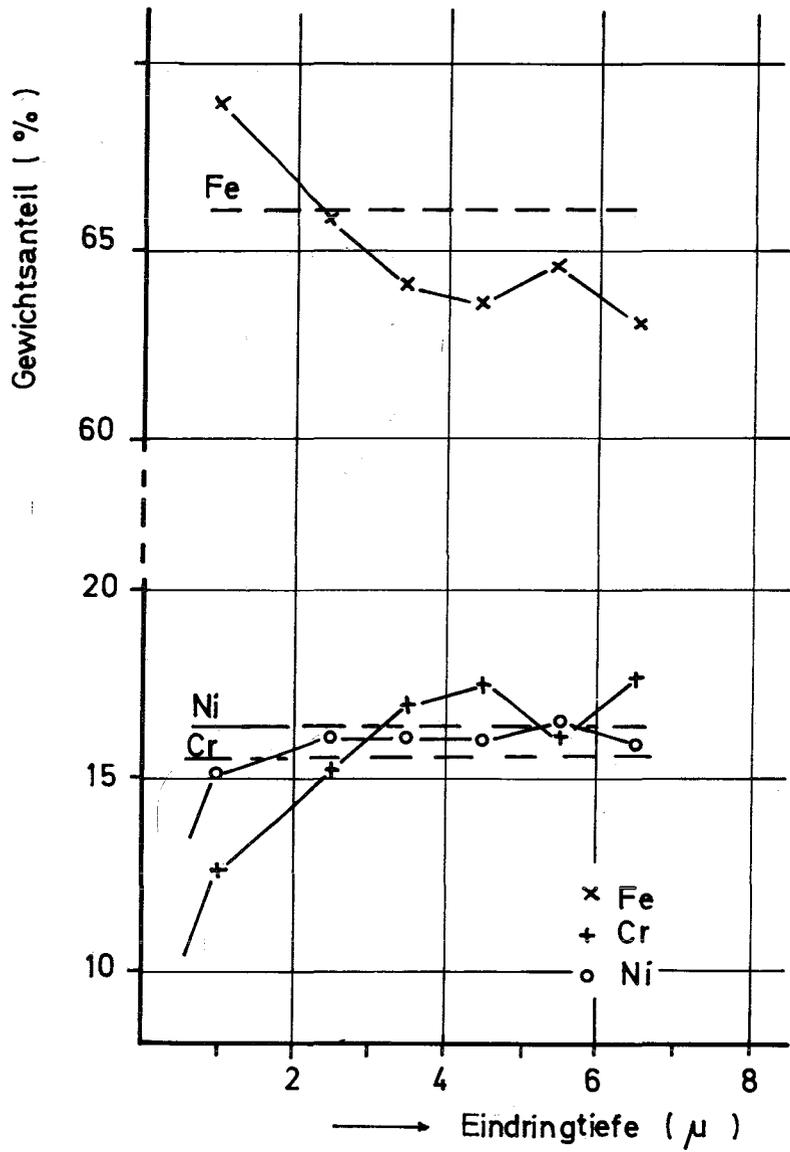


Abb. 6: Ausbildung einer Diffusionszone im Stahl 1.4981 nach ca. 4000 h in Na von 600°C mit 5 ppm O und einer Strömungsgeschwindigkeit von 0,5 m/sec

