

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM**

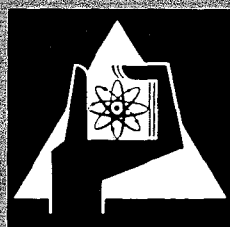
**KARLSRUHE**

Juli 1970

KFK 1269  
EUR 4308 d

Projekt Schneller Brüter

Zweijahresbericht 1968/69



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Juli 1970

KFK 1269  
EUR 4308 d

Projekt Schneller Brüter

Zweijahresbericht 1968/69<sup>+</sup>)

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

---

<sup>+</sup>) Diese Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe, auf dem Gebiet der schnellen Reaktoren durchgeführt.



## Einleitung

### 1. Programm des Projektes Schneller Brüter (PSB) in Karlsruhe

Die Arbeiten des PSB im Kernforschungszentrum Karlsruhe sollen als Basisprogramm die Voraussetzungen für den Bau der ersten großen, wirtschaftlich arbeitenden Schnellbrüter-Kernkraftwerke durch die Industrie schaffen und deren technische Weiterentwicklung ermöglichen.

Der Schwerpunkt der Arbeiten des Basisprogramms liegt bei natriumgekühlten Schnellbrütertypen mit oxidischem und karbidischem Brennstoff. Die Untersuchungen zur Dampfkühlung sind 1969 durch Beschluß des BMwF wesentlich reduziert worden. Im Hinblick auf die Möglichkeiten der Heliumkühlung laufen Voruntersuchungen. Eine in Arbeit befindliche Durchführbarkeitsstudie soll zu der Entscheidung führen, ob ein schneller Hochfluß-Testreaktor realisierbar ist, dessen Neutronenfluß, Testloopgröße und Instrumentierung für die Entwicklung fortgeschrittener Schnellbrütervarianten ausreichen.

Zu den Arbeiten der GfK gehört auch die direkte Unterstützung der Industrie bei der Entwicklung des 300 MWe natriumgekühlten Schnellbrüter-Prototyp-Kernkraftwerks SNR. Nachdem das SNR-Konsortium (d.h. die Firmen INTERATOM, Belgonucléaire und Neratoom) Anfang 1970 ein Angebot für diesen Prototyp abgegeben hat, laufen die für den Bauentschluß nötigen Forschungs- und Entwicklungsarbeiten mit großer Intensität weiter.

### 2. Durchführung der Teilprojekte durch Institute und Abteilungen der GfK

Ein zentrales Arbeitsgebiet des PSB-Programms ist die Entwicklung von Brennstäben und Hüllmaterialien für schnelle Brutreaktoren. Neben Funktionstests von SNR-Brennstäben stehen Parametertests im Vordergrund. Während für den SNR oxidischer Brennstoff und technische Hüllmaterial-Legierungen vorgesehen sind, wendet sich das Interesse zunehmend dem karbidischen Brennstoff und der Entwicklung neuer Hüllmaterial-Legierungen für fortgeschrittene Schnellbrütervarianten zu. Die für Probebestrahlungen erforderlichen Bestrahlungseinrichtungen werden großenteils vom IRE und RB entwickelt. Die im In- und Ausland bestrahlten Proben werden in Heißen Zellen (RB und AEG) auf ihre physikalischen und chemischen Eigenschaften hin nachuntersucht. Korrosionsexperimente werden vom IMF hauptsächlich an Versuchsständen des IRB durchgeführt.

Spezielle Fragen der chemischen Wiederaufarbeitung bestrahlter Brüterbrennstoffe werden vom IHCh, Fragen der Reaktorchemie im IRCh bearbeitet.

Der Schwerpunkt der physikalischen Experimente liegt bei Messungen kritischer Daten in der SNEAK (IAR). Kerndatenmessungen am Van-de-Graaff-Generator und mit dem großen Flußzeitspektrometer am Isochron-Zyklotron werden vom IAK weitergeführt.

Die hauptsächlich im INR durchgeführten reaktortheoretischen Arbeiten konzentrieren sich auf die Erstellung und Verbesserung von Kerndatensätzen und die Aufstellung eines umfassenden Programmsystems zur Reaktorberechnung.

Das IRE und INR führen u.a. theoretische Untersuchungen zur Reaktorsicherheit fort. Besonderes Gewicht haben Berechnungen der ortsabhängigen Dynamik und die Klärung des Ablaufs einer plötzlichen Brennstoff-Natrium-Wärmeübertragung infolge Brennstabversagens z.B. durch Kühlflußstörungen.

Die Möglichkeiten der Instrumentierung und Signalverarbeitung zur Core-Überwachung werden u.a. vom LEM untersucht. Im IAR laufen Versuche zur Aerosol-Freisetzung bei Reaktor-Störfällen.

Versuche zur Natriumtechnologie im IRE und IRB befassen sich im wesentlichen mit der mechanischen, thermo- und hydrodynamischen Core-Auslegung. Teilweise entsprechende Versuche wurden vom INR in Gas und vom IRB in Dampf ausgeführt.

An Reaktorstudien und damit zusammenhängenden Wirtschaftlichkeitsuntersuchungen sind zahlreiche GfK-Institute beteiligt.

### 3. Zusammenarbeit mit auswärtigen Gruppen

Am Basisprogramm sind neben der GfK die Kernforschungszentren CEN (Mol, Belgien) und RCN (Petten, Niederlande), sowie die Firmen LUXATOM (Luxemburg), Belgonucléaire (Belgien) und TNO (Niederlande) beteiligt. Diese Organisationen geben gesonderte Jahresberichte heraus.

Mit dem CEN besteht ein Vertrag über die gemeinsame Nutzung des Reaktors BR2 zu Bestrahlungszwecken. Für Bestrahlungsversuche im schnellen Fluß benutzte die GfK bisher den Reaktor DFR (Großbritannien). Im Basisprogramm für die Entwicklung karbidischer Brennstäbe wirken außerdem die Firmen AEG, ALKEM, und NUKEM mit. Die GfK ist an den physikalischen Versuchen im SEFOR Reaktor (USA) beteiligt. Mit den EWG-Ländern und der USAEC werden über Euratom regelmäßig Berichte ausgetauscht. Zusammen mit mehreren OECD-Ländern wird eine Studie über die Zukunftsaussichten von gasgekühlten Schnellbrütern erarbeitet.

#### 4. Projektleitung, Berichtswesen

Die Arbeiten des Basisprogramms werden von der PSB-Projektleitung der GfK koordiniert und mit denen des Industrieprogramms abgestimmt. Die Projektleitung stellt auch die Vierteljahresberichte und Jahresberichte des PSB zusammen. Innerhalb der ab 1.1.1970 erweiterten Projektleitung (Projektleiter: W. Häfele, stellv. Projektleiter: P. Engelmann) gibt es vier technische und einen administrativen Bereich, die jeweils von einem sog. Projektbevollmächtigten als Koordinator geleitet werden, dem einige sog. Gebietsbevollmächtigte als Projektingenieure zur Seite stehen. Die Teilprojekte, nach denen der vorliegende Bericht entsprechend dem Basisprogramm gegliedert ist, sind den technischen Bereichen wie folgt zugeordnet:

<u>Teilprojekt</u>	<u>Bereich</u>	<u>Koordinator</u>	<u>Projektingenieure</u>
111,112,113	Brennelement-entwicklung	G. Karsten	Gerken, Jaeckel, (Borkowetz)
114,123,124,126,127	SNR, Technologie	G. Kessler	Glauner, Knuth, (Verduin)
115,121,122,125	Physik, Chemie	R. Schröder	Stamm
128,130	Studien, FR3	M. Fischer	-

Durch die Erweiterung der Projektleitung war es möglich, auch das Berichtswesen zu verbessern. Hierfür ist der Koordinator des administrativen Bereiches, R. Hüper, zuständig. Fortan erscheinen die Jahres- und Vierteljahresberichte als KfK-Berichte und damit als Veröffentlichungen. Die hauptsächlichsten Mitarbeiter, von denen die Beiträge bzw. Versuchsergebnisse stammen, werden unter Angabe des Instituts in der jeweiligen Beitragsüberschrift namentlich genannt. Die Beiträge sollen in möglichst konzentrierter Form die wichtigsten Ergebnisse des Berichtszeitraumes bringen und werden deshalb durch quantitative Angaben in Tabellen und Abbildungen ergänzt. Ausführlichere Darstellungen bleiben jedoch Einzelberichten in der bisherigen Form vorbehalten.

Der vorliegende Bericht umfaßt ausnahmensweise einen Zweijahreszeitraum (1968/1969). Er wurde zusammengestellt von R. Hüper.

Verzeichnis der verwendeten Abkürzungen

ABCD-Loop	= Dampf-Kontaminationsloop im FR2 (liSD-Loop, RB Proj. 55/55a)
ADB	= Abteilung Dekontaminationsbetriebe
AFTS	= Arbeitsgruppe für die Untersuchung der Freisetzung und des Transportes radioaktiver Stoffe bei Reaktorstörfällen
ALKEM	= Alpha-Chemie und Metallurgie GmbH.
ASS/Ch	= Abteilung für Strahlenschutz und Sicherheit/Chemie
BEVUS	= Brennelementversagen unter Siedeverzug (Exp. in NABEA)
BN	= Belgonucléaire
BR2	= Belg. Reaktor 2 in Mol
CEN	= Centre d'Etude de l'Energie Nucléaire, Mol/Belgien
CEN/BN	= Gemeinsame CEN-BN-Gruppe (Pu-Programm)
DFR	= Dounreay Fast Reactor (England)
EFFBR	= Enrico Fermi Fast Breeder Reactor (USA)
FR2	= Forschungsreaktor 2 (GfK)
FR3	= Schneller Hochfluß-Testreaktor
GfK	= Gesellschaft für Kernforschung mbH. (Karlsruhe)
GHH	= Gutehoffnungshütte
GWK	= Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH. Karlsruhe
HDR	= Heißdampfreaktor (der AEG)
IAK	= Institut für Angewandte Kernphysik
IAR	= Institut für Angewandte Reaktorphysik
IHCh	= Institut für Heiße Chemie
IMF	= Institut für Material- und Festkörperforschung
INR	= Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
IRB	= Institut für Reaktorbauelemente
IRCh	= Institut für Radiochemie
IRE	= Institut für Reaktorentwicklung
KATZE	= Karlsruher Transplutoniumzelle
KBG	= Kernkraftwerk-Betriebsgesellschaft mbH.
KNK	= Kompakte Na-gekühlte Kernreaktoranlage Karlsruhe
LEM	= Labor für Elektronik und Meßtechnik
MZFR	= Mehrzweckforschungsreaktor (Karlsruhe)



Na2	= 1.) Entwurfsstudie der GfK für den SNR-Prototyp; 2.) Na-Korrosionskreislauf in Mol
Na3	= 3 MW Na-Versuchsstand in Mol
NABEA	= Na-Behälter-Anlage im IRE
RB	= Abteilung Reaktorbetrieb
RCN	= Reactor Centrum Nederland, Petten
SEFOR	= Southwest Experimental Fast Oxide Reactor (Fayetteville). Arkansas, USA)
SNEAK	= Schnelle Nullenergie-Anordnung Karlsruhe
SNR	= Schneller Na-gekühlter Reaktor (300 MWe Prototyp)
STARK	= Schnell-Thermischer Argonaut-Reaktor Karlsruhe
STEK	= Schnell-Thermisches Exp. KRITO
SUAK	= Schnelle Unterkritische Anlage Karlsruhe
TNO	= Nijverheidsorganisatie voor Toegepast Natuurwetenschappelijk Onderzoek (Holland)
TU	= Europäisches Institut für Transurane, Karlsruhe
VAK/VKL	= Versuchsanlage Kahl/Versuchskreislauf
WAK	= Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe



Inhaltsübersicht +)

- 111. Brennstab-Auslegung
- 112. Herstellung und Bestrahlung von Brennstäben
- 113. Materialuntersuchung und -entwicklung
- 114. Korrosionsversuche und Kühlmittelanalysen
- 115. Arbeiten zum Brennstoffzyklus
- 121. Physikalische Experimente
- 122. Reaktortheorie
- 123. Sicherheit schneller Reaktoren
- 124. Instrumentierung und Signalverarbeitung zur Kernüberwachung
- 125. Auswirkung von Reaktorstörfällen auf die Umwelt;  
Aktivitätsfreisetzung
- 126. Natrium-Technologie-Versuche
- 127. Thermo- und hydrodynamische Versuche in Gas und Dampf
- 128. Reaktorentwurfsarbeiten
- 130. Schneller Hochfluß-Testreaktor FR 3

+)  
Teilprojekte mit den zugehörigen PSB-Basisprogramm-Nummern.  
Die Seiten sind innerhalb jedes Teilprojektes durchnummeriert.



### 111. Brennstab-Auslegung

#### Brennstab-Modelltheorie (H. Kämpf, IMF)

Die Brennstab-Modelltheorie behandelt das mechanische, thermische und geometrische Verhalten des Brennstabes unter stationären und zyklischen Betriebsbedingungen und ist insbesondere auf die Bestimmung der Lebensdauer eines Brennstabes ausgerichtet. Dabei bezieht sich "mechanisch" auf die Ermittlung der Verteilung der Verformungen und Spannungen im gesamten Brennstab, d.h. sowohl in der Hülle als auch im Brennstoff. Insbesondere ist darin die mechanische Wechselwirkung Brennstoff-Hülle nach Maßgabe des Brennstoffschwellens und Kriechens eingeschlossen. "Thermisch" bezieht sich auf die Ermittlung der Temperaturverteilung im Brennstab, "geometrisch" bezieht sich auf verschiedene Brennstoff- und Hohlraumformen.

Umfassende Behandlungen dieses Komplexes, die ihren Niederschlag in entsprechenden Rechenprogrammen finden, werden mit der Abkürzung SATURN bezeichnet.

Die 0-te Näherung dieses Problemkreises ist die Version SATURN 0 [1,2]. In dieser Näherung wird der maximale Abbrand mit einer Arbeitshypothese bestimmt, die sich auf eine Brennstoffvolumenbilanz hinsichtlich des Brennstoffschwellens und des Verbrauches von Hohlvolumen gründet. Dabei wird der Brennstoff in 3 Temperaturzonen eingeteilt. Die komplizierte Behandlung des mechanischen Wechselwirkungsproblems wird eliminiert durch die Einführung von 3-Zonen-spezifischen Hohlvolumenverfügbarkeitsfaktoren.

Auf der Basis dieses Modells wurde ein Computerprogramm zur Berechnung der maximalen Standzeiten als Funktion der Coreposition für das Beispiel des Karlsruher Na<sub>2</sub>-Cores entwickelt. Wegen der teilweise nur begrenzten Genauigkeit der Eingabegrößen wurde durch umfangreiche Parameterstudien die Empfindlichkeit der Standzeitenverteilungen bezüglich der Eingabeparameter getestet.

Da das Brennstoffschwellen z.Zt. als ein wichtiger, den Abbrand begrenzender Effekt angesehen wird, muß Hohlvolumen innerhalb der Hülle vorgegeben werden. Daher wurden Untersuchungen über die thermischen Auswirkungen der verschiedenen Hohlraumtypen, insbesondere der Porosität, des Zentralkanals und des Spaltes Brennstoff-Hülle durchgeführt [3, 1, 2, 4]. Durch geeignete Parallel- und Hintereinanderschaltung der theoretisch dichten Phase und der Porenphase wurde eine allgemeine Beziehung für die Wärmeleitfähigkeit des porösen Brennstoffes erhalten. Insbesondere ergab sich das experimentell gut gesicherte Näherungsgesetz

$$k = k_0 (1 - P^{2/3})$$

mit  $k$ ,  $k_0$  = Wärmeleitfähigkeit des porösen bzw. des theoretisch dichten Körpers und  $P$  = Porosität. Diese Beziehung ist gültig für isotrope Verteilung von geschlossener Porosität und in einem weiten Bereich unabhängig von Größe, Form und Gasinhalt der Poren. Durch Erzeugung von zentralem Hohlraum ist die einschneidendste Möglichkeit zur Stabileistungssteigerung unter sonst gleichen Bedingungen gegeben. Die bei Oxid oberhalb ca. 1700°C erfolgende Wanderung der Herstellungsporosität in Form von Linsenblasen ins Zentrum, verbunden mit Zentralkanalbildung bzw. -Vergrößerung und der entsprechenden Verdichtung dieses Bereiches wurde durch ein 2-Zonen-Porositätsmodell erfaßt. Für den Temperaturabfall im offenen Spalt wurde eine allgemeine Beziehung in Abhängigkeit aller einschlägigen Parameter erhalten, indem Leitung und Temperaturstrahlung als die beiden tragenden Mechanismen zugrundegelegt wurden.

Die in der Version SATURN 0 nicht erfaßte mechanische Wechselwirkung Brennstoff-Hülle und entsprechend nicht durchgeführte Ermittlung der Spannungs- und Verformungsverteilungen werden in der in Angriff genommenen Version SATURN I/4/ behandelt. Für die Berechnung des mechanischen Verhaltens der Hülle wurde das CRASH-Programm /5/ entwickelt. Dieses Programm ermöglicht die Berechnung der radialen Verteilung der Verformungen und Spannungen in der Hülle in Abhängigkeit von der Zeit bei vorgegebenem Innen- und Außendruck, radialer Temperaturverteilung und Kriech- bzw. Plastizitätsverhalten. Dabei können Innen- und Außendruck und radiale Temperaturverteilung beliebige Funktionen der Zeit sein. Insbesondere können Ratchettingeffekte durch Leistungs- und Druckzyklierungen erfaßt werden. Der dem Programm zugrundeliegende Formalismus

setzt Axialsymmetrie und ebene axiale Verformung voraus; der Berechnung liegt ein Iterationsverfahren hinsichtlich der bleibenden Verformungen zugrunde. Die erheblich schwierigere Behandlung des mechanischen Verhaltens des durch die Hülle begrenzten schwellenden Brennstoffes wird durchgeführt, indem in die Spannungs- Dehnungsbeziehungen ein Schwellterm aufgenommen wird. Die in dem Formalismus auftretenden Integrationskonstanten sind durch die Kontaktbedingung und die axiale Reibung bestimmt. In einer 1. Näherung wird vorausgesetzt

- a) rißfreier Brennstoff
- b) eine Brennstoffzone hinsichtlich der ebenen axialen Verformung
- c) eine spannungsunabhängige Schwellrate als Eingabegröße.

Bezüglich geometrischer Brennstoff- und Hohlraumformen wurden Keil- bzw. Schlitztabletten und Mehrzonenanordnungen konzipiert, um die mechanische Wechselwirkung bei karbidischem Brennstoff zu reduzieren [6].

Auslegung von Bestrahlungsexperimenten: ( K.Kummerer, D. Vollath, IMF)

Seit Anfang 1969 ist auch das IMF zunehmend mit der Auslegung und Spezifikation von Bestrahlungsexperimenten und Bestrahlungsprüflingen befaßt. In diesem Zusammenhang wurde die ausführliche Ausarbeitung einschließlich der erforderlichen Auslegungsrechnungen für die Bestrahlungen der FR 2-Kapselversuchsgruppe 5a (integrierter Dichteversuch), der FR 2-Kapselversuchsgruppe 5b (Oxidstab-Konzept für den FR 3) und der Versuchsgruppe Mol 8C durchgeführt. (Vgl. 1121.2 und 1121.3).

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 (1968) und Trans ANS 11, 2, 1968, S. 513
- /2/ H. Kämpf:  
Theoretische Aspekte bei der Schnellbrüter-Brennstabentwicklung  
PSB-Bericht Nr. 331/1969 - Vortrag gehalten auf der Reaktortagung 1969  
in Frankfurt/Main.
- /3/ H. Kämpf:  
Einfluß der inneren Geometrie auf die radiale Temperaturverteilung von  
Schnellbrüter-Brennelementen  
KFK 751/ EUR 3710 d (1968)
- /4/ H. Kämpf, G. Karsten:  
The Saturn Code - A Theoretical Analysis of Fuel Pin Behavior and  
Fuel Void Dynamics  
KFK 1088 (1969) und Trans ANS 12, 2, 1969, S. 534
- /5/ M. Guyette:  
Crash: a Computer Programme for the Analysis of Creep and Plasticity in  
Fuel Pin Sheath  
KFK 1050 (1969)
- /6/ H. Kämpf:  
Die Möglichkeiten einer Brennstabauslegung  
Beitrag XI von "Karbidge Brennstoffe für schnelle Brutreaktoren"  
KFK 1111/EUR 4315 d (1969)



112. Herstellung und Bestrahlung von Brennstäben
1121. Probenherstellung, Laborversuche und Parametertests (Oxid.Brennst.)
- 1121.0 Herstellung von Brennstoffen und Brennstabprüflingen  
(Th. Dippel, C. Günther, H. Pollanz, IMF)

Für die Herstellung von Uran- und Plutonium-Brennstoffen und entsprechenden Bestrahlungsproben stehen zwei Laboreinheiten zur Verfügung, nämlich das Uran-Technikum und das Plutonium-Technikum. Während das Pu-Technikum bereits im Jahre 1967 mit Pu-Arbeiten begonnen hat und daher im Berichtszeitraum voll betriebsfähig war, wurde der Aufbau eines dazu parallelen Uran-Technikums - das sich nur mit Uran-haltigen Brennstoffen befaßt - erst Ende 1968 begonnen und erreichte Ende 1969 eine erste voll aktionsfähige Fertigungsstufe für  $UO_2$ -Proben. Im zweiten Halbjahr wurden dem Ausbaustand des Urantechnikums entsprechend einige Serien von  $UO_2$ -Tabletten für die axialen Brutzonen von Bestrahlungsproben hergestellt. Insbesondere erfolgte auch die Fabrikation von Uran-Nitrid-Tabletten - sowohl mit Natururan als auch mit angereichertem Uran - für andere Forschungsgruppen des IMF. Zur Vorbereitung der geplanten Fertigungslinie für UC-PuC-Mischkarbidbrennstoff im erweiterten Pu-Technikum wurde eine kleine UC-Herstellung in einer Schutzgasbox aufgebaut, deren Inbetriebnahme unmittelbar bevorsteht.

Das Pu-Technikum befaßte sich in den beiden Jahren 1968/69 fast ausschließlich mit der Herstellung von Prüflingen und Brennstäben für Bestrahlungen verschiedener Versuche und Versuchsgruppen. Die einzelnen Prüflings- und Brennstabtypen mit ihren charakteristischen Merkmalen sind in Tabelle 1 zusammengefaßt. Der typische Aufbau eines gefertigten Stabprüflings geht aus Abb. 1 hervor. Insgesamt wurden 114 Pu-haltige Stabprüflinge, die teilweise auch im Uran-Anteil hoch angereichert waren, in Einzelarbeit nach verschiedensten Spezifikationen gefertigt.

Dazu kommt noch die Herstellung verschiedener Brennstoffproben für Einzelversuche mit und ohne Bestrahlung sowie der weitere Ausbau der Labor-Einrichtungen.

Der Herstellungsprozeß für die Brennstofftabletten war für alle Versuchsgruppen im Prinzip der gleiche. Unterschiede bestanden nur in der Auswahl geeigneter Pulver-, Preß- und Sinterparameter hinsichtlich der jeweils zu erzielenden Tablettendichte. Im einzelnen vollzieht sich der Herstellungsprozeß so, daß Uranoxid- und Plutoniumoxidpulvermechanisch gemischt, mit Gleit- und Bindemittel granuliert und nachhomogenisiert werden. Mit einer automatischen Presse wird das granuliertes Pulver zu zylindrischen Tabletten gepreßt. Die für das jeweilige Pulver günstige Grünlingsdichte wird durch Vorversuche ermittelt. Die grünen Tabletten werden dann unter Schutzgas entwachst und unter Argon-Wasserstoff-Gemisch gesintert. Je nach zulässiger Durchmessertoleranz schloß sich die Bearbeitung der Tabletten auf einer spitzenlosen Rundschleifmaschine an. Durch genaues Auswägen und Vermessen wurden die einzelnen Tabletten dann charakterisiert und den Spezifikationen gemäß zu Säulen zusammengestellt. Diese waren dann in vorbereitete Hüllrohre einzuführen. Nach Einsetzen weiterer Einbauteile wurde dann das verbleibende Leervolumen mit Helium gefüllt und das Hüllrohr mit dem Endstopfen verschlossen. Das Einschweißen des Endstopfens erfolgte unter Schutzgas. Durch Schutzmaßnahmen ist dabei zu verhindern, daß dabei das Hüllrohr außen mit Pu kontaminiert wird.

Zu allen Herstellungsserien gehört ein Herstellungsbericht, in dem alle Einzelheiten und Meßdaten zusammengefaßt sind. In den beiden Jahren sind die Herstellungsberichte für die Bestrahlungsversuchsgruppen Mol 7A , Mol 8A/8B , FR 2-Kapselversuchsgruppe 4a und FR 2-Kapselversuchsgruppe 4b erschienen.

Parallel zu diesen Arbeiten wurden eine Reihe von Änderungen bei den einzelnen Arbeitsschritten vorgenommen mit dem Ziel, diese sicherer und schneller ausführen zu können. Besonders zu nennen ist die volle Inbetriebnahme der spitzenlosen Rundschleifmaschine. Durch Aufstellung eines Auflicht-Mikroskopes konnte in engem Umfang mit den wichtigsten keramographischen Arbeiten begonnen werden. Ebenso wird die Vervollständigung von Meßverfahren, z.B.  $H_2O$ -Bestimmung in Brennstoffen, in Angriff genommen. An weiteren langfristigen Arbeitsthemen steht der Aufbau einer Mischkarbid-Fertigungslinie in Vorbereitung, der nach Fertigstellung des neuen Technikums-Gebäudes realisiert werden wird.

Tabelle 1

## Pu-haltige Prüflinge für Bestrahlungsversuche

Versuchs- gruppe	Anzahl	Stab- länge (mm)	Stabdurch- messer (mm)	Brennstoff- durchmesser (mm)	Längenverteilung		Gasplenum (mm)	Sonderformen	Brennstoff- dichte % th. D.	Pu- Gehalt %	U-235-Gehalt
					Brennstoff- säule (mm)	Brutstoff- säule (mm)					
Mol 7A	9	1080	6,0	5,10 $\pm$ 0,050	500	100	271	-	87,5	20	80 % anger.
Mol 8A/B (FAFNIR)	4	840	6,0	5,10 $\pm$ 0,050	500	120	170	-	84,0	20	93 % anger.
FR 2 -4a	28	172	7,4	6,20 $\pm$ 0,050	80	-	54	-	92 + 85	15	U-nat
FR 2-4b	35	172	6,0	5,10 $\pm$ 0,030	80	-	38	Tabletten mit ein- und beid- seitiger Stirn- flächeneinsenk- g, 11 Stck. mit vibriertem Brennstoff <sup>†</sup> )	90 + 84	20	U-nat
FR 2-Loop III	34	177,3	10,0	8,50 und 8,30 $\pm$ 0,02	140	-	-	-	90 + 83	11,5	U-nat
Mol 8 C	4	1015	6,0	5,19 $\pm$ 0,01	520	195	250	Stützrohre zur Niederhaltung der Brennstoff- säule, Kapil- lare zur Mes- sung des Innen- drucks	87,6	20	93 % anger.

+ ) Das Einvibrieren besorgte das Transurane-Institut

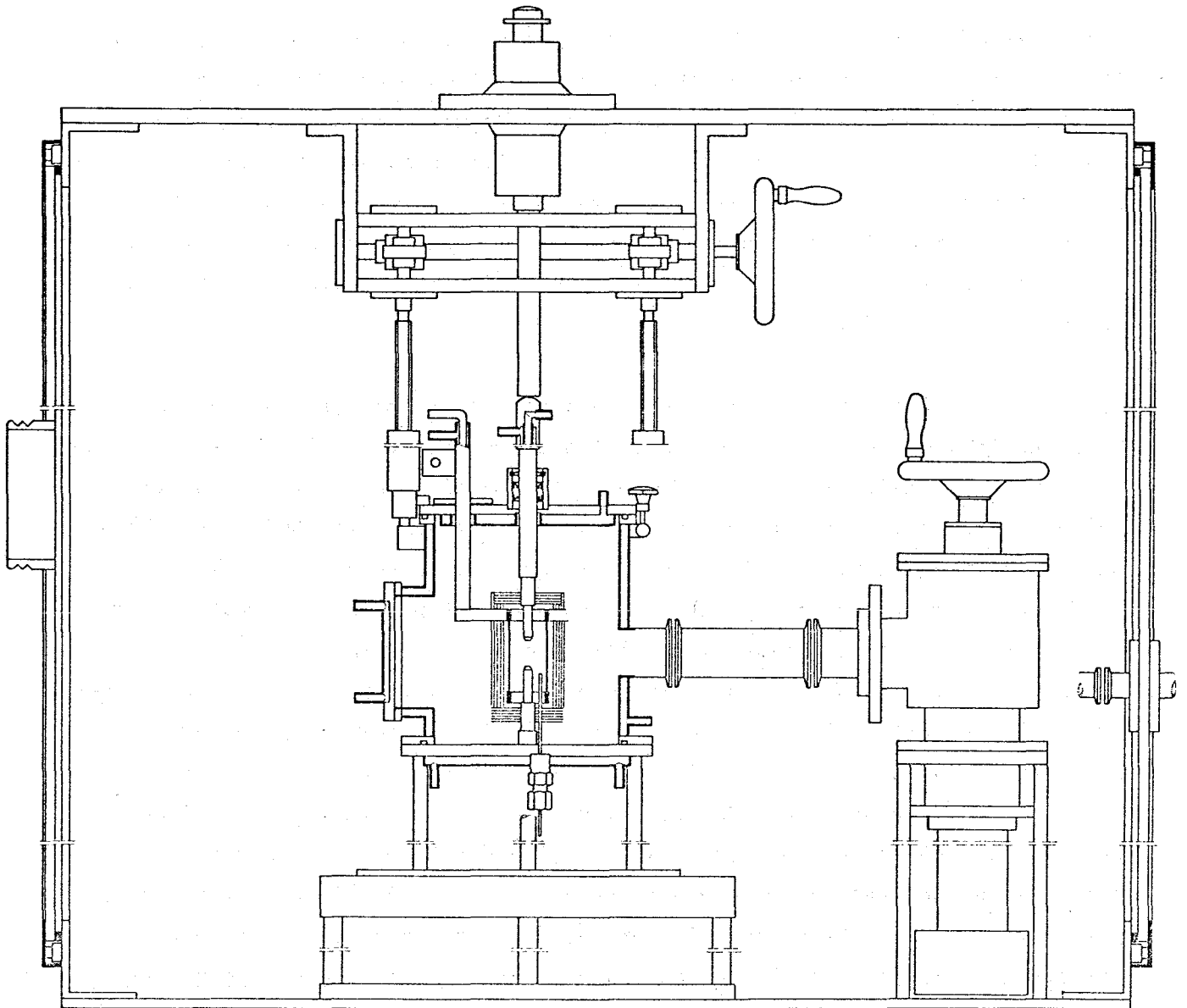


Abb. 2    Druckkriechapparatur

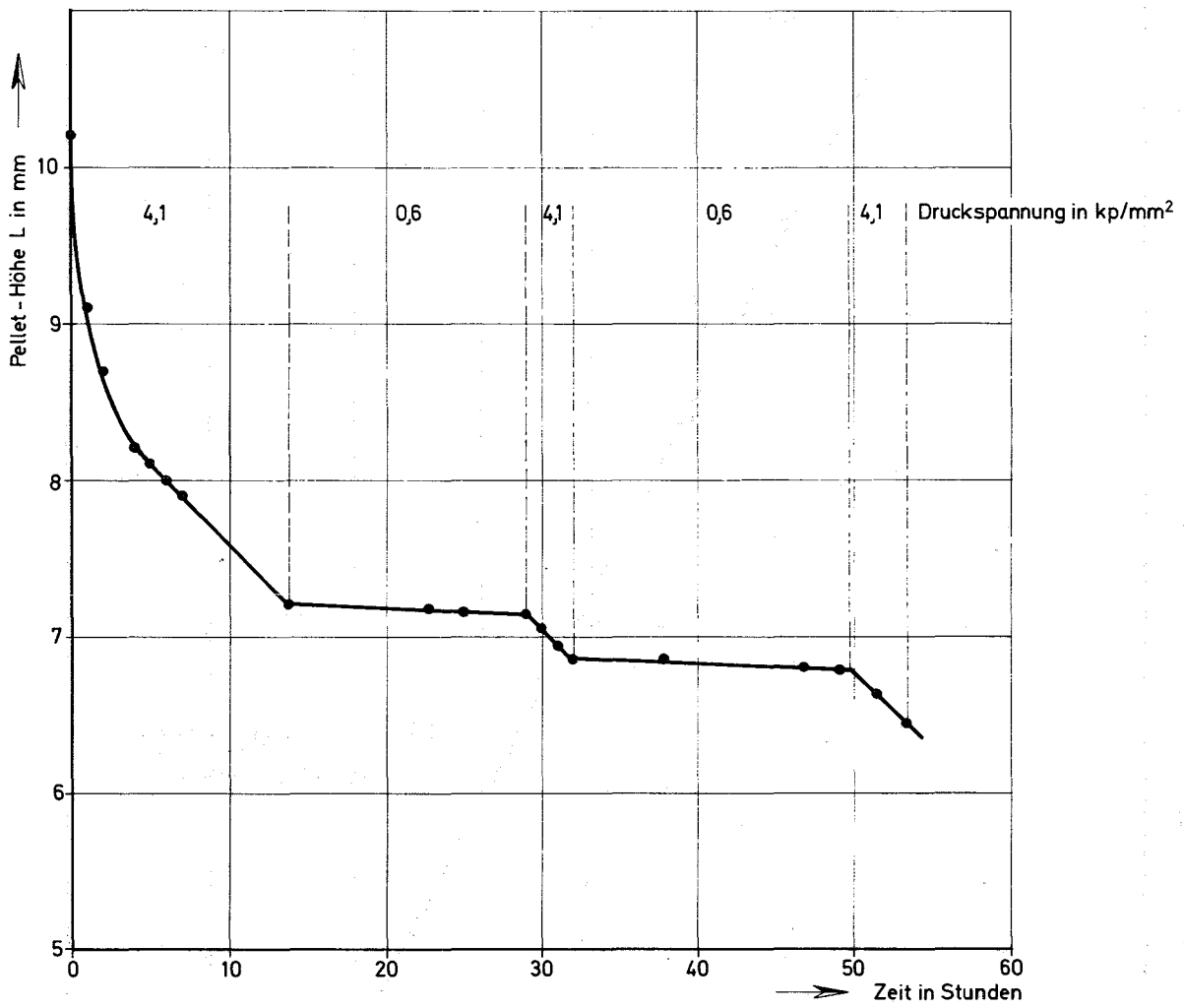


Abb. 3

Kriechversuch bei 1600°C an einer UO<sub>2</sub>-Tablette von 90,5%th.D.

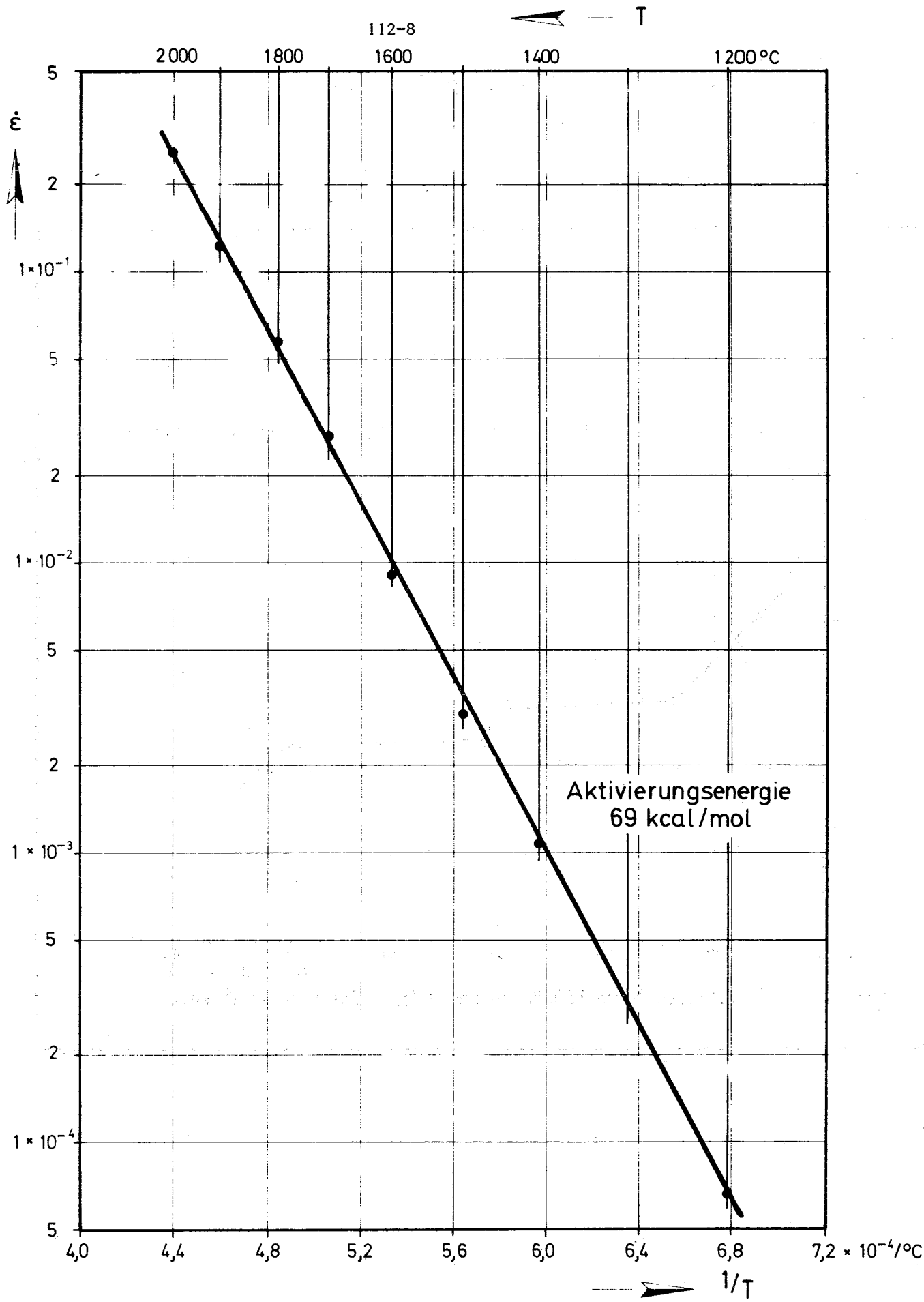


Abb. 4 Kriechgeschwindigkeit einer  $\text{UO}_2$ -Tablette von 92% th.D. in Abhängigkeit von der Temperatur, Druckspannung  $2,5 \text{ kp/mm}^2$

1121.12 Thermodynamische Eigenschaften (Oxid.Brennst.)1. Thermodiffusion (M.Bober, INR)

Die Arbeiten konzentrierten sich auf die Untersuchung der Thermodiffusion im System (U, Pu)O<sub>2</sub>. Es wurde 1968 eine neue Apparatur mit induktiver Heizung gebaut, die es gestattet, die Versuche bis zu Temperaturen von 2700°C und Temperaturgradienten von 3000°C/cm auszudehnen. Erste Diffusionsglühungen bei Temperaturen von 2500 bis 2600°C ergaben eine starke Pu-Konzentration am Hochtemperaturende der Probe. Zur exakten Auswertung dieser Konzentrationsverschiebung sind mehrere Experimente und eine Verfeinerung des Konzentrationsmeßverfahrens erforderlich. Die experimentellen Arbeiten wurden mit Unterstützung des Europäischen Instituts für Transurane durchgeführt, das ein Laboratorium zur Verfügung stellte. Auch für die Untersuchung der Thermodiffusion von Spaltprodukten in UO<sub>2</sub> wurden die Probenherstellung und weitere Konzentrationsmeßverfahren mit Unterstützung des Instituts für Transurane durchgeführt.

Die Untersuchungen an (U,Pu) O<sub>2</sub> ergaben, daß neben der Thermodiffusion zwei Prozesse, die auf der bevorzugten Verdampfung von Uranoxiden beruhen, eine bedeutende Rolle spielen. Aus den experimentellen Ergebnissen wurde die Überführungswärme bestimmt und der Thermodiffusionskoeffizient für Pu berechnet. Damit wurden Entmischungseffekte durch Thermodiffusion für lange Zeiten vorausberechnet. Neuere Untersuchungen an bestrahlten Reaktorbrandelementen in Argonne ergaben einen Entmischungseffekt, der nicht quantitativ gedeutet werden konnte, aber qualitativ mit den Ergebnissen des INR übereinstimmt.

Die Arbeiten über die Thermodiffusion von Pu in oxidischen Kernbrennstoffen sollen 1970 abgeschlossen werden.

Veröffentlichungen:

Bober, M.

Entwicklung einer dynamischen Radialflußmethode zur Wärmeleitfähigkeitsmessung und ihre Anwendung auf Kernbrennstoffproben aus Urandioxid

Dissertation, Universität Karlsruhe 1967

Externer Bericht 4/68-18

M. Bober            Plutonium migration in a thermal gradient in

C. Sari             mixed (U, Pu) oxide fuels.

G.Schumacher      Proceedings of the International Winter Meeting,  
ANS, San Francisco, November/Dezember 1969

## 2. Konstitution und Thermodynamik (H. Holleck, H. Kleykamp, IMF)

In einem zusammenfassenden Bericht wurden die thermodynamischen Eigenschaften des Mischoxids, die Stöchiometrieverschiebung durch Gasgleichgewichte und während des Abbrandes sowie die experimentellen Ergebnisse an bestrahlten Proben dargestellt (1). Die freien Bildungsenthalpien der Oxide der leichten Platinmetalle  $\text{RuO}_2$  (2)  $\text{Rh}_2\text{O}_3$  (3) und  $\text{PdO}$  (4) wurden durch Messung elektromotorischer Kräfte an galvanischen Festkörperketten bestimmt (Abb. 5).

### Veröffentlichungen:

1. H. Holleck, H. Kleykamp, Zur Stöchiometrieverschiebung in einem oxidischen Brennelement bei hohem Abbrand; KFK (in Vorbereitung)
2. H. Kleykamp, Bestimmung der freien Bildungsenthalpie von Rutheniumdioxid mit einer galvanischen Festkörperkette; Z. phys. Chemie, Neue Folge 66 (1969) 131
3. H. Kleykamp, Freie Bildungsenthalpie von Rhodiumsesquioxid; Z. Phys. Chem., Neue Folge 67 (1969) 277
4. H. Kleykamp, Freie Bildungsenthalpie von Palladiumoxid; Z. Phys. Chem., Neue Folge (in Vorbereitung)

## 3. Wärmeleitfähigkeitsbestimmung von Brennstoff im FR 2 (Dänner, IRE)

Die Entwicklung eines in-pile-Meßverfahrens zur Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit von Brennstoff nach dem Balanced Oscillator-Prinzip wurde im Berichtszeitraum abgeschlossen. Mit Hilfe von Technikumsversuchen konnte die praktische Anwendbarkeit des Verfahrens grundsätzlich nachgewiesen werden. Ein abschließender Bericht wird 1970 erscheinen.

Eine ausführliche Fehleranalyse hat ergeben, daß genügend interessante Ergebnisse bei in-pile-Experimenten erzielt werden können, wenn hohe Prüflingsleistungen und relativ schnelle Leistungsänderungen zu erreichen sind bei bestmöglicher Genauigkeit der verschiedenen Meßdaten.

Die praktische Durchführung von Experimenten im FR 2 bereitet jedoch erhebliche Schwierigkeiten. Einerseits wären sehr umfangreiche Vorbereitungen erforderlich, andererseits wäre es relativ schwierig, ausreichend gute Betriebsbedingungen bei den technischen Gegebenheiten im FR 2 zu erreichen.



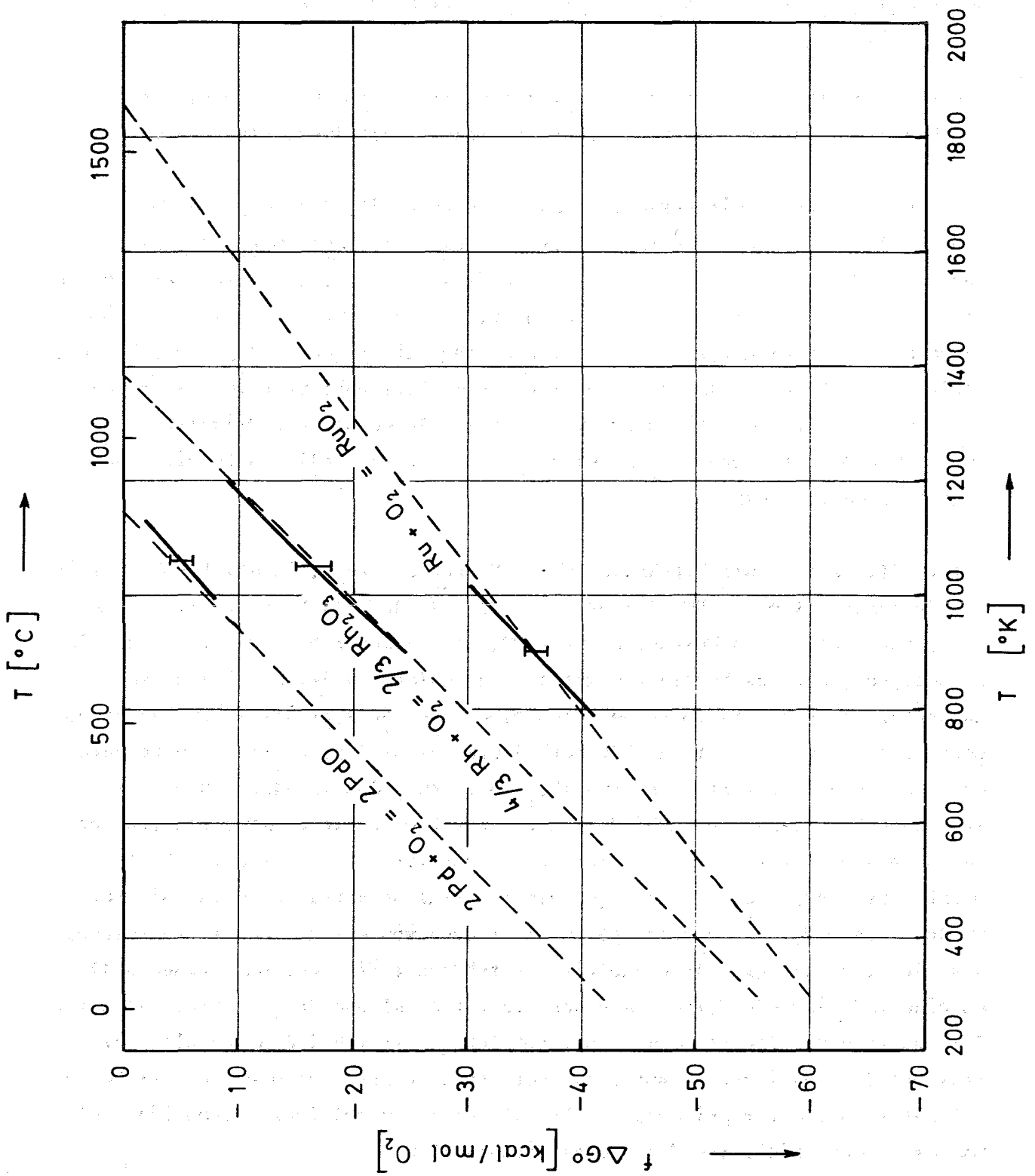


Abb. 5

Freie Bildungsenthalpien der leichten Platinmetalloxide. Die eigenen Messungen sind als ausgezogene Linien dargestellt, die gestrichelte Kurven empfohlene Literaturwerte.

1121.13 Chemische Eigenschaften und Analytik (Oxid. Brennst.)1. Bestimmung der Stöchiometrie in oxidischen Kernbrennstoffen

(D. Vollath)

Das gebräuchlichste Verfahren zur Stöchiometriebestimmung an oxidischen Kernbrennstoffen ist das gravimetrische Oxidations-Reduktionsverfahren.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Anlage entwickelt, die bekannte Fehlerquellen dieser Methode nicht aufweist. Dieses Ziel konnte nur erreicht werden, wenn die Probe während des gesamten Versuchsablaufes in einer kontrollierten Atmosphäre gehalten wurde. Dazu war der Aufbau einer speziellen Thermowaage nötig. Da eine elektronische Thermowaage nicht genügend genau arbeitet, wurde mit Hilfe einer mechanischen Waage eine "diskontinuierliche Thermowaage" entwickelt. Um definierte Endprodukte bei der Trocknung der Oxidation bzw. der Reduktion der Proben zu erzielen, mußte eine spezielle Gasreinigungsanlage aufgebaut werden.

Die Tabelle 2 gibt die Ergebnisse einer Meßreihe wieder, in der Stöchiometrie und Wassergehalt eines  $\text{UO}_2$ -Pulvers von  $5,7 \text{ m}^2/\text{g}$  der Fa. NUKEM mehrfach gemessen wurde. Bei diesen Messungen wurde  $\text{UO}_2$  als Bezugsgröße gewählt. Zeigt diese Analysenserie das Fehlen von zufälligen Fehlern in der beschriebenen Meßapparatur, so soll das folgende Beispiel das Fehlen systematischer Fehler aufzeigen. In Tabelle 3 ist das O/U-Verhältnis der oxidierten Probe zu beachten, das - auf den reduzierten Zustand ( $\text{UO}_2$ ) bezogen - dem Idealwert von 2,666... sehr nahe kommt. Da die Verbindungen  $\text{UO}_2$  und  $\text{U}_3\text{O}_8$  gleichermaßen reproduzierbar hergestellt werden können, ist es gleichgültig, ob bei einer Stöchiometriebestimmung das  $\text{UO}_2$  oder  $\text{U}_3\text{O}_8$  als Bezugsgröße verwendet wird. Die Verwendung des  $\text{U}_3\text{O}_8$  als Bezugsgröße ist aber dann von entscheidender Bedeutung, wenn der Sauerstoffgehalt Pu-haltiger Kernbrennstoffe bestimmt werden soll, da eine reduzierende Wirkung des Wasserstoffes auf das  $\text{PuO}_2$  festzustellen ist. Der Fehler durch Reduktion des  $\text{PuO}_2$  auf  $\text{PuO}_{2-x}$  liegt bei den gewählten experimentellen Bedingungen außerhalb der Fehlergrenzen der hier beschriebenen Apparatur. Bei der Bestimmung der Stöchiometrie Pu-haltiger Mischoxide wählt man daher den oxidierten Zustand als Bezugsgröße.

2. Verträglichkeit von  $\text{UO}_2$  mit hochschmelzenden Metallen

(D. Vollath)

Im Rahmen einer breit angelegten Studie wurde die Verträglichkeit von  $\text{UO}_2$  mit den hochschmelzenden Metallen Mo, W, Re, Ta sowie den Legierungen W 26 % Re und W 50 % Mo bei Temperaturen bis zu  $2100^\circ\text{C}$  untersucht. Dabei wurden die

folgenden die Verträglichkeit begrenzenden Erscheinungen gefunden:

- Tantal bildet mit  $\text{UO}_2$  ein bei  $1850^\circ\text{C}$  schmelzendes Tantalat der Formel  $\text{U}(\text{TaO}_3)_4$ .
- Molybdän ist kurzzeitig gut verträglich, bei längeren Diffusionszeiten jedoch ist im  $\text{UO}_2$  Molybdän und im Molybdän  $\text{UO}_2$  zu finden, welches bei Temperaturwechsel zerstörend wirkt.
- Wolfram verhält sich ähnlich wie Molybdän.
- Rhenium zeigte das beste Verträglichkeitsverhalten. In Rhenium selbst war nie  $\text{UO}_2$  nachweisbar, in  $\text{UO}_2$  hingegen war an den Korngrenzen Rhenium zu finden. Der Materialverlust des Rhenium ist jedoch vernachlässigbar.
- Die beiden untersuchten Legierungen verhielten sich so, wie es aus dem Verhalten der reinen Elemente zu erwarten war.

Bei den Metallen W, Mo sowie bei den Legierungen W 26% Re, W 50% Mo wurde der folgende Zerstörungsmechanismus nachgewiesen:

Vom  $\text{UO}_2$  kommend geht - wahrscheinlich über die Gasphase - metallisches Uran auf die zu untersuchenden Proben über. Dort diffundiert das Uran entlang den Korngrenzen in die Probe ein. Da in den hochschmelzenden Metallen auch Sauerstoff löslich ist, wird dieses metallische Uran in den Korngrenzen zu  $\text{UO}_2$  oxidiert. Bei Temperaturzyklen reißt nun das  $\text{UO}_2$ , das an den Korngrenzen abgelagert ist, infolge des unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten die Korngrenzen auf. Experimentell konnten nicht nur Korngrenzenrisse, sondern auch  $\text{UO}_2$  sowie Uran an den Korngrenzen nachgewiesen werden [1].

### 3. Verträglichkeit von Bornitrid mit Wolfram, Molybdän und Rhenium

(D. Vollath, F.D. Baehren)

Bei der Suche nach einem Isoliermaterial für Hochtemperatur-Thermoelemente wurde auch die Verwendung von Bornitrid ins Auge gefaßt. Wie die bei uns durchgeführten Untersuchungen zeigen, ist Bornitrid in Vakuum mit Molybdän bis  $1150^\circ\text{C}$ , Wolfram bis  $1350^\circ\text{C}$  und mit Rhenium bis  $1350^\circ\text{C}$  verträglich. Oberhalb dieser Temperaturen bilden sich Boride. Die Kinetik der Boridbildung wurde eingehend untersucht.<sup>2)</sup> Die Tabelle 4 zeigt die auftretenden Teilreaktionen sowie die gemessenen Aktivierungsenergien dieser Reaktionen. Diese Messungen wurden mit Hilfe einer Thermowaage durchgeführt. Abb. 6 zeigt als Beispiel den Reaktionsverlauf der Bildung von  $\text{ReB}_2$  aus Rhenium und Bornitrid. Zusätzlich wurden noch die thermodynamischen Daten der Boride  $\text{W}_2\text{B}$ ,  $\text{Mo}_2\text{B}$  und  $\text{Re}_3\text{B}$  bestimmt. Diese Daten sind in der Tabelle 5 zusammengestellt [3].

Tabelle 2Stöchiometrie und Wassergehalt eines sinterfähigen  $UO_2$ -Pulvers

Proben- gewicht (p)	Probe getrocknet (p)	Probe reduziert (p)	scheinbare Stöchiometrie	Wassergehalt (%)	Stöchiometrie
1,82173	1,81323	1,79235	2,2768	0,467	2,1968
1,22005	1,2152	1,201	2,2688	0,398	2,2017
1,55353	1,54898	1,5304	2,2541	0,296	2,2034
1,6253	1,6217	1,6024	2,2433	0,234	2,2032
1,55695	1,55195	1,5338	2,2547	0,321	2,1997
1,7486	1,7438	1,7231	2,2497	0,275	2,2027

Tabelle 3O/U-Verhältnis von  $U_3O_8$ 

Einwaage (p)	Probe reduziert (p)	Probe oxidiert (p)	(O/U) oxidiert
1,57600	1,55290	1,61420	2,6661
1,81510	1,78915	1,85930	2,6665
1,68070	1,65326	1,71860	2,6665

Tabelle 4

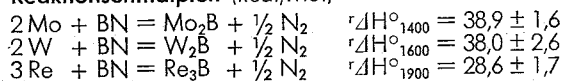
Teilreaktionen und deren Aktivierungsenergie bei den Reaktionen von Mo, W und Re mit Bornitrid

Reaktion	Teilreaktion	Aktivierungsenergie (kcal/Mol)
Mo + BN = MoB + $\frac{1}{2}$ N <sub>2</sub>	2Mo + BN = Mo <sub>2</sub> B + $\frac{1}{2}$ N <sub>2</sub>	135 ± 9
	Mo <sub>2</sub> B + BN = 2 MoB + $\frac{1}{2}$ N <sub>2</sub>	(135 ± 9)
W + BN = W <sub>2</sub> B + $\frac{1}{2}$ N <sub>2</sub>	2W + BN = W <sub>2</sub> B + $\frac{1}{2}$ N <sub>2</sub>	149 ± 10
	W <sub>2</sub> B + BN = 2WB + $\frac{1}{2}$ N <sub>2</sub>	165 ± 12
Re + 2BN = ReB <sub>2</sub> + N <sub>2</sub>	3Re + 2BN = Re <sub>3</sub> B + $\frac{1}{2}$ N <sub>2</sub>	107 ± 7
	7Re <sub>3</sub> B + 2BN = 3Re <sub>7</sub> B <sub>3</sub> + N <sub>2</sub>	133 ± 9
	Re <sub>7</sub> B <sub>3</sub> + 11BN = 7ReB <sub>2</sub> + $\frac{3}{2}$ N <sub>2</sub>	182 ± 12

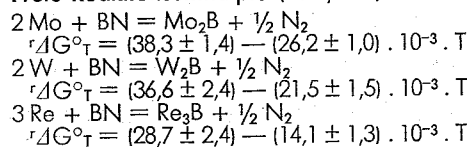
Tabelle 5

Thermodynamische Daten der Boride Mo<sub>2</sub>B, W<sub>2</sub>B, Re<sub>3</sub>B

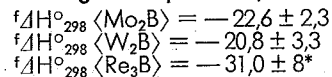
## 1. Reaktionsenthalpien (kcal/Mol)



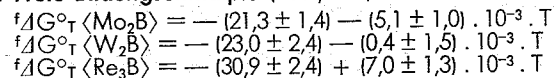
## 2. Freie Reaktionsenthalpie (kcal/Mol)



## 3. Bildungsenthalpie (kcal/Mol)



## 4. Freie Bildungsenthalpie (kcal/Mol)



1900°  
\* Unter der Annahme  $\int_{298}^{1900} \Delta c_p \cdot dT = 0 \pm 5 \text{ kcal}$   
298°

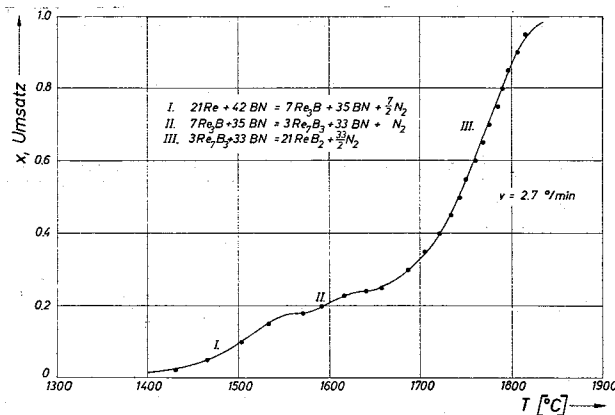


Abb. 6 Bildung von  $\text{ReB}_2$  aus Rhenium und Bornitrid

#### 4. Untersuchungen mit der Mikrosonde

(D. Huber, IMF)

Die Untersuchung bestrahlter oxidischer Brennstoffproben mit der Elektronenstrahl-Mikrosonde befaßte sich vorwiegend mit der Analyse und Verteilung von Spaltprodukten. Man kann diese entsprechend ihrer thermodynamischen Stabilität bezüglich des  $\text{UO}_2$  und  $\text{PuO}_2$  grob in zwei Gruppen einteilen. Zur ersten Gruppe gehören Zr, Sr, Ba und die SE-Metalle. Sie bilden Oxide, die ähnlich stabil sind wie  $\text{UO}_2/\text{PuO}_2$ . Zur zweiten Gruppe gehören Mo, Tc, Ru, Rh und Pd, deren Oxide weniger stabil sind und die deshalb in Form von metallischen Ausscheidungen als Mehrstofflegierungen gefunden werden. Mo bildet das stabilste Oxid dieser Gruppe. Mit der Mikrosonde wurde im stöchiometrischen Brennstoff in den metallischen Ausscheidungen weniger Mo als im unterstöchiometrischen gefunden.

Außerdem ändert sich die radiale Konzentration der Ausscheidungen im Temperaturgradienten: Mo und Tc nehmen mit fallender Temperatur ab, Ru und Rh zu (Abb. 7). Die Ursachen sind noch nicht geklärt, und die Ergebnisse wichen z.T. von Literaturangaben ab. Die radiale Abhängigkeit wurde in stabförmigen Brennstoffproben gefunden. In einer scheibenförmigen  $\text{UO}_2/\text{PuO}_2$ -Probe war kein analoger Zusammenhang zu erkennen. Te, Ba und Ce wurden in oxidischen Phasen gefunden. In zwei Proben wurde eine Reaktion von Cs mit dem Hüllmaterial beobachtet.

Eine Bestimmung der Brennstoff-Entmischung in  $\text{UO}_2/\text{PuO}_2$  ergab eine Anreicherung des Pu im Brennstoffzentrum und ein Minimum zwischen den Stengelkristallen und dem grobkristallinen Bereich (Abb. 8).

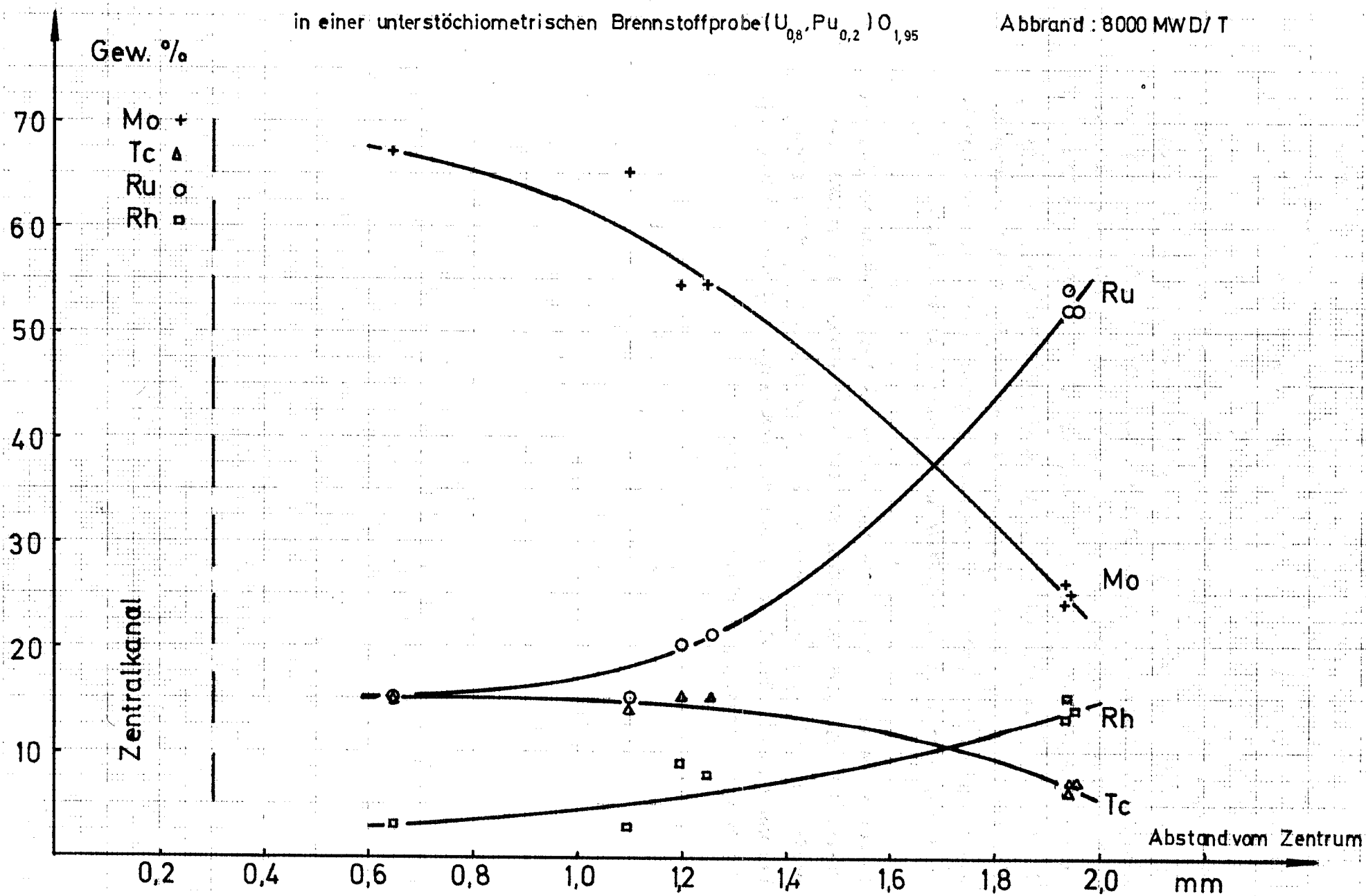
Einen etwa gleichen Zeitanteil gegenüber selbständigen Arbeiten beanspruchten Untersuchungen für andere Arbeitsgruppen. Hieraus ergeben sich einige allgemeine messtechnische Gesichtspunkte. Z.B. ist die Analyse leichter Elemente, wie C, N, O ein bekanntes Problem der Elektronenstrahl-Mikroanalyse. Quantitative Bestimmungen in den Systemen UN/Me (Me = Cr, Cu, Mo) ergaben wenig befriedigende Ergebnisse sowohl bei direkter Bestimmung des Stickstoffs als auch bei indirekter Berechnung als Diffusion auf 100%. Als einfachster Weg zur Lösung erscheint die Beschaffung geeigneter Standardproben bekannter Zusammensetzung.

Es wurden weiterhin eine Reihe von Proben aus Verträglichkeits (UC, UN, UC-Ti) und Korrosionsuntersuchungen (VTi-Legierungen im Natrium) überprüft und Diffusionszonen ausgemessen. In  $\text{UO}_2/\text{Cr}$  und  $\text{UO}_2/\text{V}$ -Heißpreßproben wurden in Abhängigkeit von der Preßtemperatur und dem Preßdruck die Dichte der Diffusionsschichten bestimmt.

Radiale Veränderung der chemischen Zusammensetzung metallischer Spaltproduktsegregationen

in einer unterstöchiometrischen Brennstoffprobe  $(U_{0,8}, Pu_{0,2})O_{1,95}$

Abbrand : 8000 MWD/ T





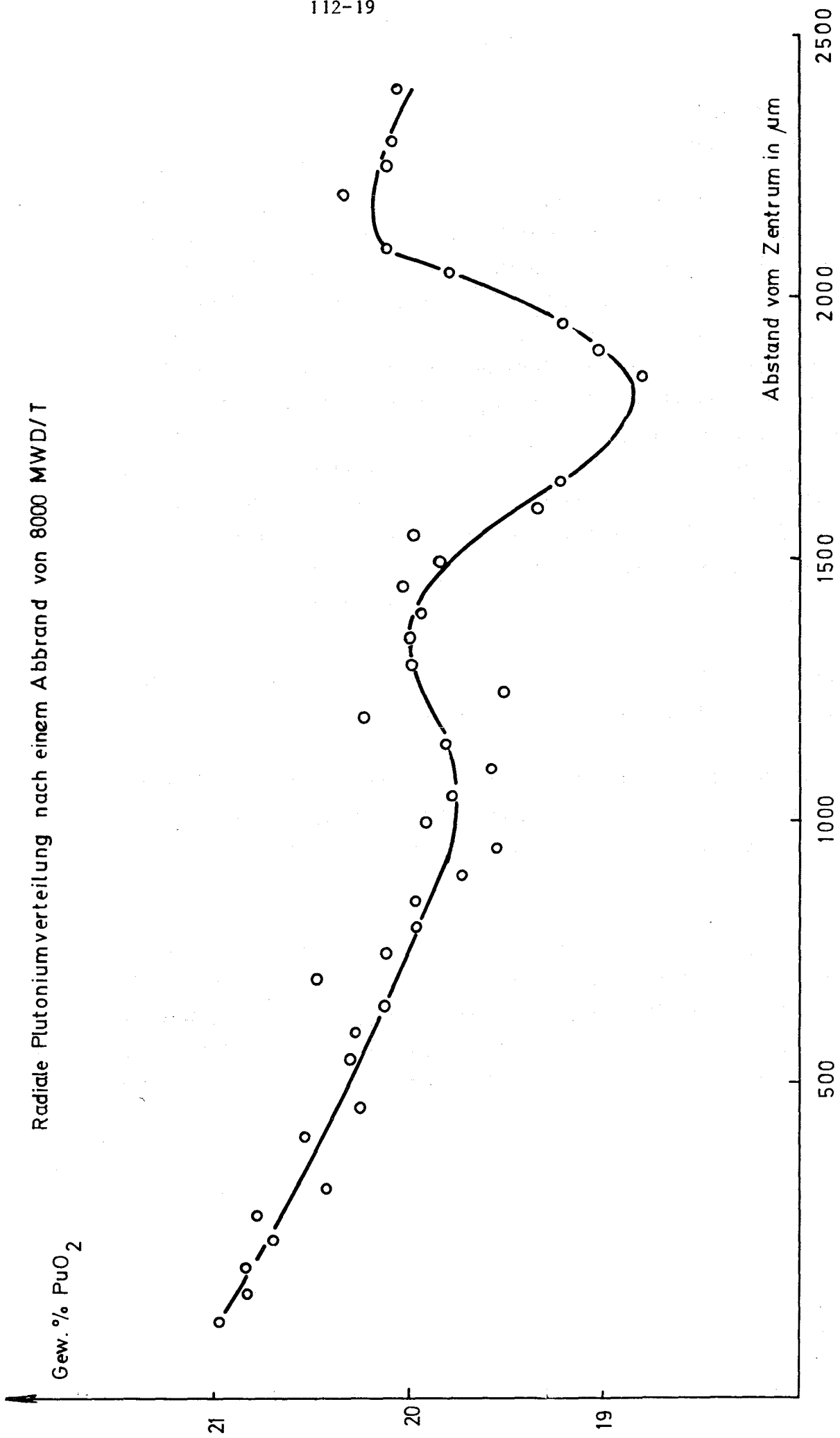


Abb. 8

## 5. Analytische Arbeiten

(H. Schneider, IMF)

Die chemisch-analytischen Arbeiten befaßten sich vorwiegend mit der quantitativen Bestimmung der verschiedenen Elemente in keramischen Brennstoffen, in Hüllwerkstoffen (Edelstahl, Ni-Basis und Vanadinlegierungen), im metallischen Kühlmittel Natrium und in Korrosionsprodukten. In den Jahren 1968/1969 sind insgesamt an die 1000 Analysen mit über 5000 Einzelbestimmungen durchgeführt worden. Für die Bestimmung verschiedener Elemente mußten neue Bestimmungsmethoden überprüft bzw. ausgearbeitet werden. So wurde z.B. für die Analyse von Korrosionsschichten und anderen geringen Substanzmengen eine neue Boraxscheibenmethode entwickelt, bei der die Bestimmung der einzelnen Elemente röntgenspektrometrisch erfolgt. Für die Bestimmung des Calciums in Natrium-Metall wurde eine Methode entwickelt, die die sichere Aussage Ca-Geh.  $< 10$  ppm in Na-Metall zuläßt.

Über Arbeiten zur Bestimmung des Stickstoffs in hochschmelzenden Nitriden wurde beim 6. Plansee-Seminar berichtet (8).

Als neues Mittel der quantitativen Analyse wurde die Atomabsorption eingeführt und mit sehr gutem Erfolg z.B. bei der Analyse von Korrosionslösungen auf Fe, Cr, Ni und in den verschiedensten Materialien, auch Mg, Al, Cr, Ca eingesetzt.

Wegen der steigenden Nachfrage an Gasanalysen wurde der Exhalograph der Fa. Balzers angeschafft; die Apparatur steht seit Oktober 1969 im Einsatz. Nach Festlegung der günstigsten Arbeitsbedingungen für die Bestimmung des Sauerstoffs in V-Legierungen und von Sauerstoff und Stickstoff in Uranverbindungen wurden bereits ca. 70 V-Legierungen auf Sauerstoff analysiert.

Veröffentlichungen zu 1121.1:

1. D. Vollath:  
Verträglichkeit hochschmelzender Metalle mit Urandioxid  
KFK 762, EUR 3952 d (1968)
2. F.D. Baehren, F. Thümmeler, D. Vollath:  
Die Kinetik der Bildung von Boriden des Molybdän, Wolfram und Rhenium  
aus Bornitrid-Metallpulvergemischen  
J. Less-Common Metals 18 (1969) 295
3. F.D. Baehren, D. Vollath:  
Eine Bestimmung der thermodynamischen Daten der Boride  $\text{Mo}_2\text{B}$ ,  $\text{W}_2\text{B}$  und  $\text{Re}_3\text{B}$   
Planseeberichte für Pulvermetallurgie 17 (1969) 180
4. P. Hofmann, F. Thümmeler, H. Wedemeyer:  
Verträglichkeitsuntersuchungen mit simulierten Spaltprodukten an  
nichtrostendem Stahl und Molybdän, mit und ohne Gegenwart von  $\text{UO}_2$ .  
KFK 979 (1969)
5. P. Hofmann, F. Thümmeler:  
Verträglichkeitsuntersuchungen mit simulierten, nichtmetallischen  
Spaltprodukten an Hüllmaterialien des Schnellen Brütters, mit und ohne  
Gegenwart von  $\text{UO}_2$  und UC.  
KFK (in Vorbereitung)
6. B. Kegel:  
Elektronenstrahlmikroanalyse von bestrahltem Kernbrennstoff  
Kerntechnik, 11. Jahrg. (1969) Nr. 11
7. B. Kegel, F. Thümmeler:  
KFK (in Vorbereitung)
8. H. Schneider, Vortrag:  
Hochtemperatur-Werkstoffe-  
6. Plansee-Seminar 1968, S. 1028

1121.2/3 Parametertests unter Bestrahlung (Brennstäbe m. oxid. Brennstoff)1. Bestrahlungstechnik und -einrichtungenFR 2 - Kapselinsätze (E.Bojarsky, IRE; RB, IMF, INR)

Der FR 2 bietet mit seinem relativ großen Core die Möglichkeit, viele Kapselbestrahlungseinsätze für PSB-Brennstabexperimente gleichzeitig zu betreiben. Im Jahre 1969 wurden in dem langjährig erprobten NaK-PbBi-Doppelkapseltyp über 100 Brennstabproben bestrahlt, wobei Abbrände von max. 86000 MWd/t erreicht wurden. In einer besonderen Molybdänkapsel sind UN-Brennstoffproben bei hoher Temperatur (Zentraltemperaturmessung) und großer Stabileistung erfolgreich bestrahlt worden. Von dem für die Messung des in-pile-Kriechens mechanisch belasteter Brennstabproben entwickelten Kriechkapseltyp sind 4 Exemplare im Reaktor betrieben worden. Alle diese Kapselbauarten werden auch weiterhin für verschiedene Experimente benötigt.

Veröffentlichungen:

Häfner, H.:

Bestrahlung von Brennstäben in instrumentierten Blei-Wismut-Kapseln  
Irradiation of fuel pins in instrument-equipped Lead-bismuth-capules  
Kerntechnik-Isotopentechnik und -chemie, 10 (1968) S. 136-141  
KFK-Bericht 780

Bojarsky, E.:

Helium-Kreislaufanlage für Bestrahlungsversuche mit Brennstoffstäben im  
FR 2, Karlsruhe  
Kerntechnik-Isotopentechnik und -chemie, 10 (1968) S. 344-350

H. Deckers, H. Reiser:

Versuchseinrichtung für die Kurzzeitbestrahlung von Brutreaktor-Brennstäben  
im Reaktor FR 2.  
Kerntechnik, Jg. 11, Heft 7, 1969

BR 2 (Mol, Belgien)

Der belgische Forschungsreaktor BR 2 nimmt wegen seines hohen Anteils an schnellen Neutronen im Rahmen der durchzuführenden Bestrahlungsprogramme sowohl für das PSB, Karlsruhe, als auch für das THTR-Projekt, Jülich eine wichtige Stellung ein.

Aus diesem Grunde schlossen die GfK und das belgische Kernforschungszentrum Mol, Ende 1968 im Einvernehmen mit dem damaligen BMWF einen Vertrag über den gemeinsamen Betrieb des BR 2 ab. Dieser Vertrag sichert der deutschen Seite auf zunächst 5 Jahre etwa 50% der Bestrahlungskapazität des BR 2. Das erste Jahr der praktischen Zusammenarbeit hat gezeigt, daß die Bestrahlungsprogramme, die in einem Gemeinsamen Ausschuß halbjährlich festgelegt und in monatlichen Abstimmungen koordiniert werden, reibungslos durchgeführt werden konnten. Eine gemeinsam aus Karlsruhe und Jülich gebildete Arbeitsgruppe in Mol verfolgt und unterstützt die Durchführung der Bestrahlungsprogramme am BR 2.

Gegenwärtig werden für das PSB insbesondere Bestrahlungen von oxidischen Brennstäben in Kapseln und oxidischen Brennelementbündeln in Natriumloops durchgeführt. Bestrahlungen von karbidischen Brennstoffen sind in Vorbereitung. Daneben werden auf der Hüllmaterialseite sowohl Auswahlbestrahlungen als auch technologische Bestrahlungen unter realistischen Bedingungen vorgenommen.

Die derzeitige Leistung des Reaktors beträgt 70 MWth. Ab 1971 ist eine Leistungserhöhung auf 100 MWth vorgesehen. Dadurch können die Bestrahlungsprogramme von Karlsruhe und Jülich auf noch breiterer Basis durchgeführt werden. Außerdem werden z.Zt. Überlegungen angestellt, ob die Bestrahlungsbedingungen im BR 2 durch eine Flußanhebung und Veränderung des Neutronenspektrums echten Brüterverhältnissen noch weiter angenähert werden können.

## 2. Ergebnisse der Brennstoffbestrahlung im FR 2

### a) Brennstoffbestrahlungen im FR 2-He-Loop-Einsatz

Anfang 1968 wurden die restlichen 4 Prüflinge aus der He-Loop-Vg. 2 eingesetzt. Im Anschluß daran erfolgte die Bestrahlung der zyklischen Gruppe Vg. 2Z (von Ende Februar bis Mitte Oktober). Im Oktober und

November kamen dann noch einmal drei Kurzzeitprüflinge mit Zentraltemperaturmessung zum Einsatz (Vg. 2). Damit wurde das Kurzzeitbestrahlungsprogramm mit  $UO_2$ -Brennstoff abgeschlossen.

Die Bestahlungsergebnisse der He-Loop-Vg. 2 sind in Tab. 1, diejenigen der zyklischen Gruppe in Tab. 2 zusammengefaßt. Bei J1, J14, J16, J17 und J24 wurde die Bestahlung durch einen Schnellschluß des Reaktors zum Teil mehrmals unterbrochen. Solche unterbrochenen Zyklen sind in Tab. 2 an der Bestahlungszeit zu erkennen.

Im FR2-He-Loop wurden 1969 ca. 20 Kurzstäbe aus der Versuchsgruppe 2 Z bestrahlt. Die variierten Parameter sind:

Brennstoffdichte	83 und 90 % th.D.
rad. Spaltweite	50 und 150 $\mu$ m
Stableistung	500, 600, 700 W/cm
Bestahlungszeit	4 h, 1 d, 3 d, 9 d, 27 d
Anzahl der Zyklen	0, 3, 9

Die Nachuntersuchung dieser Stäbe ist für 1970 vorgesehen. 19 weitere Stäbe der Vg. 3 befinden sich noch im FR2.

Tabelle 1: Bestrahlungsdaten der He-Loop-Versuchsgruppe 2

gewünschte Stab- lei- stung [W/cm]	Be- strah- lungs- zeit	Prüf- ling	bestrahlt am	Brennstoffform			tatsächliche		Ände- rungen	
				Tablettendichte [%th.D]	Schmierdichte [%th.D]	Spaltweite(radial)[ $\mu$ m]	Dishing [vol.%]	Stab- lei- stung [W/cm]		Zeit
500	10 min	L 1	18.10.66	Tabl.-93-90-50-0			Ausfall der TE			
		L 4	30. 3.67	Tabl.-88-85-50-0			510	10 min		
	2 h	L 2	22.11.66	Tabl.-93-90-50-0			680*	2 h		
		L 5	13.12.66	Tabl.-88-85-50-0			370*	1,95 h		
		L 14	29. 3.67	Tabl.-93-85-50-5			510	2 h		
		L 28	19. 7.67	Pulver, gesintert - 85			486	2,06 h		
		L 35	26. 7.67	Pulver,geschmolzen- 85			550	2,05 h		
	24 h	L 6	26. 4.67	Tabl.-88-85-50-0			560	2 h	* 2)	
		L 23	12. 6.67	Tabl.-90-80-125-5			540	25,1 h		
		L 29	<b>22. 2. 68</b>	Pulver, gesintert - 85			500	<b>49 min</b>	* 4)	
	750	10 min	L 1x	23.11.66	Tabl.-93-90-50-0			710*	9 min	
			L 7	22. 3.67	Tabl.-88-85-50-0			740	10 min	
L 18			6. 4.67	Tabl.-90-85-125-0			845	12 min		
L 24			13. 4.67	Tabl.-90-80-125-5			710	31 min		
L 30			18. 7.67	Pulver, gesintert - 85			740	12 min		
L 36			7. 9.67	Pulver,geschmolzen- 85			725	14 min		
2 h		L 2x	17.11.66	Tabl.-93-90-50-0			940*	1,32 h	* 1)	
		L 8	19.12.66	Tabl.-88-85-50-0			500	2,17 h		
		L 15	17. 1.67	Tabl.-93-85-50-5			610*	1,9 h		
		L 19	21. 3.67	Tabl.-90-85-125-0			740	2,1 h		
		L 25	5. 7.67	Tabl.-90-80-125-5			760	2,83 h		
		L 31	11. 7.67	Pulver, gesintert - 85			780	2,1 h		
24 h		L 37	28. 7.67	Pulver,geschmolzen- 85			760	2 h		
		L 9	1. 3.67	Tabl.-88-85-50-0			ca.750	24,33 h	* 2)	
		L 26	14. 6.67	Tabl.-90-80-125-5			ca.740	2,15 h		
		L 32	11. 9.67	Pulver, gesintert - 85			ca.720	24,05 h		
		L 38	14.11.67	Pulver,geschmolzen- 85			ca.730	24,43 h		
		1000	10 min	L 1Z	9. 3.67	Tabl.-93-90-50-0			950*	11 min
L 10	8. 3.67			Tabl.-88-85-50-0			975	11 min		
L 20	<b>19. 2. 68</b>			Tabl.-90-85-125-0			<b>1000</b>	<b>24 h</b>	* 5)	
L 33	6. 2.68			Pulver, gesintert - 85			1000	10 min		
2 h	L 2Z		6.12.66	Tabl.-93-90-50-0			380*	2 h	* 1)	
	L 11		7. 3.67	Tabl.-88-85-50-0			ca.900	2 h		
	L 16		9. 5.67	Tabl.-93-85-50-5			890	2 h		
	L 21		7. 6.67	Tabl.-90-85-125-0			960	2,1 h		
	L 34		16.11.67	Pulver, gesintert - 85			950	2,18 h		
24 h	L 39		5. 2.68	Pulver,geschmolzen- 85			1000	2 h		
	L 12		2. 5.67	Tabl.-88-85-50-0			960	24,3 h		
	400 - 24 h Zentraltemp.		L 3	3. 7.67	Tabl.-93-90-50-0			469	23,9 h	* 3)
L 13		14. 10.68	Tabl.-88-85-50-0			500-850	ca. 10 d			
L 17		21. 6.67	Tabl.-93-85-50-5			500	24,27 h	* 3)		
L 22		30. 10.68	Tabl.-90-85-125-0			500-650	ca. 10 d			
L 27		15. 11.68	Tabl.-90-80-125-5			500-850	ca. 10 d			

\* Stableistung wurde nachträglich aus der Bestrahlungsposition ermittelt

\*1) L 2Z mit L 2x ausgetauscht

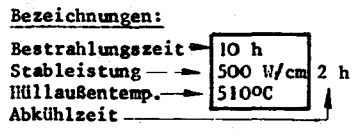
\*2) L 6, L 26 nur 2 h statt 24 h bestrahlt (wegen Ausfall von T.E.)

\*3) Zentraltemperaturmessung ausgefallen

\*4) Innendruckmessung, vorzeitiger Abbruch wegen TE.-defekt

\*5) 24 h statt 10 min bestrahlt

Prüflingsbezeichnung Brennst. form u.-dichte Spaltweite-Schmierd. Bestrahlungszeit	BESTRAHLUNGSABLAUF							Σ Be.Zt Abbrand (Mwd/tM)
	ZYKLUS:							
	1	2	3	4	5	6	7	
J 1 T 89,5 ± 1 % th.D. 75 μ rad.- 86 % th.D. 27.2. - 29.2.68	1 h 500 W/cm 300°C	28 h 1,84 h 500 W/cm 305°C	15,84 (h) 1,33 h 500 W/cm 424°C					4,17 18,2
J 9 P 85 % th.D. ..... 19.3. - 21.3.68	18,5 h 508 W/cm 415°C	2 h 25,27 h 525 W/cm 415°C						43,77 200
J 10 P 86 % th.D. ..... 22.3.-26.3.68	44,1 h 508 W/cm 480°C	4 h 43,85 h 500 (540) 505°C						87,95 387
J 12 T 91 ± 1 % th.D. 75 μ rad.-87,5 % th.D. 14.3.-16.3.68	22 h 710 W/cm 490°C	2,07 h 21,77 h 725 W/cm 490°C						43,77 270
J 13 T 91,5 ± 0,5 % th.D. 75 μ rad.-88 % th.D. 27.3.-31.3.68	44 h 700 W/cm 540°C	4 h 44,05 h 700 W/cm 550°C						88,05 525
J 14 T 91 ± 1,5 % th.D. 75 μ rad.-87,5 % th.D. 11.4.-29.4.68	0,33 h ca. 700W/cm ?	46,5 (h) 44 h 695 W/cm 525°C	4 h 44 h 700 (745) 525°C	154h 44,25 h 695 W/cm 510°C	3,9h 45 h 710 W/cm 510°C			177,53 1073
J 16 T 91,5 ± 0,5 % th.D. 75 μ rad.-88 % th.D. 22.6.-7.7.68	44 h 700 W/cm 460°C	47,5h 27,5 h 695 W/cm 465°C	7,5h 16,7 h 695 W/cm 490°C	4h 44 h 690 W/cm 505°C	4h 44 h 690 W/cm 510°C	4 h 44 h 695 W/cm 510°C	4 h 44 h 690 W/cm 510°C	262,2 1560
J 17 T 91,5 ± 0,5 % th.D. 75 μ rad.- 88 % th.D. 23.8. - 13.9.68	43,9 h 700 W/cm 500°C	4 h 18,9 h 700 W/cm 500°C	4,1h 25,0 h 700 W/cm 505°C	4,2h 44 h 700 W/cm 500°C	4 h 44 h 700 W/cm 500°C	4h 44 h 700 W/cm 500°C	4 h 13,8 h 700 W/cm 500°C	395 2360
J 18 P 85,5 % th.D. ..... 1.4.-3.4.68	22 h 720 W/cm 535°C	2 h 22 h 720 W/cm 535°C		3,8h 29,4 <sup>8</sup> 700 W/cm 500°C	3,7h 44 h <sup>9</sup> 700 W/cm 500°C	4 h 44 h <sup>10</sup> 700 W/cm 500°C	4 h 44 h <sup>11</sup> 700 W/cm 500°C	44 280
J 20 P 86,5 % th.D. ..... 10.6.-14.6.68	44 h 700 W/cm 520°C	44 h 700 W/cm 520°C						88 535
J 22 P 86 % th.D. ..... 30.5.-7.6.68	44 h 710 W/cm 515°C	4 h 44 h 725 W/cm 515°C	4 h 44 h 720 W/cm 515°C	4 h 44 h 715 W/cm 515°C				176 1100
J 23 P 86 % th.D. ..... 9.7.-23.7.68	44,06 h 690 W/cm 510°C	3,94 (h) 44,06 h 690 W/cm 510°C	4h 44 h 690 W/cm 510°C	4 h 44 h 695 W/cm 510°C	3,9h 44,1 h 690 W/cm 510°C	3,9h 44,1 h 690 W/cm 505°C		264,3 1630
J 24 P 86 % th.D. ..... 20.9.-12.10.68	44 h 710 W/cm 510°C	4,0h 44 h 710 W/cm 510°C	4h 44 h 710 W/cm 510°C	4h 44 h 715 W/cm 510°C	4 h 44 h 710 W/cm 510°C	4 h 44 h 710 W/cm 505°C	44 h 44 h 710 W/cm 510°C	396 2450
				4 h 17,2 h <sup>8</sup> 710 W/cm 510°C	4,5h 26,8 h <sup>9</sup> 710 W/cm 510°C	4 h 44 h <sup>10</sup> 710 W/cm 510°C		



Tab. 2 Bestrahlungsergebnisse der zykl. Gruppe im He-Loop 22



b) Brennstabbestrahlungen in FR2-Kapseln

Tab. 3 gibt eine Übersicht über die 1968/69 beendeten Parameter-Abbrandtests im FR2.

Ab KVE 42 (Vg. 4b) wurde in der inneren Kapsel das Na durch NaK ausgetauscht und zusätzlich ein Antikonvektionsrohr eingesetzt. Durch diese Maßnahme lassen sich um ca. 150°C höhere Hülltemperaturen erreichen.

Bei 5 Kapselversuchseinsätzen (KVE) mußte 1968 ein vorzeitiger Ausbau erfolgen:

KVE 25	wegen Ausfall von 5 TE	nach 8 Zyklen
KVE 32	wegen überhöhter TE-Anzeige	nach 2 Zyklen
KVE 34		nach 6 Zyklen
KVE 35	wegen erhöhter Pb/Bi-Korrosion an der Außenkapsel	nach 5 Zyklen
KVE 36		nach 6 Zyklen

KVE 42, 44 und 45 mußten 1969 wegen überhöhter TE-Anzeige in Höhe der Wärmedämmung vorzeitig ausgebaut werden. Alle anderen Kapseln erreichten das vorgegebene Bestrahlungsziel.

Der maximal erreichte Abbrand betrug 86 000 MWd/tM, die längste Betriebszeit 606,8 Vollasttage, das entspricht einer Betriebszeit von ca. 2 Jahren.

Die Versuchsgruppen 4a und 4b werden mit weiteren KVE auch 1970 fortgesetzt.

Tab. 3: 1968/69 beendete Parameter-Abbrandtests im FR2 (Kapselversuchseinsätze)

Ver- suchs- gruppe Nr.	Brennstab- Daten	Variierte Parameter	KVE Nr.	Pro- ben- An- zahl	Betriebs- tage (Vollast- äquivalent) (d)	mittl. Stableist. <sup>+</sup> (W/cm)	mittl. Abbrand <sup>+</sup> (MWd/tM)	
3	Brennstoff:		22	2	606,8	304	81 400	
			24	2	609,6	290	67 100	
	UO <sub>2</sub> /CeO <sub>2</sub> 11,5% U235		Tabl./ Pulver	25	2	280,2	430	48 500
				26	2	220,5	470	40 000
	Hüllenmaße: 7,4 Ø x 0,5 mm 80mm Brenn- stofflänge		Dichte,	27	2	399,35	375	57 400
				28	2	542,8	305	63 280
			Abbrand	29	4	132,5	510	24 500
				30	4	223	420	36 000
				31	3	371,3	385	53 650
				32	3	45,5	510	8 800
4a	Brennstoff:		33	3	57	545	11 500	
			34	3	169,6	455	34 500	
	UO <sub>2</sub> /PuO <sub>2</sub> 15 w/o PuO <sub>2</sub>		Abbrand	35	3	141,8	515	32 000
				36	4	161,2	510	36 000
	Hüllenmaße: 7,4 Ø x 0,5 mm 80 mm Brenn- stofflänge			37	4	389	390	59 400
				41	3	257,5	380	53 380
				42	3	94,55	390	22 100
				4b	UO <sub>2</sub> /PuO <sub>2</sub> 20w/o PuO <sub>2</sub> 6 Øx0,38mm 80mm Brenn- stofflänge	Tabl./ Pulver, Dichte, Stableist. Abbrand	43	3
44	3	127,15	300				22 950	
45	3	65,4	440				15 000	

<sup>+</sup> linear gemittelt über die Stablänge, Bestrahlungszeit und Stabanzahl

### 3. Bestrahlungsversuche im BR2

#### a) Na-Loop-Bestrahlungen im BR2

Das Loopexperiment Mol 7A, bestehend aus 7 Brennstäben, ist 1969 in 5 Zyklen gelaufen, bevor es nach insgesamt 11 Zyklen (128 Tage mit mehr als 90 % Reaktorleistung) entfernt wurde. Der Grund hierfür war, daß nach einem Bruch in einer Heliumleitung des Loops Aktivität aus einem defekten Stab freigesetzt wurde. Der Gesamtabbrand war 50 000 MWd/t Maximalabbrand schwerer Atome, bzw. 40 000 MWd/t mittlerer Abbrand schwerer Atome. Das Loop befindet sich zur Nachuntersuchung in den Heißen Zellen. Erste Ergebnisse zeigen, daß ein Stab in der Brennstoffzone defekt ist.

#### b) Kapselbestrahlung im BR2

Zwei Fafnirkapseln haben mit Ende des Jahres etwa 50 000 MWd/t maximalen Abbrand schwerer Atome erreicht. Auch hier ist die Bestrahlung einer Kapsel beendet worden, und zwar wegen Versagens der Thermoelemente, die zweite Kapsel läuft ohne Thermoelemente und hat z.Zt. einen Maximalabbrand von etwa 60 000 MWd/t schwerer Atome.

#### 4. Bestrahlungsnachuntersuchungen (D. Geithoff, IMF/LB)

Aus dem Bestrahlungsprogramm zur Entwicklung von oxidischen SNR-Brennstäben fielen zwei Stabtypen mit unterschiedlichen Versuchszielen zur Nachuntersuchung an.

Bei einem Typ (Loop-Prüflinge) wurde das Kurzzeitverhalten oxidischer Brennstoffsäulen untersucht, während beim anderen Typ (Kapsel-Prüflinge) das Stabverhalten bei langen Bestrahlungszeiten und hohen Abbränden das Ziel der Untersuchungen war.

##### Untersuchung der Kurzzeitprüflinge

An etwa 40 Prüflingen mit  $\text{UO}_2$ -Pulver- und Tablettenbrennstoff, die bei unterschiedlichen Stableistungen (500 bis 1000 W/cm) bestrahlt wurden, wurden die Oxid-Struktur-Umwandlungen studiert. Es zeigte sich, daß bei höheren Stableistungen schon nach einer Bestrahlungszeit von 10 Minuten im Innern der Brennstoffsäule die typische Endstruktur mit Zentralkanal und Säulenkristallzone ausgebildet ist. Hingegen ist im Bereich der Außenzonen auch nach 24 Stunden Bestrahlungszeit der Spalt zwischen Hülle und Brennstoff noch nicht geschlossen. Anhand der Betatron-Durchleuchtungen wurde Form und Größe von Schmelzkavernen in Prüflingen mit zentralem Schmelzen miteinander verglichen. In ungestörter Form stellte sich bei den aufrecht bestrahlten Prüflingen die Schmelzkaverne in der Art einer gestreckten, nach unten spitz zulaufenden Rübe dar (Bild 1). Vielfach finden sich jedoch auch gestörte unregelmäßige Kavernen, wobei die Ursache der Störung nicht eindeutig aus den Bestrahlungsbedingungen abzuleiten ist. Eine längere Bestrahlungszeit scheint allerdings die Bildung einer regelmäßigen Kaverne zu fördern. Bei mehreren Prüflingen wurde festgestellt, daß geschmolzener Brennstoff aus dem zentralen Bereich durch Risse bis an die Hülle gedrungen war, ohne daß jedoch das Hüllmaterial angegriffen bzw. in seiner Kornstruktur verändert wurde (Bild 2).

Eine weitere Gruppe von 13 Oxid-Prüflingen, die zyklisch bestrahlt wurden waren (maximal 12 Betriebsphasen), wurde hinsichtlich des Verhaltens ihres Brennstoff/Hülle-Spaltes untersucht.

Die zyklische Betriebsweise der Stäbe führte zu einer Brennstoffstruktur, die im Bereich der Tabletten-Außenzone besonders zahlreiche Radialrisse aufwies. Dennoch verblieb nach Ende der Bestrahlung ein Restspalt (Bild 3).

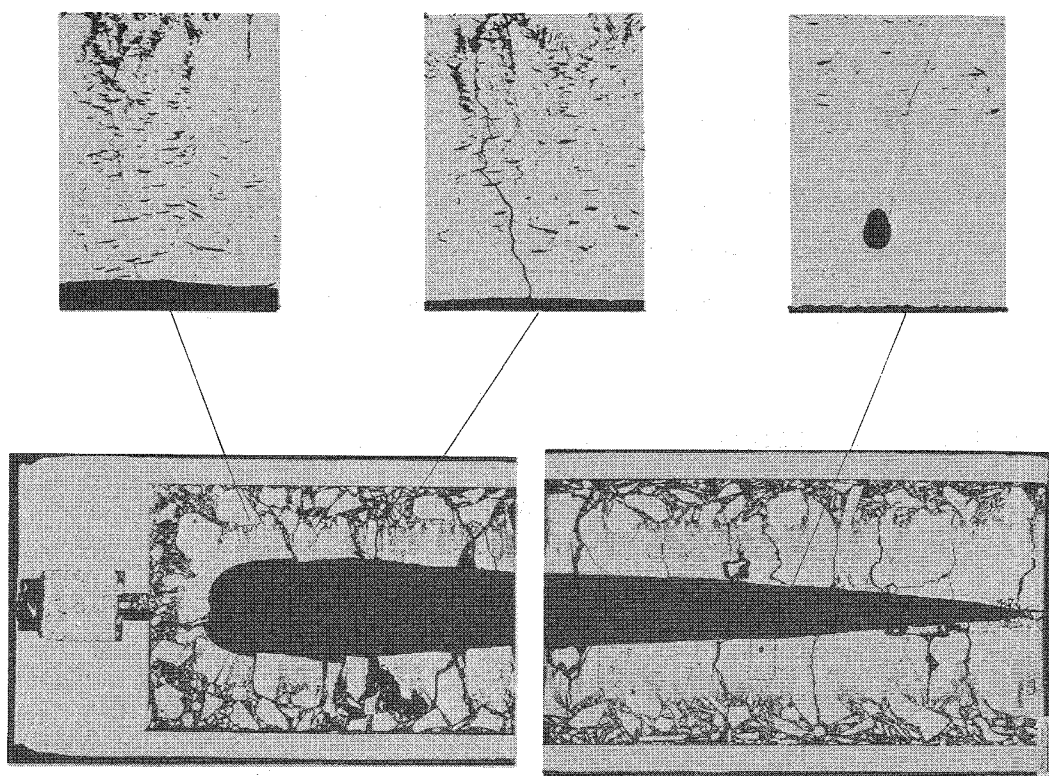
#### Untersuchung der Langzeitprüflinge

Bei den Langzeit-Prüflingen wurde im Berichtszeitraum der Übergang von  $\text{UO}_2$  zum  $\text{UO}_2/\text{PuO}_2$ -Mischoxid vollzogen. Zwar enthielt die größere Zahl der Prüflinge noch  $\text{UO}_2$  als Brennstoff, aber die im Laufe des Jahres 1969 untersuchten Mischoxid-Prüflinge hatten bereits Abbrände bis zu 38000 MWd/t. Die beim  $\text{UO}_2$  erreichten Höchstabbrände lagen bei 57000 MWd/t. Die äußere Vermessung der Brennstäbe ergab in keinem Falle eine Aufweitung der Hülle durch Brennstoff-Schwellen. Bei den meisten Hochabbrandproben war der Spalt zwischen Hülle und Brennstoff vollkommen geschlossen, und beide Materialien waren miteinander fest verkittet (Bild 4). Allerdings waren radiale Spalte in der Außenzone immer noch sichtbar. In einigen Mischoxidprüflingen mit großen Ausgangsspalten war trotz hohen Abbrandes der Spalt zwischen Brennstofftablettensäule und Hülle nicht geschlossen. Vielmehr zeigte sich ein ausgezackter Tablettenrand, der auf hohe Temperaturen in dieser Zone schließen läßt (Bild 5). Als Folgeeffekt des Zackenspaltes wurde eine verstärkte Spaltproduktwanderung in die Randzone sowie eine unsymmetrische Pu-Verteilung festgestellt (Bild 6). Der Mechanismus, nach dem ausgezackte Spalte entstehen bzw. stabilisiert werden, konnte aufgeklärt werden. Größere Agglomerate von festen, metallischen Spaltprodukten wurden bei Mischoxidstäben entdeckt. Die bis zu 0,5 mm großen Metallkugeln sammeln sich am unteren Ende des Zentralkanal. Die Spalt-Ru-Aktivität dieser Seggregationen ist so groß, daß die Metallkugeln in  $\gamma$ -Profil als Spitzen sichtbar werden. Eine weitere Nicht-Brennstoff-Phase wurde im Bereich der Kornwachstums-Zone beobachtet. Ihre Identifizierung steht noch aus.

#### Literatur

D. Geithoff: Schmelzphänomene in  $\text{UO}_2$ -Bestrahlungsproben  
KFK-980

H.L. Krautwedel, D. Geithoff, H. Enderlein: Die Durchleuchtung von bestrahlten Brennelementen mit Hilfe eines Betatrons.  
Kerntechnik 10. Jg. 1968, Heft 8/9, S. 494-498



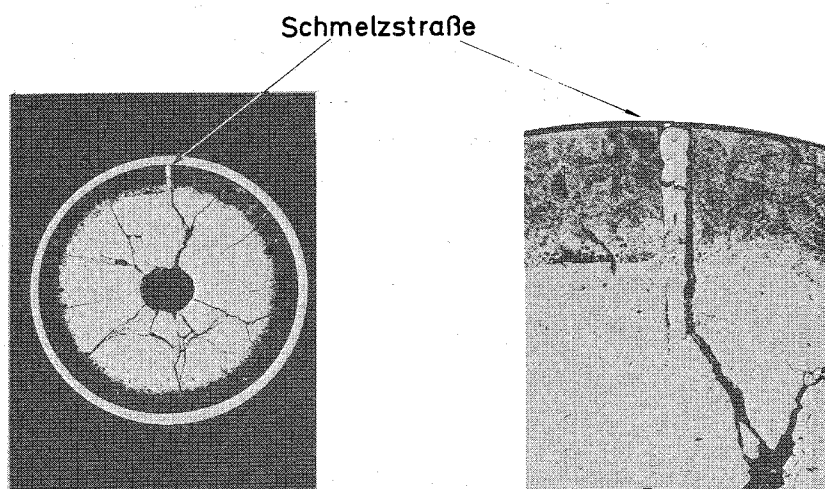
Prüfling L 36

Stableistung 725W/cm UO<sub>2</sub>-Pulv,geschm. 85% th.D.

Bestrahlungszeit 14 min.

Bild 1

Schmelzstraße in UO<sub>2</sub>-Tablettenbrennstoff

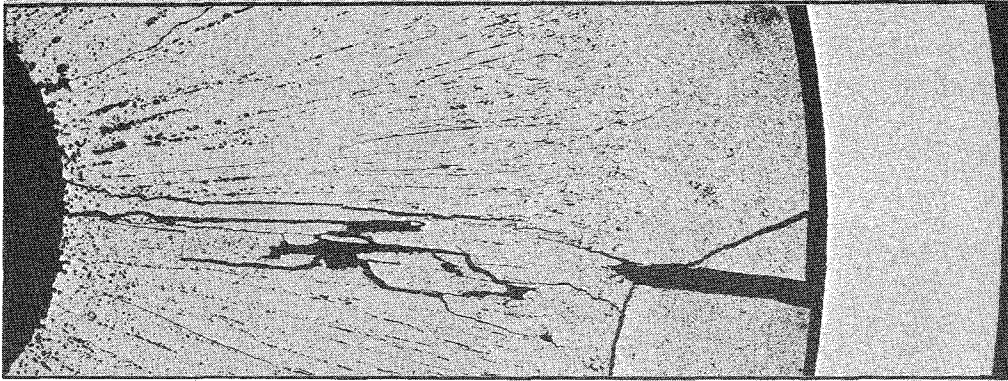


Prüfling L 18

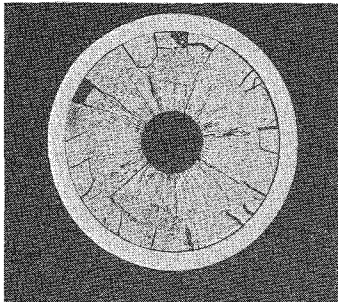
Stableistung 845 W/cm UO<sub>2</sub>-Tabletten 90% th. D.

Bestrahlungszeit 12 min.

Bild 2



100μ



1mm

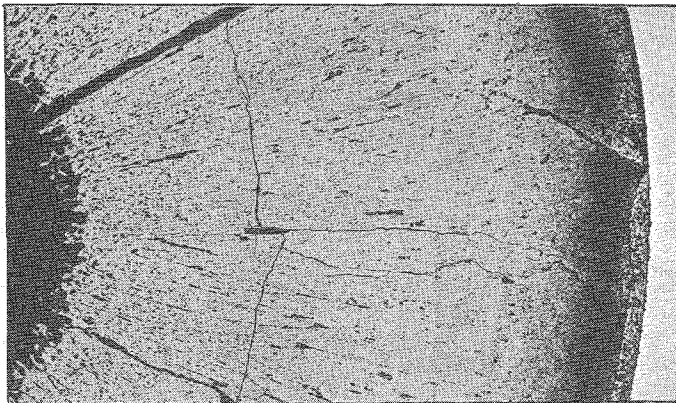
**Spalt nach Kurzzeit-Bestrahlung**

Brennstoff : UO<sub>2</sub>-Tabletten 8.4mm<sup>φ</sup>  
 geschliffen 91.5% th.D.

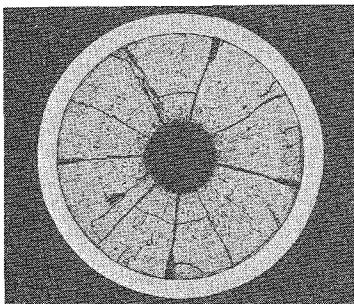
Ausgangsspalt: 75 μ radial

Bestrahlung : 12 Zyklen zu je 44 Stunden

**Bild 3**



100μ



1mm

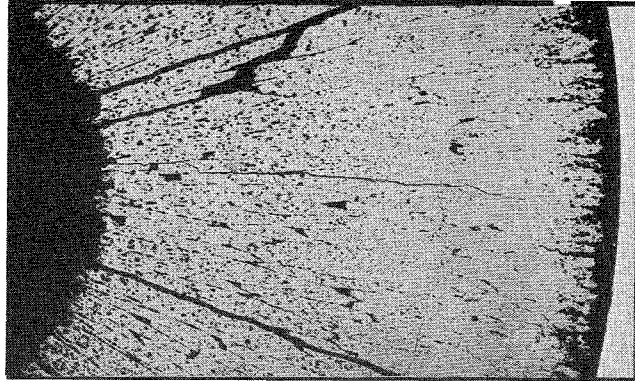
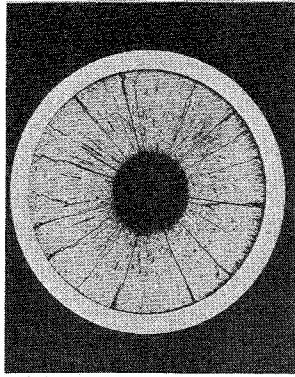
**Spalt nach Langzeitbestrahlung**

Brennstoff : UO<sub>2</sub>-Tabl., geschliffen  
 6.25mm<sup>φ</sup>, 88% th.D.

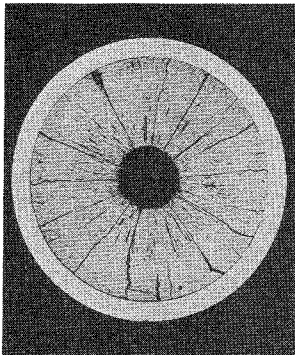
Ausgangsspalt: 75 μ radial

Abbrand : 50 700 MWd/t

**Bild 4**



100μ



1mm

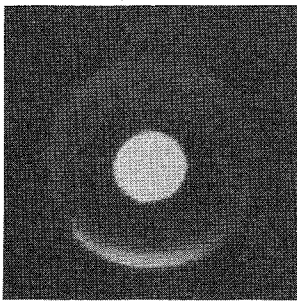
Ausgezackter Restspalt nach Langzeitbestrahlung

Brennstoff :  $UO_2/PuO_2$ -Tabletten , geschliffen  
6.20mm  $\phi$  , 92% th.D.

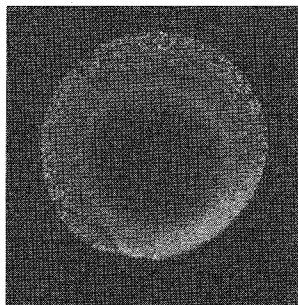
Ausgangsspalt: 110μ radial

Abbrand : 33 000 MWd/t

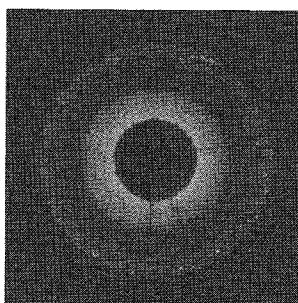
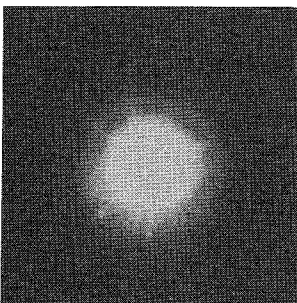
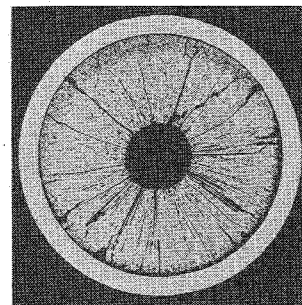
Bild 5



$\beta$ - $\gamma$ - Autoradiografie



$\alpha$  - Autoradiografie



Spaltprodukt- und Plutonium-Wanderung

Brennstoff :  $UO_2/PuO_2$ -Tabl. geschliffen  
6.20 mm  $\phi$  91% th.D.

Anfangsspalt: 110 μ radial

Abbrand : 11800 MWd/t

Bild 6



5. Gitterschäden durch Spaltfragmente (W. Dienst, D. Brucklacher, IMF)a) Messungen an Proben aus bestrahlten  $UO_2$ -Brennstoffstäben

Eine Meßreihe über die Änderung der Mikrohärtigkeit und der Gitterstruktur in  $UO_2$  unter den Bestrahlungsbedingungen in einem Brennstoffstab wurde zum Abschluß gebracht. Die Ergebnisse der Mikrohärtigkeitsmessungen (Bild 7) zeigen, daß schon bei sehr niedrigen Spaltungsdichten ( $\leq 7 \cdot 10^{16} \text{ f/cm}^3$ ) eine vorübergehende Sättigung der Bestrahlungshärtung eintrat. Ein deutlicher Abfall der Bestrahlungshärtung mit steigender Bestrahlungstemperatur erfolgte erst oberhalb ca.  $1300^\circ\text{C}$ . Im Bestrahlungstemperatur-Intervall von  $1400 - 1600^\circ\text{C}$  ging die Bestrahlungshärtung praktisch auf Null zurück (Bild 7). Die Härtung wurde auf primäre Leerstellen-Cluster zurückgeführt.

Bei einer Spaltungsdichte von  $2,2 \cdot 10^{20} \text{ f/cm}^3$  wurde ein erneuter Anstieg der Mikrohärtigkeit beobachtet, der möglicherweise mit dem Beginn der Spaltprodukt-Ausscheidung aus dem  $UO_2$ -Gitter in Zusammenhang steht. Ein gleichzeitiger Anstieg der Gitterverzerrung schien diesen Zusammenhang zu bestätigen.

Die Gitterkonstante der  $UO_2$ -Brennstabproben blieb unter Bestrahlung bis auf eine leichte Verringerung bei hohen Zentraltemperaturen im Brennstab (ca.  $-0,5 \cdot 10^{-3}$  für  $T_c > 2000^\circ\text{C}$ ) unverändert. Diese Verringerung kann durch eine gewisse Löslichkeit von Spaltprodukten bei hinreichend hohen Temperaturen bedingt sein.

b) Kriechen von  $UO_2$  unter Bestrahlung

In Reaktor-Brennstoffstäben für hohe Abbrände kann die Brennstoffschwellung durch die Einlagerung von Spaltprodukten zu einer erheblichen mechanischen Belastung der Hüllrohre führen. Da in Schnellen Brüter-Reaktoren mit einer weitgehenden Versprödung des Hüllmaterials zu rechnen ist, muß eine stärkere Dehnung ( $>1\%$ ) des Hüllrohres möglichst vermieden werden.

Die Auswahl entsprechender Konstruktions- und Betriebsdaten für die Brennstoffstäbe erfordert eine quantitative Kenntnis des Kriechverhaltens des Brennstoffes unter Bestrahlung.

Bisher sind praktisch keine Ergebnisse von direkten Messungen der Kriechgeschwindigkeit von keramischen Kernbrennstoffen bei vorgegebener Belastung unter Bestrahlung veröffentlicht worden. Indirekte Abschätzungen zeigen jedoch, daß die Kriechgeschwindigkeit von Oxydbrennstoff bei Temperaturen unterhalb ca.  $1200^{\circ}\text{C}$  wahrscheinlich stark erhöht wird (2). Sie ist möglicherweise in einem breiten Temperaturbereich von  $1100^{\circ}\text{C}$  bis  $600^{\circ}\text{C}$  oder sogar noch darunter nur schwach von der Temperatur abhängig und scheint für Abbrandgeschwindigkeiten  $\geq 3 \cdot 10^{-9}/\text{s}$  bei einer Belastung von  $2 \text{ kp}/\text{mm}^2$  etwa zwischen  $5 \cdot 10^{-6}/\text{h}$  und  $5 \cdot 10^{-5}/\text{h}$  zu liegen.

Diese Werte ließen sich durch theoretische Abschätzungen stützen (2). Den Abschätzungen lag eine Abwandlung des Nabarro-Herring-Mechanismus für das diffusionsbedingte Kriechen in keramischen Werkstoffen zugrunde.

Aus (2) ließ sich entnehmen, daß im Hinblick auf das Brennstab-Verhalten im Reaktorbetrieb das Kriechverhalten keramischer Kernbrennstoffe unter folgenden Bedingungen besonders interessant ist: Temperatur  $600 - 1100^{\circ}\text{C}$ , Druckbelastung  $0,5 - 2 \text{ kp}/\text{mm}^2$ , Abbrandgeschwindigkeit  $1 \cdot 10^{-9} - 1 \cdot 10^{-8}/\text{s}$ . Daher wurden durch das IMF Entwurf, Konstruktion, Bau und Bestrahlung von Kriechversuchseinrichtungen für diese Bedingungen eingeleitet, veranlaßt, bzw. vorbereitet. Dabei wurde aus grundsätzlichen Erwägungen heraus versucht, vor allem den Druckbereich bis zu ca.  $5 \text{ kp}/\text{mm}^2$  auszudehnen. Außerdem erschienen Versuche bei Brennstofftemperaturen unterhalb  $600^{\circ}\text{C}$  wichtig für die Unterscheidung verschiedener diffusionsfördernder Einflüsse unter Bestrahlung.

Die Versuche wurden wegen der einfacheren experimentellen Anordnung zuerst im FR 2 in Angriff genommen. Als Probenmaterial wurde meistens  $\text{UO}_2$  verwendet, die Brennstofftemperaturen lagen etwa zwischen 300 und 500°C. Zum qualitativen Nachweis von Kriechvorgängen unter Bestrahlung wurden Eindruckversuche mit federbelasteten Druckstempeln aus hochwarmfesten Legierungen durchgeführt. Diese Versuche ergaben zwar Hinweise auf lokale Kriechverformungen im Brennstoff; die Ermittlung des ursächlichen Druckes wurde bisher jedoch durch große Schwierigkeiten bei der sachgemäßen metallographischen Präparation der Proben behindert.

Zur halbquantitativen Ermittlung von Kriechgeschwindigkeiten, d.h. im wesentlichen von unteren und/oder oberen Grenzwerten, unter Bestrahlung wurden eng gehülste Brennstofftabletten, deren Hüllrohre unter hohem Helium-Druck heiß aufgepreßt worden waren, bei Hülltemperaturen von ca. 400°C bestrahlt. Die Differenz zwischen Schwell- und Kriechgeschwindigkeit des Brennstoffes unter dem "restraint" der Hülle wurde durch profilometrische Vermessung der Durchmesseränderung nach Bestrahlung untersucht. Die ersten Versuchsergebnisse deuten darauf hin, daß die Kriechgeschwindigkeit in  $\text{UO}_2$  etwa die Schwellgeschwindigkeit erreichte, während sie in UN deutlich niedriger als die Schwellgeschwindigkeit blieb.

Für den FR 2 wurde eine Kriechkapsel mit kontinuierlicher Probenlängenmessung durch einen induktiven Verlagerungsaufnehmer (Differentialtransformator) bei pneumatischer Druckbelastung und Brennstofftemperaturen  $\approx 600^\circ\text{C}$  entwickelt (Bild 8). Zur Gewährleistung eines möglichst geringen Temperaturgradienten und eines guten Zusammenhaltens bei Rissbildung im Brennstoff wurde die Kriechprobe durch abwechselnde Stapelung von flachen  $\text{UO}_2$ - und Molybdän-Ringen zusammengestellt (Bild 9). Die ersten Meßergebnisse zeigen die grundsätzliche Brauchbarkeit der Kapselkonstruktion bei einer gewissen Störepfindlichkeit des Längenmeßsystems gegen Reaktorbetriebseinflüsse, die im besonderen den

häufigen Einsatz von Blindproben aus Molybdän erfordert. Die noch als unsicher zu betrachtenden an den  $\text{UO}_2$ -Proben gemessenen Kriechgeschwindigkeiten lagen bei Brennstofftemperaturen von ca.  $300 - 500^\circ\text{C}$ , Druckbelastungen von  $1 - 2 \text{ kp/mm}^2$  und bei einer Abbrandgeschwindigkeit von ca.  $5 \cdot 10^{-19}/\text{s}$  in dem vorab abgeschätzten Bereich (s.o.).

Für den BR 2/Mol wurde eine Kriechkapsel entworfen und in Auftrag gegeben, die eine kontinuierliche Probenlängenmessung unter Bestrahlung bei Brennstofftemperaturen von  $600 - 1000^\circ\text{C}$  und eine Änderung der pneumatischen Druckbelastung und der Temperatur während der Bestrahlung gestattet. Die Temperatur wird durch Änderung einer Helium-Neon-Mischung in einem peripheren Gasspalt eingestellt. Die Längenmessung erfolgt über die Volumenänderung eines Mikrowellen-Hohlraumresonators mit verschiebbarem Boden. Die entsprechende Verschiebung der Resonanzfrequenz des Hohlraumresonators wird an einer gleichartigen out-of-pile-Anordnung automatisch mit einer Mikrometerschraube nachgefahren, durch deren Stellmotor gleichzeitig die Längenänderungskurve aufgezeichnet wird. Diese Meßanordnung ist im Gegensatz zu einem induktiven Verlagerungsaufnehmer unempfindlich für die Reaktorstrahlung und daher zur Messung bis zu hohen Abbränden in den Kriechproben geeignet.

#### Veröffentlichungen:

1. W.Dienst, D.Brucklacher  
Proc.Int.Symp.Ceramic Nucl.Fuels, S. 82  
Am.Ceramic Soc., Columbus, 1969
2. D.Brucklacher, W.Dienst, F.Thümmeler  
KFK 817, 1968

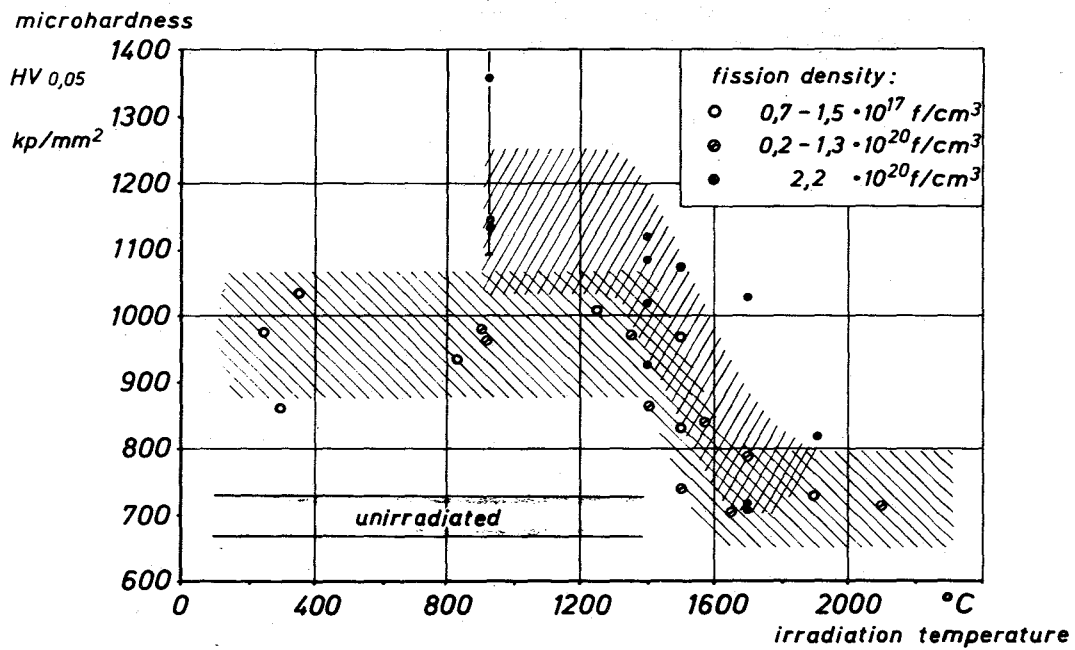


Bild 7: Mikrohärtigkeit von bestrahltem UO<sub>2</sub> bei Raumtemperatur in Abhängigkeit von der Bestrahlungstemperatur

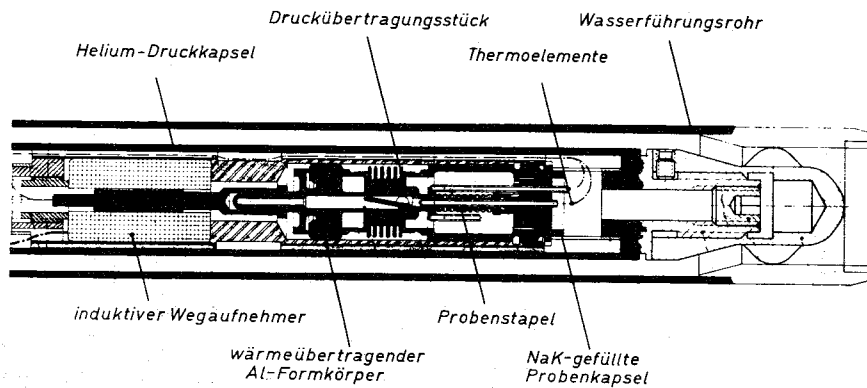


Bild 8: Schnitt durch die FR2-Kriechkapsel für keramische Brennstoffe unter pneumatischer Druckbelastung mit kontinuierlicher Längenmessung

ca. 2x

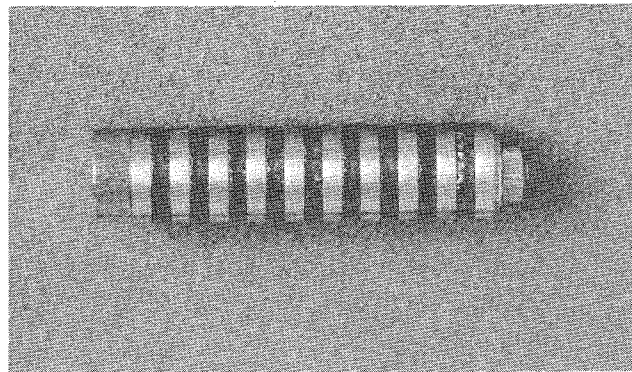


Bild 9: Probenstapel aus  $UO_2$ - und Mo-Ringen für eine Kriechkapsel mit axialer Druckbelastung

1122. Bündelbestrahlungen im schnellen Fluß (performance tests).

(G. Karsten, PSB)

1. DFR (Großbrit.)

Im Dounreay Reaktor sind 1969 folgende Bestrahlungsexperimente gelaufen:

## a) DFR 350; 77-Stabbündel

Die Bestrahlung des Bündels, an dem GfK 23 Stäbe, BN 16 Stäbe, CEA 38 Stäbe Anteil haben, begann am 26. Januar 1969. Sie führte in 3 Zyklen von 165 Tagen Standardleistung ( $52 \text{ MW}_{\text{th}}$ ) zu einem Abbrand von 40 000 MWd/t Maximalabbrand schwerer Atome, entsprechend 36 000 MWd/t mittlerem Abbrand schwerer Atome. Die Bestrahlung wird im Februar 1970 für weitere 55 Tage fortgesetzt und soll dann mit 53 000 MWd/t maximalem und 49 000 MWd/t mittlerem Abbrand beendet werden.

## b) DFR 304/1

Die drei Stäbe dieses Trefoils sind 223 Tage bestrahlt worden und haben dabei einen Abbrand von 56 000 MWd/t Maximalabbrand schwerer Atome erreicht, entsprechend 53 000 MWd/t mittlerem Abbrand. Die Hüllmaterialdosis war dabei  $4,5 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ . Das Experiment ist erfolgreich beendet worden.

## c) DFR 307

Die drei Stäbe dieses Trefoils haben Incoloy 800 als Hüllmaterial und sind 54 Tage bestrahlt worden. Der max. Abbrand war 10 500 MWd/t, die Dosis  $0,9 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ . Das Experiment wird fortgesetzt.

2. Rapsodiebestrahlungen (Frankr.)

Die technischen Vorbereitungen zur Bestrahlung von zwei Subassemblies mit je 34 Stäben im Rapsodie-fortissimo ( $\emptyset = 3 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ ) sind im Gange. Die Bestrahlung soll im September 1970 beginnen, begleitet von einer Monitorbestrahlung von 5 Stäben. Das eine Subassembly wird Stäbe mit dem Hüllmaterial 4988 enthalten, das andere mit 12R72HV. Der Sicherheitsbericht ist erstellt worden. Die Bestrahlung wird eine Gemeinschafts-

bestrahlung zwischen der GfK und INTERATOM/Belgonucléaire/Alkem  
sein.

1123. Brennstab-Bestrahlungstests in Dampf

Zielsetzung, Auslegungsdaten und Stand der Bestrahlungsversuche  
von Brennstäben für dampfgekühlte Brüter gehen aus Tab. 4 der  
Firma AEG hervor. Die VAK ist am 19.10.1969 zum jährlichen  
Brennelementwechsel abgeschaltet worden.



**Tabelle 4:** Zielsetzung, Auslegungsdaten und Stand der Experimente des DSR-AEG-Programms

Element	Dim.	D1	D2	D3
<u>1. Zielsetzung des Experimentes</u>	-	Erreichen hohen Abbrandes unter DSR-spezifischen thermischen und mechanischen Belastungen. Demonstrationsversuch	Erprobung der Abstandshalterung in Form unwickelter Drähte. Studium von Schiefleasteffekten	Erreichen hohen Abbrandes unter DSR-spezifischen thermischen und mechanischen Belastungen bei Einsatz von U, Pu-Mischkarbid und Incoloy 800 als Hüllwerkstoff
<u>2. Auslegungsdaten</u>				
Zahl der Stäbe	-	1	3	1
Brennstoff	-	UO <sub>2</sub> -vibriert	UO <sub>2</sub> -vibriert	(U,Pu)O <sub>2</sub> Sinterkörper
Hüllwerkstoff	-	Inconel 625	Inconel 625	Incoloy 800
Brennstoffdichte	%-T.D.	82,5	82,5	87
Schmierdichte	%-T.D.	82,5	82,5	83
PuO <sub>2</sub> -Anteil	Gew.-%	-	-	25
U-235-Anreicherung	Gew.-%	40	40	26,7
Stabdurchmesser/Wandstärke	mm	7 x 0,4	7 x 0,4	7 x 0,4
Stableistung	kW	40	30	42
Max.lineare Stableistung	W/cm	415	310	440
Aktive Länge	mm	1100	1100	1100
Max.Brennstofftemperatur	°C	2320	1900	2140
max.Hülltemperatur (Wandmitte)	°C	670	650	670
Zielabbrand	MWd/t-M	80.000	42.000	100.000
<u>3. Stand des Experimentes am 31.10.69</u>	-	Bei 78.000 MWd/tU Abbrand trat ein Hüllrohrschaden auf.  Teilergebnisse der HZ-Untersuchungen liegen vor, die Auswertung ist im Gange.	Nach Erreichen des Zielabbrandes wurde das intakte Element ausgeladen.  Die HZ-Untersuchungen sind nahezu abgeschlossen, die Auswertung läuft.	55.500 MWd/t M max.Abbrand, kein Schaden

**Tabelle 4: Zielsetzung, Auslegungsdaten und Stand der Experimente**  
( Fortsetzung )

Element	Dim.	D4	D5	D6	DFR
<u>1. Zielsetzung des Experimentes</u>	-	Untersuchung des Kriechbeulverhaltens unter verschärf-ten Anfahrbedingungen (im Vergleich zu D3)	Untersuchung des Bündelverhaltens bei Einsatz von Hüllrohren aus Incoloy 800	Untersuchung der Stützwirkung des Brennstoffs bei Verringerung der Hüllwandstärke	Untersuchung der Kriechaufweitung infolge Spaltgasdrucks und Brennstoffschwellens im schnellen Fluß
<u>2. Auslegungsdaten</u>					
Zahl der Stäbe	-	1	6	1	3
Brennstoff	-	(U,Pu)O <sub>2</sub> Sinterkörper	UO <sub>2</sub> Sinterkörper	(U,Pu)O <sub>2</sub> Sinterkörper	(U,Pu)O <sub>2</sub> Sinterkörper
Hüllwerkstoff	-	Incoloy 800	Incoloy 800	Incoloy 800	Incoloy 800
Brennstoffdichte	%-T.D.	87	87	87	86
Schmierdichte	%-T.D.	83	83	83	82
PuO <sub>2</sub> -Anteil	Gew.-%	25	-	25	25
U-235-Anreicherung	Gew.-%	26,7	20	26,3	75,2
Flußdepression/ Leistungsquotient		0,52/2,3			
Stabdurchmesser/ Wandstärke	mm	7 x 0,4	7 x 0,4	7 x 0,25	7 x 0,4
Stableistung	kW	42	18	45	12
Max. lineare Stableistung	W/cm	440	210	450	460
Aktive Länge	mm	1100	1100	1100	270
Max. Brennstoff- temperatur	°C	2140	1400	2200	2500
Max. Hülltempe- ratur (Wandmitte)	°C	670	650	670	690
Zielabbrand	MWd/t-M	50.000	25.000	50.000	60.000
<u>3. Stand des Experimentes am 31.10.1969</u>		25.500 MWd/t M max.Aabbrand kein Schaden.	23.000 MWd/t U max.Aabbrand kein Schaden.	Auslegung in Bearbei- tung, Be- schaffung von Komponenten eingeleitet.	ca. 4.000 MWd/t M max.Aabbrand, kein Schaden.

1124. Entwicklung karbidischer und nitridischer Brennelemente

Es wurde ein Programm für die Entwicklung eines karbidischen Hochleistungsbrennelements aufgestellt. Dieses erfaßt ein theoretisches Programm, die Brennstoff- und Brennstabprobenherstellung, die Brennstoffgrundlagenforschung, die Brennstabparameterforschung und die Bestrahlungsnachuntersuchungen. In dem Zeitraum bis einschließlich 1973 stehen für Bestrahlungen die thermischen Reaktoren FR2, MZFR, BR2 und die schnelle Anlage DFR zur Verfügung.

1124.2 Laborversuche (Karb. u. nitrid. Brennst.)1124.22 Konstitution und Thermodynamik (Holleck, Kleykamp, IMF)

Im Rahmen der Untersuchungen zur Kenntnis des Zustandes hochabgebrannter Kernbrennstoffe wurden das Reaktionsverhalten der Spaltprodukte in UN und UC studiert, Zusammenhänge herausgearbeitet (1) und auftretende Verbindungen z.T. thermodynamisch charakterisiert.

Nitride

Die Nitride der Seltenen Erden: YN, LaN, CeN, PrN und NdN lösen sich bei Temperaturen  $T > 1800^{\circ}\text{C}$  vollkommen in UN (2, 3, 4). Ebenso erwiesen sich die Nitride der IV A Metalle ZrN und HfN als vollkommen mischbar mit UN (5). Nur begrenzt löslich waren bei den untersuchten Bedingungen ( $T = 1800 - 2000^{\circ}\text{C}$ ,  $p = 300$  Torr  $\text{N}_2$ ) die Nitride VN, NbN und TaN. Vier neue ternäre Komplexnitride wurden aufgefunden:  $\text{UVN}_2$ ,  $\text{UNbN}_2$ ,  $\text{UTaN}_2$  und  $\text{U}_2\text{CrN}_{2+x}$  (6). Diese Phasen kristallisieren orthorhombisch mit folgenden Gitterparametern:

$$\begin{aligned} \text{UVN}_2 : a &= 5,45_6 \text{ \AA} \\ b &= 3,18_4 \text{ \AA} \\ c &= 10,67_1 \text{ \AA} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{UNbN}_2 : a &= 5,66_8 \text{ \AA} \\ b &= 3,26_6 \text{ \AA} \\ c &= 10,95_9 \text{ \AA} \end{aligned}$$



$$\begin{aligned} \text{UTaN}_2 : a &= 5,645 \text{ \AA} \\ b &= 3,249 \text{ \AA} \\ c &= 10,937 \text{ \AA} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{U}_2\text{CrN}_{2+x} : a &= 3,74 \text{ \AA} \\ b &= 3,31 \text{ \AA} \\ c &= 12,37 \text{ \AA} \end{aligned}$$

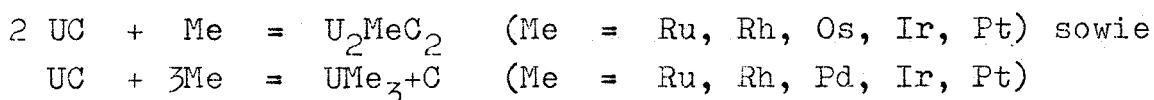
Die Befunde in den Systemen Uran-Übergangsmetall-Stickstoff sind in Abb. 1 zusammengefaßt.

Im Rahmen von Arbeiten zum Reaktionsverhalten zwischen UN und Metalloxiden wurde die Kinetik der Pulverreaktionen zwischen UN und  $\text{ZrO}_2$  sowie der Diffusionsmechanismus untersucht (7).

### Karbide

Die gegenwärtige Kenntnis des Reaktionsverhaltens und der thermodynamischen Daten in den Uran- und Plutonium-Karbid enthaltenden Mehrstoffsystemen wurde erfaßt und kritisch betrachtet (8).

Die Systeme Uran-Platinmetall-Kohlenstoff, deren Kenntnis neben der der Systeme Uran-Seltene Erden-Kohlenstoff besonders wichtig ist, wurden untersucht. Es wurden folgende neue quasitetragonal kristallisierende Komplexkarbide gefunden:  $\text{U}_2\text{RuC}_2$ ,  $\text{U}_2\text{OsC}_2$  und  $\text{U}_2\text{PtC}_2$  (9). Temperaturschnitte der ternären Systeme U-Ru-C, U-Rh-C, U-Pd-C, U-Os-C, U-Ir-C und U-Pt-C wurden aufgestellt (Abb. 2) (10). Charakteristisch für den Aufbau der Systeme sind folgende Reaktionen:



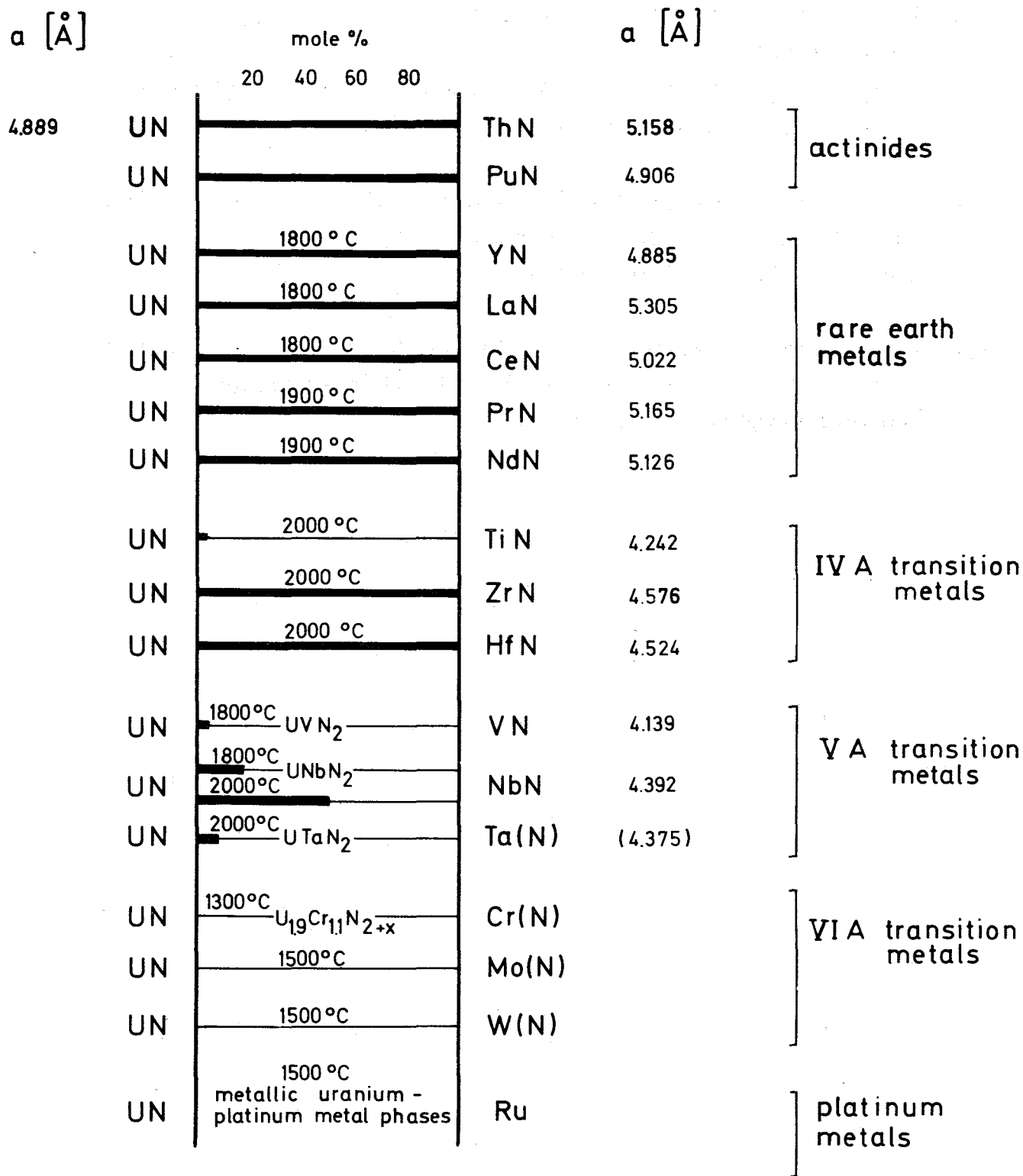
Im System U-Ru-C löst die Ordnungsphase  $\text{URu}_3$  etwa 15 at % Kohlenstoff. Durch Messung elektromotorischer Kräfte (EMK) an galvanischen Festkörperketten, wurden die freien Bildungsenthalpien von  $\text{URu}_3$  und  $\text{URu}_3\text{C}_x$  ermittelt (Abb. 3) (11).

$$\begin{aligned} f_{\Delta G_T}^{\circ} \langle \text{URu}_3 \rangle &= -53800 + 8,4 T \text{ (cal/Mol) (1000 - 1140 } ^\circ\text{K)} \\ f_{\Delta G_T}^{\circ} \langle \text{URu}_3\text{C}_{0.7} \rangle &= -53100 - 7,0 T \text{ (cal/Mol) (860 - 1070 } ^\circ\text{K)} \end{aligned}$$

Nach derselben Methode wurden die freien Bildungsenthalpien von  $\text{Cr}_3\text{C}_2$  und  $\text{Cr}_7\text{C}_3$  gewonnen (12).

1. H.Holleck, Stoffliche Veränderungen beim Abbrand im Reaktor, in KFK 1111 (1969)
2. H.Holleck, F.Thümmler, Zur Herstellung hochschmelzender uranhaltiger Nitridmischphasen  
Hochtemperatur-Werkstoffe, 6. Plansee-Seminar, Reutte/Tirol, Juni 1968, S. 649
3. H.Holleck, E.Smailos, F.Thümmler, Zur Mischkristallbildung von UN mit den Nitriden der Seltenen Erden CeN und NdN  
Journ. Nucl. Mat. 28 (1968) 105
4. H.Holleck, E.Smailos, F.Thümmler, Zur Mischphasenbildung der Mononitride in den Systemen U-(Y,La,Pr)-N  
Journ. Nucl. Mat. 32 (1969) 281
5. H.Holleck, E.Smailos, F.Thümmler, Zur Mischkristallbildung in den quasibinären Systemen von UN und den Mononitriden der IV A-Gruppe TiN, ZrN und HfN.  
Mh. Chem. 99 (1968) 985
6. H.Holleck, Ternary Uranium-Transition-Metal+Nitrides  
KFK 1011 (1969)  
(Vortrag ICSCTE Oslo, Juni 1969)
7. H.Kleykamp et al., Das Reaktionsverhalten von Uranmononitrid mit Metalloxiden  
KFK 771 (1968)
8. H.Holleck, H.Kleykamp  
Thermodynamics of multicomponent Systems containing UC and PuC  
Journ. Nucl. Mat. 32 (1968) 1
9. H.Holleck, Ternäre Karbide in den Systemen U-M-C  
Journ. Nucl. Mat. 28 (1968) 339

10. H.Holleck, Zum Aufbau der Systeme Uran-Platinmetall-Kohlenstoff  
Vortrag: Hauptvers. Dt. Gesellschaft für Metallkunde,  
Berlin 1969, AED-Conf. 1969-153-001
11. H.Holleck, H.Kleykamp, Zur Konstitution und Thermodynamik  
im System Uran-Ruthenium-Kohlenstoff  
Journ.Nucl.Mat. (im Druck)
12. H.Kleykamp, Bestimmung der freien Bildungsenthalpien von  
Chromcarbiden mit galvanischen Festkörperketten  
Ber.Bunsenges. 73 (1969) 354

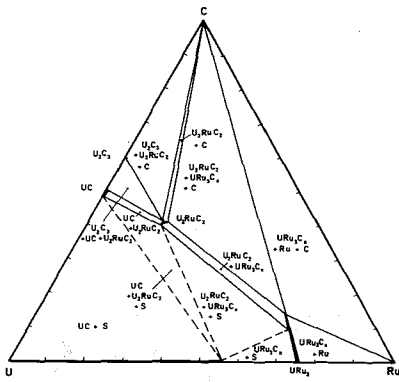


Ternary nitrides occurring in uranium - transition metal - nitrogen systems ( 300 Torr N<sub>2</sub> )

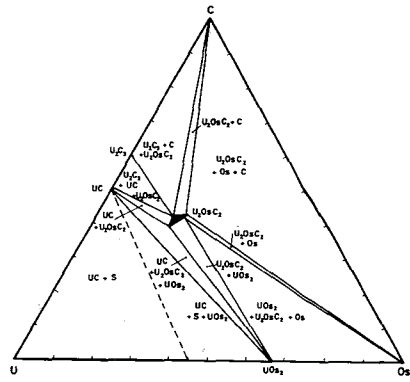
— mixed phase                      — coexistent phases

Abb. 1 Ternäre Nitride in den Systemen Uran-Übergangsmetall-Stickstoff

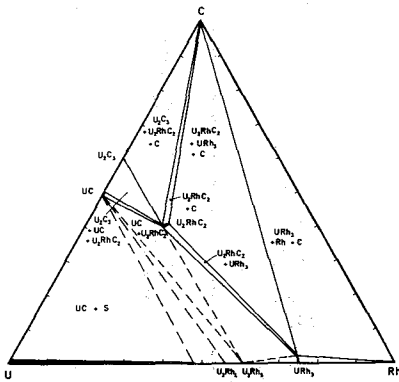




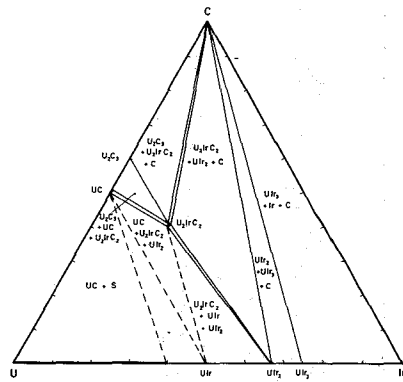
Schnitt bei 1300°C im Dreistoffsystem U - Ru - C



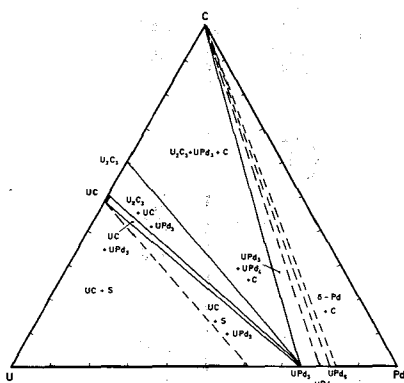
Schnitt bei 1500°C im Dreistoffsystem U - Os - C



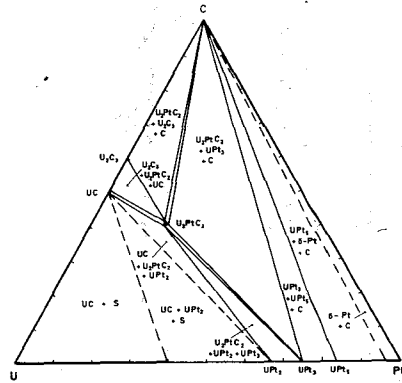
Schnitt bei 1300°C im Dreistoffsystem U - Rh - C



Schnitt bei 1300°C im Dreistoffsystem U - Ir - C



Schnitt bei 1300°C im Dreistoffsystem U - Pd - C



Schnitt bei 1300°C im Dreistoffsystem U - Pt - C

Abb. 2 Isotherme Schnitte der Dreistoffsysteme Uran-Platinmetall-Kohlenstoff

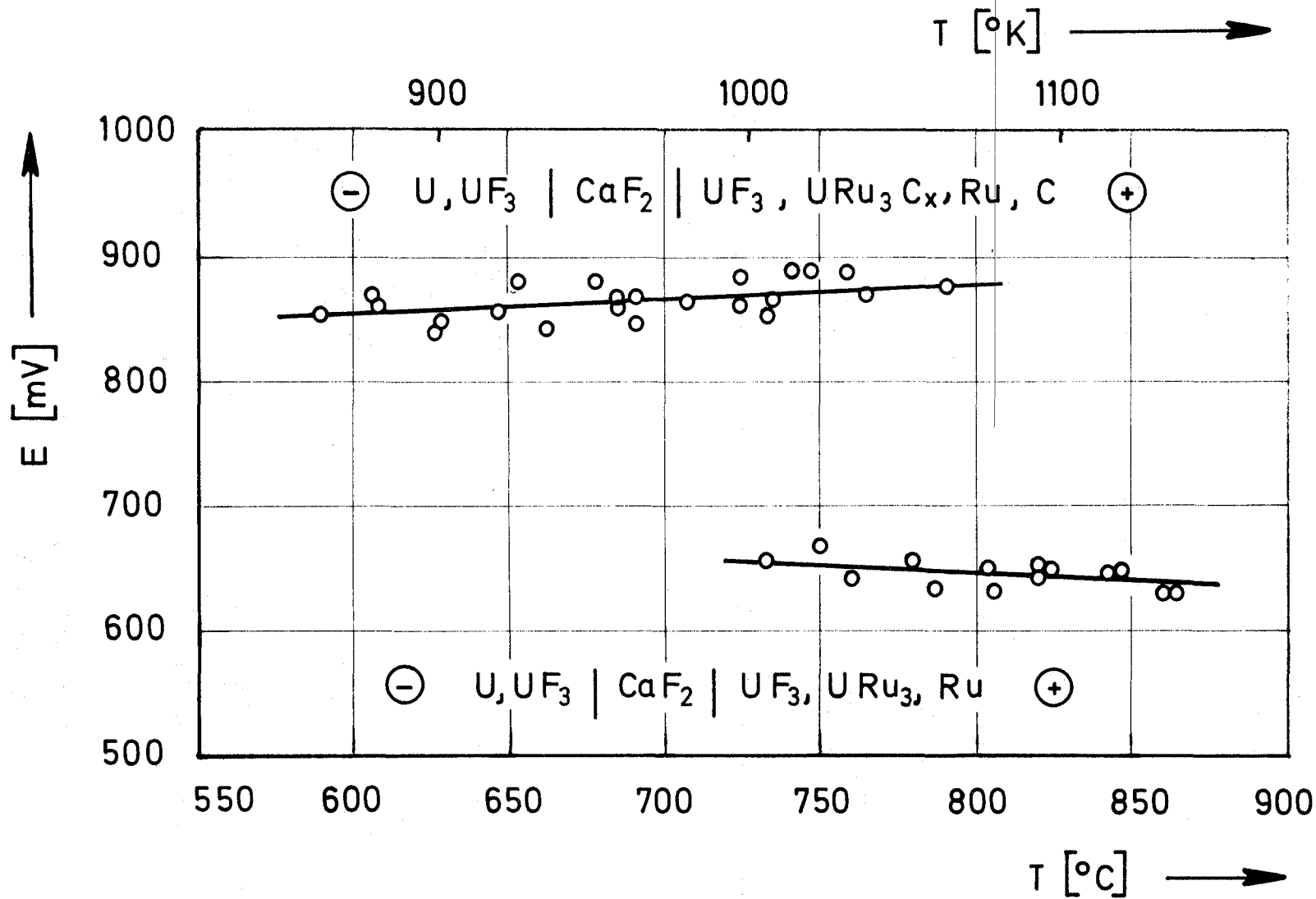


Abb. 3 Temperaturabhängigkeit der elektromotorischen Kraft der galvanischen Festkörperketten

1124.3 Bestrahlungsversuche (Karbid. u. nitrid. Brennst.)1. Arbeiten an Bestrahlungseinrichtungen für karb. Brennst.

(E. Bojarsky, IRE)

FR2-Kapseln

Für lange Hochleistungsbrennstäbe mit über 1000 W/cm Stableistung (Karbid) wurde eine neuartige, einwandige NaK-Kapsel so weit entwickelt und erprobt, daß mit dem Bestrahlungsbeginn im Frühjahr 1970 gerechnet werden kann. Ein zusammenfassender Bericht erscheint 1970.

MZFR-Schwerwasserloop für Na-Kapselbestrahlungen:

Mit dem MZFR-Wasserloop können zwei Bestrahlungseinsätze gleichzeitig betrieben werden. Die Anlage ist von der GHH im Auftrag der GfK/V weitgehend fertiggestellt worden; die out-of-pile-Erprobung wird in der ersten Hälfte 1970 durchgeführt. Mit der ersten Bestrahlung kann voraussichtlich im Frühjahr 1971 gerechnet werden.

Es sind sowohl Experimente geplant zur Karbid-Brennstabentwicklung, die vom PSB in Zusammenarbeit mit dem TUI durchgeführt werden, als auch Bestrahlungen von oxidischen Hochleistungsbrennstäben. Die erforderlichen Loopeinsätze mit den instrumentierten Na-Kapseln stellt das IRE bereit. Ein Prototypeinsatz wurde angefertigt, und detaillierte Sicherheitsüberlegungen für den Karbid-Einsatz wurden abgeschlossen.

Veröff.:

E. Bojarsky, H. Reiser

Bestrahlungseinrichtung mit Schwerwasserkreislauf (Loop 1)  
im MZFR Karlsruhe

2. Konzeption der Bestrahlungseinrichtung  
Kerntechnik, 10 (1968) S. 532-538

2. Gitterschäden durch Spaltfragmente (W. Dienst, D. Brucklacher, IMF)a) Bestrahlungsversuche an UC- und UN-Pulverproben

Zur Untersuchung der Strahlenschäden im Gitter keramischer Kernbrennstoffe durch Röntgen-Feinstrukturanalyse wurden

Proben aus fast stöchiometrischem UC (4,83 Gew.-%C, 0,03 Gew.-%N) und UN (5,52 Gew.-%N, 0,04 Gew.-%C) bei Temperaturen unterhalb 150°C bis zu Spaltungsdichten von maximal  $5 \cdot 10^{20}$  f/cm<sup>3</sup> bestrahlt. Über Zwischenergebnisse wurde bereits früher berichtet (1, 2). Der Verlauf der Gitterkonstanten-Änderung  $\Delta a/a$  und der scheinbaren Gitterverzerrung in Abhängigkeit von der Spaltungsdichte ist in Bild 4 wiedergegeben. Für UN ist dieser Verlauf demjenigen in UO<sub>2</sub> ähnlich (1, 2). Er weist jedoch größere Bestrahlungseffekte und höhere charakteristische Spaltungsdichten auf. Daraus kann geschlossen werden, daß in UN die Bildung großer, geordneter Punktdefekt-Cluster wegen der überwiegend kovalenten Metall-Nichtmetall-Bindung viel schwieriger ist als in UO<sub>2</sub>. Die Gitterdehnung und -verzerrung in UC weist einen wesentlich anderen Verlauf auf als in UN (Bild 1). Das ist möglicherweise auf eine relativ schwache Metall-Nichtmetall-Bindung zurückzuführen, die die Punktdefekt-Clusterbildung in den Teilgittern des UC erleichtert.

An UN wurde nach dem Erreichen einer maximalen linearen Gitterdehnung von  $2,1 \cdot 10^{-3}$  nach etwa  $5 \cdot 10^{17}$  f/cm<sup>3</sup> ein Wiederabfall der Gitterdehnung bis zu schwach negativen Werten bei höheren Spaltungsdichten beobachtet. Dieser Verlauf kann durch verschiedene Überlappungsvolumen für die Leerstellenkerne und die Zwischengitteratom-Zonen der displacement spikes gedeutet werden.

An den bestrahlten Proben wurden Erholungsglühungen von je 2 h Dauer in Stufen von 100°C vorgenommen. Nach jeder Glühung wurde die anteilige Ausheilung der Gitterdehnung und -verzerrung gemessen. Die Ausheilung erfolgte in Temperaturbereichen, die in deutlichem Zusammenhang mit dem Schmelzpunkt des Probenmaterials stehen. Stufen beschleunigter Ausheilung der Gitterdehnung zeigten sich bei etwa  $0,15 - 0,2 T_M$  und  $0,3 - 0,35 T_M$  ( $T_M$  Schmelzpunkt in °K). Sie sind auf die Wanderung der unter Bestrahlung erzeugter isolierten Zwischengitteratome bzw. Leerstellen zurückzuführen.

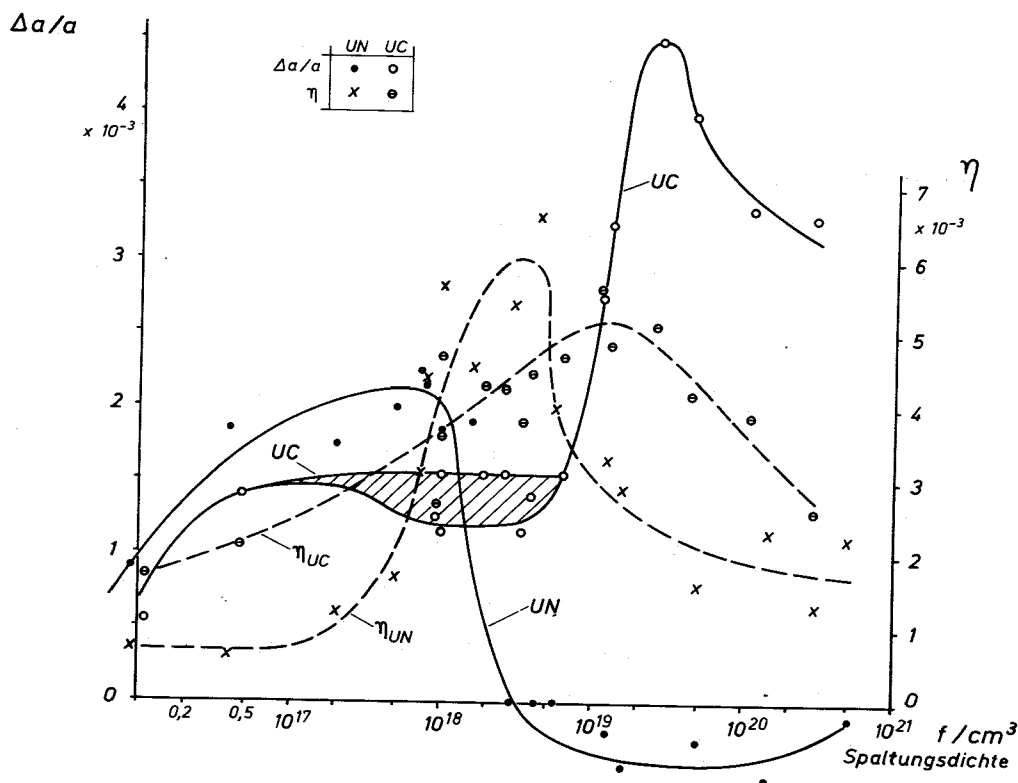


Bild 4: Gitterkonstantenvergrößerung  $\Delta a/a$  und scheinbare Gitterverzerrung  $\eta$  von UN und UC durch Neutronenbestrahlung in Abhängigkeit von der Spaltungsichte

b) Verträglichkeit von UN und UC mit verschiedenen Hüllmaterialien unter Bestrahlung

Zur Untersuchung des Einflusses der Spaltfragmente auf die Reaktion zwischen Brennstoff und Hüllrohr wurden im FR 2 fünf Bestrahlungseinsätze mit je 4 bis 7 Hüllmaterial-Patronen bestrahlt, die mit UN- oder UC-Pulver mit einer Pressdichte von ca. 70% gefüllt waren. Als Hüllmaterial wurden vor allem hochwarmfeste austenitische Stähle und Vanadin-Legierungen verwendet, daneben auch einige Proben aus Incoloy 800 und Inconel 718. Die Patronen hatten einen Durchmesser von 8 mm, eine Länge von 30 mm und - für die Brennstoff-Füllung - eine zentrale Bohrung von 1 mm Durchmesser. Sie wurden in einem FR 2-Moderator-Tauchrohr unter stehendem Argon (reinst) bestrahlt. Durch keramische Isolatoren wurden die Hüllinnenwandtemperaturen im Bereich zwischen 600 und 900°C eingestellt. Die Uran-Abbrandgeschwindigkeit betrug 2 - 4 · 10<sup>-9</sup>/s. Die ersten drei Bestrahlungseinsätze wurden 1000 h lang bis zu einem Abbrand von ca. 1% bestrahlt. Zwei Einsätze sind noch unter Bestrahlung und sollen einen Abbrand von 4 - 5% erreichen.

Die Verträglichkeit von UN mit den Hüllmaterialien bei einer Temperatur von ca.  $900^{\circ}\text{C}$  stimmte unter Bestrahlung im wesentlichen mit den out-of-pile-Ergebnissen überein. Die Reaktion zwischen Brennstoff und Hüllmaterial war demnach bei dieser Temperatur im wesentlichen thermisch bedingt. Sie führte wahrscheinlich vorzugsweise zur Bildung von TiN in den Ti-haltigen Hüllmaterialien.

Die Reaktion von UN mit Vanadin-Legierungen verschiedener Ti- und Nb-Gehalte bei  $700 - 750^{\circ}\text{C}$  unter Bestrahlung deutete auf eine systematische Abhängigkeit von diesen Gehalten hin. Anscheinend hemmte der Ti-Gehalt die Reaktion, während der Nb-Gehalt dieser Hemmung entgegenzuwirken schien. Bild 7 (in 1125.31) zeigt ein mikroskopisches Schliffbild von der Reaktionsschicht zwischen Brennstoff und Hülle.

Die genauere Untersuchung der Proben, im besonderen auch derjenigen mit UC-Brennstoff, war noch nicht abgeschlossen.

Veröffentl.:

1. W.Dienst, D. Brucklacher  
KFK 745, 1968
2. W.Dienst, D.Brucklacher  
Proc. Int. Symp. Ceramic Nucl. Fuels, S. 82  
Am. Ceramic Soc., Columbus, 1969
3. W.Dienst  
KFK 1111, Teil IX, 1969

1125. Brennelemente für gasgekühlte Brüter (Cermets)1125.1 Präparative Arbeiten (H. Schneider, IMF)

Die Versuchsarbeiten zur Beschichtung von  $UO_2$ -Partikeln mit Chrom bzw. Chromcarbid wurden abgeschlossen und die gewonnenen Erfahrungen im KFK-Bericht 787 zusammengefaßt.

Bei diversen Versuchen wurden größere Mengen von natürlichem  $UO_2$  mit Chrom für isostatische Heißpreßversuche beschichtet; auch auf angereichertem  $UO_2$  wurden metallische Chromschichten mit 20 und 30 vol% zur Herstellung von Bestrahlungsproben aufgebracht.

Weiter wurden Beschichtungsversuche mit Vanadin in Angriff genommen, und zwar wurde das Verfahren der Reduktion von  $VC1_4$  mit Wasserstoff bei einer Temperatur von ca. 950 - 1000°C im Fließbett ausgewählt. Mit diesem Verfahren wurden Chargen von 30 - 50 g  $UO_2$  mit Vanadin bis zu ca. 35 vol% beschichtet. Bei der Beschichtung größerer Chargen (100 g) im Fließbett traten jedoch Schwierigkeiten durch ein Zusammenkleben der Teilchen auf, so daß es zu ungleichmäßig dicken Schichten kam. Daher wurden Beschichtungsversuche in einem eigens konstruierten Drehrohrofen durchgeführt, auch im Hinblick auf eine später infrage kommende Beschichtung größerer  $UO_2$ -Teilchen. Diese Ergebnisse waren jedoch bisher im Bezug auf die Abscheidungsgeschwindigkeit noch nicht befriedigend.

Als Vorbereitung für weitere Beschichtungsarbeiten wurden die Herstellungsverfahren für pyrolytischen Kohlenstoff und verschiedene Metallcarbidschichten und deren Verhalten nach hohen Bestrahlungsdosen in einer Literaturübersicht zusammengestellt. Eine Apparatur für Hochtemperatur-Beschichtungsversuche wurde daraufhin bestellt.

1125.2 LaborversucheIsostatisches Heißpressen (H. Bumm, P. Weimar, IMF)

1968 Die im IMF bestehende Einheit zum isostatischen Heißpressen von keramischen Stäben wurde im Jahre 1968 hauptsächlich zur Herstellung von  $UO_2$ -Mo- und  $UO_2$ -Cr-Cermets benutzt. Es wurden sowohl die mechanischen und physikalischen Eigenschaften (1, 2, 3) dieser

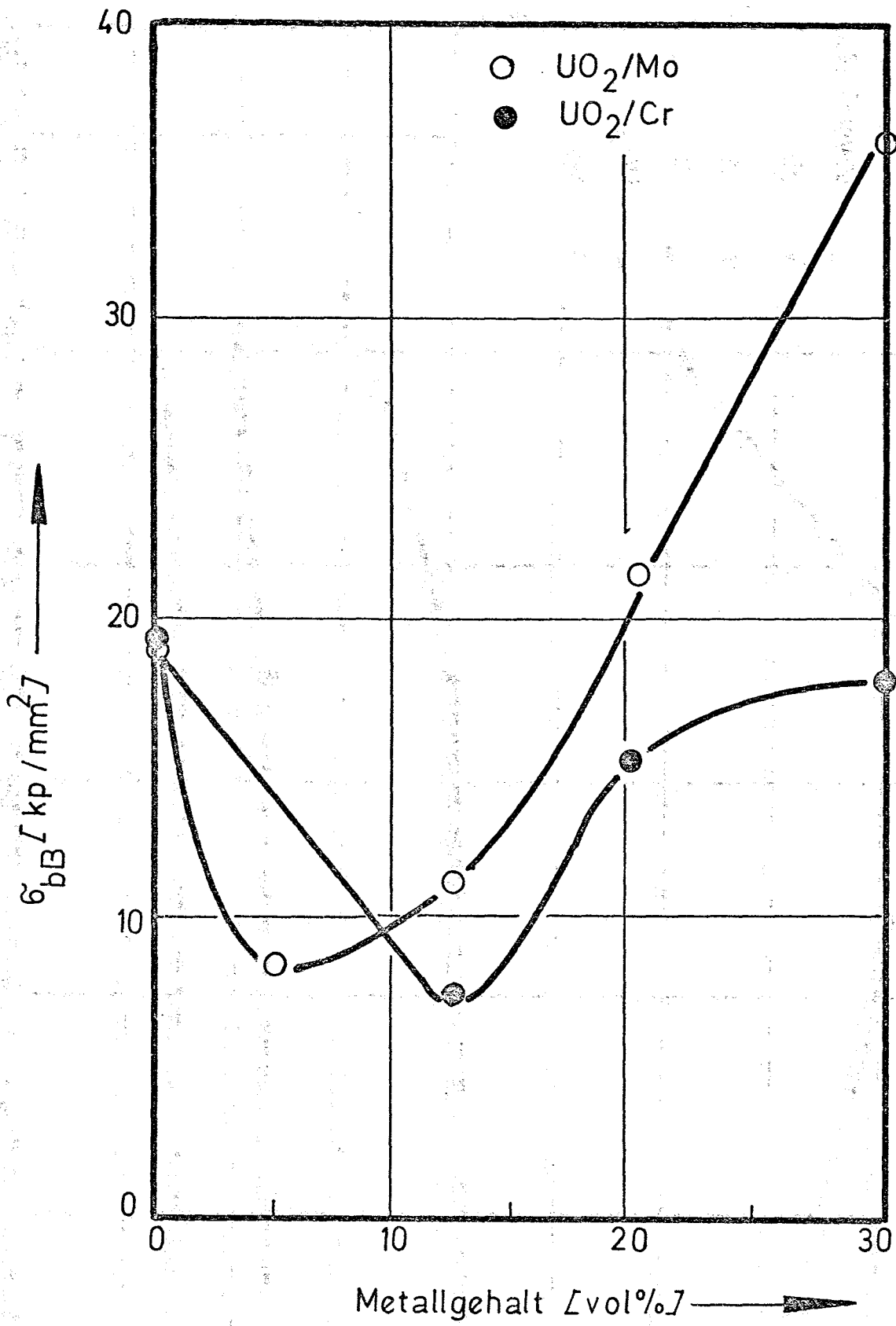
Cermets bestimmt, als auch Bestrahlungsversuche im FR2 mit 20% angereichertem  $UO_2$  unternommen. Einige dieser Eigenschaftswerte der unbestrahlten Prüflinge sind als Temperatur- bzw. Konzentrationsfunktionen in den Bildern 1 - 6 dargestellt.

1969 Im Jahre 1969 wurde zusätzlich zu den beiden oben erwähnten Cermet-systemen die Kombination  $UO_2$ -Vanadium in das Heißpreßprogramm aufgenommen. Es wurden weitere Bestrahlungen mit größeren Abbränden an den bereits etablierten Cermets  $UO_2$ -Mo bzw.  $UO_2$ -Cr durchgeführt (3). Weiterhin wurde die isostatische Heißpreßanlage durch einen Membrankompressor auf den modernsten Stand gebracht. Es ist so möglich, Brennstäbe in Brüterabmessungen herzustellen.

#### Literatur

1. P.Weimar, F. Thümmeler  
 $UO_2$ -Cermets with Idealized Structure by Particle Coating and Isostatic Hot Pressing.  
 Jour. of Nucl. Mat. 31 (1969) 215-225
2. P.Weimar, F.Thümmeler  
 Herstellung und Eigenschaften von Cermets mit idealisiertem Gefüge im System  $UO_2$ /Cr  
 KFK-Bericht 1112 (1969)
3. W.Dienst, P.Weimar  
 Erste Bestrahlungsversuche an  $UO_2$ -Mo und  $UO_2$ -Cr Cermets mit 80 vol%  $UO_2$  in Nb-Hüllen  
 Kernforschungszentrum Karlsruhe  
 Externer Bericht 6/69-1



Bild 1

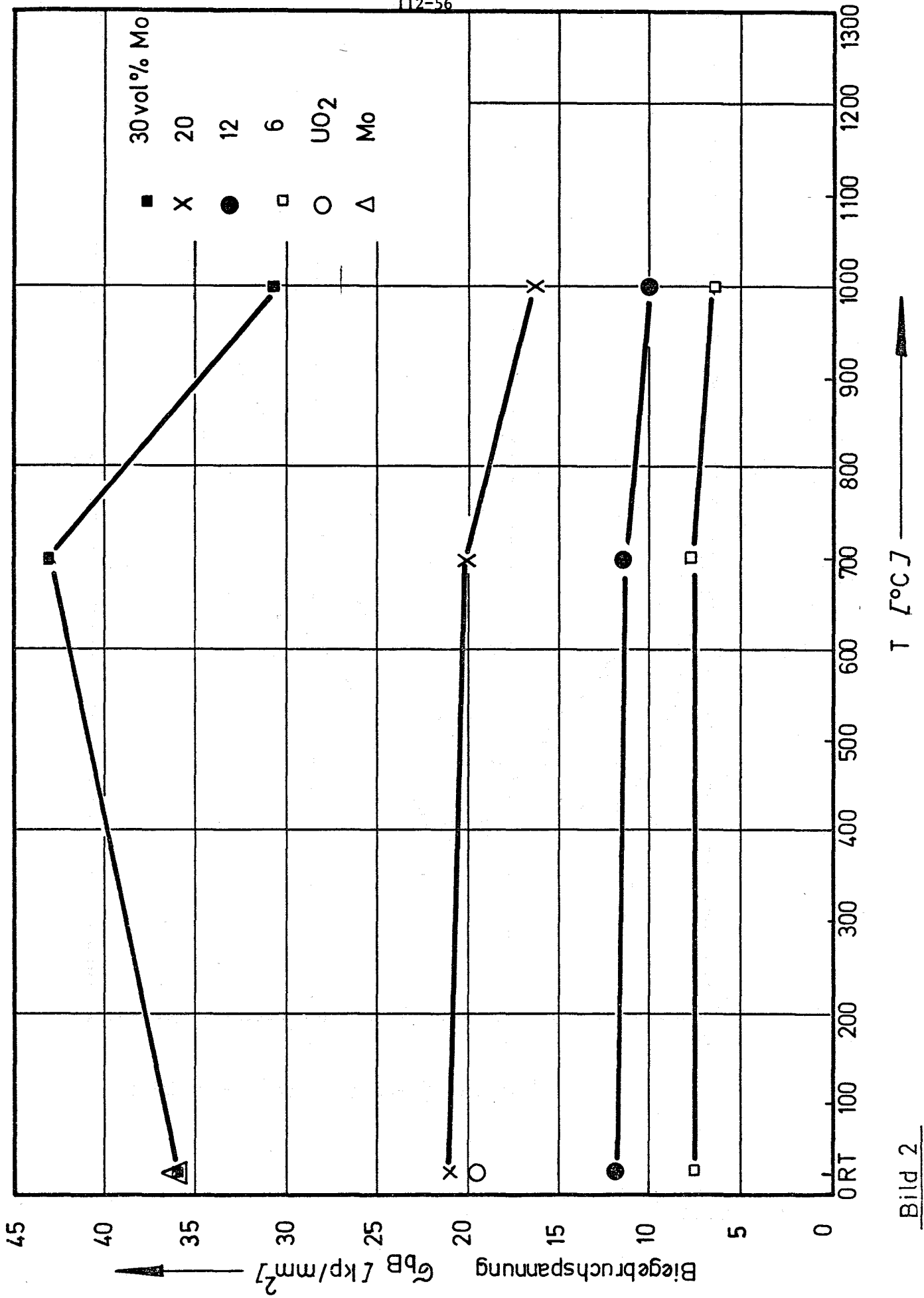


Bild 2

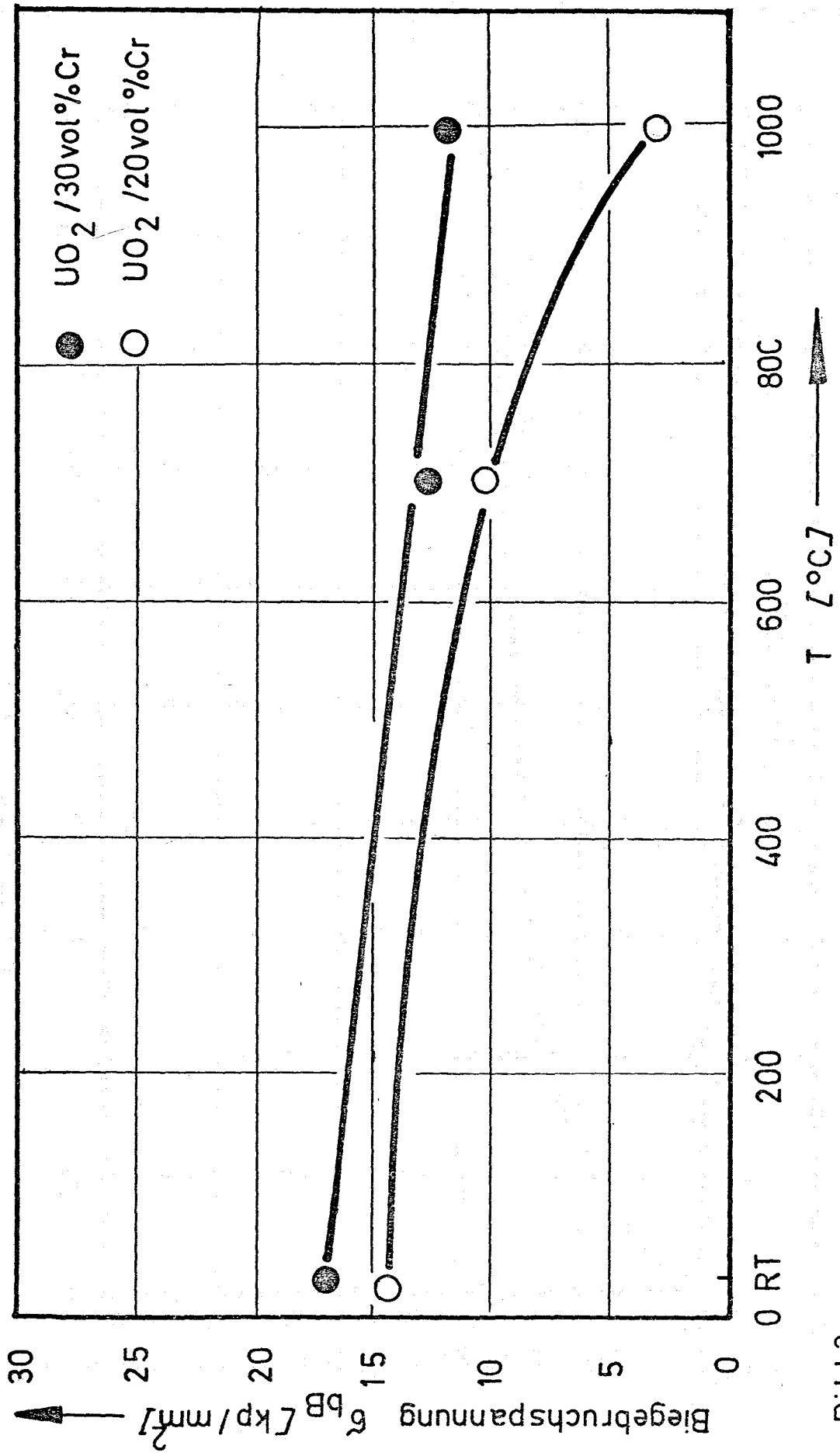


Bild 3

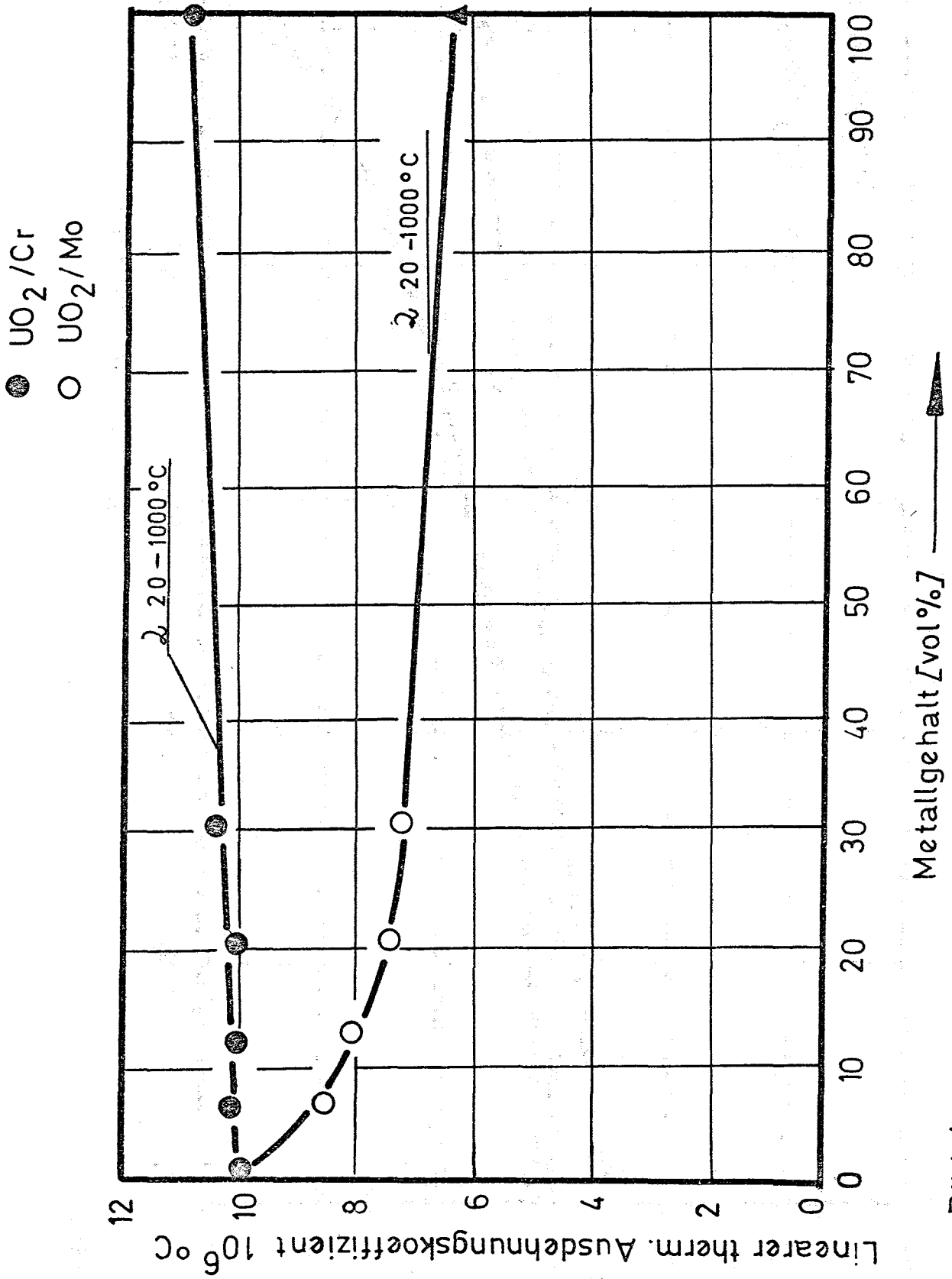


Bild 4

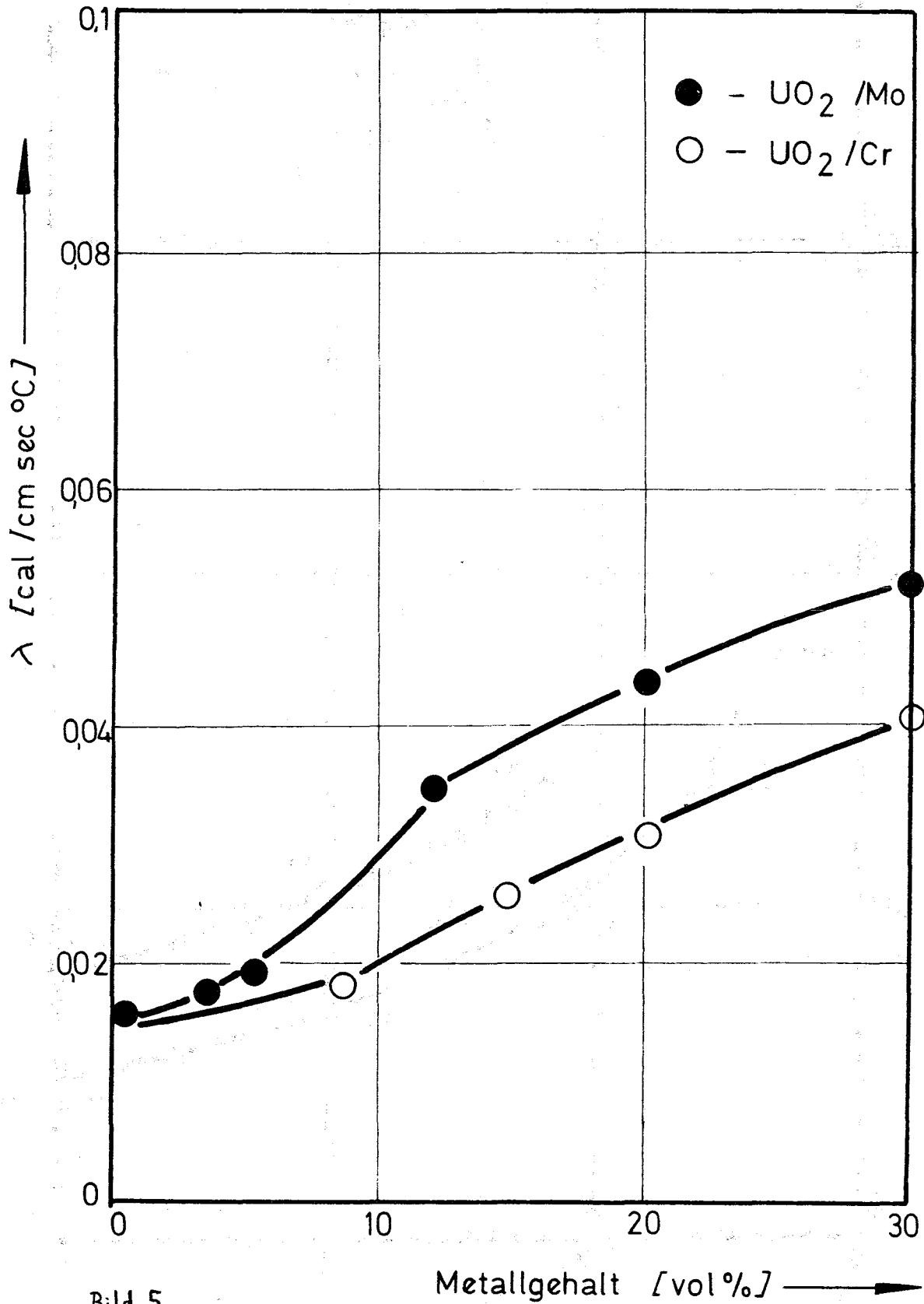


Bild 5

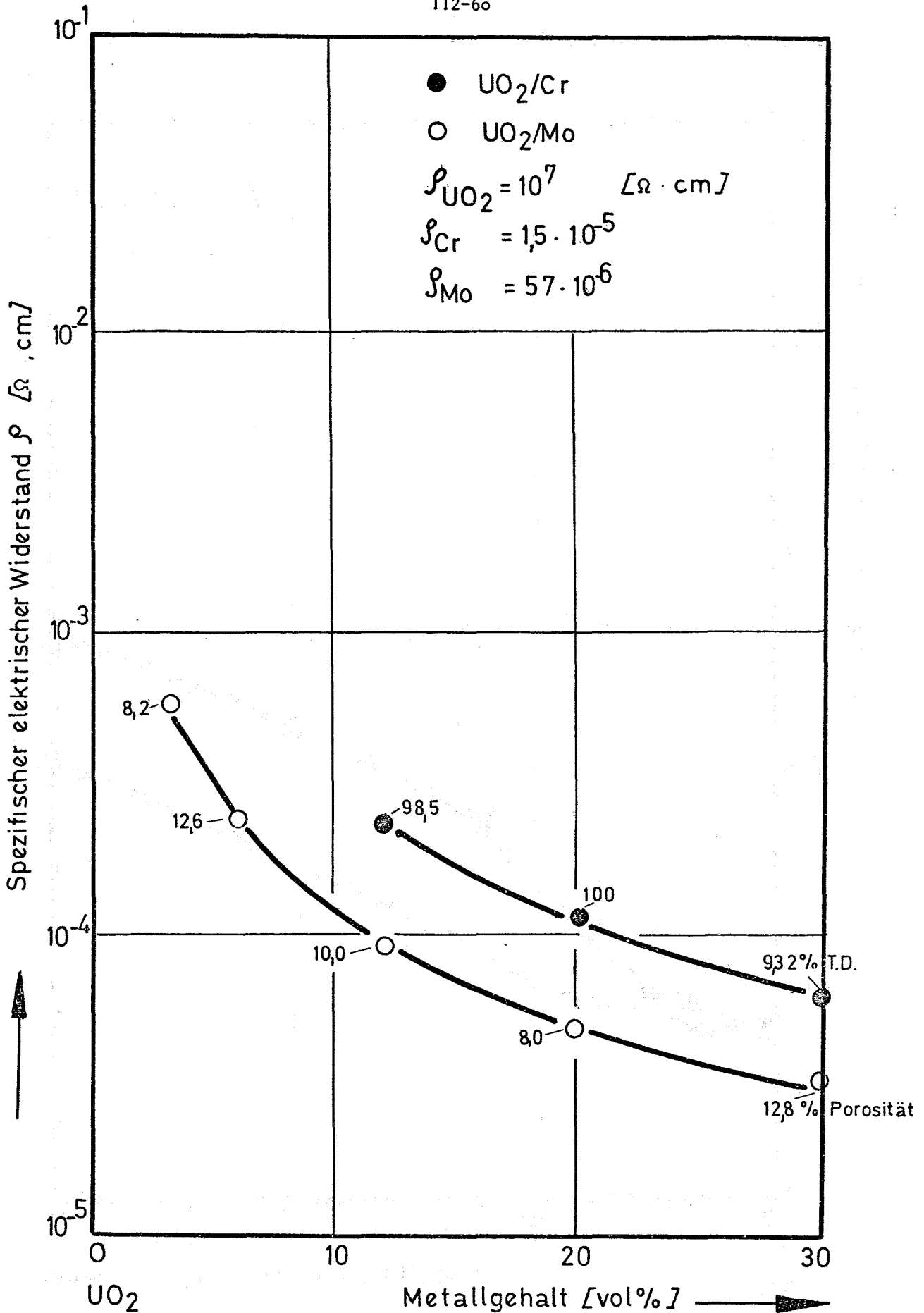


Bild 6

1125.3 Bestrahlungsversuche1125.30 Bestrahlungseinrichtungen für Gaskühlung (IRE, RB)

## FR 2 - Abbrandloop:

Für die He-Loopanlage wird z.Z. eine besondere Helium-Hochdruckbestrahlungseinrichtung erstellt. Damit werden Experimente bei hohem Kühlmitteldruck (bis 150 at) und bei sehr hohen Stabileistungen möglich. Im Jahre 1969 wurden alle Teile dieser Zusatzeinrichtung in Auftrag gegeben. Mit der Inbetriebnahme ist nach der out-of-pile - Erprobung im IRE-Technikum im Herbst 1970 zu rechnen.

Veröffentl.:

H.Deckers, H.Reiser

Versuchseinrichtung für die Kurzzeitbestrahlung von Brutreaktor-Brennstäben im FR2

Kerntechnik Jg. II, Heft 7, 1969

1125.31 UO<sub>2</sub>-Cermet-Brennstoffe für hohe Temperaturen:Erste Bestrahlungsversuchsergebnisse (W.Dienst, D. Brucklacher)

UO<sub>2</sub>-Cermets, in denen keramische Brennstoffteilchen durch eine Matrix aus hochschmelzendem Metall verbunden sind, bieten eine Erweiterung der Einsatzmöglichkeiten für den bewährten Oxydbrennstoff in Hochtemperaturreaktoren. Diese Erweiterung ergibt sich im wesentlichen durch eine Erhöhung der zulässigen spezifischen Brennstoffleistung und ist auf die - gegenüber reinem Oxydbrennstoff - erhöhte thermische Leitfähigkeit und potentiell verbesserte Spaltgasrückhaltung zurückzuführen.

Diese Eigenschaftsverbesserungen hängen entscheidend von der Bildung einer möglichst regelmässigen, netzartig zusammenhängenden Metallmatrix in den UO<sub>2</sub>-Cermets ab. Daher wurden für die im folgenden beschriebenen Bestrahlungsversuche Proben aus sogenannten idealisierten Cermets hergestellt. Bild 8 zeigt als Beispiel das Gefüge einer UO<sub>2</sub>-Mo-Probe mit 20 Vol.-% Metall.

Die genaue Grenze der Spaltgasrückhaltung in Oxydbrennstoff bei den interessierenden Betriebstemperaturen, d.h. unterhalb ca. 1400°C, soll experimentell ermittelt werden. Das gilt ferner auch für die Eignung der Metallmatrix als Druckgefäß für die Spaltgase, die aus den Brennstoffteil-

chen freigesetzt werden. In einem internen Bericht wurde die Druckfestigkeit einer Mo- oder Nb-Matrix von 30 Vol-% unter Verwendung der Kriechfestigkeit der massiven Metalle abgeschätzt. Diese Abschätzung führte zu dem Schluß, daß die Spaltgase bei Brennstofftemperaturen unterhalb 1100 - 1200°C bis zu einem Abbrand von 10% durch die Metallmatrix aufgefangen werden können.

Daher ist zu erwarten, daß der Einsatz von Oxydbrennstoff-Cermets bei mäßigen Stableistungen von 500 - 600 W/cm zur Lösung der Probleme beitragen könnte, die sich durch den äußeren oder inneren Druck auf die Brennstabhülle ergeben, der durch Kühlgase bzw. Spaltgase ausgeübt wird. Andererseits bleibt die sofortige mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle problematisch. Die Bestrahlungsversuche sollen klären, ob die Poren in den Oxydbrennstoffteilchen für die Spaltprodukt-Schwellung des Brennstoffes zur Verfügung stehen.

1968/69 kamen erst zwei FR 2-Bestrahlungseinsätze zur vollen Untersuchung nach Bestrahlung. Die Ergebnisse wurden in einem Externen Bericht zusammengestellt und diskutiert (1). Je acht  $UO_2$ -20 Vol.-% Mo- und  $UO_2$ -20 Vol.-% Cr-Proben mit Nb-Hülle wurden in NaK-gefüllten Kapseln bestrahlt. Der Brennstoffdurchmesser betrug 6,5 mm, die Brennstofflänge 40 mm, die Hüllstärke 0,3 mm. Die durchschnittliche Stableistung lag bei ca. 550 W/cm, die Hülltemperatur bei etwa 650°C, der Uran-Abbrand bei 1 bis 1,5 %. Das Gefüge aller Proben, außer einiger Proben mit sehr niedriger Dichte von ca. 75% TD, war nach Bestrahlung in fast unverändertem, guten Zustand (z.B. Bild 9). Im besonderen ergaben sich keine Anzeichen für eine Unverträglichkeit zwischen Brennstoff und Matrix. Die optimale Dichte, bei der sowohl eine Spaltgasfreigabe durch Mikrorisse in der Metallmatrix als auch die Bildung von Hüllrissen durch äußere Schwellung des Brennstoffstabes möglichst weit eingeschränkt wird, schien bei 85 - 90% TD zu liegen.

Denn  $UO_2$ -Mo-Proben mit sehr niedriger Dichte von ca. 75% TD neigten zur Bildung von Mikrorissen in der Mo-Matrix. Etwa 50% der Brennstoffteilchen zeigten Risse in ihrer Mo-Beschichtung. Andererseits erlitten  $UO_2$ -Mo-Proben mit sehr hoher Dichte nahe 100% TD Hüllrisse durch die Spaltprodukt-Schwellung des Brennstoffes (Bild 9).



Die Volumenzunahme der Brennstoffproben wurde nach Bestrahlung durch profilometrische Abtastung des Durchmessers mit einer Genauigkeit von  $\pm 0,02$  mm bestimmt. Die Schwellrate der  $UO_2$ -Mo-Proben betrug 1,3 - 1,7%/Abbr. und schien für poröse Proben mit 75 - 85% TD niedriger zu liegen als für hochdichte Proben. Die Messungen an den  $UO_2$ -Cr-Proben waren durch Risse gestört. Ihre Schwellraten schienen bei etwa 2%/Abbr. zu liegen. Wahrscheinlich kann dieser relativ hohe Wert durch eine festere Hülle reduziert werden. Die 0,3 mm Nb-Hülle war durch Sauerstoffaufnahme während der Probenherstellung versprödet und erwies sich als unzulänglich. Für die weiteren Bestrahlungsversuche wurde sie durch hitzebeständige Nickellegierungen ersetzt.

Alle bestrahlten  $UO_2$ -Cr-Proben (mit einer Dichte von 90 - 93% TD) zeigten Risse in der Nb-Hülle und im Brennstoffteil (Bild 10). In den meisten  $UO_2$ -Cr-Proben war ein Spalt zwischen Brennstoff und Hülle sichtbar (Bild 10), der sich möglicherweise schon während der Probenherstellung durch die relativ große thermische Kontraktion des  $UO_2$ -Cr-Cermets gebildet hat. Das ungünstigere Bestrahlungsverhalten der  $UO_2$ -Cr-Proben im Hinblick auf Rißbildung und Schwellrate kann auf ihre höhere Bestrahlungstemperatur durch diesen Spalt und auf ihre niedrigere thermische Leitfähigkeit in Verbindung mit der höheren thermischen Ausdehnung und der niedrigeren Warmfestigkeit der Cr-Matrix im Vergleich zur Mo-Matrix zurückgeführt werden.

Im Sommer 1969 wurde eine weitere NaK-Kapsel mit  $UO_2$ -20 Vol.-% Cr- und  $UO_2$ -30 Vol.-% Cr-Proben in Hüllen aus der hitzebeständigen Eisen-Nickel-Legierung Incoloy 800 bestrahlt. Die Stableistung betrug nur ca. 350 W/cm, die Hülltemperatur ca. 450°C, der Uran-Abbrand ca. 2,5 %. Die bestrahlten Proben wirkten äußerlich unverändert; die genaue Vermessung und Gefügeuntersuchung steht noch aus.

Seit November 1969 wird im FR 2 eine NaK-Kapsel mit vier Proben von je ca. 100 mm Brennstofflänge bestrahlt. Die Proben bestehen aus  $UO_2$ -20 Vol.-% Cr- und  $UO_2$ -30 Vol.-% Cr-Cermets mit Hüllen aus den hitzebeständigen Nickellegierungen Inconel 625 und Hastelloy X. Die Stableistungen betragen 500-600 W/cm, die Hülltemperaturen 600 - 700°C, der angestrebte Uran-Abbrand 3 - 6%.

#### Veröffentl.:

1. W.Dienst, P.Weimar

Ext. Bericht 6/69-1, 1969

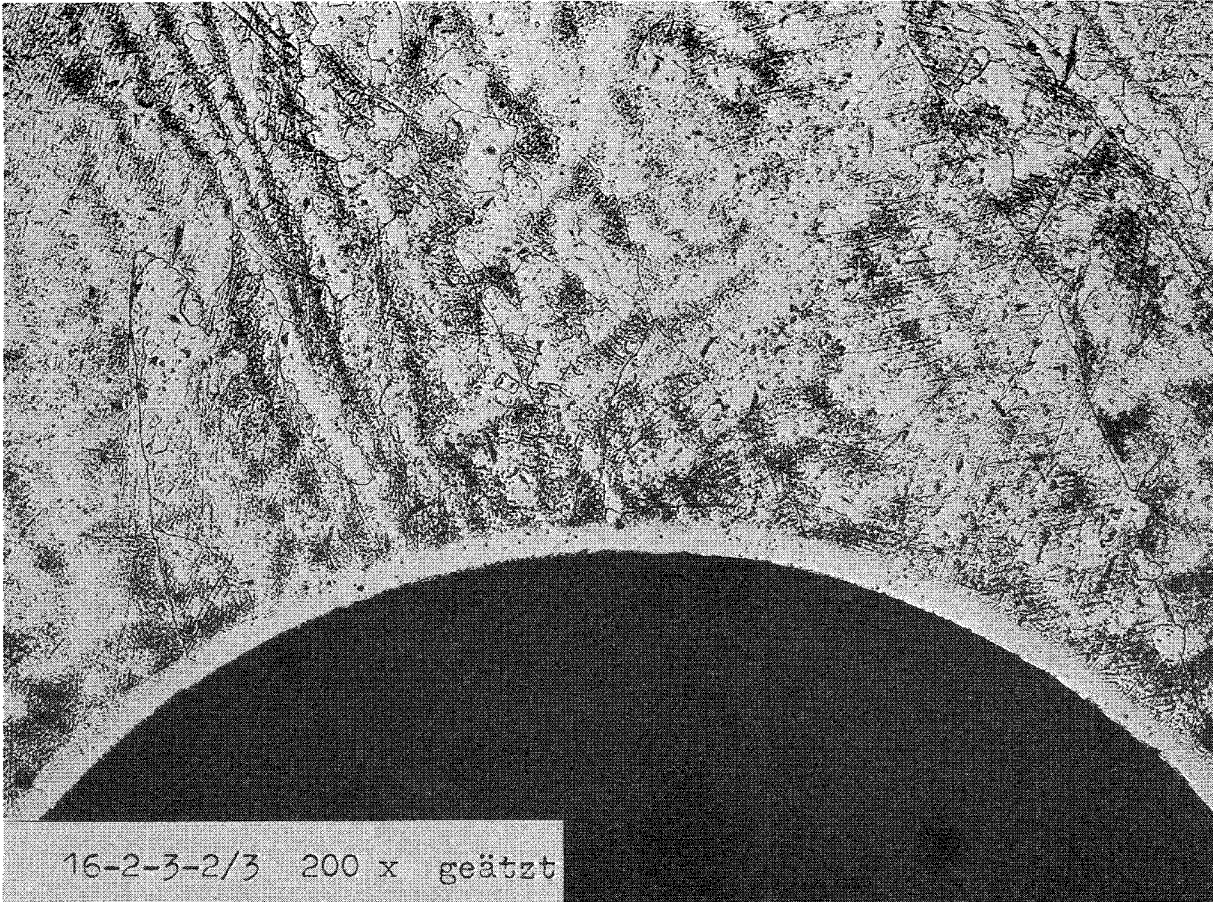


Bild 7: Reaktionsschicht zwischen einer V-20Ti-20Nb-Hülse und UN-Brennstoff nach 1% Abbrand bei ca. 750°C.

40x

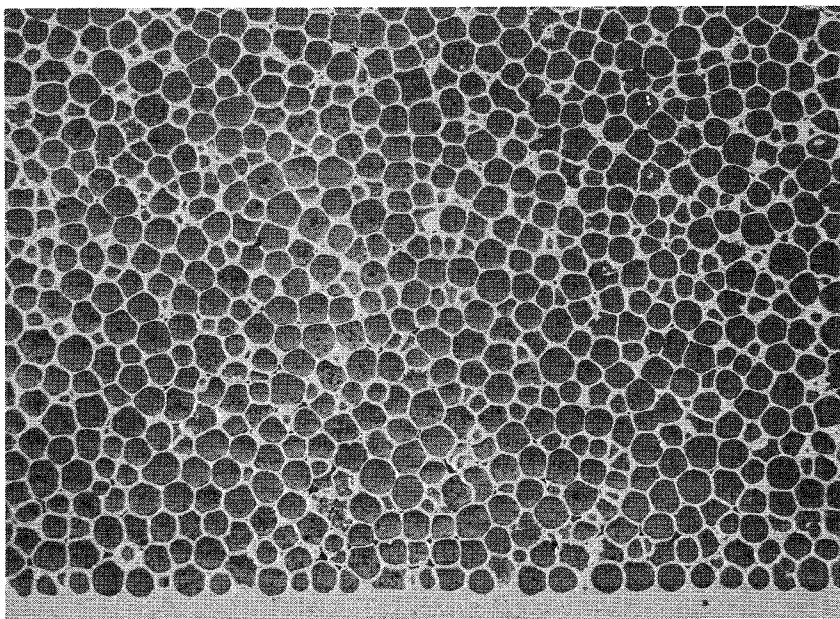


Bild 8: Gefüge einer  $UO_2$ -20 Vol.-%Mo-Cermet-Probe, die 4 h bei 1550°C/840 at auf fast 100% TD heissgepresst wurde

100x

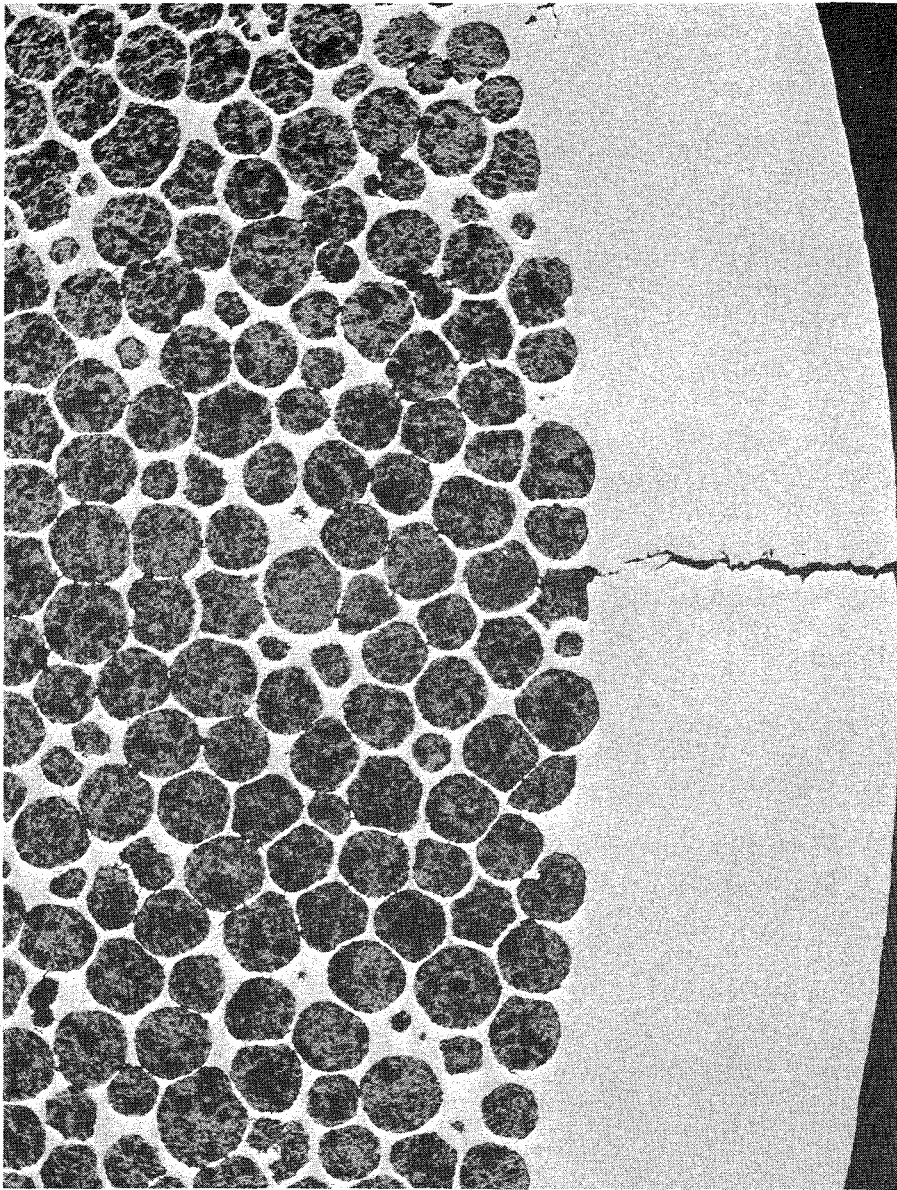


Bild 9: Teilquerschnitt einer bestrahlten hochdichten  $\text{UO}_2$ -20 Vol.-% Mo-Probe (ca. 100% TD) mit Riss in der Nb-Hülle nach 1,5% Abbrand. Die  $\text{UO}_2$ -Teilchen waren vollständig dicht, haben aber bei der metallographischen Präparation Ausbrüche erlitten.

15x

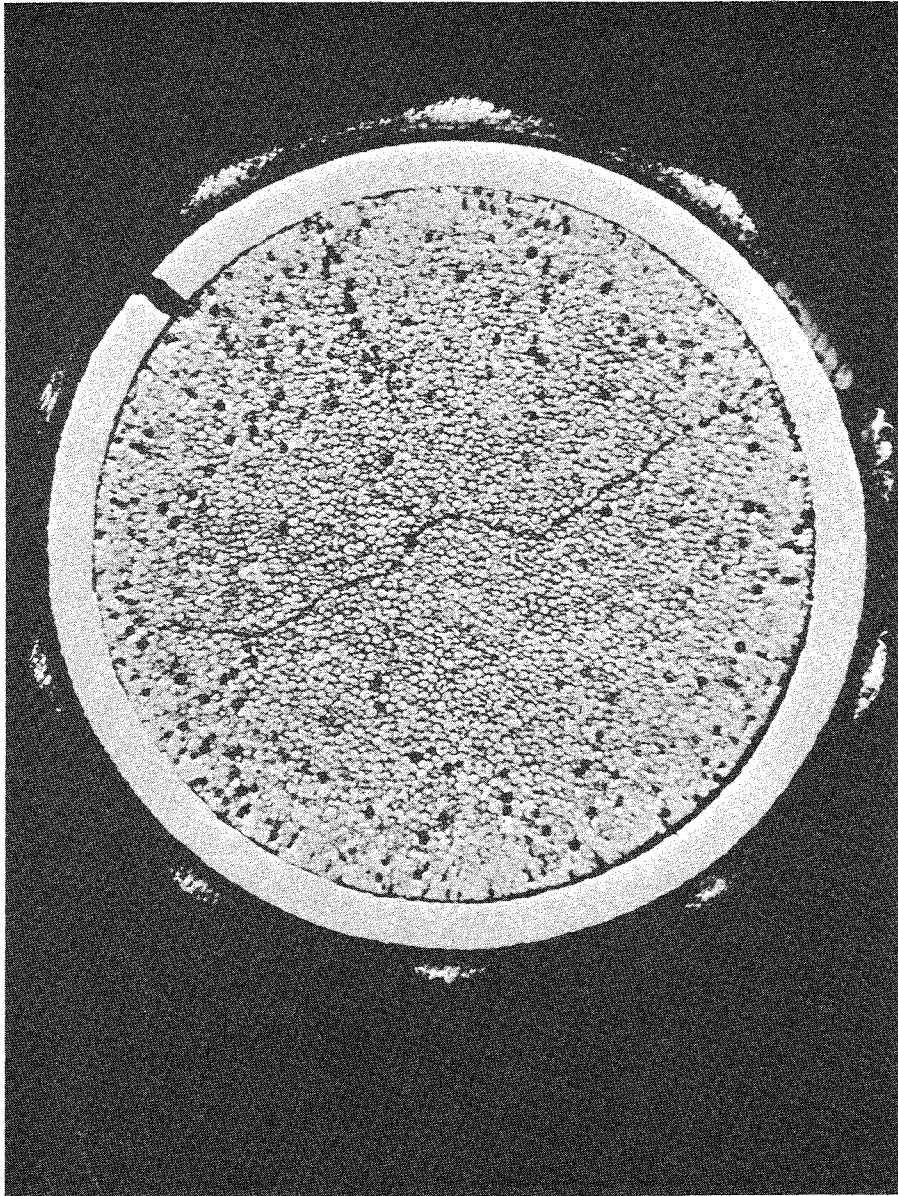


Bild10: Querschnitt einer bestrahlten  $\text{UO}_2$ - 20 Vol.-%  
Cr-Probe (93% TD) mit Rissen im Brennstoff  
und in der Nb-Hülle und mit einem Spalt zwi-  
schen Brennstoff und Hülle. Der Abbrand be-  
trug 1,1%.

113. Materialentwicklung1131.1 Untersuchungen an technischen Legierungen; Hüllmaterial1131.11 Mechanische und physikalische Eigenschaften1. Kurzzeitfestigkeit und physikalische Eigenschaften

(H. Böhm, K. Ehrlich, G. Heß, K.H. Kramer, W. Schneider, IMF)

Hinsichtlich der Kurzzeitfestigkeit von Stählen und Nickel-Legierungen wurde vor allem der Einfluß thermisch-mechanischer Vorbehandlungen auf die Festigkeitseigenschaften ermittelt. Dies steht in engem Zusammenhang mit den Bestrahlungsversuchen.

Im Berichtszeitraum wurde damit begonnen, das Bruchverhalten austenitischer Stähle bei hohen Temperaturen in Abhängigkeit vom Gefügestand, Verformungsgrad, Verformungsgeschwindigkeit und der Temperatur zu untersuchen.

Untersuchungen über das Ausscheidungsverhalten von technisch wichtigen Legierungen wie Inconel 625 und Incoloy 800 wurden durchgeführt. Es ging vor allem darum, Aussagen über die wichtigsten aushärtenden Phasen und deren Auslagerungskinetik zu erhalten, um das Langzeitverhalten in technisch realistischen Temperaturbereichen zu überblicken. Für die Nickelbasislegierung Inconel 625 konnte das folgende Zeit-Temperatur-Ausscheidungsdiagramm gefunden werden, welches aus umfangreichen elektronenmikroskopischen und röntgenographischen Untersuchungen resultiert<sup>(1)</sup>. Zusammen mit den Messungen zur Kinetik dieser Vorgänge erhält man ein übersichtliches Bild zum Langzeitverhalten dieser Legierung.

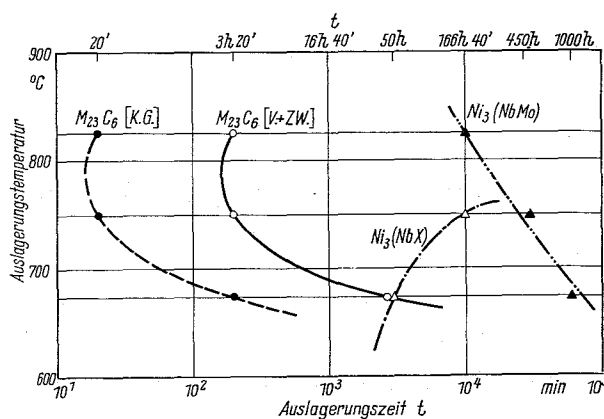


Abb. 1

Zeit-Temperatur-Ausscheidungsdiagramm von Inconel 625

Verschiedene Sonderschmelzen der Eisenbasislegierung Incoloy 800 ergaben, daß durch Zusatz von Wolfram, Molybdän und Niob nur eine geringe Mischkristallhärtung erreicht wird<sup>(2)</sup>. Allerdings tritt bei der Auslagerung abgeschreckter Proben eine komplexe Ausscheidungshärtung dieser Legierungen auf, die nur bei

günstigster Zusammensetzung dieselben Langzeiteigenschaften ergibt wie die "Standardlegierung" Incoloy 800 mit geringen Titan- und Aluminiumgehalten.

(1) H. Böhm, K. Ehrlich, K.-H. Kramer

Das Ausscheidungsverhalten der Nickellegierung Inconel 625.

Z. Metall, 24 (1970) 139-144

(2) K. Ehrlich, K.-H. Kramer, W. Schneider

Untersuchung von Sonderschmelzen der Legierung Incoloy 800.

KFK-987, (1969)

## 2. Zeitstand- und Kriechverhalten

(H. Böhm, F. Polifka, M. Schirra, H. Scholz)

Im Berichtszeitraum 1968-1969 wurden die Untersuchungen zur Ermittlung des Zeitstand- und Kriechverhaltens verschiedener austenitischer Stähle und Nickellegierungen weitergeführt. Dabei sind für die Legierungen, die als potentielle Hüllwerkstoffe angesehen werden, bei verschiedenen Prüftemperaturen Versuchszeiten zwischen 10 - 20000 Std ( $\hat{=}$  1,5 - 2,5 Jahre) erreicht worden.

Die Arbeiten an der Legierung X8CrNiMoVNb 1613 (4988), die zwischen 650° und 750° untersucht wurde, zeigten, daß dieser Werkstoff die gestellten Festigkeitsanforderungen gerade erfüllt. Durch verschiedene mechanisch-thermische Vorbehandlungen ist es bei dieser Legierung möglich, die Zeitstandfestigkeit bis zu Standzeiten um  $10^4$  Std leicht zu verbessern, jedoch zu Lasten etwas geringerer Duktilität. Dagegen zeigen die Untersuchungen am 15/15 CrNi-Stahl (Sandvik 12R72HV), daß durch eine entsprechende Kaltverformung mit anschließender Glühung das Langzeitverhalten wesentlich verbessert werden kann, ohne daß die Duktilität wesentlich absinkt. Dieser Stahl wird z.Zt. in einem umfangreichen Versuchsprogramm in 7 verschiedenen Vorbehandlungszuständen untersucht.

In gleicher Weise wird auch für die Legierung X8CrNiMoNb (4981) in einem z.Zt. noch laufenden Versuchsprogramm versucht, durch geeignete Vorbehandlungen optimales Zeitstand- und Kriechverhalten zu erzielen.

Um grundsätzlich den Einfluß der Kaltverformung auf die Zeitstandfestigkeit zu erfassen, wurden Proben einer Incoloy 800-Schmelze zwischen 4% und 50% verformt und getestet. Es zeigte sich, daß der optimale Verformungsgrad standzeitabhängig ist und für  $t_B > 10^4$  Std bei 8 - 12% liegt (Abb. 2).

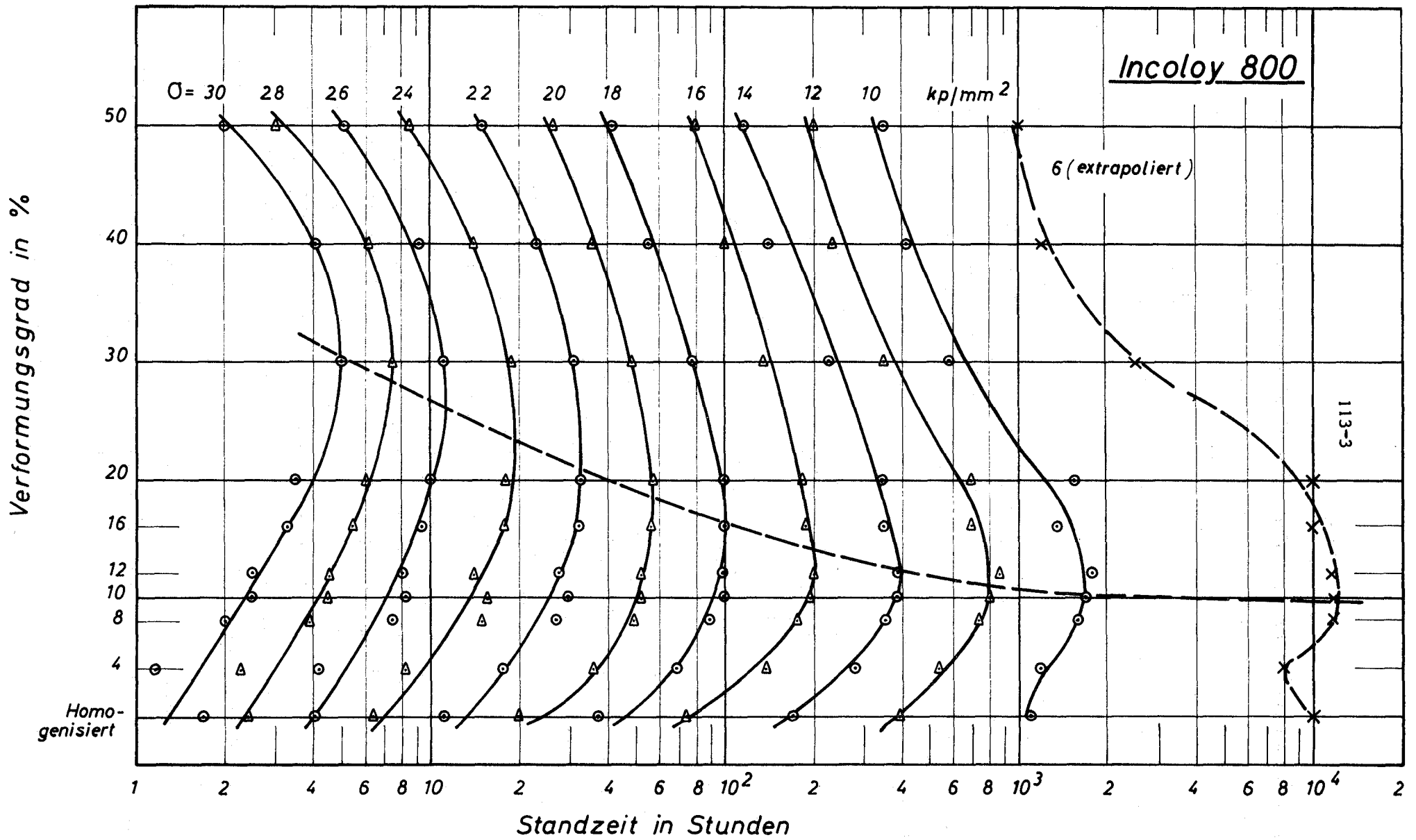


Abb. 2

Standzeit in Abhängigkeit vom Verformungsgrad  $T = 650^\circ \text{C}$

Versuche an 5 Incoloy-Sonderschmelzen, durch Zugabe matrixhärtender Elemente (Mo, W, Nb) die Zeitstandfestigkeit zu erhöhen, zeigten, daß dies nur in geringem Maße möglich ist. Dagegen läßt sich bei diesem Legierungstyp durch Variation des Al- und Ti-Gehaltes die Festigkeit in etwas stärkerem Maße beeinflussen, wie eigene Untersuchungen an verschiedenen Schmelzen ergeben haben.

Daneben wurden umfangreiche Zeitstand-Untersuchungen an den Ni-Legierungen Inconel 718 und Inconel 625 im Temperaturbereich von  $650^{\circ}$  -  $800^{\circ}\text{C}$  bis zu 15000 Std Standzeit durchgeführt. Ferner wurden für die Bestrahlungsprogramme Mol 1G, Mol 3A und DIDO MI die Vergleichsversuche an unbestrahlten Proben durchgeführt.

In einem ersten Untersuchungsprogramm ist über das Festigkeits- und Dehnverhalten von Rohringendruckproben im Zeitstandversuch berichtet worden, die als Mol 2-Vergleichsproben bei verschiedenen Temperaturen geprüft wurden. Als Versuchsmaterial kamen verschiedene Nickel-Basis-Legierungen und austenitische Stähle zur Anwendung.

Die Untersuchungsergebnisse zeigten, daß die Nickellegierungen Inconel 600 und Inconel X 750 sowie der austenitische Stahl X4CrNiNb 2025 wegen ihrer geringen Zeitstandfestigkeit als Hüllwerkstoff für einen schnellen Brüter ungeeignet sind. Die besten Zeitstandeigenschaften zeigten die Nickellegierungen Inconel 625, Inconel 718 und Hastelloy X, wobei Hastelloy X in den hohen Standzeitbereichen die Festigkeit von Inconel 625 und 718 übertrifft (Abb. 3a).

Es wurden ferner Untersuchungen an drei Incoloy 800-Legierungen mit unterschiedlichen C-, Ti- und Al-Gehalten durchgeführt. Die Untersuchungsergebnisse machen deutlich, wie stark der Einfluß der ausscheidungshärtenden Elemente Ti und Al ist. Der Zusatz dieser Elemente bewirkt zwar eine wesentliche Erhöhung der Zeitstandfestigkeit, jedoch wird auch die Duktilität des Werkstoffs herabgesetzt (Abb. 3b). Das Incoloy 800 mit 0,06% C, 0,43% Ti und 0,43% Al weist die höchste Zeitstandfestigkeit auf. Die Legierung mit 0,04% C, 0,51% Ti und 0,36% Al zeigt hingegen eine wesentlich geringere Dehnung, die auf den etwas höheren Ti-Gehalt zurückzuführen sein könnte. Eine sehr geringe Zeitstandfestigkeit zeigt das Incoloy 800 ohne Ti und Al, jedoch besitzt es die größte Dehnung.

In einem weiteren Untersuchungsprogramm wurden folgende austenitische Stähle unter Innendruck untersucht:



X8CrNiMoVNb 1613 (Werkstoff-Nr. 4988)

X8CrNiMoNb 1616 (Werkstoff-Nr. 4981)

X8CrNiNb 1613 (Werkstoff-Nr. 4961)

Die Stähle 4988 und 4961 weisen einen besonders starken Abfall bei höheren Temperaturen in der Standzeit auf, nicht dagegen der Stahl 4981. Bei niedrigen Standzeiten hat der Werkstoff 4988 zwar die günstigeren Zeitstandeigenschaften, bei längeren Standzeiten aber wird dieser von dem Werkstoff-Nr. 4981 übertroffen. Wahrscheinlich ist die verhältnismäßig starke Oxydation (bedingt durch den V-Gehalt) ein Grund dafür, daß die Festigkeit des Werkstoffs 4988 bei langen Standzeiten relativ stark abfällt. Das schlechteste Standzeitverhalten zeigt die Legierung 4961. Die Festigkeit liegt weit unter den angestrebten Werten, so daß dieser Werkstoff als Hüllmaterial ungeeignet erscheint. (Abb. 4). Bezüglich der Duktilität ergeben sich für den Stahl 4981 die höchsten Werte. Die weitaus schlechtesten Dehnungen zeigte der Werkstoff 4988.

Mit der Einrichtung zur Radialdehnungsmessung ist es möglich geworden, das kontinuierliche Kriechen eines Rohres bei Belastung durch Innendruck zu ermitteln. Die ersten Versuche an dem Werkstoff Incoloy 800 ergaben, daß kein Unterschied in der Zeitstandfestigkeit unter einachsiger Zugbeanspruchung und mehrachsigen Spannungszuständen (Innendruck) besteht. Die Standzeiten waren gleich, obwohl die Dehnung unter Längszug etwa doppelt so hoch ist wie die Tangentialdehnung. Für die Parameter  $k$  und  $n$  des Nortonschen Kriechgesetzes ergaben sich folgende Werte bei  $700^{\circ}$  C Prüftemperatur:

	$n$	$k$
Längszug	7,1	$2,0 \times 10^{-10}$
Innendruck	7,0	$1,8 \times 10^{-10}$

Aus den ermittelten Werten geht deutlich hervor, daß die Kriechgeschwindigkeit von Incoloy 800 im ein- und dreiachsigen Spannungszustand annähernd gleich ist.

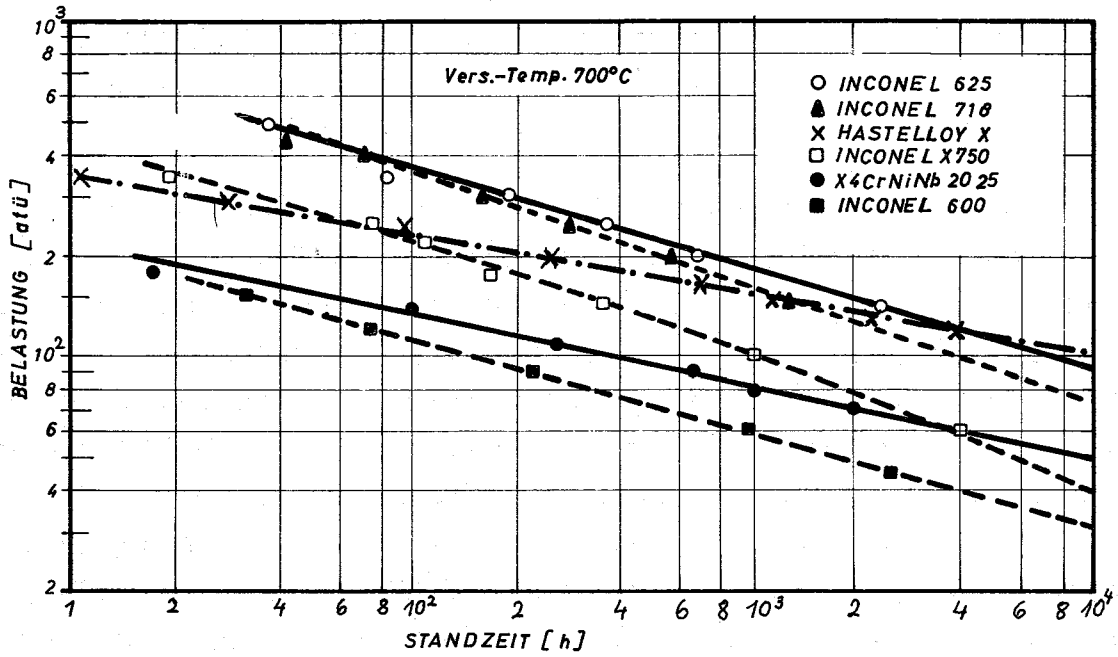


Abb. 3a Zeitstandfestigkeitskurven

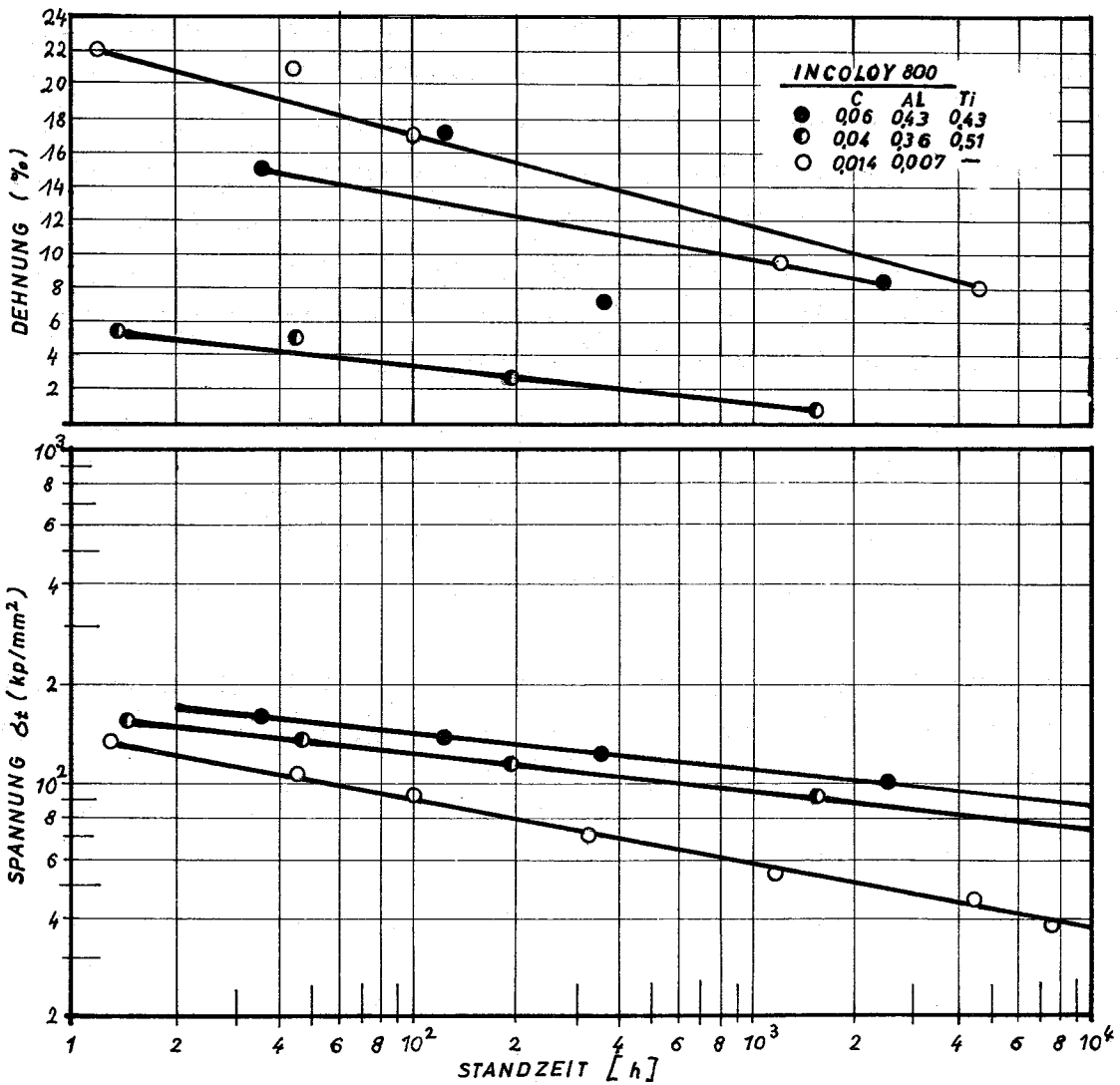
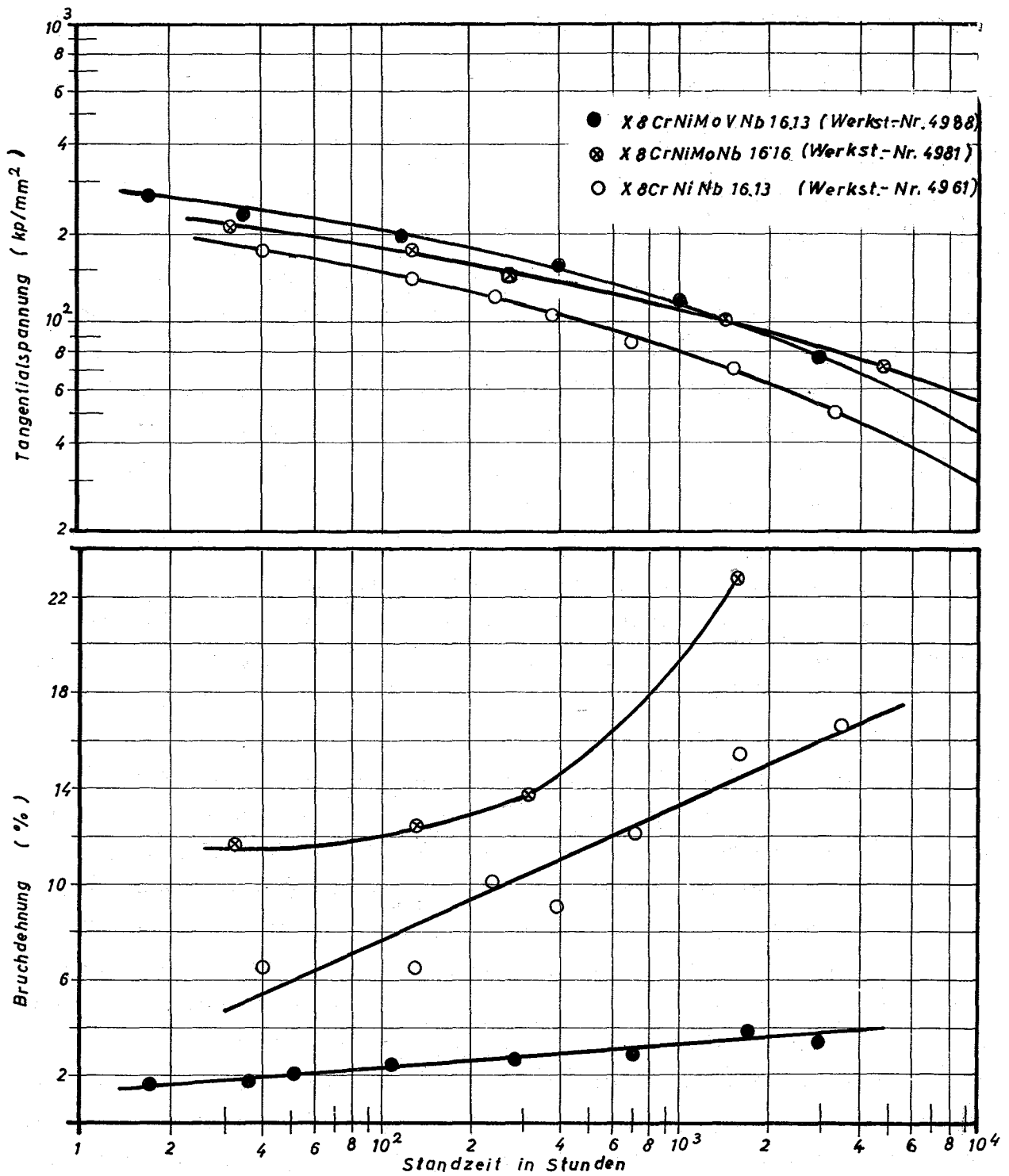


Abb. 3b Dehnung und Spannung in Abhängigkeit von der Standzeit



**Abb. 4** Zeitstandfestigkeits- und Dehnkurven

### 3. Kriechbeulversuche

(G. Bürkle, H. Kaupa)

Das Ziel der Kriechbeuluntersuchungen ist die Vorausbestimmung des Langzeitverhaltens von Brennelement-Hüllrohren, die im Betrieb einem hohen Kühlmittel-  
druck bei Temperaturen von über  $700^{\circ}\text{C}$  unterworfen sind. Hierzu werden in den  
Zeitstandanlagen des IMF Rohrproben von 100 mm Länge bei Temperaturen zwischen  
 $650^{\circ}$  und  $750^{\circ}\text{C}$  durch Außendruck mit Argon als Druckmedium belastet, um Auf-  
schluß über die erreichten Standzeiten in Abhängigkeit vom aufgegebenen Außen-  
druck zu erhalten. Hiermit kann einerseits der bei dieser Beanspruchung sich  
am günstigsten erweisende Werkstoff ermittelt werden, andererseits kann ein Ver-  
gleich zu den nach der Hoff'schen Theorie vorausgesagten Standzeiten gezogen werden.  
Ferner ist es möglich, den Einfluß von Rippenversteifungen auf die Standzeit  
gegenüber unberippten Rohren zu untersuchen.

Geprüft wurden bisher glatte Rohre aus den Werkstoffen Hastelloy X, Inconel 718,  
Inconel 625 und Incoloy 800, sowie verschiedene Rippenrohre aus Incoloy 800.  
Die Abmessungen der Rohre betragen  $7 \text{ } \varnothing \times 0,4 \text{ mm}$  Wandstärke, die Versuchstempera-  
tur belief sich auf  $700^{\circ}\text{C}$ .

Abb. 5 zeigt eine Kriechbeulprobe vor und nach dem Versuch, Abb. 6 gibt einen  
Überblick über die vorliegenden Ergebnisse zu glatten Rohren. Dabei zeigt sich,  
daß das beste Zeitstandverhalten homogenisierungsgeglühtes Inconel 625 und das  
schlechteste Incoloy 800 mit sehr niedrigem Ti/Al-Gehalt aufweist. Dazwischen  
liegen unvorbehandeltes Inconel 625, Inconel 718 und Hastelloy X. Eine Erhöhung  
des Ti/Al-Anteils bei Incoloy 800 ergibt eine deutliche Standzeitverbesserung.  
Die Standzeitwerte erreichen jedoch nicht die des geglühten Inconel 625. Ferner  
zeigt sich bei ungeglühtem Inconel 625 sowie bei Inconel 718, daß diese Legie-  
rungen bei kurzen Standzeiten relativ hoch belastbar sind, ihr Langzeitverhalten  
aber ungünstig ist, da ihre Standzeitkurven vom linearen Verlauf abweichend durch  
die langanhaltende Temperatureinwirkung zu hohen Standzeiten hin stärker abfallen.  
Bei den anderen Versuchsreihen ergibt sich ein ausgesprochen linearer Abfall,  
was eine einigermaßen sichere Extrapolation zu sehr hohen Standzeiten hin erlaubt.

Weitere Versuche bezüglich des Einflusses der Probenlänge haben keinen Standzeit-  
unterschied zwischen den normal langen Proben von 100 mm und kurzen Proben von 50  
mm ergeben. Dies ermöglicht die Übertragung der aus den Kriechbeulversuchen ge-  
wonnenen Ergebnisse auf die bei den Brennstäben vorhandenen großen Längen. Versuche  
an Rippenrohren haben bis jetzt keine Auswirkung der Rippen hinsichtlich einer

Standzeiterhöhung erkennen lassen. Eine genauere Untersuchung wird zur Zeit an verschieden gestalteten Rippenrohren, die aus der gleichen Schmelze stammen, vorgenommen.

Ein Vergleich der Experimente an glatten Rohren zur Hoff'schen Theorie hat bei Hastelloy X eine sehr gute Übereinstimmung gezeigt, nicht jedoch bei Inconel 625. Dies ist dadurch zu begründen, daß durch die langanhaltende Temperatureinwirkung beim ungeglühten Inconel 625 Gefügeänderungen auftreten, welche durch die Hoff'sche Theorie nicht erfaßt werden können. Der Vergleich der übrigen experimentellen Ergebnisse mit der Theorie ist noch nicht abgeschlossen.

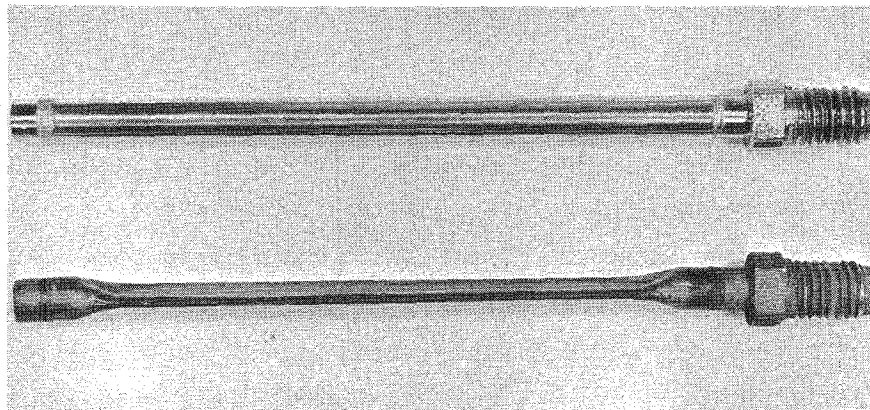


Abb. 5

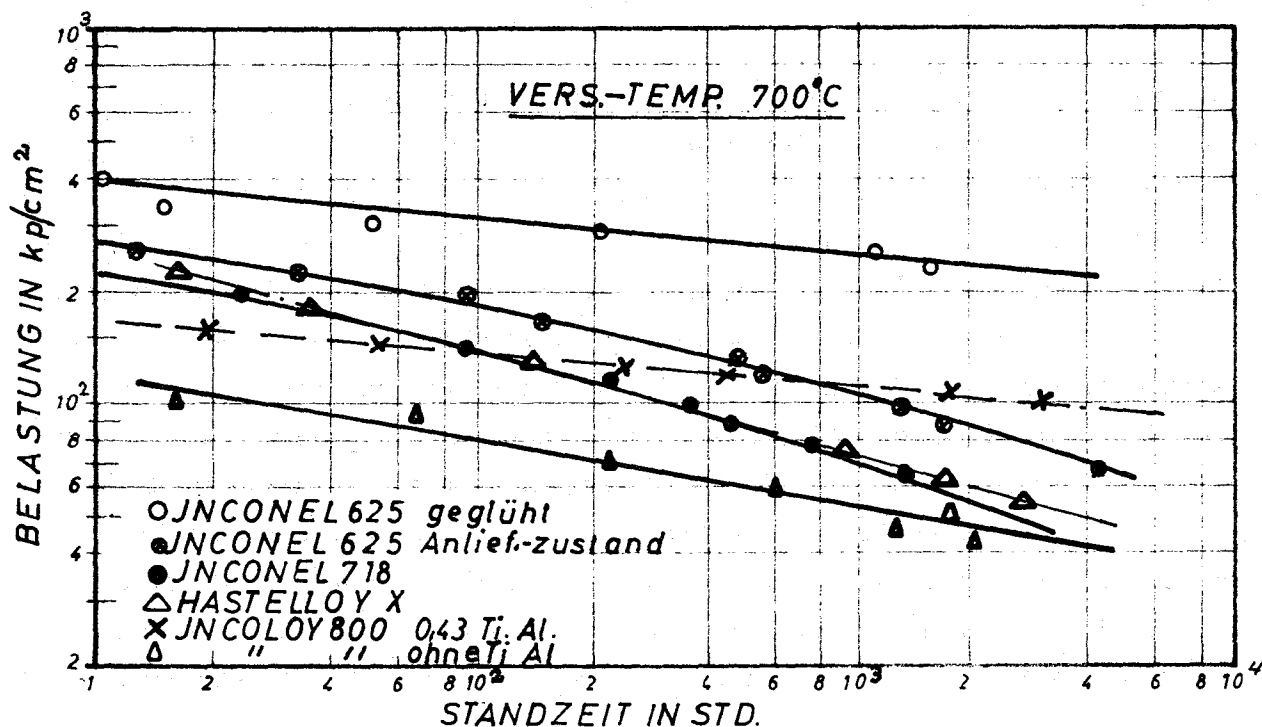


Abb. 6

#### 14. Schweißuntersuchungen

(D. Rodrian, Dr.W. Scheibe)

Elektronenstrahl-Stumpfschweißungen an 0,5 mm dicken Blechen<sup>1)</sup> der Materialkombination CrNi 18/8-Inconel 600 haben gezeigt, daß es möglich ist, praktisch jeden beliebigen Konzentrationsverlauf in der aufgeschmolzenen Zone zu erreichen, insbesondere große Konzentrationssprünge an den Wänden der aufgeschmolzenen Zone. Die Größe der Konzentrationssprünge hängt ab von der Lage des Auftreffpunktes des Elektronenstrahls in Bezug auf die Stoßfuge. Für den gleichmäßigen Konzentrationsverlauf ohne nennenswerte Schwankungen sowie einen einheitlichen Verlauf in verschiedenen Materialtiefen sind die übrigen Schweißparameter verantwortlich. Eine Faustformel für optimale Parameter kann angegeben werden (vgl.<sup>1)</sup>).

Auf diese Weise ist es möglich, die Mischungs- und Abkühlungsbedingungen in der Schweißnaht so zu beeinflussen, daß kongruent schmelzende intermetallische Phasen auf sehr schmale Bereiche der Schweißnaht beschränkt bleiben und inkongruent schmelzende intermetallische Phasen gänzlich unterdrückt werden. Abb. 7 zeigt eine solche Begrenzung auf schmale Bereiche der Schweißnaht beim Verschweißen von CrNi 18/8 (V<sub>2</sub>A) mit VTi 10. Die spröden Phasen liegen an der rechten Seite der Schweißnaht (Breite ≈ 5 µm), während die übrigen Bereiche der Schweißnaht nach den Eindrücken eine gleich große Härte wie das Grundmaterial zeigen, wie auch aus den Härtewerten in Abb. 8, zweite Kurve, zu ersehen ist. Dagegen treten spröde Phasen bei nicht optimalen Schweißparametern über die gesamte Schweißnahtbreite auf (restliche Härtekurven).

Dadurch sind an einer Vielzahl von Materialkombinationen (Abb. 9), die sich bisher wegen des Auftretens spröder Phasen nicht verschweißen ließen, Biegewinkel von über 180° erreicht. An den wenigen Kombinationen, deren Biegewinkel <180° sind, konnte in allen Fällen durch eine 0,3 mm dicke Zwischenlage aus Vanadium ebenfalls Biegewinkel >180° erzielt werden. Das Schweißen dieser dünnen Zwischenlagen läßt sich durch ein Verfahren wesentlich vereinfachen, das es gestattet, gleichzeitig mehrere Schweißnähte auszuführen. Die Untersuchungen wurden anschließend auf Materialkombinationen bis zu 10 mm Dicke ausgedehnt. Dabei ließen sich ebenfalls duktile Schweißverbindungen erreichen, wie z.B. an 10 mm CrNi 18/8-AlMg<sub>3</sub><sup>2)</sup>. Um festzustellen, ob derartige Materialkombinationen auch bei höheren Temperaturen eingesetzt werden können, oder ob die zunächst duktile Schweißverbindung durch Diffusion nachträglich versprödet, wurden Glühversuche bis 1000°C durchgeführt. Dabei wurde beobachtet, daß bis zu denjenigen Temperaturen,

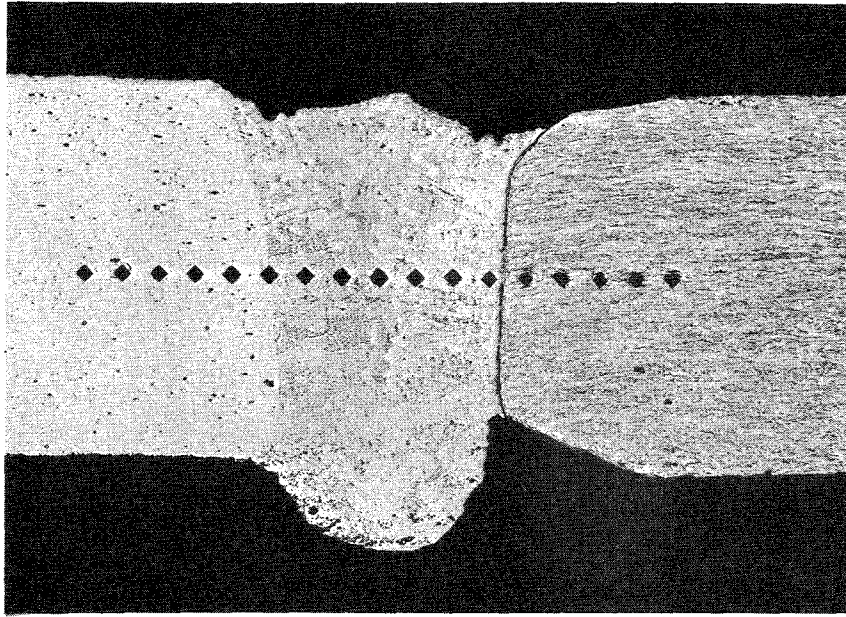


Abb. 7 Querschliff von CrNi 18/8 (V2A) - V10Ti mit Härteeindrücken  
( x 100 )

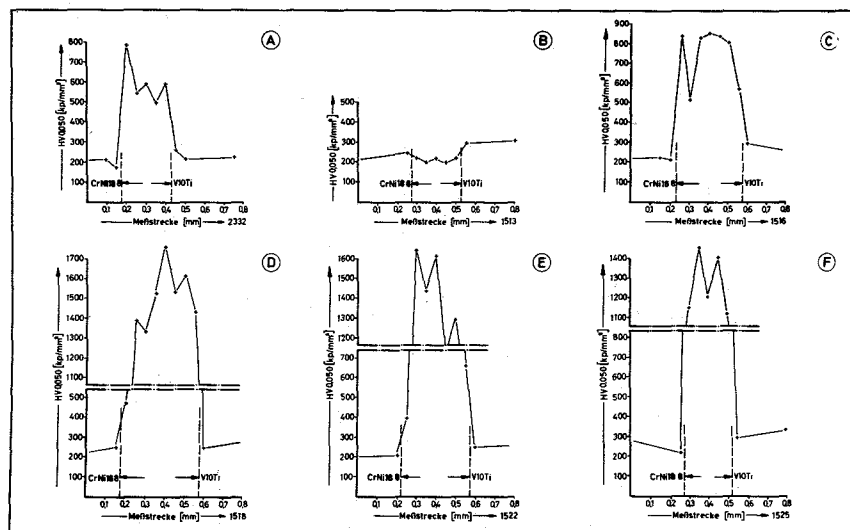


Abb. 8 Härteverlauf an CrNi 18/8 - V10Ti bei verschiedenen Schweißparametern.

Werkstoff- kombination	Schweißparameter					Auftreffpunkt d. Strahls mm	Biege- winkel
	KV	mA	mm/s	Period.-L.Imp.-L.			
				ms	ms		
Al-Cu	105	2,0	40	1	0,4	0,1 im Al	180°
Al-Fe	105	2,0	40	1	0,4	0,1 im Fe	180°
Al-Ni	130	1,4	20	1	0,4	0,15 im Al	180°
Al-Ti	105	2,0	40	1	0,4	unabhängig	180°
Al-V	105	2,0	40	1	0,4	unabhängig	180°
Al-Zr	105	2,0	40	1	0,4	unabhängig	180°
Cu-Ti	105	3,3	40	0,36	0,15	0,2 im Cu	180°
Fe-Nb	130	1,5	20	1	0,4	0,15 im Fe	180°
Fe-Ta	105	2,4	40	1	0,4	0,1 im Fe	180°
Fe-Ti	130	1,3	20	1	0,4	0,15 im Fe	90°
Fe-Zr	130	0,9	20	0,36	0,15	0,15 im Fe	45°
V -Zr	130	1,3	20	1	0,4	0,15 im V	120°
CrNi18 8-Al	120	1,2	15			0,1 im CrNi18 8	180°
CrNi18 8-Nb	130	1,7	20	1	0,4	0,1 im CrNi18 8	110°
CrNi18 8-Ta	130	1,9	20	1	0,4	0,75 im CrNi18 8	110°
CrNi18 8-Ti	130	1,3	20	1	0,4	0,15 im CrNi18 8	40°
CrNi18 8-Zr	130	1,9	20	0,36	0,15	0,15 im CrNi18 8	45°
CrNi18 8-V	105	2,4	40	1	0,4	0,1 im CrNi18 8	180°
CrNi18 8-V10Ti	105	2,4	40	1	0,4	0,15 im CrNi18 8	180°
CrNi18 8-Zirkaloy	130	1,3	20	1	0,4	0,2 im CrNi18 8	15°
Nb-Ni	130	1,3	20	1	0,4	0,1 im Ni	180°
Ni-Ta	130	1,3	20	1	0,4	0,1 im Ni	180°
Ni-Ti	130	1,3	20	1	0,4	0,15 im Ni	180°
Ni-V	105	2,4	40	1	0,4	0,15 im Ni	180°

Abb. 9 - Geschweißte Materialkombinationen ohne Zwischenlage

Werkstoff- kombination	Folien- material	Stärke d. Folie [mm]	Auftreffpunkt des Strahls	Strahlart	Biege- winkel
Fe-Ti	V	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
Fe-Zr	V	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
Ni-Zr	V	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
CrNi18 8-Ti	V	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
CrNi18 8-Zr	V	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
CrNi18 8-Zirkaloy	V	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
CrNi18 8-Nb	V	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
CrNi18 8-V10Ti	V	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
CrNi18 8-V10Ti20Nb	V	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
CrNi18 8-V10Ti20Nb	Fe	0,2	Mitte	Impuls	180°
CrNi18 8-V20Ti20Nb	V	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
Inconel X 550-Ti	Fe+V	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
Inconel X 550-V	Fe	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
Incoloy 800 - V	Fe	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
Fe-Ti	V	0,3	Mitte	Impuls	90°
Fe-Ti	V	0,3	links u. rechts	Impuls	180°
Fe-Ti	V	0,5	links u. rechts	Dauerstrahl	90°
Fe-Ti	V	0,5	links u. rechts	Längspendel	15°
Fe-Ti	V	0,7	links u. rechts	Längspendel	90°

Abb. 10 Geschweißte Materialkombinationen mit Zwischenlage



bei denen die Werkstoffe noch gute mechanische Eigenschaften besitzen, noch keine nennenswerte nachträgliche Versprödung auftritt (bei CrNi 18/8 als Kombinationspartner z.B.  $T \leq 550^{\circ}\text{C}$ ).

Bei Rohrrinnendruckversuchen ist zu beobachten, daß der Werkstoff 12R72HV vom Typ CrNi 15/15 (Sandvik) stets in der Schweißnaht bei sehr geringen Bruchdehnungen gerissen ist, während bei Stählen ähnlicher Zusammensetzung bisher keine Schwierigkeiten aufgetreten sind. Ursprünglich wurde vermutet, daß die Beseitigung der mechanischen und thermischen Vorbehandlung in der aufgeschmolzenen Zone als Hauptursache für dieses Verhalten anzusehen ist, jedoch ließ sich durch Vorversuche an 0,5 mm dicken Blechen zeigen, daß durch geeignete Schweißparameter eine Steigerung der Bruchdehnung bei  $650^{\circ}\text{C}$  von 2% auf 5,5% möglich ist (Ausgangsmaterial 15%). Eine befriedigende Erklärung dafür kann noch nicht gegeben werden. Insbesondere ist fraglich, ob beim Schweißen von Rohren wegen der anderen Energieeinbringung mit ähnlichen Verbesserungen zu rechnen ist.

#### 1) W. Scheibe

Untersuchungen über die Beeinflussung des Auftretens spröder Phasen an Schweißverbindungen zwischen verschiedenartigen Werkstoffen nach dem Elektronenstrahlschweißverfahren.

KFK-736 (1968)

#### 2) W. Scheibe

Die Beeinflussung intermetallischer Phasen beim Elektronenstrahlschweißen von dicken Blechen und runden Querschnitten aus verschiedenartigen Materialien sowie deren Einsatz bei höheren Temperaturen.

DVS-Bericht 5, Strahltechnik III (1969)

### 5. Hüllrohrprüfung ( O. Jacobi)

Zur Untersuchung von Hüllrohren auf Geometrie und Materialfehler wurde ein Rohrprüflabor eingerichtet, in dem die von den Herstellern gelieferten Rohre einer Qualitätskontrolle unterzogen werden.

Eine von der Industrie beschaffte Hüllrohrprüfbank, die verbessert und erweitert wurde, ermöglicht die kontinuierliche Ultraschallprüfung von Rohren. Es werden gleichzeitig die Wandstärken, der Außendurchmesser und die Rißfehler (auf Quer- und Längsfehler) gemessen und registriert. Die Wandstärke wird über das Ultraschall-Resonanzverfahren mit einer Meßwertfolgefrequenz von 50 Hz zur Anzeige

gebracht. Die Prüfung auf Rißfehler arbeitet mit einer Ultraschallfolgefrequenz von 1,5 kHz nach dem Echo-Impulsverfahren. Zur Eichung werden Testfehler benutzt, die bei einem Öffnungswinkel von  $60^\circ$  eine Tiefe von 2 bis 10 % der Wandstärke haben. Die untere Grenze der Fehlererkennbarkeit liegt bei 2 %. Der Außendurchmesser wird über zwei zur Vollbrücke gekoppelte induktive Wegaufnehmer in Differenzschaltung gemessen. Zur Eichung der Wandstärkenmeßeinrichtung und zur Eichung der Verlagerungsaufnehmer für den Außendurchmesser werden Testrohre benutzt, die in eigenen Werkstätten besonders exakt hergestellt sind und mit mechanischen Tastgeräten vermessen werden.

In Abb. 11 ist das Prüfdiagramm eines Edelstahlrohres abgebildet. Die 1. Schreibspur zeigt die Eichmarken für den Außendurchmesser mit +4, -36 und -72  $\mu\text{m}$ . Das untersuchte Hüllrohr zeigt eine geringe Außendurchmesserovalität und liegt mit seinen maximalen Werten im Bereich von +10, -5  $\mu\text{m}$ . Schreibspur 2 gibt den Verlauf der Wandstärkenabweichung wieder und zeigt, daß die Wandstärkenexzentrizität der beiden Durchmesserkreise eine Wandstärkenänderung von ca.  $\pm 10 \mu\text{m}$  bewirkt. Die Prüfung auf Längsfehler ist ohne Befund (Schreibspur 3), während bei der Querfehlerprüfung (Schreibspur 4) Fehler angezeigt werden, die jedoch kleiner sind als die vorgegebenen Testfehler.

Eine Prüfbank zur kontinuierlichen Erfassung des Innendurchmessers von Hüllrohren wurde entwickelt und in Betrieb genommen. Hierbei wird ein Meßbolzen in das langsam rotierende Rohr geführt. Der Meßbolzen besitzt 2 um  $180^\circ$  versetzte Düsen, durch die mit einem Druck von ca. 2 atü Luft geblasen wird. Der Druckabfall in der Speiseleitung, der mit einer induktiven Druckmeßdose gemessen wird, ist dabei proportional dem Abstand zwischen Austrittsdüse und Rohrwand, sofern dieser Spalt nicht größer als ca. 50  $\mu\text{m}$  wird. In Abb. 12 ist ein Registrierstreifen dieser Innendurchmesserprüfung abgebildet. Es zeigt sich am Rohranfang eine sehr starke Ovalität des Rohrinneendurchmessers. Bei Vergleich des Innendurchmesserdiagramms mit dem des Außendurchmessers (Abb. 13) erkennt man, daß es sich hier um eine Verformung des gesamten Rohrquerschnittes handelt bei konstanter Wandstärkenexzentrizität. Bei den angewandten Meßverfahren für Durchmesser und Wandstärken ist die erreichbare Genauigkeit von der absoluten Genauigkeit der vorgegebenen Eichmuster abhängig. Sie beträgt  $\pm 2 \mu\text{m}$ .

Der Einsatz eines Oberflächen-Feintastgerätes ermöglicht es, das Ist-Profil einer technischen Oberfläche in beliebigem Vergrößerungsmaßstab darzustellen. Beim Meßvorgang wird ein sich auf der Werkstückoberfläche abstützender oder gleitender Taster kontinuierlich bewegt. Dieser Taster trägt eine bewegliche Tastspitze (mit einer Spitzenverrundung von ca.  $2 \mu\text{m}$ ), die mit einer Kraft von ca. 80 mp belastet wird. Die Bewegung der Tastspitze wird über ein Trägerfrequenzmeßsystem elektrisch erfaßt.

In den Abb. 14 und 15 ist das Mikroprofil zweier Hüllrohre dargestellt. Während das Profil in Abb. 8 einer Spezifikation Rauhtiefe  $R_t = 2 \mu\text{m}$  gerade noch gerecht wird, ist dieser Wert in Abb. 9 erheblich überschritten.

Erprobt und weiterentwickelt wurde im Rohrprüflabor ein Steigungsmeßgerät zum Vermessen von Steigungstoleranzen an Rohren mit Wendelrippen. Die an einer Rippenflanke zwangsgeführte Meßtrommel wird so lange verschoben, bis ein voller Umlauf von  $360^\circ$  erreicht wird. Der vom Meßkopf zurückgelegte Weg ist ein Maß für die Steigung. In Abb. 16 ist die Verteilung der Steigungstoleranz für ca. 70 Stück Rippenrohre der Abmessungen: Außendurchmesser 7,0 mm, Wandstärke 0,4 mm, Rippenhöhe 0,6 mm, Rippensteigung  $600 \text{ mm}/360^\circ$  angegeben. Aus diesem Diagramm geht hervor, daß ca. 85 % der angelieferten Rohre innerhalb der Steigungstoleranzen von  $600 \pm 5 \text{ mm}$  liegen.

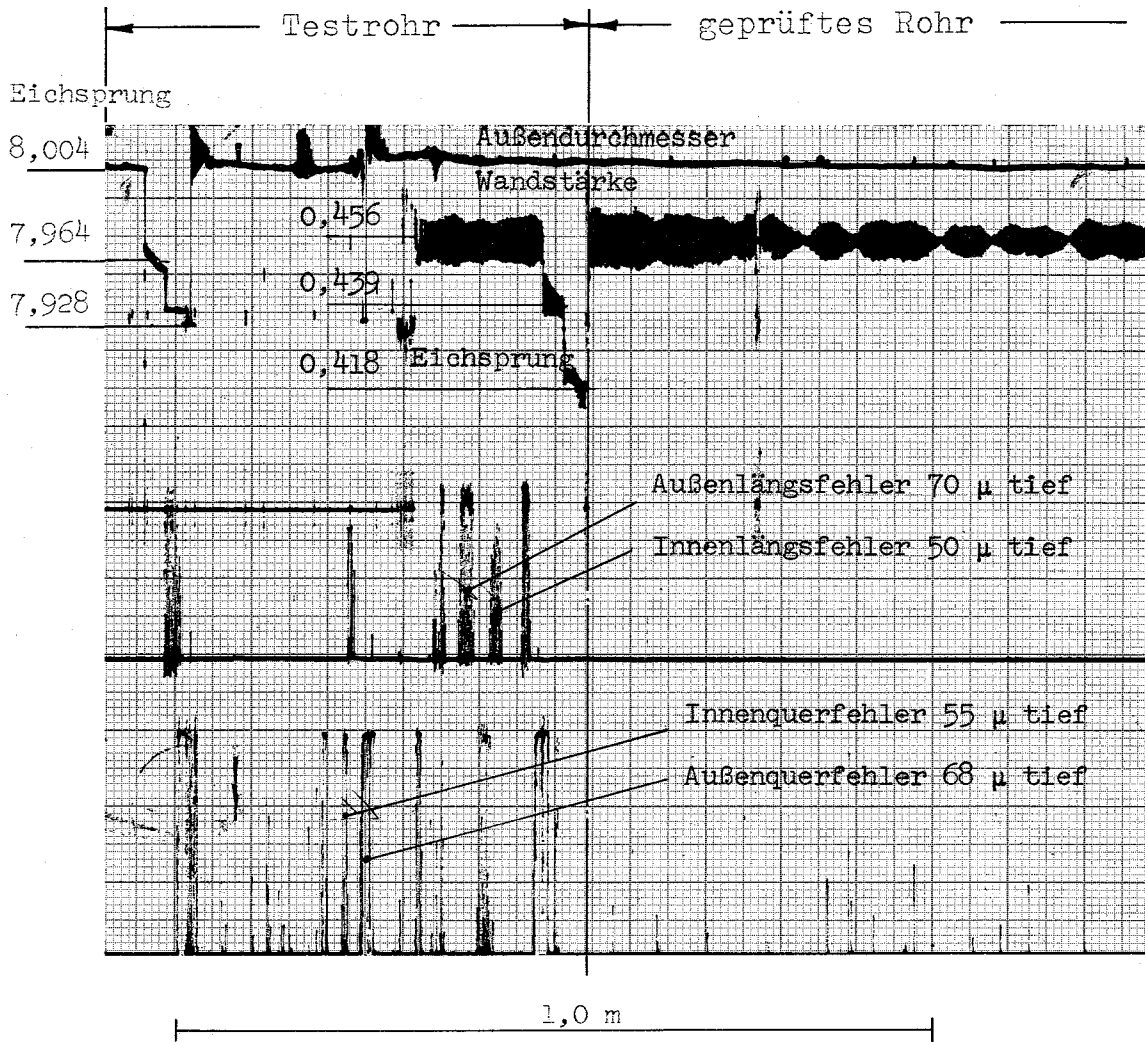


Abb. 11

113-17

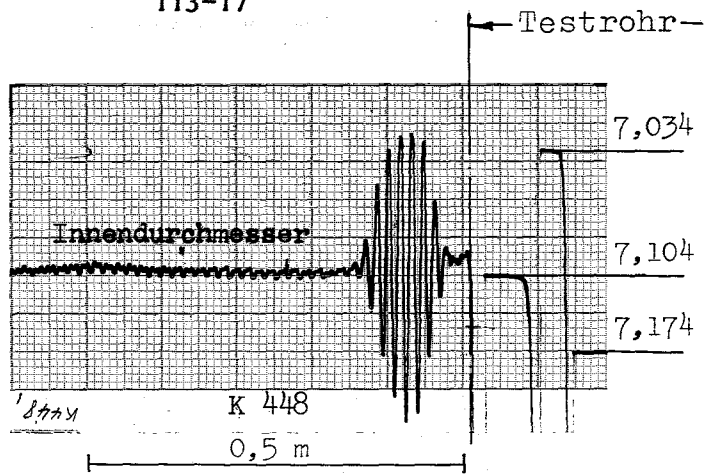


Abb.12

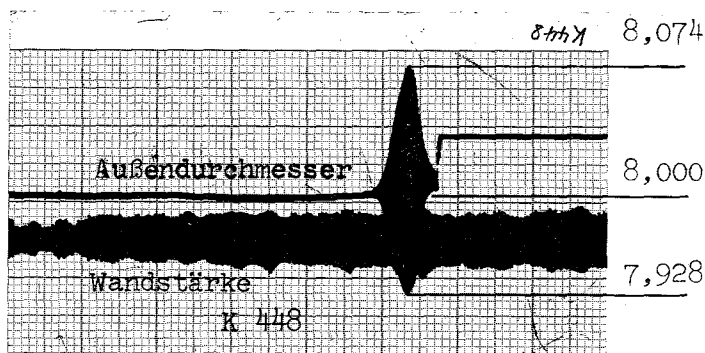


Abb.13

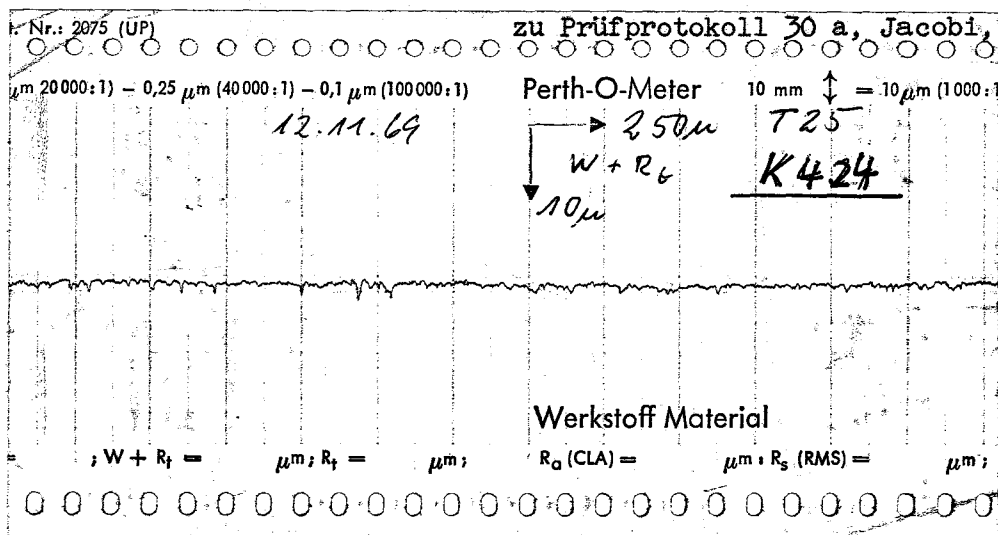


Abb.14

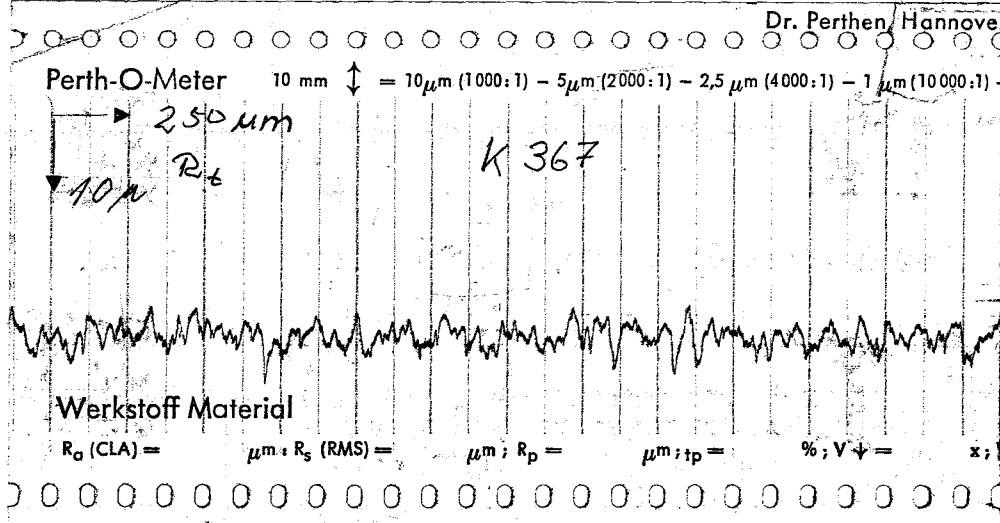


Abb.15

GfK

Innendurchmesser - u. Oberflächenprüfung

IMF / LB

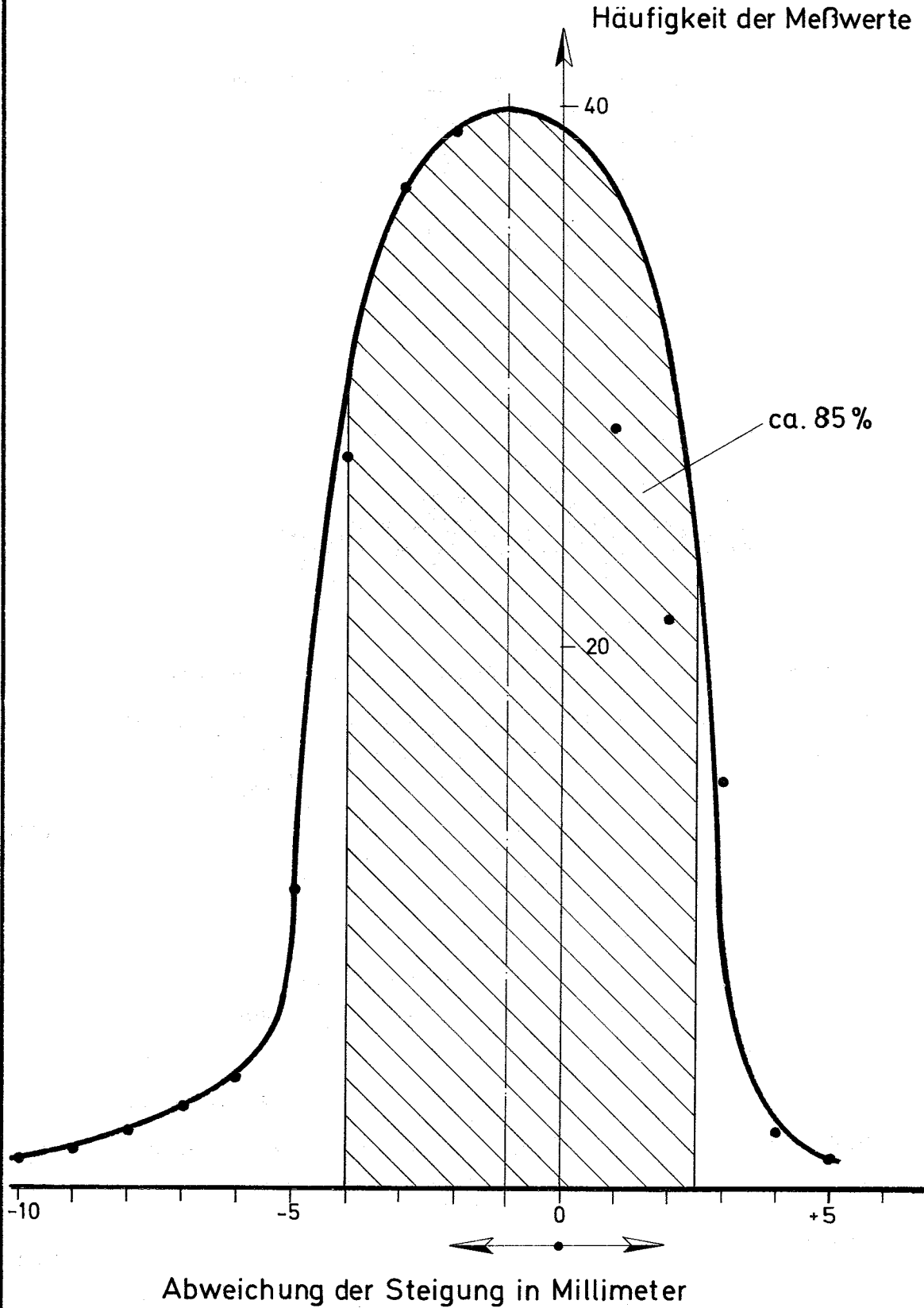


Abb.16

12.11.69

GfK

Steigungstoleranzen der verdrahten  
6-Rippenrohre K 345..... K408

IMF/LB

## 6. Untersuchungen mit der Mikrosonde für die metallkundlichen Analysen ( W. Hein, IMF)

Zur Durchführung einer exakten metallkundlichen Analyse neuer Legierungsentwicklungen müssen neben den normalen metallografischen Gefügeuntersuchungen von Werkstoffproben mit Hilfe des Lichtmikroskopes noch weitere Untersuchungsmethoden angewendet werden. So wurden z.B. mit der Cambridge-Mikrosonde zahlreiche Untersuchungen zur Klärung der Konzentrationsveränderungen von Proben nach Zeitstands-, Korrosions- und Elektronenstrahlschweißversuchen durchgeführt. Sehr wertvolle Ergebnisse lassen sich schnell und genau mit Hilfe der Mikrosonde bei allen Diffusionsvorgängen erzielen. So konnte z.B. durch lange Reihenuntersuchungen wichtige Aussagen über die Verträglichkeit der verschiedensten metallischen Hüllwerkstoffen mit  $UO_2$ , UC, U (CN) und U (CNO) nach unterschiedlichen Glühbehandlungen bei hohen Temperaturen gemacht und aus den aufgenommenen Konzentrationskurven quantitativ die Breite der Diffusionszone bestimmt werden. Auch bei der Konstitutionsforschung von Vanadin-Legierungen (V-Ti, V-Ti-Nb) sind mit der Mikrosonde wichtige analytische Ergebnisse erzielt worden, die zur Deutung und Klärung des Legierungsaufbaues der Vanadin-Basislegierungen beitragen. Ferner wurde die Homogenität der Legierungszusammensetzung in Elektronenstrahlschweißnähten bzw. das Auftreten neuer intermetallischer Phasen beim Verschweißen ungleichartiger Werkstoffpaarungen ausführlich überprüft und quantitativ die Veränderungen der einzelnen Elemente durch Schreiben ihrer Konzentrationskurven in den einzelnen Schweißnähten verfolgt. An Korrosionsproben, insbesondere nach längerer Korrosionsdauer in flüssigem Natrium, konnten die An- bzw. Abreicherung der verschiedenen Legierungselemente in den Außenzonen nachgewiesen und dadurch auch Aussagen über den Mechanismus des Korrosionsvorganges gemacht werden.

1131.12 Bestrahlungsverhalten von technischen Legierungen1131.120 Bestrahlungstechnik und -einrichtungen

(W.Kramer, L.Schmidt, H.Will, IRE)

Das Bestrahlungsprogramm für die PSB-Hüllmaterialentwicklung wird hauptsächlich im BR 2/Mol durchgeführt.

Im Berichtszeitraum wurden sowohl die bestehenden Einrichtungen planmäßig weiter betrieben, wofür laufend Bestrahlungseinsätze bereitgestellt werden mußten, als auch neue Anlagen entwickelt und für die Bestrahlung vorbereitet. Für Experimente mit Flachproben bei hohen Temperaturen wurde die Konstruktion zweier verbesserter Kapseltypen abgeschlossen (Mol 3B und 3E). Erste Kapseln vom Typ 3B sollen Ende 1970 einsatzbereit sein. Eine besondere Bestrahlungseinrichtung für die Hüllrohrerprobung unter zyklischen Temperatur- und Lastwechseln (Mol 4) ist fertig entwickelt und in Auftrag gegeben worden. Ende 1970/Anfang 1971 kann voraussichtlich der Bestrahlungsbetrieb aufgenommen werden.

Experimente zur Ermittlung des Zeit-Dehnungsverhaltens von Hüllwerkstoffen im Reaktor, die eine besondere Bedeutung haben, sind recht schwierig durchzuführen und erfordern einen beträchtlichen Aufwand. Eine englische Kriechapparatur ist 1969 hergestellt und erprobt worden; sie soll im Frühjahr 1970 im BR 2 installiert werden. Zusätzlich soll eine französische Einrichtung mit einem besonders vorteilhaften Dehnungsmeßprinzip beschafft werden, die Ende 1970 betriebsbereit sein kann. Für einen im IRE entwickelten Kriechkapseltyp für die gleichzeitige Bestrahlung mehrerer Proben ist die in pile-Erprobung mit Hilfe eines Simulationseinsatzes vorbereitet worden, die zu einer Entscheidung über den späteren Einsatz dieses Typs führen wird.

In den Jahren 1968 und 1969 wurden die in den vorhergehenden Jahren begonnenen umfangreichen Versuche zur Untersuchung des Bestrahlungsverhaltens austenitischer Stähle und Ni-Legierungen in verstärktem Maße fortgeführt.<sup>(4)</sup>



Gegenüber den Versuchen in den Jahren davor konnte durch Inbetriebnahme der Zeitstandanlagen für bestrahlte Proben (Anfang 1968), der Fertigstellung der heißen Präparationszelle für elektronenmikroskopische Untersuchungen sowie der voll angelaufenen Hochtemperaturbestrahlungen der Umfang der Arbeiten stark erweitert und die Effektivität der Untersuchungen wesentlich erhöht werden. Zur Klärung mehr grundsätzlicher Fragen der Strahlenversprödung wurden darüberhinaus Bestrahlungsversuche im Zyklotron aufgenommen.

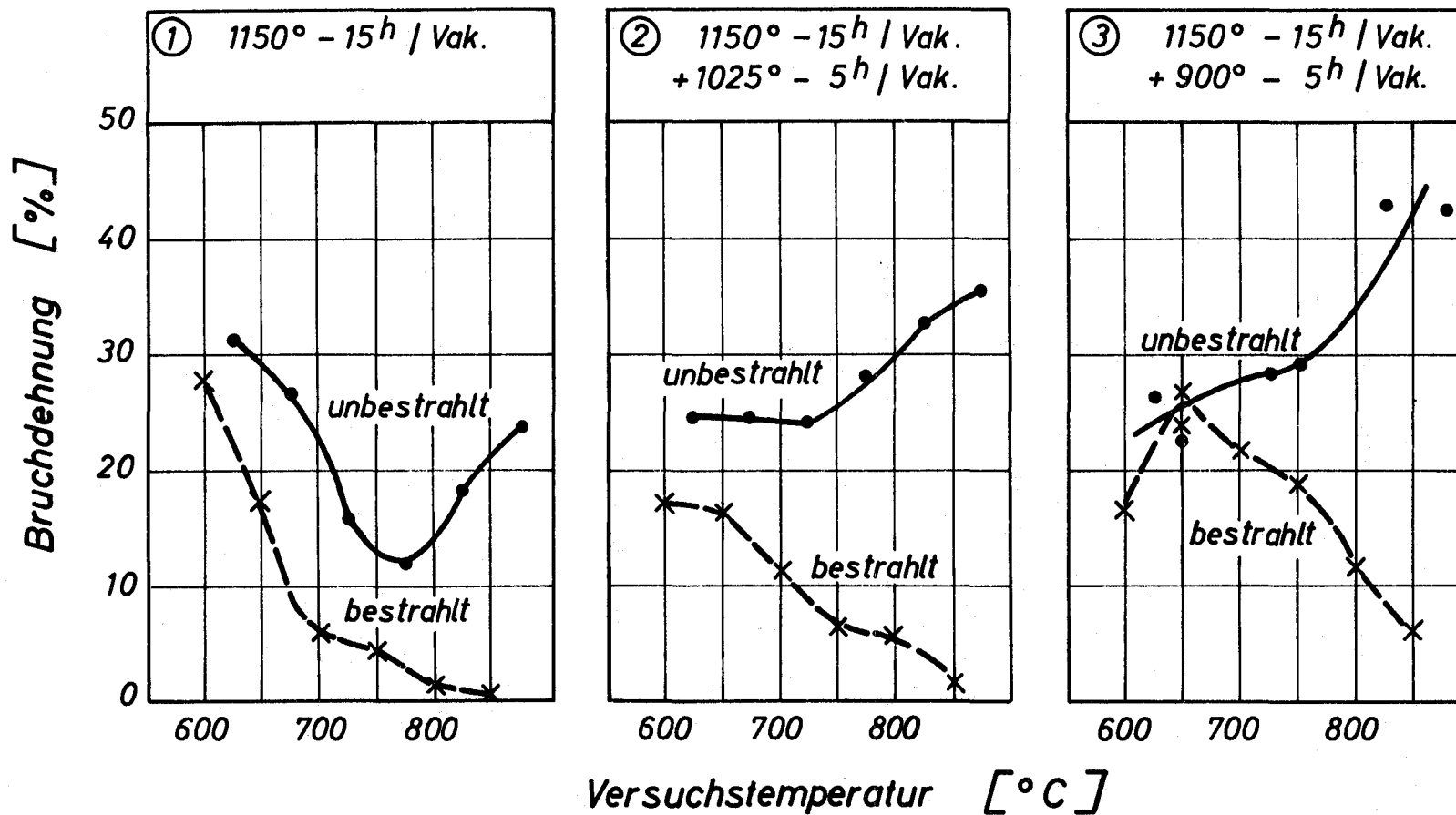
In bezug auf die untersuchten Werkstoffe lag der Schwerpunkt bei den Stählen 4988, 4981 sowie einem Ti-stabilisierten 15/15-CrNiB-Stahl, der auf Grund seiner geringen Neigung zum interkristallinen Bruch und seiner hohen Festigkeit als sehr geeigneter Hüllwerkstoff erschien.<sup>(7)</sup> Darüberhinaus wurde eine Reihe weiterer austenitischer Stähle und Ni-Legierungen<sup>(8)</sup> im Rahmen der Bestrahlungsprogramme Mol 1, Mol 2, Mol 3 und DIDO sowie in zahlreichen FR 2-Bestrahlungen untersucht. Bei vielen der Werkstoffe erwies sich der Werkstoffzustand (thermisch-mechanische Vorbehandlung) als eine das Bestrahlungsverhalten stark beeinflussende Größe, so daß umfangreiche Versuche in dieser Richtung zur systematischen Klärung durchgeführt wurden.

#### 1131.121 Kurzzeitfestigkeit

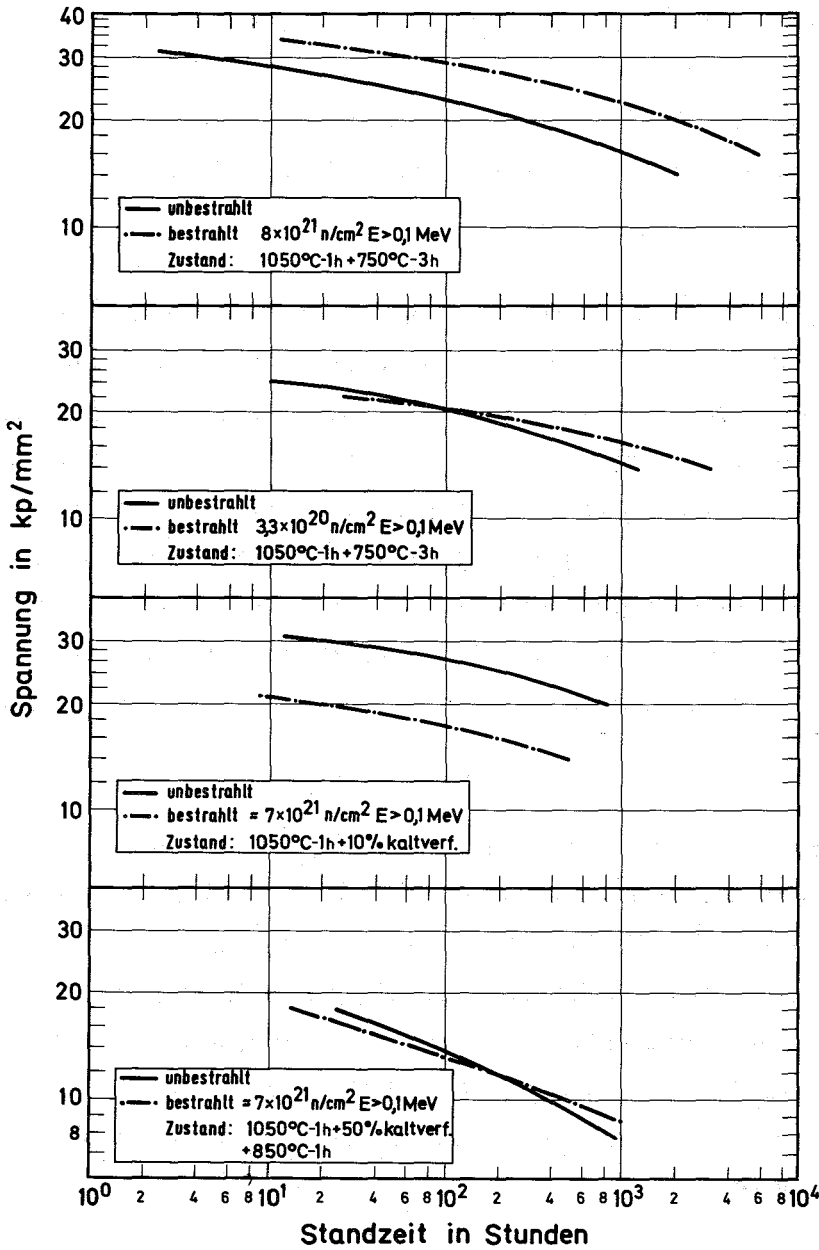
(H. Böhm, H. Hauck, G. Heß, W. Leo)

Die Ergebnisse über den Einfluß einer thermomechanischen Vorbehandlung auf das Bestrahlungsverhalten der Stähle 4988 und 15/15 CrNiTiB zeigen, daß der kaltverformte Zustand (entspricht etwa dem bisherigen Anlieferungszustand der Hüllrohre) sehr geringe Bruchdehnungen nach Bestrahlung aufweist. Eine erhebliche Verminderung der Strahlungsversprödung läßt sich durch eine thermische Vorbehandlung im Bereich von 300°-350°C erreichen. Aus Bild 17 ist der Einfluß der thermisch-mechanischen Vorbehandlung auf die Strahlungsversprödung zu erkennen. Ziel dieser Untersuchungen ist die Ermittlung des optimalen Wärmebehandlungszustandes für die Hüllrohre.

Trotz des transkristallinen Bruchverhaltens im unbestrahlten Zustand zeigt auch der Ti-stabilisierte 15/15-CrNiB-Stahl (Sandvik 12R72HV) eine deutliche Hochtemperaturversprödung nach Neutronenbestrahlung, wobei jedoch der Beginn der Versprödung im Vergleich zum Stahl 4988 zu etwas höheren Temperaturen verschoben ist.



Einfluß einer Neutronenbestrahlung auf die Bruchdehnung des  
 Sandvik - 15Cr 15Ni - Stahles 12R 72HV  
 Mol - Bestrahlung [50°C] Dosis  $\approx 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup>



Zeitstandfestigkeit von

X8CrNiMoVNb 1613 bei

650°C vor und nach

Bestrahlung

### 1131.122 Zeitstand- und Kriechverhalten

(H.Böhm, K.D.Cloß, K.Ehrlich, M.Schirra, C.Wassilew)

Die Zeitstandversuche an bestrahlten Proben des Stahles 4988 (Mol 1G, D1D0 M1 und Mol 3C) lassen ebenfalls einen deutlichen Einfluß der thermisch-mechanischen Vorbehandlung auf die Zeitstand- und Kriech Eigenschaften erkennen. (Bild 18) Entsprechend den im Zugversuch ermittelten Eigenschaftsänderungen führt eine 10%ige Kaltverformung vor der Bestrahlung zur stärksten Einbuße der Standzeit und Duktilität.

Bestrahlungen bei ca. 50°C bis  $0,8 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$  führen beim Stahl 4988 im üblichen Anlieferungszustand zu einer deutlichen Erhöhung der Standzeit und Erniedrigung der Kriechgeschwindigkeit bei Temperaturen von 650° und 750°C.<sup>9)</sup> Ursache hierfür sind bestrahlungsinduzierte Fehlstellencluster und Versetzungsringe, die thermisch sehr stabil sind und erst bei Temperaturen oberhalb 750°C ausheilen. Unter gleichen Bestrahlungsbedingungen zeigen die Ni-Legierungen Inconel 625 und Inconel 718 dagegen eine starke Abnahme der Standzeit durch Bestrahlung. Die elektronenmikroskopische Untersuchung und Bestimmung der Strahlenschäden wurde zur Klärung der Ursachen des Nachbestrahlungsverhaltens an einer großen Zahl von Proben der genannten Werkstoffe durchgeführt.

Im Rahmen der Mol 2-Versuche<sup>1)</sup> wurden insgesamt 10 Einsätze mit je 8 Prüflingen bestrahlt und nachuntersucht. Dabei wurde bei einem Einsatz eine maximale Versuchszeit von 4750 h erreicht ( $\hat{=}$  ca.  $6 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ( $> 0,1 \text{ MeV}$ )). Die in den 10 Einsätzen bestrahlten Legierungen standen noch ganz im Zeichen der Hüllmaterialentwicklung sowohl für den natrium- als auch den dampfgekühlten schnellen Brutreaktor. So wurden neben dem austenitischen Stahl X8CrNiMoVNB 1613 (W.-Nr. 4988) auch die Nickel-Legierungen Inconel 718, Inconel 625 und Hastelloy X untersucht. Alle Rohrproben wurden im Anlieferungszustand eingesetzt.

Während der austenitische Stahl X8CrNiMoVNB 1613 bei einer Versuchstemperatur von 600°C eine relativ hohe Festigkeit aufweist ( $\sigma_{B/1000} = 16 \text{ kp/mm}^2$ ), scheint bei 700°C die Grenze der Einsatzmöglichkeit dieses Werkstoffs in der verwendeten Zusammensetzung und ohne spezielle Vorbehandlung erreicht zu sein. Für Versuchszeiten  $> 300 \text{ h}$  fällt bei dieser Temperatur die Zeitstandfestigkeit wahrscheinlich aufgrund von Überalterungseffekten sehr stark ab, so daß nur noch Werte von  $\sigma_{B/1000} = 5 \text{ kp/mm}^2$  erreicht werden. Die Bruchdehnungen lagen bei 600°C unter 1%, bei 700°C wurden maximale Werte von 2,5% gemessen.

Von den drei untersuchten Nickellegierungen zeigt Hastelloy X das beste, Inconel 718 das schlechteste Zeitstandverhalten unter Bestrahlung. Bereits bei 650°C und Standzeiten über 1000 h weist Hastelloy X eine höhere Festigkeit als Inconel 625 auf ( $\sigma_{B/2000} = 12,5$  bzw.  $11,5$  kp/mm<sup>2</sup>). Noch deutlicher kommt das bessere Verhalten von Hastelloy X bei 700°C zum Ausdruck, da hier die Zeitstandfestigkeitskurve bedeutend flacher als bei Inconel 625 verläuft. Bei Standzeiten von 1000 h beträgt die Zeitstandfestigkeit von Hastelloy X  $\sigma_{B/1000} = 9,5$  kp/mm<sup>2</sup>, dagegen die von Inconel 625 und Inconel 718 nur noch  $\sigma_{B/1000} = 7,3$  bzw.  $6,8$  kp/mm<sup>2</sup>. Auch bezüglich der Bruchdehnung ist Hastelloy X den anderen Nickellegierungen überlegen. Während bei Hastelloy X sowohl bei 650°C als auch 700°C Bruchdehnungen zwischen 2 und 4% gemessen wurden, liegen die Bruchdehnungen der beiden anderen Nickellegierungen bei 650°C unter 2%.

Seit Mitte 1969 läuft ein umfangreicher Bestrahlungsversuch im DFR, bei dem u.a. die Stähle 4988, 4981 und 12R72HV in verschiedenen Wärmebehandlungszuständen, die günstiges Bestrahlungsverhalten erwarten lassen, bei Temperaturen zwischen 500 und 700°C bis  $10^{23}$  n/cm<sup>2</sup> bestrahlt werden. Neben den Änderungen der mechanischen Eigenschaften nach hohen Dosen soll hierbei insbesondere auch das Schwellverhalten dieser Werkstoffe untersucht werden.

Zum Schwellverhalten der Werkstoffe wurde darüberhinaus eine Reihe theoretischer Arbeiten durchgeführt.<sup>5)6)</sup>

#### 1131.123 Grundlagenuntersuchungen

(H. Böhm, H. Hauck)

Im Rahmen der mehr grundlagenorientierten Arbeiten zur Strahlungsversprödung an Hüllwerkstoffen wurden der Einfluß der  $\alpha$ - $\gamma$ -Umwandlung sowie der Verformungsrichtung auf die Hochtemperaturversprödung untersucht.<sup>2)3)</sup> Dabei zeigte sich, daß bei einer Reihe ferritischer Stähle eine Hochtemperaturversprödung erst bei Temperaturen oberhalb der  $\alpha$ - $\gamma$ -Umwandlung erfolgt, was auf einen deutlichen Einfluß der Kristallstruktur auf die Hochtemperaturversprödung hinweist.

#### 1131.124 Simulation von Strahlenschäden

(K. Ehrlich)

Im Berichtszeitraum wurde eine Bestrahlungsapparatur am Zyklotron aufgebaut, mit deren Hilfe es möglich ist,  $\alpha$ -Teilchen homogen in Zerreißproben einzubringen, um deren Einfluß auf die Hochtemperaturstrahlungsversprödung zu bestimmen. Die Simulationsversuche<sup>10)</sup> haben dabei an einem rostfreien Stahl V<sub>2</sub>A (entsprechend

dem amerikanischen Stahl 304) ergeben, daß - ähnlich wie bei Neutronenbestrahlung - bei Temperaturen  $\geq 650^{\circ}\text{C}$  eine starke Reduktion der Bruchdehnung beobachtbar wird.

Literatur Zu 1131.12

- 1) H.J. Laue, H. Böhm and H. Hauck  
Multi-Axial In-Reactor Stress-Rupture Strength of Austenitic Stainless Steels and a Nickel-Alloy.  
ASTM-Spec. Techn. Publ. 457 (1969), 390
- 2) H. Böhm and H. Hauck  
Investigation of Radiation Induced High-Temperature Embrittlement of Ferritic Steels in the Temperature Range of the  $\alpha$ - $\gamma$ -Transformation.  
Trans. ANS 11 (1968), 482
- 3) H. Böhm, H. Hauck and G. Heß  
Influence of Cold Working and Recrystallization on the Radiation Induced High Temperature Embrittlement of Austenitic Steels.  
J. Nucl. Mat. 33 (1969), 347-351
- 4) H. Hauck  
Hochtemperaturversprödung durch Neutronenbestrahlung.  
KFK-985, (1969), S. 17
- 5) H. Böhm  
Porenbildung unter Bestrahlung.  
KFK-985 (1969), S. 47
- 6) H. Böhm  
Die Porenbildung in metallischen Werkstoffen durch Neutronenbestrahlung.  
KFK-838 (1968)
- 7) H. Böhm  
Austenitische Stähle als Hüllwerkstoffe für Schnelle Brutreaktoren.  
KFK-985 (1969), S. 183
- 8) H. Hauck  
Bestrahlungsverhalten von Nickellegierungen.  
KFK-985 (1969), S. 289

9) H. Böhm, H. Hauck, W. Leo and C. Wassilew

Postirradiation Creep-Rupture Properties of Austenitic Stainless Steel  
and Nickel-Base Alloys.

J. Nucl. Mat. 33 (1969), 343

10) K. Ehrlich

Simulierung der Hochtemperaturversprödung durch direkte Injektion von  $\alpha$ -  
Teilchen.

KFK-985 (1969), S. 35 - 45

1132 Entwicklung neuer Legierungen1132.1 Vanadinlegierungen

(H.Böhm, K.Ehrlich, W.Scheibe, M.Schirra, H.Scholz, IMF)

Die gemeinsam mit der Metallgesellschaft AG laufende Entwicklung von Vanadiumlegierungen als Hüllwerkstoff umfaßte

1. Technologie der Verarbeitung von Vanadiumlegierungen mit dem Ziel der Herstellung von dünnwandigen Rohren (durchgeführt bei der Metallgesellschaft)
2. Bestimmung des Zeitstandverhaltens von V-Legierungen zur Ermittlung optimaler Legierungen in Bezug auf Langzeitfestigkeit
3. Untersuchung des Bestrahlungsverhaltens
4. Untersuchung des Schweißverhaltens
5. Messung der Korrosionseigenschaften in flüssigem Natrium.

Im Rahmen der Technologie wurden von der Metallgesellschaft umfangreiche Strangpreß-, Pilger- und Ziehversuche an verschiedenen bisher als optimal angesehenen V-Legierungen durchgeführt. Ein Schwerpunkt der Arbeiten lag dabei auf der Herstellung sog. "Duplex-Rohre", die durch eine äußere Schicht aus Armco-Eisen ein wesentlich besseres Korrosionsverhalten aufweisen als ungeschützte Vanadium-Rohre.

Zur Ermittlung der Legierungen mit optimalen Festigkeitseigenschaften wurden folgende Legierungsgruppen eingehend auf ihr Zeitstandverhalten untersucht.

## 1. V-Ti-Nb (1-20% Ti, 0-20% Nb)

Aus dieser Gruppe wurden 20 Legierungen im Temperaturbereich zwischen 650° und 920°C bis zu Zeiten von maximal 30 000 Stunden getestet. Bild 19 gibt einen Teil der Ergebnisse wieder. Von besonderer Bedeutung ist das Festigkeitsmaximum bei 1-3% Ti. In diesem Konzentrationsbereich zeigen die Legierungen überragende Festigkeitseigenschaften. Der Nb-Einfluß nimmt mit zunehmender Standzeit ab.

## 2. V-Ti-Cr (1-3% Ti, 15% Cr)

Diese Legierungen weisen nahezu die gleichen hohen Festigkeitswerte auf wie die V-Ti-Nb-Legierungen.

## 3. V-Ti-Nb-Si (3% Ti, 0-15% Nb, 1% Si)

Mit dieser Legierungsgruppe konnten die bisher höchsten Zeitstandfestigkeitswerte erreicht werden.

## 4. V-Zr-Cr (1-3% Zr, 2-15% Cr)

Die Ergebnisse an dieser Legierungsgruppe zeigen, daß die Zeitstandfestigkeit



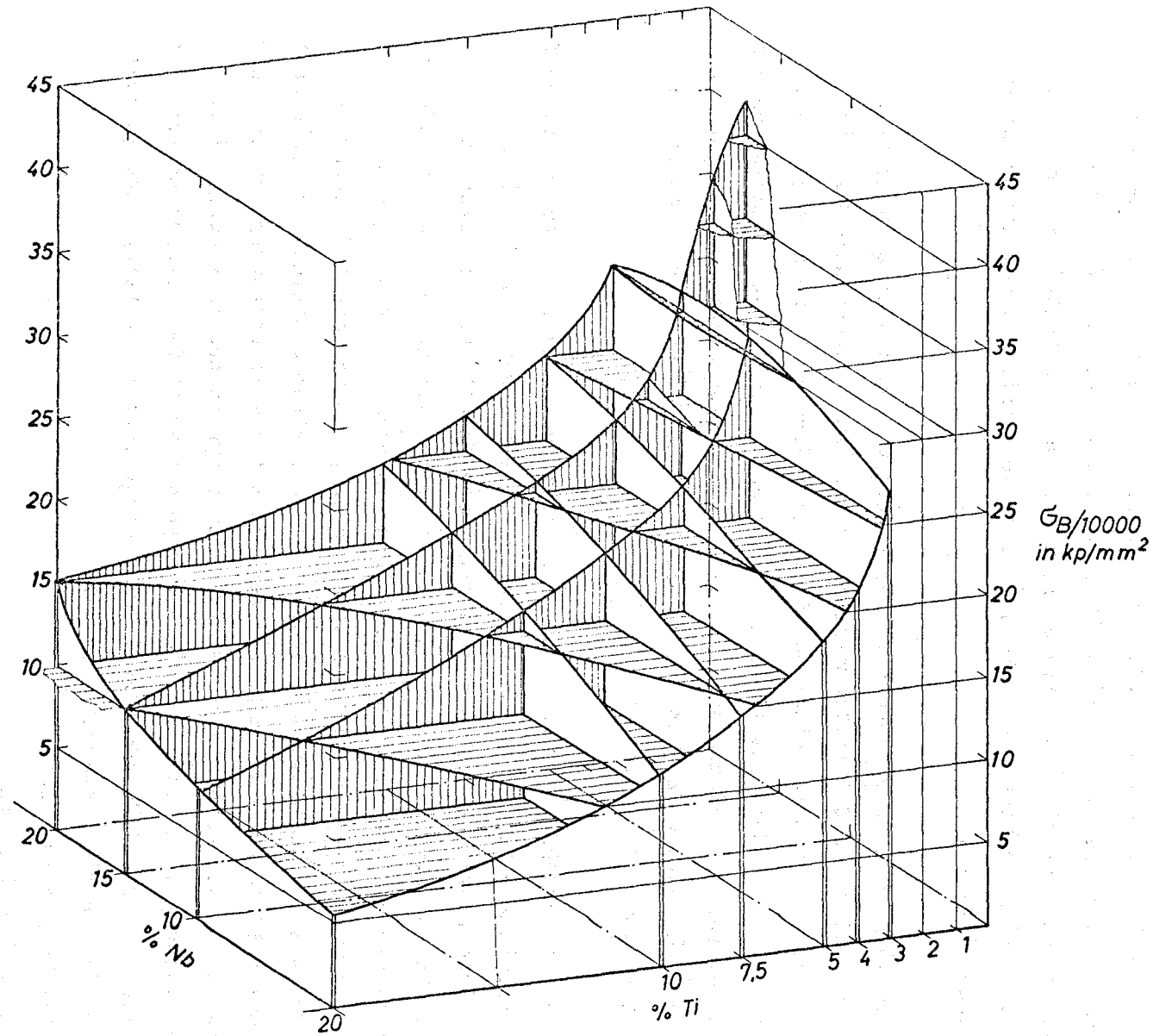


Bild 19: 10000-Stunden-Zeitstandfestigkeit von Vanadin-Basis-Legierungen in Abhängigkeit vom Titan- und Niob-Gehalt ( $T = 650^\circ C$ )

deutlich unter der der Ti-haltigen Legierungen und nur knapp über denen der warmfesten austenitischen Stähle liegen. An zwei V-Ti-Nb-Legierungen wurde der Einfluß einer Kaltverformung und Wärmebehandlung auf das Zeitstand- und Kriechverhalten bei 650°C ermittelt.

Die ersten Schweißversuche an VTi3Si1 zeigen ein ungünstiges Verhalten gegenüber den anderen Legierungen VTi3, VTi10, VTi10Nb10, VTi10Nb20 und VTi20Nb20.

Teilweise ist der Werkstoff bereits unmittelbar nach dem Schweißen gerissen. Dasselbe ist beim Schweißen unter Schutzgas zu beobachten, wobei extrem starkes Kornwachstum auftritt.

Desweiteren wurde mit Vorversuchen zum Schweißen von Duplexrohren begonnen. Da diese noch nicht in Originalabmessungen vorliegen, insbesondere was die Dicke des Mantels aus Armco-Eisen betrifft, läßt sich z.Zt. noch keine zuverlässige Aussage über das Schweißverhalten machen, da von diesen Abmessungen das Auftreten der spröden  $\sigma$ -Phase abhängt. Diffusionsversuche zeigen, daß der anfänglich gute Kontakt der Vanadinlegierung mit der Eisenschicht früher als zunächst angenommen verlorenght.

Mit der bereits erwähnten Methode zur Simulierung der Hochtemperaturversprödung wurden verschiedene Vanadinbasislegierungen getestet, wobei sowohl die mehr grundsätzliche Frage - ob kubisch-raumzentrierte Metalle und Legierungen zur Hochtemperaturversprödung neigen - überprüft werden sollte, als auch technologische Aussagen über den Grad der Versprödung in verschiedenen Legierungen gewonnen werden sollten. Die Ergebnisse<sup>4)</sup> zeigen, daß bei einer Heliumkonzentration von  $2 \times 10^{-6}$  He-Atome/Gitteratom bis zu Testtemperaturen von 750°C kein Einfluß der Bestrahlung auf Zugfestigkeit und auf die Bruchdehnung feststellbar ist. Dies ist in Übereinstimmung mit früheren Daten an neutronenbestrahlten Vanadinlegierungen. Bei 650°C wies die Gruppe der hochtitanhaltigen Legierungen (V-10Ti-20Nb, V-10Ti-10Nb und V-20Ti-10Nb) einen deutlichen Versprödungseffekt auf, nicht jedoch die Legierung V-3Ti-1Si.

Veröffentlichungen zu 1132:

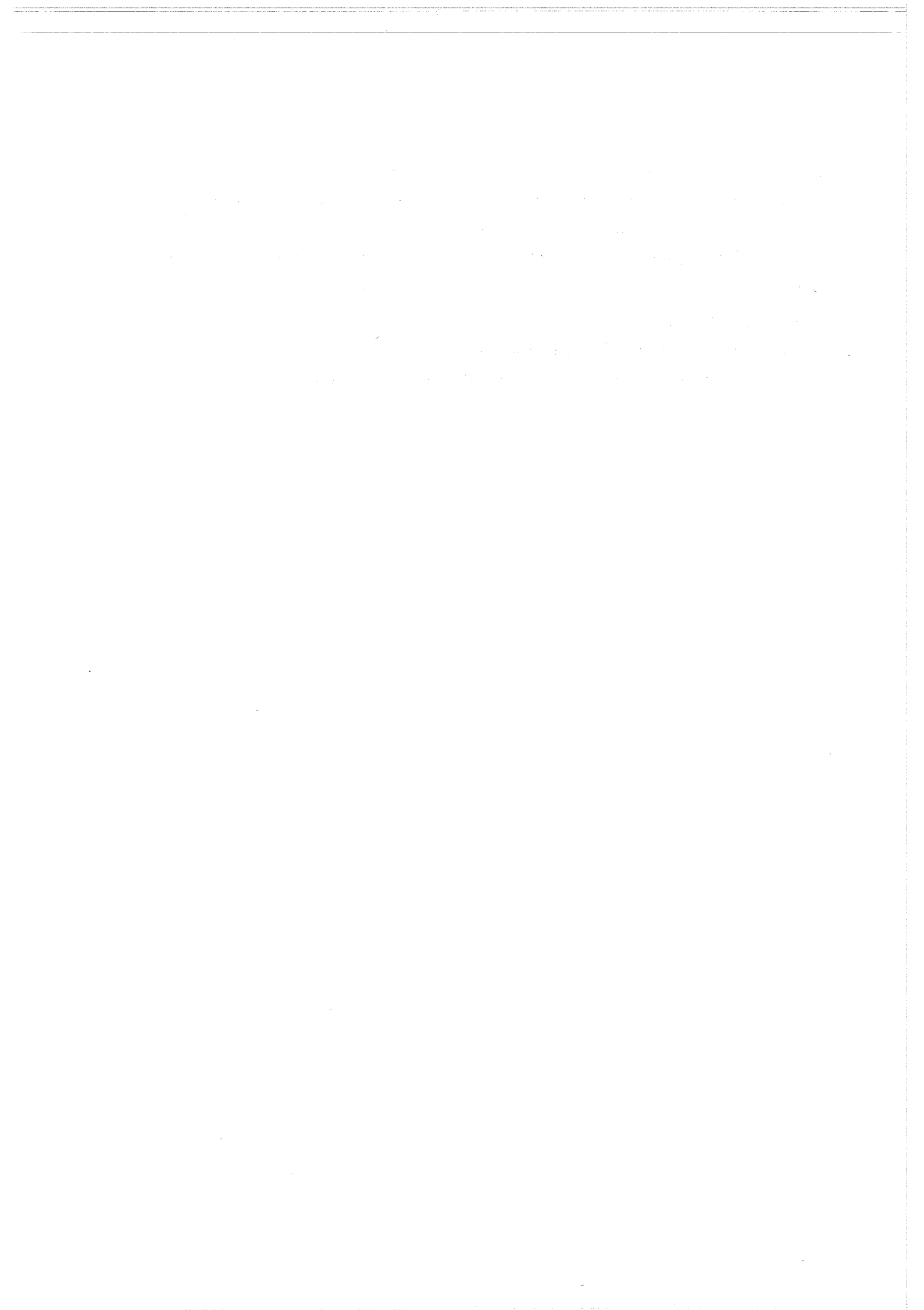
1) H. Böhm und M. Schirra

Zeitstand- und Kriechverhalten von Vanadin-Titan- und Vanadin-Titan-Niob-Legierungen. Z. Metallkde. 59 (1968), 715  
KFK-774

2) H. Böhm und M. Schirra

Einfluß der Kaltverformung und Wärmebehandlung auf das Zeitstand- und Kriechverhalten von Vanadin-Legierungen.  
Z. Metallkde. 60 (1969), 44

- 3) H. Böhm, H.U. Borgstedt, M. Rühle und P. Wincierz  
Entwicklung hochwarmfester und korrosionsbeständiger Legierungen  
auf Vanadinbasis für die Kerntechnik.  
Hochtemperaturwerkstoffe, Berichte vom 6. Plansee-Seminar (1968), S. 256
  
- 4) K. Ehrlich, H. Böhm  
Irradiation effects in Vanadium-Base Alloys  
aus: Radiation Damage in Reactor Materials, Vol II p. 349 ff.  
IAEA Wien 1969



## 114. Korrosionsversuche und Kühlmittelanalysen

### 1141.1 Korrosionsverhalten bei Na-Kühlung

#### 1141.11 Natriumkorrosionsverhalten austenitischer Stähle

(H.U. Borgstedt, G. Frees, IMF/IRB)

In dem Korrosionskreislauf "Cerberus" wurde das Natriumkorrosionsverhalten der hochwarmfesten austenitischen Stähle Werkstoff-Nr. 4961, 4981 und 4988 im Temperaturbereich 600-600°C in langsam strömendem Natrium mit Sauerstoffgehalten um 5 ppm in einer ersten Versuchsserie untersucht (1). Die Korrosionsraten stimmen unter Berücksichtigung der stark abweichenden Versuchsparameter mit den in der Literatur angegebenen befriedigend überein (Abb. 1). Daher kann für die hier untersuchten Stähle eine Korrosionsrate angenommen werden, die den an den US-Stählen AISI 304 und 316 gemessenen gleicht.

Das Ausscheidungsverhalten der drei Stähle Werkstoff-Nr. 4961, 4981 und 4988 ist unterschiedlich. Die Ausscheidungen scheinen die Wechselwirkung der Stähle mit dem Natrium zu beeinflussen. So deutet sich insbesondere beim Stahl Werkstoff-Nr. 4961, bei dem die größten Ausscheidungen auftreten, eine oberflächliche Korngrenzenschädigung an.

Zur Untersuchung der chemischen Korrosionseffekte wurde ein von der Westinghouse Advanced Reactor Division publiziertes Verfahren weiter entwickelt. Es ermöglicht eine schichtweise Analyse der Oberflächen der Proben und eine Feststellung der eingetretenen Konzentrationsverschiebungen (2).

Aus den gemessenen Korrosionsgeschwindigkeiten und einer Analyse der Daten des Versuchskreislaufs läßt sich die Übertragbarkeit der Versuchsergebnisse auf Reaktorkreisläufe folgern(3).

In einer zweiten Versuchsserie wird der Einfluß der Natriumkorrosion auf die Zeitstandfestigkeit der genannten austenitischen Stähle untersucht. Während die Korrosionsversuche dieser Serie abgeschlossen sind, stehen die Zeitstandversuche an den korrodierten und in Schutzgas ausgelagerten Proben noch aus.

Die Untersuchung des Einflusses einer Heißfallenreinigung auf die Natriumkorrosion austenitischer Stähle ist begonnen worden.

#### 1141.12 Natriumkorrosionsverhalten von Vanadinlegierungen

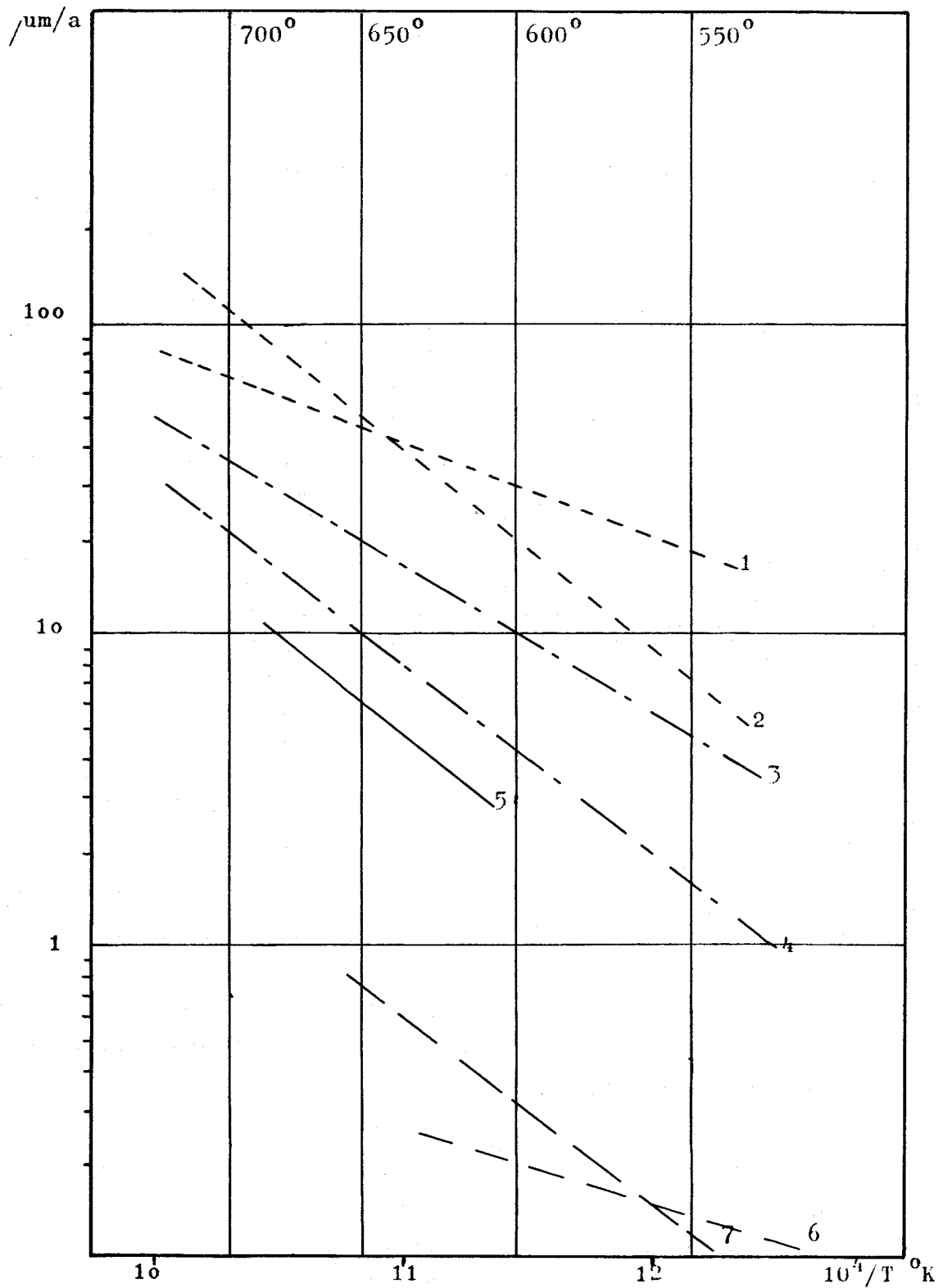
(H. U. Borgstedt, G. Frees)

Anschließend an die Ergebnisse des ersten Korrosions-Screenings an Legierungen des Systems Vanadin-Titan-Niob (4) konnten Effekte durch die Verunreinigung des Natriums mit Calcium (5) eliminiert werden. Die Identifizierung der Korrosionsschäden als innere Oxidation<sup>(6,7,8)</sup> lenkte die Entwicklung in die Richtung der Legierungen Vanadin-Chrom-Titan bzw. Vanadium-Chrom-Zirkon<sup>(9)</sup>, deren Korrosionsverhalten erheblich besser als das der chromfreien Legierungen ist<sup>(2)</sup>. Es kann gezeigt werden, daß die auftretenden Oxidschichten und die metallischen Randzonen an Chrom angereichert sind<sup>(10)</sup>. Die Wirkung des Chroms beruht auf einer Verminderung der Aufnahmefähigkeit der Legierung für Sauerstoff und einer Verminderung der Geschwindigkeit der äußeren Oxidation durch stabilere Oxidschichten.

Legierungen auf Vanadinbasis mit etwa 15% Chrom und weniger als 2% Titan werden in Natrium mit geringerem Sauerstoffgehalt nur bis zu einem gewissen Grade versprödet, da die Sauerstoffaufnahme auf etwa 3000-5000 ppm begrenzt ist. Auf jeden Fall gettern die Legierungen das Natrium sehr weitgehend, und von der Gesamtmenge des Sauerstoffs im Natrium hängen die Korrosionserscheinungen ab<sup>(2,11)</sup>.

Bei niedrigeren Sauerstoffgehalten im Natrium entsprechen die bei uns gemessenen Korrosionskonstanten für die parabolische Sauerstoffaufnahme recht gut den vom Argonne National Laboratory und von der Westinghouse Advanced Reactor Division mitgeteilten Ergebnissen (Abb. 2).

Nun haben Rechnungen zeigen können, daß in einem Reaktorkühlkreislauf, dessen Natrium anfangs 10 ppm Sauerstoff enthält, das für Brennelementhüllen und Brennelementkästen verwendete Material V-1%Ti-15%Cr nur etwa 400 ppm Sauerstoff aufnimmt; dann ist der vorhandene



**Abb. :** Korrosiver Abtrag von austenitischen Stählen durch Natrium unter verschiedenen Versuchsbedingungen:

25-50 ppm  $O_2/Na$  , 5 - 6 m/sec

10 ppm  $O_2/Na$  , 5 - 6 m/sec

5 ppm  $O_2/Na$  , 5 - 6 m/sec

5 ppm  $O_2/Na$  , 0,5 m/sec

Linie 1 General Electric

" 2 UKAEA

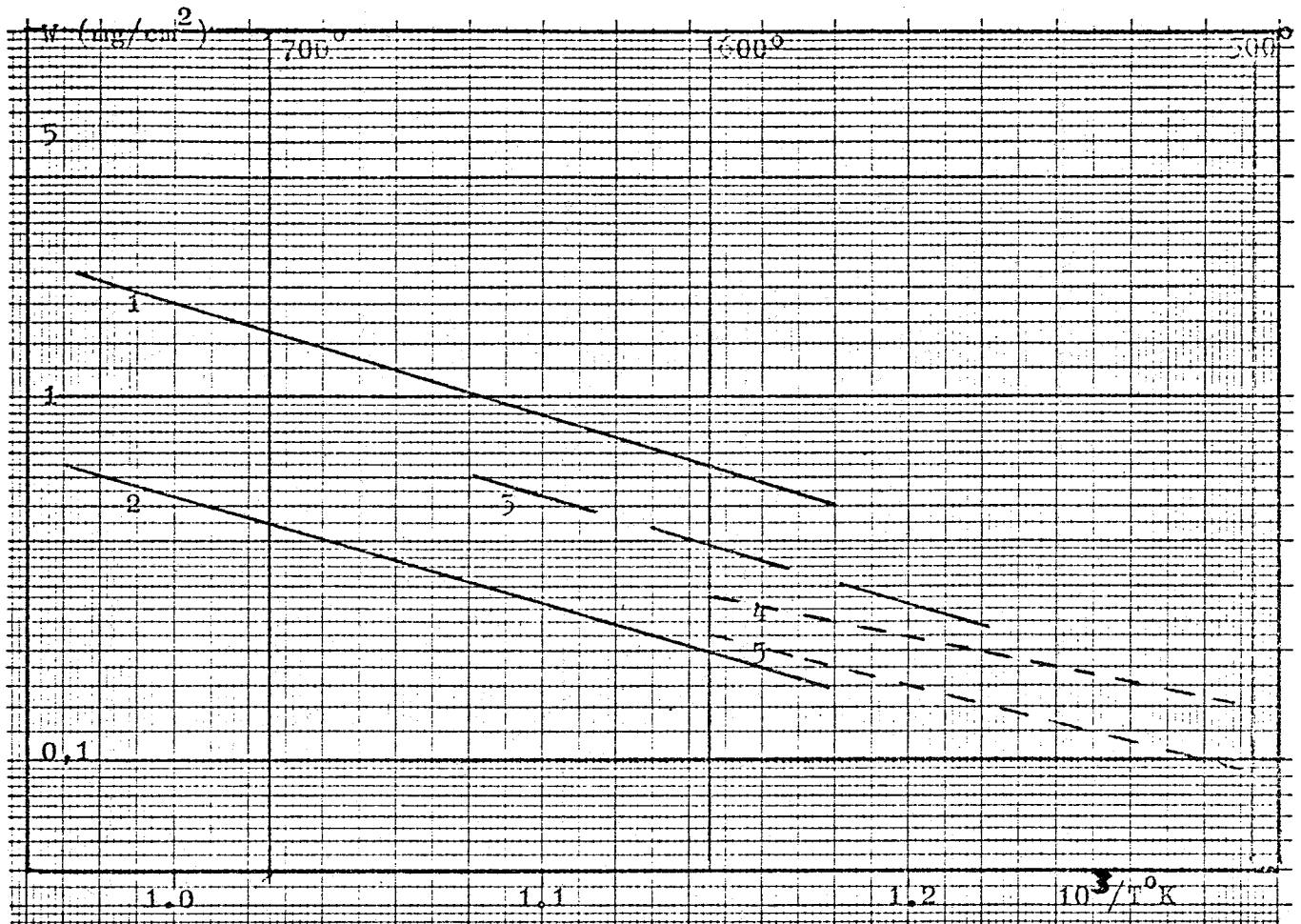
" 3 General Electric

" 4 UKAEA

" 5 UKAEA

" 6 I M F

" 7 UKAEA, aus 5 berechnet



**Abb. 2:** Gewichtszunahmen verschiedener Vanadinlegierungen in Abhängigkeit von der Versuchstemperatur nach 500 Stunden Expositionszeit in sehr reinem Natrium.

Linie 1: WARD	V-20%Ti
Linie 2: WARD	Vanstar 7 (V-9Cr-3Fe-1,3Zr-0,05C)
Linie 3: ANL	V-20%Ti
Linie 4: I M F	V-1%Ti-15%Cr
Linie 5: I M F	V-2%Zr-15%Cr



Sauerstoff verbraucht. Eine derartig geringe Zunahme der Sauerstoffkonzentration bedeutet keine merkliche Veränderung der mechanischen Eigenschaften des Werkstoffs, der daher in Reaktoren mit kleiner Sauerstoffleckage und ohne Quellen für Kohlenstoff- und Sauerstoffverunreinigungen einsetzbar ist.

#### 1141.2 Massetransport (H.U. Borgstedt, G. Frees)

Die in Massetransportkreisläufen begonnenen Versuche wurden unterbrochen, da sich ein Umbau der Anlagen als notwendig erwiesen hat. Die Testteile werden durch neue mit höherer Heizleistung ersetzt und jeweils ein Testteil in den kalten Anlageteilen eingefügt. Außerdem erhalten die drei Einheiten eine eigene, zentrale Natriumreinigungsanlage.

In statischen Versuchen wurde festgestellt, daß ein Kohlenstofftransport zwischen unstabilisierten und stabilisierten austenitischen Stählen eintritt. Er nimmt jedoch erst einen merklichen Umfang an, wenn die Temperatur an der Oberfläche des Kohlenstoff abgebenden Materials  $600^{\circ}\text{C}$  deutlich übertrifft (12).

#### 1141.3 Reinheit und Reinheitskontrolle des Natriums

(H.U. Borgstedt, G. Frees, G. Drechsler)

Die elektrochemische Sonde mit Thoriumoxid/Yttriumoxid-Festelektrolyt von der United Nuclear Corporation ist in einem Dauertest von 6500 h auf ihre Verwendbarkeit in flüssigem Natrium geprüft worden. Sie hat sich als reproduzierbar, zuverlässig und überraschend haltbar erwiesen. Nach einer Kalibrierung der Sonde erschließt sie die Möglichkeit zur Messung von Sauerstoffgehalten, die sich mit anderen Techniken nicht mehr exakt erfassen lassen. Zur Ausnützung der optimalen Empfindlichkeit empfiehlt sich der Einsatz vor allem im Konzentrationsbereich des Sauerstoffs von 0,1 bis 10 ppm.

Mit Hilfe der Sonde konnte die Wirkung einer Heißfalle untersucht werden. Danach erreicht die Reinheit im Kreislauf Werte um 0,1 ppm Sauerstoff.

Zur chemischen Bestimmung des Sauerstoffs nach dem Destillationsverfahren ist ein Destillationsgefäß aus Glas gebaut und erprobt worden. Eine Vorrichtung zur Entnahme von Analysenproben aus dem Natriumkreislauf ist fertiggestellt.

Das Verfahren kann leicht abgewandelt werden, um auch die Bestimmung von Kohlenstoff und Schwermetallen im Natrium zu ermöglichen.

#### 1141.4 Untersuchungen des Verschleißverhaltens von Materialien in Natrium (E. Wild, IRB)

---

Das Ziel dieser Untersuchungen ist die Bestimmung des Verschleißverhaltens von Lagern und aufeinander gleitenden Bauteilen. Dieses wird wesentlich durch die Verschleißigenschaften der zum Einsatz kommenden Werkstoffe bestimmt. Da im Betriebsfall mit der Ausbildung eines hydrodynamischen Schmierfilms nur in Sonderfällen gerechnet werden kann, sind die interessierenden Versuche für Trockenreibung und Grenzschmierfall durchzuführen.

In etwa 2000 Betriebsstunden wurden Untersuchungen zur Auswahl geeigneter Materialpaarungen für oszillierende Bewegungsarten durchgeführt (13). Die Auswahl der Werkstoffe wurde in enger Abstimmung mit dem Konsortium Siemens/Interatom durchgeführt.

Literatur zu 1141

- (1) H.U. Borgstedt, G. Frees, G. Drechsler  
Natriumkorrosionsversuche an Brennelementhüllstählen für einen  
natriumgekühlten Schnellen Brutreaktor  
KFK 991, EUR 4300d (1969)
- (2) H.U. Borgstedt, G. Frees  
The Oxidation of Metals and Alloys for Cladding of Fast Reactor  
Fuel Elements by Oxygen Containing Sodium.  
Proc. of the 4<sup>th</sup> Int.Conf. on Metallic Corrosion, im Druck
- (3) H.U. Borgstedt, G. Frees, G. Drechsler  
Überlegungen zum Einfluß des "Downstream"-Effekts auf die Ergeb-  
nisse von Natriumkorrosionsversuchen und deren Nutzbarkeit für  
die Reaktorauslegung.  
KFK 1061 (1969)
- (4) H. Böhm, H.U. Borgstedt, M. Rühle, P. Wincierz  
Entwicklung hochwarmfester und korrosionsbeständiger Legierungen  
auf Vanadinbasis für die Kerntechnik  
High-Temp. Materials,,6. Plansee-Seminar 1968, p. 256-275
- (5) Helga Schneider, H.U. Borgstedt, G. Drechsler, G. Frees  
Der Einfluß des Calciumgehaltes im Natrium auf die Korrosion von  
Vanadin und der Legierungen V-10 Gew.-% Ti.  
J. Nucl. Mat. 25 (1968) 347-49

- (6) H.U. Borgstedt, G. Frees  
The oxidation of vanadium-base alloys by liquid sodium containing dissolved oxides in temperatures from 500° to 600°C  
Corrosion [NACE] 24 (1968) 209-213
- (7) H.U. Borgstedt, G. Frees  
Untersuchung von Korrosionseffekten durch Natrium an Metallen der vierten und fünften Nebengruppe  
Werkstoffe u. Korrosion 19 (1968) 862-869
- (8) H.U. Borgstedt, G. Frees  
Innere Oxidation als Korrosionserscheinung durch flüssiges Natrium mit sehr geringen Oxidgehalten  
KFK 879 EUR 4159d (1968)
- (9) H. Böhm, H.U. Borgstedt  
Development of high-strength vanadium-base alloys with improved corrosion resistance in cold-trapped liquid sodium  
ANL-Report 7520 (1969) p. 177-181
- (10) H.U. Borgstedt, B. Kegel  
Untersuchung der Korrosionseffekte von flüssigem Natrium an Legierungen V-Ti-Cr und V-Zr-Cr mit der Mikrosonde  
Corrosion Science 10 (1970) 51-54
- (11) H.U. Borgstedt  
Die Reaktionen von Vanadin-Zirkon-Chrom- und Vanadin-Titan-Chrom-Legierungen in flüssigem Natrium mit geringen Sauerstoffaktivitäten  
Corrosion Science, im Druck
- (12) H.U. Borgstedt  
Beobachtung eines Transports von Kohlenstoff durch flüssiges Natrium von unstabilisiertem zu stabilisiertem austenitischem Edelstahl  
Corrosion Science 8 (1968) 405-412
- (13) E. Wild, K. Mack, H. Hoffmann: Das Verschleißverhalten von Stählen und Legierungen unter flüssigem Natrium  
KFK-973, April 1969

1142 Korrosion bei Dampfkühlung ( S. Leistikow, IMF)

1. Semidynamische Untersuchungen der isothermen Heißdampf-Korrosion bei 620°C, 1 atm, 1-6 cm/sec unter Variation des metallischen Oberflächenzustandes und des Sauerstoffgehaltes in Dampf.

Das Ziel dieser Korrosionsuntersuchungen an verschiedenen Heißdampf-Legierungen war ein Studium der beiden Einflußgrößen Oberflächenzustand und Sauerstoffgehalt des Dampfes, die ursächlich durch Hüllrohrherstellung und Dampfstrahlolyse auftreten und bei Reaktor Anwendung des Materials auf die Korrosionsbeständigkeit Einfluß nehmen.

Für diese Experimente wurden 1 mm starke Blechproben der Legierungen Werkstoff Nr. 4301, Incoloy Alloy 800, Hastelloy X, Inconel Alloy 625 und 718 im geglähten Gefügestand, jedoch in Abhängigkeit von der Beizung, Elektropolitur und Schmirgeln der Oberflächen, in Heißdampf von 620°C, 1 atm und verschiedenen Sauerstoffgehalten langfristig eingesetzt. Die im wesentlichen durch gravimetrische, metallographische und chemisch-analytische Methoden erzielten Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen.

#### 1.1 Einfluß des Oberflächenzustandes auf die Heißdampf-Korrosion

Die Resultate der gravimetrischen Untersuchungen über 5000 Versuchsstunden zeigen für die Proben im gebeizten Zustand eine recht unterschiedliche Korrosionsbeständigkeit. In Abhängigkeit von der Legierungszusammensetzung wurde für die austenitischen Cr-Ni-Stähle eine geringere, für die höher nickellegierten Stähle eine mittlere und für die Nickelbasislegierungen mit matrixhärtenden Mo- und Nb-Zusätzen eine hohe Korrosionsbeständigkeit beobachtet. (Abb. 3)

Im Gegensatz dazu zeigen alle geschmirlen Proben ein ähnlich gutes Korrosionsverhalten. Es zeichnet sich ab, daß das Ausmaß des korrosiven Angriffs weniger durch die Legierungsbasis als durch die in etwa gleichen Anteilen in den Legierungen vorhandenen relativ unedlen Legierungselemente Cr, Mn, Si, Al, Ti, deren selektive Oxydation durch die Kaltverformung stark begünstigt wird. Demgemäß kommt es in der Oxidschicht zu einer Anreicherung dieser Elemente, in der Diffusionsrandschicht zu ihrer Abreicherung. Von dieser durch Kaltverformung aktivierten, schnellen, selektiven Oxidbildung protektiven Charakters profitieren die Nickelbasislegierungen kaum, sondern vor allem die austenitischen Cr-Ni-Stähle in einem zum Nickelgehalt umgekehrten Verhältnis (1). In Durchführung befindliche Experimente mit der Legierung Incoloy 800 lassen erwarten, daß ein quantitativer Zusammenhang zwischen der korrodierten Metallmenge und dem Grad der Kaltverformung aufgezeigt werden kann.

In statischen Autklavenversuchen über 1000 Stunden bei 600°C und 70 atm wurden die obigen Befunde als weitgehend druckunabhängig quantitativ bestätigt.

#### 1.2 Einfluß des Sauerstoffgehaltes im Dampf auf die Heißdampf-Korrosion

Zusammensetzung und Aktivität der Probenoberfläche beeinflussen im wesentlichen alle Veränderungen des Reaktionsablaufes, die neben der Heißdampf-Korrosion - durch meßbare Sauerstoffgehalte im Dampf hervorgerufen werden können.

Sauerstoffgehalte im Dampf von etwa 6 ppm bewirken vor allem die Aufoxydation Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-reicher, oxidischer Deckschichten und den Abtransport eines dampflöslichen CrO<sub>3</sub>-Hydrates in das Dampfkondensat. Von diesem Angriff unter Oxidverlust an das Heißdampf-System sind weniger die Deckschichten der gebeizten, leicht chromverarmten Oberflächen der Heißdampf-Legierungen als vielmehr diese nach einer reinigenden und aktivierenden Kaltverformung durch Schmirlen betroffen. Denn, wie bereits gezeigt wurde, führt ge-

rade diese Oberflächenvorbehandlung zu einer weitgehend selektiven  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ -Bildung in der Deckschicht (2). Der Einfluß dieses Oxidverlustes auf die (stark reduzierte) Korrosionsgeschwindigkeit ist wegen der schnellen Zudiffusion von Chrom aus der aktivierten Oberfläche in die Deckschicht und wegen der dadurch sichergestellten Aufrechterhaltung der Konzentration selektiver Oxydationsprodukte unerheblich.

Modellversuche an gesinterten  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ -Pellets in sauerstoffhaltigem Dampf unter quantitativer Bestimmung des Cr(VI)-Gehaltes im Dampfcondensat bestätigen die Richtigkeit des erwähnten Transportmechanismus.

In sauerstoffhaltigem Dampf wird die Deckschichtbildung auf elektroplierten Oberflächen von Legierungen mit einem höheren Nickelgehalt unter erheblicher Verlängerung der Inkubationsperiode oder überhaupt auf lange Versuchszeiten inhibiert. Die Korrosion der gebeizten, chromverarmten Oberflächen schreitet anfänglich schnell voran, sie wird jedoch im Fall der austenitischen Cr-Ni-Stähle durch Afoxydation des  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  unter Bildung einer äußeren, haftfesten  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ -Deckschicht auf längere Sicht verlangsamt.

In Heißdampf reduzierten Sauerstoffgehaltes  $\leq 1$  ppm tritt unter Gewichtszunahme an allen untersuchten Legierungen die Bildung einer haftfesten Oxidschicht auf, die im Fall der gebeizten und elektroplierten Materialien unterschiedlich dick, im Fall der geschmigelten ähnlichdünn und chromreich ist und in noch weitgehendem Maße den protektiven Charakter der Oxidbedeckung einer kaltverformten Oberfläche zeigt.

In Durchführung befindliche Untersuchungen an elektroplierten Incoloy-800-Oberflächen geben Hinweise auf einen hinsichtlich der Inkubationsperiode und der Langzeitkorrosionsgeschwindigkeit vergleichsweise beschleunigten Reaktionsablauf und auf die Ausbildung einer Oxidschicht von verminderter Haftfestigkeit.

Chromreiche oxidische Deckschichten auf geschmirgelten Oberflächen werden durch Aufoxydation und  $\text{CrO}_3$ -Transport abgetragen, sobald man sie statt in sauerstoffarmem in sauerstoffreichem Dampf der Korrosion unterwirft.

Der Aufbau bzw. Abtrag der oxidischen Deckschicht auf geschmirgelte Proben kann ein Indikator für den Sauerstoffgehalt des Dampfes sein.

## 2. Untersuchungen der isothermen Heißdampf-Korrosion und des Langzeitverhaltens der Abstützstellen von Incoloy 800-6-Rippenrohren.

Nach isothermer Heißdampf-Korrosion über 1000 Betriebsstunden bei  $505^\circ\text{C}$  und 130 atm in Brennelementkästen verschiedener Schlüsselweite wurden zahlreiche Incoloy-800-Rohre eines 37-Stabbündels einer Nachuntersuchung unterzogen (3).

Die materialkundlichen Untersuchungen ergaben nach 1000 Stunden Versuchszeit einen Verlust des Rohrmaterials von im Mittel 1 - 1,5  $\mu$  der metallischen Wandstärke durch Oxidschichtbildung (Tab. 1) und eine lokale, auf die Rippen-Abstützstellen begrenzte, gleichmäßige Aufrauhung der Oberfläche durch Flächenkontakt und Querreibung der Stäbe im Bündel. Diese Aufrauhung trat in der Form von zusätzlichen, über die normale Rauigkeit der Rohroberflächen hinausgehende Erhebung (Auftrag) und Vertiefungen (Abtrag) von jeweils maximal 8  $\mu$  auf (Tab. 2).

## 3. Spezielle Aussagen über das Heißdampf-Korrosionsverhalten der favorisierten Legierung Incoloy 800.

Die umfangreichen Untersuchungen des Korrosionsverhaltens verschiedener Heißdampf-Legierungen (4) ergaben für die Legierung Incoloy 800 eine gute Beständigkeit sowohl gegenüber dem allgemeinen und lokalen Korrosionsangriff oxydierender Medien als auch gegenüber der Heißdampf-Korrosion unter Wärmeübergang und Bestrahlung (5).



Vom Mechanismus ist der Einfluß der Parameter Kaltverformung des Materials, Reibung im Brennelement-Bündel und Sauerstoffgehalt im Dampf noch wenig untersucht und kaum verstanden. Nach unseren ersten Untersuchungen können nunmehr folgende, zusammenfassende Feststellungen getroffen werden:

- Kaltverformung durch Schmirgeln erhöht die Korrosionsbeständigkeit bei 600-620°C und vermindert den Metallverlust durch isotherme Heißdampf-Korrosion um 90% der an lösungsgeglühtem, elektropoliertem Material gemessenen Werte.
- Sauerstoff im Dampf verlangsamt die isotherme Korrosion elektropolierter Oberflächen, verursacht jedoch den Verlust dampflöslichen CrO<sub>3</sub>-Hydrates aus den Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-reichen Oberflächen korrodierter, geschmirgelter Proben.
- Reibung von Hüllrohren im Stabbündel führt zwar zu Oxidabtrag, jedoch auch unter erschwerten Bedingungen nicht zu nennenswerten Wandstärke- resp. Rippenverlusten.

Zum Bau des HKW-Loops vgl. 1272.

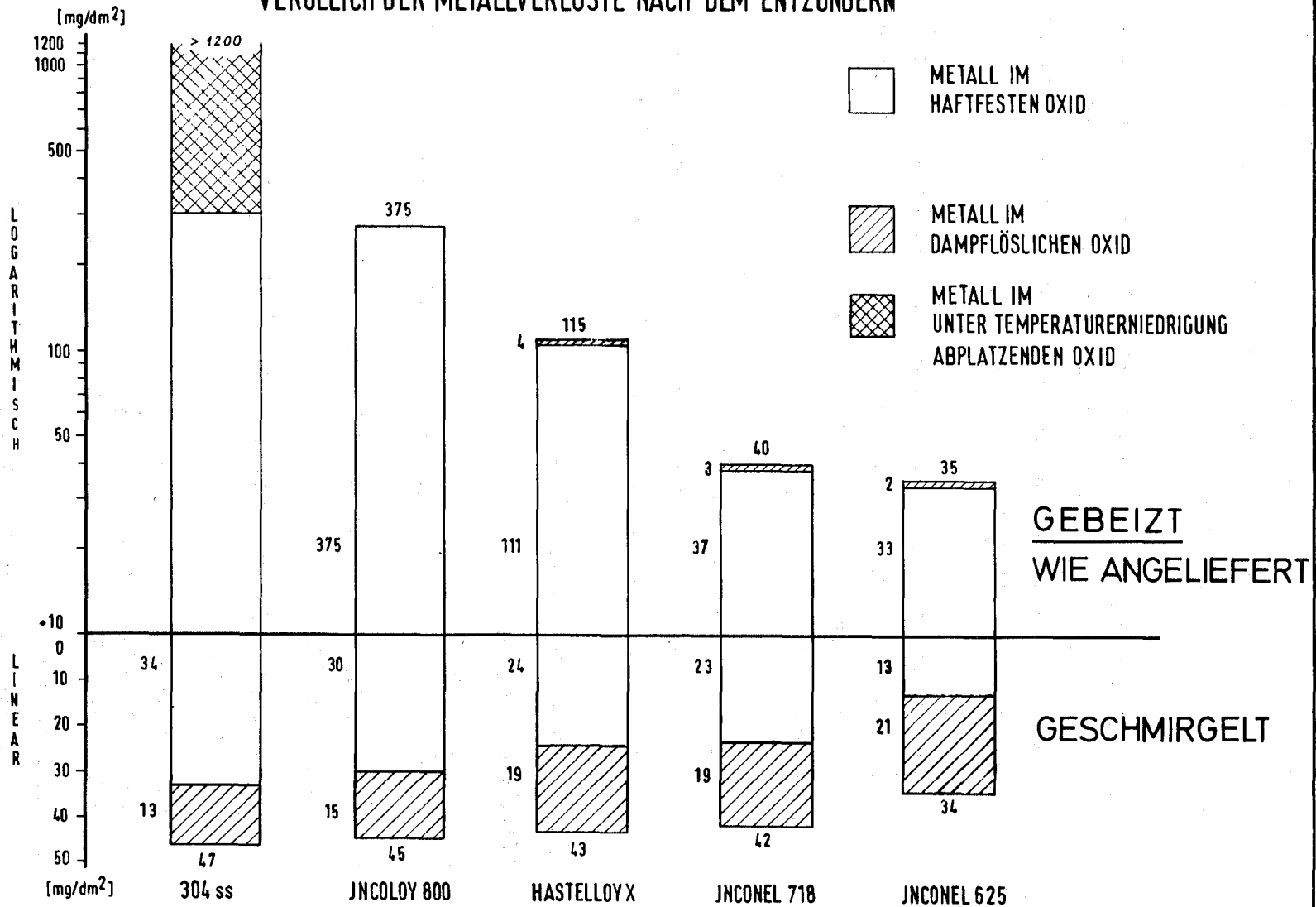
Veröffentl. zu 1142:

- 1) S. Leistikow  
Proc. 4. Intern.Congr.Met.Corr., Amsterdam 1969 - im Druck
- 2) S. Leistikow, E. Pott u. H.v.Berg  
KFK-1054 (1969)
- 3) H. Hoffmann, G. Hofmann, S. Leistikow  
KFK-1028 (1969)
- 4) S. Leistikow  
KFK-700, IX-1 bis IX-43 (1968)  
KFK-985, 113-133 (1969)
- 5) S. Leistikow  
Werkstoffe und Korrosion 19, 938-943 (1968)

Abb. 3

**ISOTHERME HEISSDAMPF-KORROSION AUSTENITISCHER Cr-Ni-STÄHLE UND NICKELBASISLEGIERUNGEN  
IM GEBEIZTEN UND GESCHMIRGELTEN OBERFLÄCHENZUSTAND BEI 620°C, 1atm, 2-4 cm/sec, 6-8 ppm O<sub>2</sub>, WÄHREND 5000 Std**

**VERGLEICH DER METALLVERLUSTE NACH DEM ENTZUNDERN**



1. Metallverlust gemäss rein gravimetrischer Bestimmung der Gewichtsänderung

Einsatzdauer (Std.)	Stabzahl (Stck.)	Gewichtszunahme (mg/dm <sup>2</sup> )	ber. Metallverlust (mg/dm <sup>2</sup> ) (μ)	
500	38	39,6	105	1,34
1000	20	44,6	118	1,50

2. Metallverlust gemäss gravimetrischer Bestimmung nach Entzunderung von Rohrabschnitten

Einsatzdauer (Std.)	Probezahl (Stck.)	Entzund.Oxid (mg/dm <sup>2</sup> )	ber. Metallverlust (mg/dm <sup>2</sup> ) (μ)	
500	10	91,2	66,4	0,85
500	5 <sup>*)</sup>	85,3	62,0	0,79
1000	4	133,9	97,5	1,24

3. Vergleichswerte gemäss gravimetrischer Bestimmung nach Entzunderung von Rohrabschnitten und Blechproben

Ursprung	Temperatur (°C)	Versuchszeit (Std.)	Metallverlust (mg/dm <sup>2</sup> ) (μ)	
Vorversuche GfK	500	500	70,4	0,9
	550	1000	82,8	1,0
General Electric (GEAP-4760) [9]	566	1000	108,0	1,4

<sup>\*)</sup> Stäbe im Anlieferungszustand geblüht

Tab. 1: Die Heissdampf-Korrosion der Incoloy-800-Stäbe nach 500 und 1000 Versuchsstunden

Stab. Nr.	Probe Nr.	Versuchszeit (Std.)	Lauf Nr.	lokale Maximalwerte Abtrag / Auftrag ( $\mu$ )	
6	1	500	1	4	5,2
	2	500	1	3,5	1,3
	3	500	1	4,2	0,8
14	1	500	1	2,5	-
25	7A	1000	1+2	3	3
	7B	1000	1+2	2,5	3
	8	1000	1+2	5,8	4,5
26	9	1000	1+2	5,5	3,5
	10	1000	1+2	3,2	5
39*	1	500	2	4,5	8,8
40*	2	500	2	3,5	1
	3	500	2	6	2
45	6A	500	2	8	11,5
	6B	500	2	7,5	2
	6C	500	2	4,5	2,5
	6D	500	2	6	3
	6E	500	2	7,5	0,5
46	4	500	2	8	-
	5A	500	2	2,6	7
	5B	500	2	5	4,8
	5C	500	2	4,7	1
	5D	500	2	4	1

\* Stäbe im Anlieferungszustand gegläht

Tab. 2: Zusammenfassende Darstellung der Ergebnisse der profilometrischen Messungen

1143. VerträglichkeitZur Verträglichkeit von Brennstoffen mit Hüllwerkstoffen  
(Götzmann, IMF)

Im Berichtszeitraum wurden an den Brennstoffen  $UO_2$ , UN und UC Verträglichkeitsuntersuchungen mit Metallen durchgeführt, die als mögliche Hüllmaterialien des Schnellen Brütters in Betracht gezogen wurden und z.T. auch noch gezogen werden.

1. Verträglichkeitsuntersuchungen mit  $UO_2$  und UN.

Die Untersuchungen mit  $UO_2$  und UN wurden vorläufig abgeschlossen. Die metallischen Partner dieser Verträglichkeitsuntersuchungen waren ein titanstabilisierter austenitischer Stahl (X10 Cr Ni Ti 18/9), Incoloy 800, Inconel 625, Inconel 718, Reinvanadin und die Vanadinlegierungen VTi20, VTi 10 und VTi5Nb20. Die Glühungen fanden im Temperaturbereich von  $750^\circ C$  bis  $1500^\circ C$  statt und erstreckten sich bis max. 1000 Stunden. Die Versuche wurden in sogenannten offenen Systemen wie auch in geschlossenen Systemen durchgeführt. Die offenen Systeme, bei denen die Reaktionszone im Kontakt mit der Vakuumatmosphäre des Ofens stand, wurden gewählt, um Einflüsse von erhöhten Partialdrücken aufgrund von nicht gewollten Überstöchiometrien oder Verunreinigungen auf den Reaktionsablauf auszuschließen. Um jedoch den Gegebenheiten in den wirklichen Reaktor-Brennelementen Rechnung zu tragen, wurden auch Versuche mit geschlossenen Systemen durchgeführt, bei denen die Versuchsproben in Quarz- oder Molybdänkapseln eingeschweißt waren.

	Reaktionszone i. Phasengrenze	Ausscheidungen in Hülle			Urandiffus. in Hülle	Oxydation d. Brennst.	Verträglich bis
		im Korn	in Kgrenzen	UO <sub>2</sub>			
V	-	-	-	1300	1200	(750) 1000	1100
VTi5Nb2o	1100	900	1000	1000	900	(750) 1200	850
VTi1o	1100	760	1000	900	(800) 900	(750) 1200	800
VTi2o	1100	760	1000		(760) 800	(750)	750

114-17

Tab. 3 Untere Temperaturgrenzen für Wechselwirkungen zwischen Vanadinwerkstoffen und UN. In Klammern gesetzte Werte gelten für geringe Reaktionen.

	Reaktions- zone in Phasengr.	Ausscheidungen in Hülle			Urandif- fusion in Hülle	Verträglich bis
		im Korn	in Kgr.	UO <sub>2</sub>		
V	-	-	-	-	-	1500
VTi5Nb2o	-	(800)	-	-	-	1500
VTi1o	(1200)	(760)	(1000)	-	(1300)	1300
VTi2o	(1200)	(760)	(1000)	1500	800	750

Tab. 4 Untere Temperaturgrenzen für Wechselwirkungen von Vanadinwerkstoffen mit UO<sub>2</sub>.

	Reaktionszone in Phasengr.		Ausscheidungen in Hülle			UO <sub>2</sub>	Hüllmat. Diff. im Brennstoff	Oxyd.d. Brennst.	Verträglich bis	
	o.S.	g.S.	im Korn	in Kgrenzen					o.S.	g.S.
	o.S.	g.S.	g.S. (Ti)	g.S. (Cr)	o.S. (UNi <sub>5</sub> )	g.S.	g.S.+o.S.	g.S.	o.S.	g.S.
V2A-Stahl	1250	1000	1000	-	1250	1000	1000	1100	1200	1200
Incoloy 800	1200	1000	760	760	1200	1000	1000	1100	1150	800
Inconel 718	1000	1000	900	-	1100	-	900	1100	950	1000
Inconel 625	900	900	900	-	1100	-	800	1100	850	1000

Tab. 5 Untere Temperaturgrenzen für Wechselwirkungen zwischen Eisen-Chrom-Nickel-Legierungen und UN.

o.S. = offenes System  
g.S. = geschlossenes System



	Reaktions- zone in Phasengr.	Ausscheidungen in Hülle		Hüllmat.Diff. im Brennstoff	Verträglich bis
		Korn	Korngrenzen		
	g.S.	g.S.	g.S.	g.S. + o.S.	o.S.
V2A-Stahl	-	1100	-	1300	1300
Incoloy 800	(800)	1100	800	1300	1300
Inconel 718	-	1000	-	1100 (800)	1300
Inconel 625	(800)	1000	-	1100	1300

Tab. 6 Untere Temperaturgrenzen für Wechselwirkungen zwischen Eisen-Chrom-Nickel-Legierungen und  $UO_2$ . In Klammern gesetzte Werte gelten für geringe Reaktionen.

o.S. = offenes System  
g.S. = geschlossenes System

Die Ergebnisse der Verträglichkeitsuntersuchungen mit  $\text{UO}_2$  und UN sind in den Tabellen 3 - 6 dargestellt. Die Auswertung erfolgt in der Hauptsache metallographisch und mit der Elektronenmikrosonde.

Die geschlossenen Systeme zeigten bei den tieferen Temperaturen ( $800^\circ\text{C}$ ) eine schlechtere Verträglichkeit als die offenen, da bei ihnen die Reaktionen mit den nichtmetallischen Komponenten (N, O) immer stärker waren. Bei den Nickellegierungen mit UN wirkte sich der entstehende Stickstoffpartialdruck bei den höheren Temperaturen ( $1000^\circ\text{C}$ ) auf die Stabilität der Systeme jedoch günstig aus, da die  $\text{UNi}_5$ -Reaktion eingeschränkt wurde.

#### Vanadinlegierungen/UN

Die für die Verträglichkeit kritischen Reaktionen bei den Vanadinwerkstoffen in Verbindung mit UN waren die Stickstoffdiffusion in das Hüllmaterial, die bei den Legierungen Titanausscheidungen hervorgerufen hat, und die Urandiffusion in die Hülle, die z.T.<sup>zu</sup> Uranoxidausscheidungen führte. Das Ausmaß der Reaktionen nahm mit steigendem Titangehalt zu. Bei VTi20 waren bei  $800^\circ\text{C}$  schon nach kurzer Zeit Reaktionseffekte erkennbar. Bei  $750^\circ\text{C}$  waren sie auch nach 1000 h nur gering, so daß sie für das Betriebsverhalten nicht als kritisch angesehen wurden. Bei Reinvanadin wurde eine Urandiffusion erst bei  $1200^\circ\text{C}$  beobachtet.

#### Vanadinlegierungen/ $\text{UO}_2$

Mit  $\text{UO}_2$  waren die Vanadinwerkstoffe besser verträglich als mit UN. Der Titangehalt wirkt sich aber auch hier nachteilig auf das Verträglichkeitsverhalten aus. Bei

der Legierung VTi2o zeigten sich mit  $UO_2$  fast die gleichen Reaktionseffekte wie mit UN, auch bei der relativ niederen Temperatur von  $800\text{ }^\circ\text{C}$ . Reinvanadin und die Legierung VTi5Nb2o waren jedoch selbst bei  $1500\text{ }^\circ\text{C}$  (offenes System) mit  $UO_2$  noch gut verträglich.

#### Eisen-Chrom-Nickel-Legierungen/UN

Bei den Stählen und den Nickellegierungen war im offenen System die  $UNi_5$ -Bildung die für die Verträglichkeit kritische Reaktion. Je höher der Nickelgehalt der Legierung war, desto tiefer war die Temperatur, bei der die  $UNi_5$ -Reaktion auftrat. Beim Stahl vom Typ 18/8 wurde erst bei  $1250\text{ }^\circ\text{C}$  die  $UNi_5$ -Phase entdeckt; beim Inconel 625 schon bei  $900\text{ }^\circ\text{C}$ . Reaktionen mit Stickstoff traten ab  $900\text{ }^\circ\text{C}$  als titanreiche Ausscheidungen (TiN) im Hüllmaterial und z.T. als Reaktionszone in der Phasengrenze auf. Bei den geschlossenen Systemen war diese Reaktion deutlich stärker als bei den offenen. Die Tiefe der Ausscheidungszone war umso größer, je höher der Eisengehalt der Legierung war. Unter  $900\text{ }^\circ\text{C}$  ( $760\text{ }^\circ$  und  $800\text{ }^\circ\text{C}$ ) waren bei Incoloy 800 zusätzlich noch chromhaltige Ausscheidungen in den Korngrenzen der Hülle zu sehen. Weiter wurde eine Hüllmaterialdiffusion in den Brennstoff entlang den Oberflächen der Brennstoffkörner beobachtet, die jedoch nicht als besonders kritisch angesehen wurde.

#### Fe-Cr-Ni-Legierungen/ $UO_2$

Ebenso wie bei den Vanadinlegierungen war auch bei den Eisen-Nickel-Chrom-Legierungen die Verträglichkeit mit  $UO_2$  besser als mit UN. Das zeigte sich besonders deutlich bei den Versuchen in den offenen Systemen, wo die Materialien sich bis  $1300\text{ }^\circ\text{C}$  als voll verträglich erwiesen haben.

Eine Reaktion zu  $\text{UNi}_5$  trat nicht auf. Bei den geschlossenen Systemen kam es z.T. zu recht erheblichen Ausscheidungen im Hüllmaterial. Über  $800^\circ\text{C}$  waren es titanhaltige Ausscheidungen und z.T. auch Reaktionszonen in der Phasengrenze. Bis  $800^\circ\text{C}$  wurden bei Incoloy 800 auch chromreiche Ausscheidungen entlang den Korngrenzen der Hülle und eine Reaktionszone in der Phasengrenze beobachtet. Diese Reaktionen dürften auf eine leichte Überstöchiometrie des Brennstoffs zurückzuführen sein.

Über die Ergebnisse dieser Untersuchungen wurde in den KFK 1081 und KFK 1086 berichtet.

## 2. Verträglichkeitsuntersuchungen mit UC (Hofmann, Götzmann, IMF)

Die Verträglichkeitsuntersuchungen mit UC sind noch im Gange. Bisher wurden an Reinvanadin und den Vanadinlegierungen  $\text{VTi}_{10}$ ,  $\text{VTi}_{20}$ ,  $\text{VTi}_{2\text{Cr}15}$ ,  $\text{VTi}_{5\text{Cr}2}$ ,  $\text{VTi}_{5\text{Nb}20}$ ,  $\text{VTi}_{3\text{Nb}10\text{Cr}5}$ ,  $\text{VTi}_{3\text{Si}1}$  und  $\text{VZr}_{2\text{Cr}15}$  sowie an den austenitischen Stählen vom Typ 4961, 4981, 4988, 12R72HV, 4878, 4301 und Incoloy 800 und den Nickellegierungen Inconel 625 und Inconel 718 Versuche gefahren. Als Brennstoff wurde hauptsächlich leicht überstöchiometrisches UC verwendet ( 4,85 Gew.-% C) z.T. aber auch unterstöchiometrisches mit etwa 10 Vol.-% freiem Uran und überstöchiometrisches UC mit 10 Vol.-%  $\text{UC}_2$  sowie nichtstöchiometrisches UC mit Stabilisatoren (Cr, V) und mit Stickstoff modifiziertes UC. Die Versuchstemperaturen lagen bei  $800$  und  $900^\circ\text{C}$ . Die Versuchszeiten erstreckten sich bis max. 500 Stunden. Es wurde kein Na-Bonding verwendet.

Eine vorläufige Auswertung ergab keine großen Unterschiede in der Verträglichkeit von stöchiometrischem und überstöchiometrischem UC mit den Eisen-Chrom-Nickel-Legierungen.

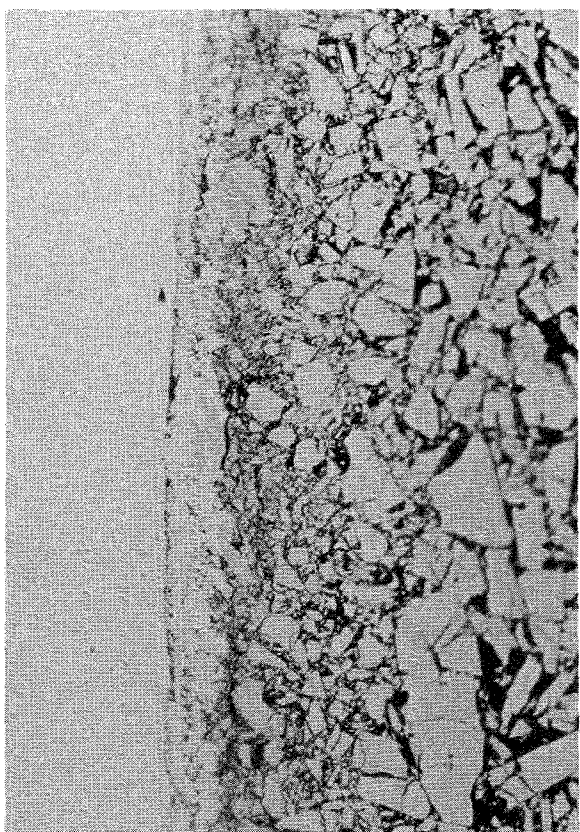


Abb. 4                      × 500



Abb. 5                      × 250

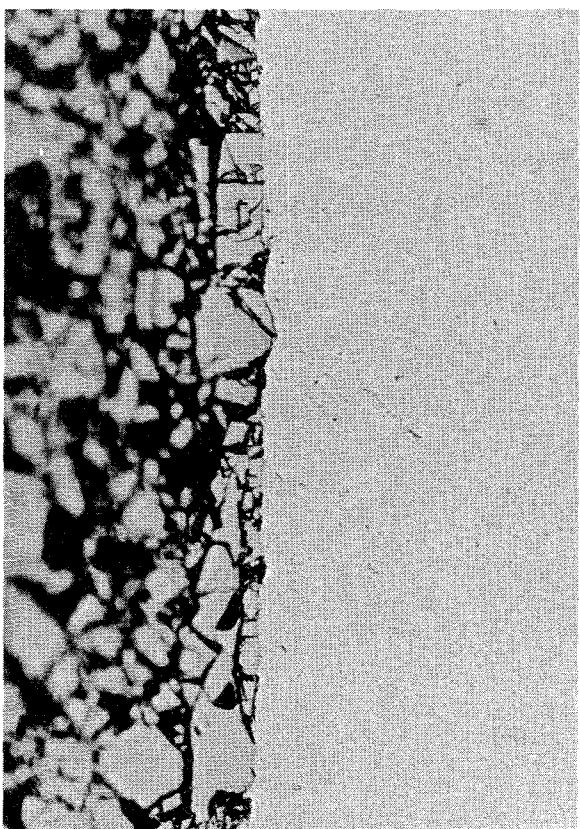


Abb. 6                      × 500

Abb. 1: Incoloy 800/UC  
800 °C/500 h

Abb. 2: Titanstab. 18/8-Stahl/UC  
900 °C/144 h

Abb. 3: VTi5Cr2/UC  
900 °C/500 h

Unterstöchiometrisches UC verhält sich deutlich schlechter. Stähle mit weniger als 20 Gew.-% Ni zeigen mit stöchiometrischem und überstöchiometrischem UC bis 900°C nur Reaktionen, die zu Ausscheidungen in der Hülle führen (900°C/144 Stunden: 300 m) (Abb. 5). Über 900°C wird die Verträglichkeit sehr schlecht, da Schmelzreaktionen auftreten. Die Verträglichkeit der höher nickelhaltigen Legierungen wie Incoloy 800, Inconel 625 und Inconel 718 war schon bei 800°C schlecht (Abb. 4). Zwischen den Vanadinlegierungen und UC treten bei 800°C geringe Ausscheidungsreaktionen auf. Die Zunahme des Reaktionsumfangs mit der Temperatur ist bei ihnen jedoch geringer als bei den Stählen. Über 900°C sind sie mit UC wesentlich stabiler als die Stähle (Abb. 6).

### 3. Verträglichkeitsuntersuchungen, Reaktionsprodukte

(W. Schäfer, IMF)

Die Verträglichkeit von stöchiometrischem Urankarbid (UC) mit den austenitischen Stählen 1.4988, 1.4981, 12R72HV und 20/25 CrNi wurde untersucht. Es wurde die Menge der Reaktionsprodukte (meist Chromkarbid) in Abhängigkeit von der Reaktions-temperatur und -zeit gemessen. Dadurch kann durch Extrapolation abgeschätzt werden, welche Mengen an Reaktionsprodukten unter Reaktorbedingungen im Hüllwerkstoff zu erwarten sind. Die Auswirkung der Reaktionsprodukte auf das Zeitstandverhalten wird anschließend untersucht.

4. Verträglichkeitsuntersuchungen mit simulierten Spaltprodukten an Hüllmaterialien mit und ohne Kernbrennstoff  
(Hofmann, Wedemeyer, IMF)

Insbesondere für Brennelemente von schnellen Brutreaktoren, bei denen ein Abbrand von 10 % (100 000 MWd/to) angestrebt wird, spielen die chemischen Wechselwirkungen der Spaltprodukte mit der Hülle eine wesentliche Rolle, da bereits geringe Konzentrationen bestimmter Spaltprodukte die Systemverträglichkeit in Frage stellen können. Hinzu kommt, daß bei einem Brennelement unter Reaktorbedingungen durch den Temperaturgradienten eine Spaltprodukt-Wanderung der flüchtigen Substanzen zur Phasengrenze Kernbrennstoff-Hülle stattfindet. Dies führt zu hohen lokalen Spaltproduktkonzentrationen. Es ist daher denkbar, daß bei Brennelementen für Brutreaktoren diese Einflüsse einen lebensdauerbegrenzenden Faktor darstellen.

Es wurden daher Untersuchungen mit simulierten Abbrandproben durchgeführt.

- 1.) Untersuchungen an Pulvermischungen von Kernbrennstoff ( $\text{UO}_2$ ), Hüllmaterialien (rostfreier Stahl: V2A, V4A sowie Molybdän) und verschiedenen simulierten, metallischen Spaltprodukten ( $\text{Cs}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{SrO}$ ,  $\text{CeO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ , Mo, Pd). Außerdem Untersuchungen an massivem, rostfreiem Stahl mit den Alkali- und Erdalkaliverbindungen in Abwesenheit von  $\text{UO}_2$ . Die Versuchstemperaturen variierten zwischen  $750^\circ\text{C}$  und  $1250^\circ\text{C}$ , die Glühzeiten betragen bis zu 1000 h.

- 2.) Untersuchungen an verschiedenen Hüllmaterialien (V2A, 4988, Incoloy 800, Inconel 625, VZr2Cr15) mit Cäsiummetall und nichtmetallischen Spaltprodukten (Br, J, Se, Te), mit und ohne Kernbrennstoff ( $UO_2$ , UC). Die Versuchstemperaturen waren hier  $600^\circ C$  und  $800^\circ C$ , die Glühzeit betrug 1000 Stunden.

Die simulierten Spaltprodukte wurden zunächst einzeln, später zusammen dem Kernbrennstoff und Hüllmaterial zugefügt, wobei die relativen Gewichtsverhältnisse der einzelnen Spaltprodukte zueinander konstant gehalten wurden. Die Auswertung der Verträglichkeitsuntersuchungen erfolgte metallographisch, röntgenographisch und mit der Mikrosonde.

Die 1. Versuchsreihe ergab, daß alle Reaktionen mit dem Hüllmaterial und Kernbrennstoff unterhalb  $1000^\circ C$  nur durch die Alkali- und Erdalkaliverbindungen verursacht wurden. In Gegenwart der oxidischen Cs-Verbindungen fanden schon bei  $750^\circ C/5$  h starke Reaktionen zwischen diesem und dem rostfreien Stahl statt, wobei sich Cäsiumchromate bildeten (Abb. 7 und 8). Wahrscheinlich beginnen diese Reaktionen jedoch schon bei wesentlich tieferen Temperaturen. Durch die Reaktionen der Cäsiumverbindungen mit einer Legierungskomponente des Stahles, bildet sich aus dem Austenit teilweise Ferrit ( $\alpha$ -Fe bzw. ein ferritischer Mischkristall). Das  $Cs_2CO_3$  reagierte bei  $750^\circ C$  auch mit dem Mo unter Bildung von Cäsiummolybdat.

Bei der Einwirkung von SrO auf den Stahl blieb der Austenit erhalten, d.h. es war kein Ferrit nachzuweisen. Es fanden jedoch ab  $750^\circ C$  andere starke Reaktionen mit dem Stahl statt, wobei als hauptsächliche Reaktionsprodukte Strontiumchromat und Strontiumferrat entstanden. In Gegenwart von  $UO_2$  reagiert das SrO bevorzugt mit dem Kernbrennstoff zu Strontiumuranat. War in den Pulvermischungen außerdem noch  $ZrO_2$  vorhanden, so wurde die Strontiumuranatbildung verhindert, und es entstand in großen Mengen Strontiumzirkonat. Bei allen anderen simulierten Spaltprodukten



( $\text{CeO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ , Mo, Pd) sind erst bei Temperaturen über  $1000^\circ\text{C}$  Reaktionen mit dem Kernbrennstoff und Hüllmaterial eingetreten.

Als hauptsächliche Reaktionsprodukte zwischen den simulierten Spaltprodukten und dem Kernbrennstoff entstanden ab  $750^\circ\text{C}$  Sr- und Cs-Uranate; außerdem bildeten sich einige sauerstoffreichere Uranoxidphasen. Bei  $1250^\circ\text{C}$  reagierte auch das  $\text{CeO}_2$  mit dem  $\text{UO}_2$  unter Mischkristallbildung. Diese war jedoch stets von dritten Substanzen in den Pulvermischungen abhängig. Beim gleichzeitigen Zusammentreffen mehrerer Spaltprodukte in den Pulvermischungen wurden hauptsächlich Reaktionen zwischen diesen beobachtet. Die dabei am stärksten auftretenden Reaktionsprodukte waren  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ ,  $\text{SrZrO}_3$ ,  $\text{Ce}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{ZrO}_2$ ,  $(\text{Zr}, \text{Ce})\text{O}_2$ ,  $\text{SrCeO}_3$ . Daneben wurden weitere Reaktionsprodukte festgestellt [1], die teilweise röntgenographisch nicht indiziert werden konnten.

Die 2. Versuchsreihe, mit hauptsächlich nichtmetallischen Spaltprodukten, läßt folgende Tendenzen erkennen: Reines, metallisches Cäsium zeigt gegenüber den Hüllmaterialien (V2A, 4988, Inconel 625, Incoloy 800, VZr2Cr15) wesentlich geringere chemische Wechselwirkungen als die oxidischen Cäsiumverbindungen. Bei  $600^\circ\text{C}$  sind nur sehr schwache oder keine Reaktionen mit den Hüllmaterialien erkennbar. Bei  $800^\circ\text{C}/1000$  h finden jedoch stets Reaktionen des Cs mit der Hülle statt. Schon geringe Mengen Sauerstoff im Cs beeinflussen die Verträglichkeit mit der Hülle nachteilig, und es kommt auch hier zur Cäsiumchromatbildung. Die heftigsten Reaktionen mit Cs waren bei der Vanadinlegierung zu beobachten, wobei das Cs bis zu  $120 \mu\text{m}$  in die Hülle diffundierte. Es liegt dort angereichert, gemeinsam mit dem Chrom vor. Die beste Verträglichkeit gegenüber Cäsium zeigt Inconel 625 (RZ:  $10 \mu\text{m}$ ), danach folgen die rostfreien Stähle und Incoloy 800 mit Reaktionszonen von ca.  $25-30 \mu\text{m}$  (Abb. 9).

Etwas stärkere Reaktionen mit den Hüllmaterialien (außer der Vanadinlegierung) zeigen Jod und Brom, wobei beim Stahl bei  $800^\circ\text{C}/1000$  h Diffusionszonen von  $400 \mu\text{m}$  beobachtet wurden (Abb. 10).

Geringer waren die Wechselwirkungen beim Incoloy 800 und Inconel 625. Das beste Verträglichkeitsverhalten gegenüber Jod und Brom zeigte die Vanadinlegierung ( $RZ < 10 \mu\text{m}$ ).

Die stärksten chemischen Wechselwirkungen mit den Hüllmaterialien wurden durch Selen und Tellur verursacht. Bereits bei  $600^\circ\text{C}$  waren Diffusionszonen von  $250 \mu\text{m}$  festzustellen (Abb. 11), die sich bei  $800^\circ\text{C}$  auf  $500 \mu\text{m}$  vergrößerten. Von allen untersuchten Hüllmaterialien zeigte die Vanadinlegierung bei  $600^\circ\text{C}$  und  $800^\circ\text{C}$  das beste Verträglichkeitsverhalten gegenüber Se und Te und die Nickelbasislegierungen das schlechteste; dazwischen liegen die Stähle.

In Gegenwart aller simulierter Spaltprodukte (Br, J, Se, Te, Cs) finden bei  $600^\circ\text{C}$  heftige Reaktionen mit den Hüllmaterialien statt (Abb. 12). Bei  $800^\circ\text{C}/1000 \text{ h}$  wurden beim V2A Spaltprodukt-Eindringtiefen von  $1,2 \text{ mm}$  festgestellt. Die Hüllwerkstoffe zeigen gegenüber den Spaltproduktgemischen ein wechselhaftes und komplexes Reaktionsverhalten. In Anwesenheit von Kernbrennstoff ( $\text{UO}_2$ , UC) verbessert sich die Verträglichkeit der Hüllwerkstoffe gegenüber den Spaltprodukten. Die Vanadinlegierung (VTr2Cr15) zeigt bei allen Versuchstemperaturen das mit Abstand beste Verträglichkeitsverhalten gegenüber den Spaltprodukt-Kernbrennstoff-Gemischen. Danach folgen die Stähle (V2A, 4988) und Nickelbasislegierungen (Inconel 625, Incoloy 800).

Es finden auch hier Reaktionen der Spaltprodukte untereinander und mit dem Kernbrennstoff (UC) statt, wodurch einige Spaltprodukt-Aktivitäten gegenüber den Hüllmaterialien abgeschwächt werden. Ganz allgemein sind jedoch die Reaktionen der nichtmetallischen Spaltprodukte mit den Hüllwerkstoffen um ein Vielfaches stärker als mit den metallischen Spaltproduktverbindungen.

Neueste ergänzende Untersuchungen mit der Mikrosonde an der Phasengrenze Kernbrennstoff-Hülle verschieden hoch abgebrannter Brennelemente bestätigen qualitativ verschiedene out-of-pile-Ergebnisse. Sie zeigten, daß besonders Cäsium, Jod und Tellur

das Hüllmaterial angreifen, wobei die Spaltprodukte, entlang den Korngrenzen, tief in das Hüllmaterial diffundieren. Diese Tatsache ist im Hinblick auf den Einsatz von Brennstäben im Schnellen Brüter von besonderer Bedeutung, da die Spaltproduktausbeute an Jod und Tellur im schnellen Neutronenfluß um ein Vielfaches größer ist als im thermischen.

Die bei den simulierten Systemen verwendeten hohen Spaltproduktkonzentrationen ergeben zweifellos stärkere Reaktionen mit dem Hüllwerkstoff als sie in praktischen Brennelementen auftreten. Außerdem legt der offensichtlich starke Sauerstoffeinfluß auf die Cs-Reaktion nahe, daß eine sorgfältige Spezifizierung des Oxid-Brennstoffes hinsichtlich  $H_2O$ - und Sauerstoffgehalt die schädliche Wirkung verringert.

#### Literatur zu 1143

[1] P. Hofmann, F. Thümmeler, H. Wedemeyer:

Verträglichkeitsuntersuchungen mit simulierten Spaltprodukten an nichtrostendem Stahl und Molybdän, mit und ohne Gegenwart von  $UO_2$ .

KFK-979 (1969)

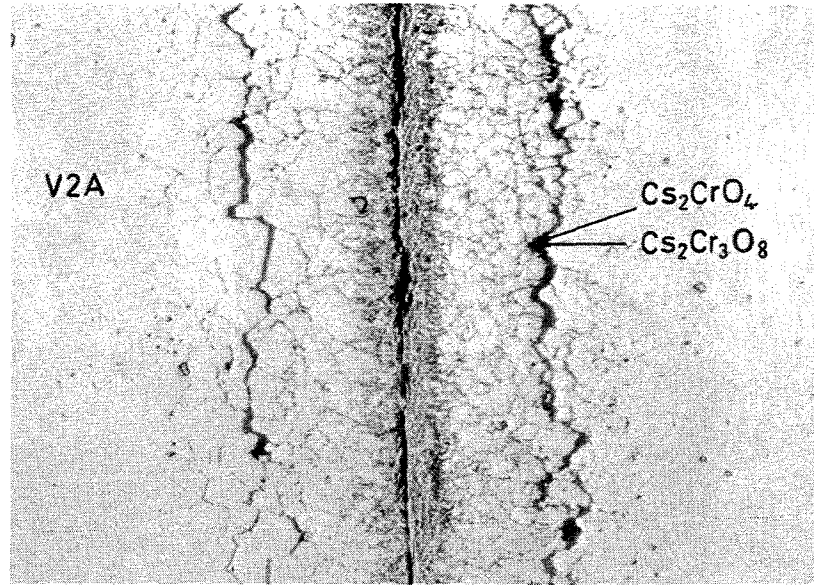
[2] P. Hofmann, F. Thümmeler;

Verträglichkeitsuntersuchungen mit simulierten, nichtmetallischen Spaltprodukten an Hüllmaterialien des Schnellen Brüters, mit und ohne Gegenwart von  $UO_2$  und UC.

KFK (In Vorbereitung)

- (3) O. Götzmann, F. Thümmler  
Wechselwirkung von möglichen Hüllwerkstoffen des  
Schnellen Brütters mit UN und  $UO_2$ ,  
Hochtemperaturwerkstoffe, 6. Plansee-Seminar, 24.-28.  
Juni 1968, Reutte, Tirol, S. 439 - 466.  
KFK-Bericht 1081
- (4) O. Götzmann  
Zum Verträglichkeitsverhalten von Hüllwerkstoffen  
mit Kernbrennstoffen.  
KFK-Bericht 985
- (5) O. Götzmann, W. Hein  
Vergleich von Lang- und Kurzzeitverträglichkeits-  
untersuchungen an UN und  $UO_2$ .  
KFK-Bericht 1086

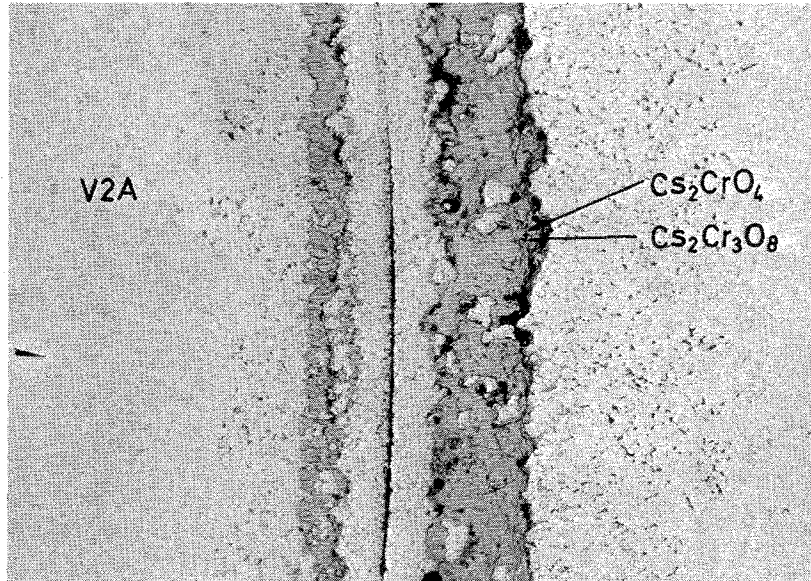
Abb. 7



x 200

V2A + Cs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, 800 °C/500 h

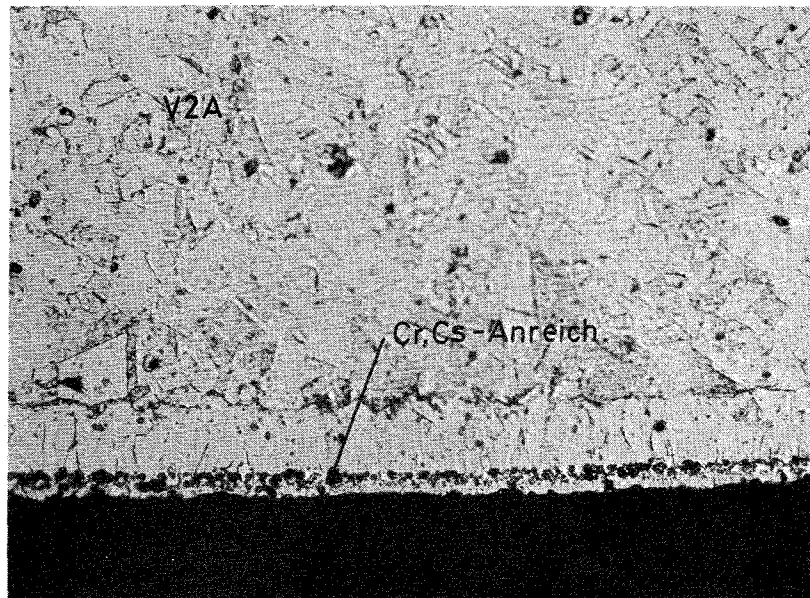
Abb. 8



x 100  
geätzt  
(V2A-  
Beize)

V2A + Cs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, 800 °C/1000 h

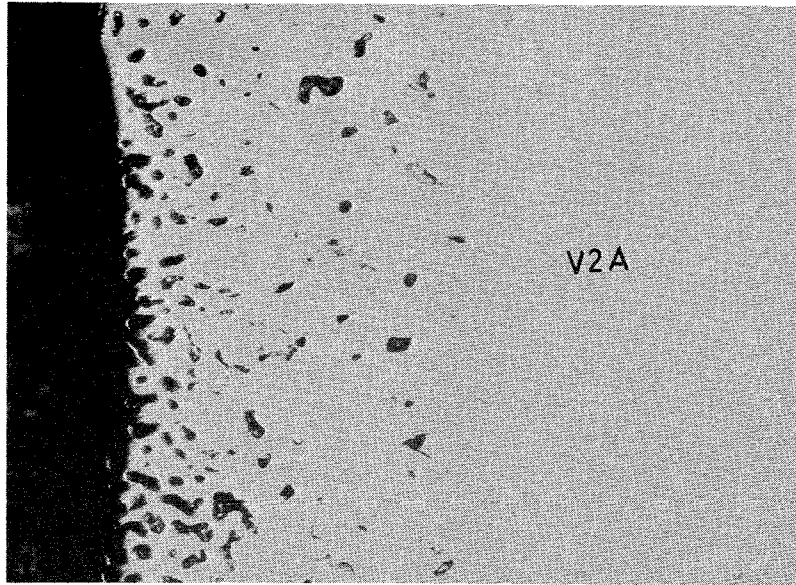
Abb. 9



x 500  
geätzt  
(V2A-  
Beize)

V2A + Cs, 800 °C/1000 h

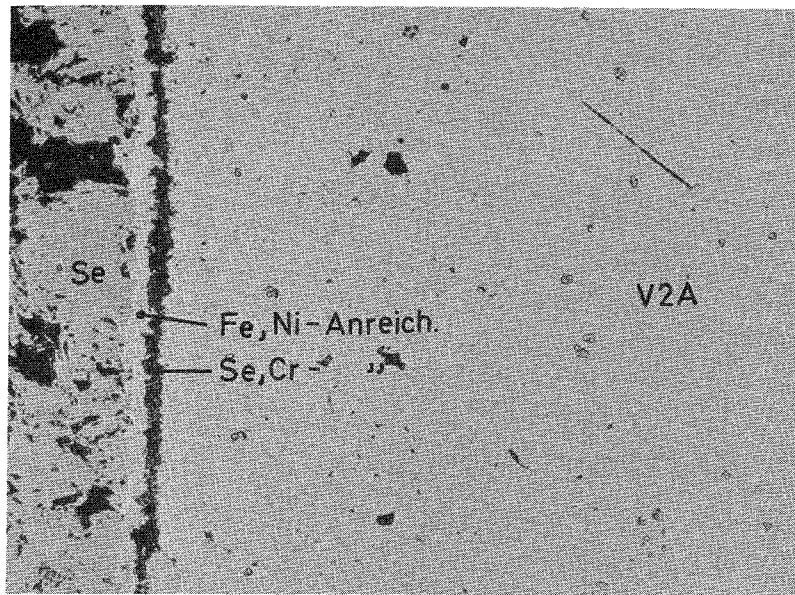
Abb. 10



x 200

V2A + Jod, 800 °/1000 h

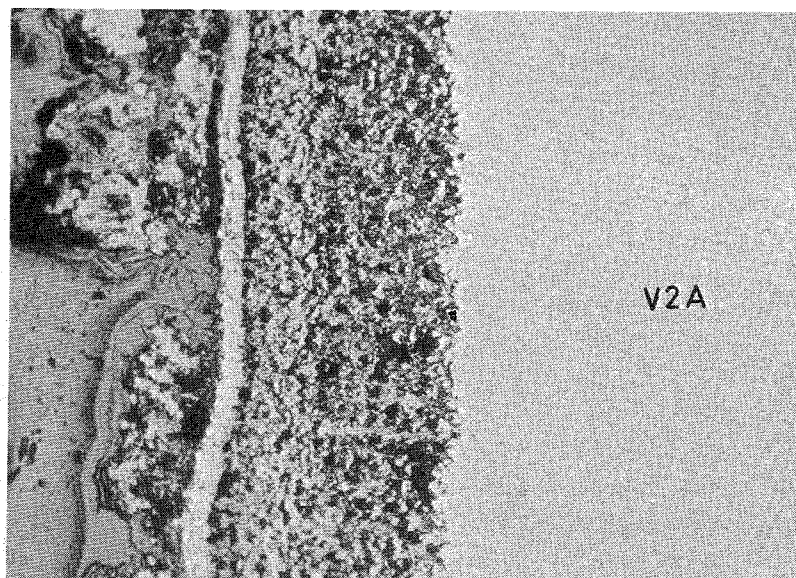
Abb. 11



x 200

V2A + Selen, 600 °C/1000 h

Abb. 12



x 100

115. Arbeiten zum Brennstoffzyklus1151. Chemische Wiederaufarbeitung von bestrahlten Brennstoffen (IHCh)Naßchemisches Extraktionsverfahren <sup>+</sup>) (3) (10)Anpassung des Purex-Verfahrens

Als Grundlage für Fließschema-Optimierungen wurde die Verteilung von hohen Konzentrationen an Uran (VI) und Plutonium (IV) zwischen wäßriger Salpetersäure und 20 Vol. % TBP/n-Dodecan untersucht. Aus den Meßdaten konnten empirische Funktionen abgeleitet werden, die die scheinbaren Gleichgewichtskonstanten der Extraktionsgleichgewichte für die beiden Metalle sowohl einzeln als auch bei gleichzeitiger Anwesenheit als Funktionen der Gesamtionenstärke der wäßrigen Phase beschreiben. Die Verteilungskoeffizienten lassen sich dann als Funktionen dieser scheinbaren Gleichgewichtskonstanten sowie der analytischen Konzentrationen aller Reaktionspartner ausdrücken (11).

Mit diesen Funktionen wurden die Verteilungskurven für Uran und Plutonium errechnet, die zur Auslegung der Bedingungen der Gegenstromextraktion dienen. In Misch-Absetzern wurde die Koextraktion von Plutonium und Uran aus konzentrierten und verdünnten Speiselösungen mit 20 Vol. % TBP/Alkan<sup>++</sup> untersucht. Bei nicht zu hoher Sättigung der organischen Phase war der Verlust an Plutonium und Uran im Raffinat unter 0.1 % (9).

<sup>++</sup> Alkan, C<sub>10</sub>-C<sub>13</sub> gesättigte KW enthaltendes Verdünnungsmittel

<sup>+</sup> Bearbeiter: W. Bähr, G. Baumgärtel, F. Baumgärtner, D. Ertel, L. Finsterwalder, G. Koch, W. Ochsenfeld, H. Schmieder, E. Schwind, L. Stieglitz, D. Thiele

Die Trennung des Plutoniums von Uran durch Reduktion des Plutoniums mit Uran (IV) wurde eingehend untersucht. In Mischabsetzern wurde bei etwa 10 % Plutonium-Gehalt unter den günstigsten Bedingungen (1,5 M  $\text{HNO}_3$  und 0,2 M  $\text{N}_2\text{H}_5\text{NO}_3$ ) weniger als 0,1 % des gesamten Plutoniums im Uranstrom gefunden, während das Plutoniumprodukt einen Urangehalt von etwa 1 % aufwies (9).

Weiter wurde der Effekt der Bestrahlung des Extraktionsmittels (20 % TBP/Alkan) auf die Dekontaminationsfaktoren von Ruthen und Zirkon/Niob geprüft. Im Vergleich mit unbestrahltem TBP war bei Ruthen praktisch kein, bei Zirkon/Niob dagegen ein ausgesprochen ungünstiger Einfluß der Bestrahlung festzustellen.

Bei einer Exposition des Extraktionsmittels von 1.Mh/1 war der Dekontaminationsfaktor etwa um den Faktor 100, für Niob etwa um den Faktor 25 geringer als mit unbestrahltem Lösungsmittel. Außerdem kam es mit Zirkon/Niob zu flockigen Ausscheidungen, die an den Phasengrenzen schwimmen und zu Störungen im Mischabsetzer führen können.

#### Studium der Komplexbildung in salpetersaurer Lösung

Für die Extraktion des Urans und Plutoniums im Purex-Prozß ist die Geschwindigkeit der Bildung und des Zerfalls extrahierbarer Komplexe ein wesentlicher Gesichtspunkt. Daher wurde die Kinetik der Extraktion und der Rückextraktion von Uran und Plutonium im System Salpetersäure/TBP-n-Alkan mit Hilfe einer Tropfenmethode studiert. Eine Analyse der Meßdaten ergab, daß Extraktion und Rückextraktion über die gleichen Grenzflächenkomplexe verlaufen und daß diese Grenzflächenkomplexe am geschwindigkeitsbestimmenden Schritt der Reaktion beteiligt sind. Aus der Größe der ermittelten Geschwindigkeitskonstanten läßt sich ableiten, daß auch in Schnellextraktoren eine vollständige Gleichgewichtseinstellung erzielt wird (4).



### Neptunium-Extraktion

Das Verhalten des Neptuniums im Purex-Prozeß wurde untersucht. Bei der Brennstoffauflösung fällt das Neptunium als nicht extrahierbares Np(V) an, kann aber durch mehrstündiges Kochen der Auflöserlösung nach beendigter Auflösung zum extrahierbaren Np(VI) oxidiert werden. Der Einfluß der Uran-Beladung der organischen Phase und der Konzentration der salpetrigen Säure auf die Verteilungskoeffizienten des Neptuniums in der ersten Extraktions-(HA)-Batterie wurde gemessen und eine Abnahme der Neptunium-Extraktion mit steigender Beladung der organischen Phase sowie bei höheren  $\text{HNO}_2$ -Konzentrationen festgestellt. Bei Verwendung von Uran (IV)-nitrat als Reduktionsmittel in der Verteilungs-(1B)-Batterie wird das Neptunium (VI) bei den üblichen Kontaktzeiten nur teilweise bis zum extrahierbaren Np(IV) reduziert, während der andere Teil nur bis zum nicht extrahierbaren Np(V) reduziert wird. Kalte Gegenstromversuche erbrachten Neptuniumsausbeuten von etwa 50 % in der HA-Batterie, die durch Zugabe von Oxidationsmitteln auf über 90% gesteigert werden konnten. In der 1B-Batterie blieb das Neptunium bei Anwendung von Uran(IV) als Reduktionsmittel zum Teil beim Uran, während der andere Teil das Plutonium begleitete (2).

### Ionenaustausch zur Endreinigung von Plutonium-Lösungen

Für die Endreinigung und Aufkonzentrierung von Plutonium-Lösungen wurden Studien mit dem Anionenaustauscherverfahren durchgeführt. Dabei wurden die günstigsten Bedingungen zur Endreinigung nach vorgegangenem Purex-Prozeß festgelegt. Eine Versuchsanlage zur Reinigung von 100 g Pu/Tag wurde erstellt (13).

### Radiolyse

Die radiolytische Bildung von Dibutylphosphat (HDBP) bei Bestrahlung von 20 % TBP/n-Alkan mit  $\alpha$ -,  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlen wurde in Abwesenheit und in Gegenwart einer wässrigen Phase untersucht. Bei Bestrahlung der organischen Phase allein betrug die Bildungsrate des HDBP mit allen drei Strahlenarten etwa 0,03 g HDBP/Wh. In Gegenwart der

wäßrigen Phase stieg die HDBP-Bildungsrate um einen Faktor von etwa 2 bei Luftausschluß und von etwa 6 bis 7 in Gegenwart von Luftsauerstoff. Die Plutoniumrückhaltung in bestrahlten Lösungsmitteln erwies sich als proportional der HDBP-Konzentration und damit der Strahlendosis. Mit steigender Urankonzentration nimmt die Plutoniumrückhaltung stark ab. Insbesondere erwies sich Uran(IV) als sehr geeignetes Mittel zur Senkung der Plutoniumverluste (14).

#### Entwicklung von Analyseverfahren für die Brüter-Aufarbeitung

Bei der Brüteraufarbeitung mittels Purex-Prozeß standen folgende analytischen Probleme zur Lösung an: (1) die gleichzeitige Schnellbestimmung von Plutonium und Uran nebeneinander und in Gegenwart von Spaltprodukten und (2), die Schnellbestimmung der freien Säure neben hohen Konzentrationen an Plutonium und Uran. Zur Routinebestimmung von Uran und Plutonium in wäßrigen und organischen Lösungen des Purex-Prozesses wurde ein Röntgenfluoreszenzverfahren entwickelt. Durch Mehrkanalmessungen ist die Simultanbestimmung beider Elemente möglich. Bei Verwendung einer Wolfram-Röhre (Anregungsbedingungen 55 kV, 32 mA) erstreckt sich der Analysenbereich von 0,01 bis 1,5 mg U, Pu/ml, wobei neben 1,5 mg U/ml noch 0,01 mg Pu/ml und neben 0,3 mg Pu/ml noch 0,01 mg U/ml bestimmt werden können. Die Standardabweichung beträgt im optimalen Meßbereich  $\pm 1\%$ . Bei gleichzeitiger Anwesenheit von Spaltprodukten (bis zu 1200 Ci/kg Uran) wurde keine Beeinflussung durch Störstrahlung festgestellt. Die Tageskapazität beträgt bei Lochstreifenabgabe der Meßdaten und Auswertung mit einer IBM-1130 mehrere hundert Analysen (5) - (7).

Zur Routinebestimmung der freien Säure neben hohen Konzentrationen an Uran(VI) und (IV), Plutonium(IV) und (III) sowie Thorium wurde ein Titrationsverfahren ausgearbeitet. Aus der Analysenprobe werden nach Verdünnung mit Isopropanol die Actiniden durch Zugabe von Caesiumchlorid als schwerlösliche Doppelsalze gefällt. Anschließend wird die freie Säure mit einer Natriumäthylat-Standardlösung in

Isopropanol unter Verwendung von Phenolphthalein als Indikator titriert. Neben Actinidenkonzentrationen bis zu 1 M konnte die freie Säure mit einer Standardabweichung von 1,5 % und einer Genauigkeit von 1 % bestimmt werden. Die Analysendauer beträgt etwa 10 min (12).

#### Weiterverarbeitung des hochaktiven Wastestromes

Die Weiterverarbeitung des hochaktiven Wastestromes (HAW) im Hinblick auf eine Gewinnung der Transplutoniumelemente Americium und Curium wurde untersucht. Es wurde ein Fließschema entwickelt, bei dem zunächst die Transplutoniumelemente gemeinsam mit den Spaltprodukt-Seltenen-Erden durch 0,3 M HDEHP<sup>+</sup>/0,15 M TBP/Kerosin aus dem HAW extrahiert werden. In der anschließenden Verteilungsbatterie werden Americium und Curium durch 1 M Milchsäure/0,05 M Diäthylentriaminpentaacetat bei pH = ca. 3 selektiv rückextrahiert, während die Seltenen Erden in der organischen Phase bleiben und aus dieser in der nachfolgenden Rückextraktionsbatterie zurückgewaschen werden. In Gegenstromversuchen mit synthetischen Lösungen, die hohe Ausbeuten an Americium und Curium sowie gute Dekontaminationsfaktoren von Spaltprodukten und Korrosionsprodukten ergaben, konnte die Brauchbarkeit des Fließschemas demonstriert werden (8).

#### Laboranlage MILLI (Leichsenring, IHCh)

Im Jahre 1968 konnte mit den eigentlichen Montagearbeiten der Anlage begonnen werden. Zunächst wurden Behälter und Rohrleitungen in den Bedienungs- und Kellerräumen, dann in den beiden heißen Zellen montiert; anschließend die Beschickungs- und Arbeitsboxen hinter den Zellen montiert. Im Frühjahr 1969 war die Montage der Apparate, Behälter mit den zugehörigen Rohrleitungen soweit abgeschlossen, daß die Lecksuche mit Wasser, Druckluft und schließlich mit Helium durchgeführt werden konnte. Zur gleichen Zeit wurden die 3 Schaltwarten aufgestellt und angeschlossen sowie die Elektrokabel verlegt.

Nach Verbesserung der Funktionstüchtigkeit der Mischabsetzer konnte im Juli 1969 mit dem kalten Betrieb begonnen werden. Ende des Jahres wurde der erste Lauf mit Uranylnitratlösung durchgeführt.

---

<sup>+</sup>) HDEHP = Di-(2-äthylhexyl)-phosphorsäure

Veröffentlichungen zu 1151:

- (1) W. Bähr  
Das Extraktionsverhalten von Neptunium bei der Wiederaufarbeitung  
von bestrahlten Kernbrennstoffen nach dem Purex-Prozeß  
KFK-Bericht 797 (1968)
- (2) W. Bähr  
Das Verhalten von oxidischen Brennstoffen und Spaltprodukten beim  
Eindringen von metallischem Natrium durch defektes Hüllenmaterial  
eines Brennelements  
Ext. Bericht 9/68 (1968).
- (3) F. Baumgärtner  
Reprocessing Problems Associated with the Increasing Burn-up of  
Future Fuels  
KFK-Bericht 884 (1968)
- (4) F. Baumgärtner, L. Finsterwalder  
Kinetics of Extraction of Metals with Organophosphorus Compounds  
5th Internat. Conf. on Solvent Extraction Chemistry, Jerusalem, Sept. 1968  
Solvent Extraction Research, Wiley-Intersc.  
vgl. auch KFK-Bericht 839 (1968)
- (5) D. Ertel  
Röntgenfluoreszenzanalyse von Plutoniumlösungen  
Siemens-Information, Eg 4/208 (April 1968)
- (6) D. Ertel  
Simultaneous Determination of Uranium and Plutonium in Inactive  
Purex Process Solutions by X-Ray Fluorescence  
J. Radioanal. Chem. 2, 205 (1969)
- (7) D. Ertel, W. Wettstein  
Röntgenfluoreszenzanalytische Bestimmung von Uran und Plutonium in  
Kernbrennstofflösungen  
KFK-Bericht 747, EUR-3728 d (1968)

- (8) G. Koch  
A Study on Americium/Curium Recovery from Fuel Reprocessing  
High-Level Waste Solutions  
5th Internat. Conf. on Solvent Extraction Chemistry, Jerusalem,  
Sept. 1968
- (9) G. Koch, W. Ochsenfeld, E. Schwind  
Flowsheet Studies on Processing of Plutonium Fuels by Solvent  
Extraction  
KFK-Bericht 990 (1969)
- (10) W. Ochsenfeld  
Wiederaufarbeitung der Brennelemente schneller Brutreaktoren  
Atomwirtschaft 13, 422 (1968)
- (11) W. Ochsenfeld, G. Baumgärtel, H. Schmieder  
Empirical Functions for the Calculation of Simultaneous Pu(IV) and  
U(VI) Distribution in the System Metal Nitrate - Nitric Acid/Tributyl  
Phosphate - n - Dodecane  
Solvent Extraction Research, S. 373 - 383  
Wiley-Inters. 1969, V. Internat. Conf. on Solvent Extraction Chemistry,  
Jerusalem, Sept. 1968
- (12) H. Schmieder, E. Kuhn  
Bestimmung der freien Säure in Plutonium-, Uran- und Thorium-Lösungen  
Talanta 16, 691 (1969)
- (13) H. Schmieder, W. Ochsenfeld  
Ionenaustausch zur Endreinigung von Plutonium-Lösungen  
PSB-Bericht Nr. 333/69
- (14) L. Stieglitz, W. Ochsenfeld, H. Schmieder  
Der Einfluß der Radiolyse von Tributylphosphat auf die Plutoniumaus-  
beute im Purex-Prozeß bei hohem Plutoniumgehalt  
KFK-Bericht Nr. 691, EUR-3712 d (1968)

1152. Brennstoff- und Spaltproduktanalyse (v. Baeckmann, IRCh)

In der Analytischen Gruppe des IRCh wird der Uran- und Plutoniumgehalt, die Isotopenzusammensetzung dieser Elemente, sowie der Gehalt an Spurenverunreinigungen in unbestrahlten Kernbrennstoffen routinemäßig ermittelt. An bestrahlten Kernbrennstoffen werden Abbrandanalysen (Ce-144, Sr-90, Cs-134/137 und Uran-Bestimmungen) ausgeführt. Die dabei angewandten Analysenverfahren werden ständig durch Vergleich der Ergebnisse mit denen anderer Laboratorien überprüft und soweit möglich verbessert. Für das Projekt Schneller Brüter wurden 1968 und 1969 die folgenden Serviceanalysen ausgeführt:

An unbestrahlten Kernbrennstoffen: 95 Uranbestimmungen  
 1.165 Plutoniumbestimmungen  
 180 Kohlenstoffbestimmungen  
 2.478 emissionsspektroskopische bzw. röntgenfluoreszenzspektrometrische Bestimmungen einzelner Spurenelemente (157 Proben)  
 33 Uran-Isotopenbestimmungen  
 117 Plutonium-Isotopenbestimmungen  
 2 Am-241-Bestimmungen

An bestrahlten Kernbrennstoffen: 60 Abbrandanalysen (U-Bestimmung, Ce-144, Cs-134/137, Sr-90)

Außerdem wurden 11  $\gamma$ -spektroskopische Messungen (5 Proben) ausgeführt.

Als Ergänzung zu den bereits eingeführten Analysenverfahren wurden 1968/1969 die folgenden Verfahren entwickelt, erprobt und eingeführt:

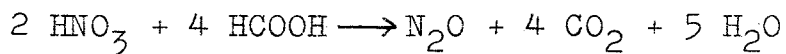
1. Chemisches Trennverfahren und Herstellung von Meßpräparaten durch Elektrodeposition für die  $\alpha$ -spektrometrische Bestimmung des Pu-238-Gehalts in Plutonium.

2. Bestimmung von B-, F- und Cl-Spuren in plutoniumhaltigen Kernbrennstoffen nach Pyrohydrolyse durch Messung mit ionenspezifischen Elektroden.
3. Bestimmung von Uran und Plutonium in Lösungen mittels Röntgenfluoreszenzspektroskopie.
4. Bestimmung von Cadmium-Spuren in Uran mittels Neutronenaktivierungsanalyse.

Für die Verfahren 1 bis 3 wurden entsprechende Gloveboxen neu eingerichtet.

1156. Abfall-Aufbereitung (Krause, ADB)Versuche zur Zerstörung von Salpetersäure in radioaktiven Abfall-Lösungen

Bei der Wiederaufbereitung bestrahlter Kernbrennstoffe, bei der Dekontamination von Geräten und bei vielen anderen Arbeiten entstehen grosse Mengen salpetersäurehaltiger radioaktiver Abfall-Lösungen. Bei ihrer Beseitigung wirkt sich die Salpetersäure sehr störend aus; ihre Neutralisierung würde zu grossen Mengen radioaktiver Rückstände führen. Es wurde deshalb ein Verfahren ausgearbeitet, bei dem die Salpetersäure durch Umsetzung mit Ameisensäure nach der Gleichung



zerstört wird. Als Reaktionsprodukte entstehen nur gasförmiges  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{CO}_2$  sowie Wasser. Die beiden erstgenannten Verbindungen können nach Reinigung über mechanische Filter mit der Abluft abgegeben werden, so dass keine festen Rückstände zurückbleiben. Durch Nebenreaktionen werden in der Praxis geringe Mengen an  $\text{NO}$  und  $\text{N}_2$  gebildet.

Die Reaktion wird bei  $100^\circ \text{C}$  ausgeführt und läuft sehr rasch ab. Versuche zeigten, dass sie auch im kontinuierlichen Verfahren durchführbar ist.

Die Erprobung an einer Reihe typischer Modelllösungen bestätigte die Anwendbarkeit auf alle in Betracht kommenden



Fälle. Neben der gesamten freien Salpetersäure wird auch ein Teil der Nitate umgesetzt. Zur Erprobung des Verfahrens im grösseren Maßstab wurde eine halbtechnische Apparatur aufgebaut.

Laborversuche zeigten, dass sich Ameisensäure auch zur Entfernung höherer Stickoxide aus Abgasen eignet. Es entsteht wiederum das ungiftige und nicht mehr reaktionsfähige  $N_2O$ . Die Reaktion wird u.a. durch Mangansalze beschleunigt.  $NO$  reagiert nicht mit Ameisensäure und muss deshalb zunächst oxidiert werden. Dies kann in einfacher Weise dadurch geschehen, dass man das  $NO$  enthaltende Abgas durch salpetersaure Abfallösung leitet.

Die Versuche zur Zersetzung von Salpetersäure und Stickoxiden sind weitgehend abgeschlossen, [2].

#### Versuche zur Verseifung von Tributylphosphat

Bei der Wiederaufbereitung hoch abgebrannter Kernbrennstoffe erleidet das im Purex-Prozess zur Extraktion verwendete Tributylphosphat (TBP) eine laufende Zersetzung infolge von Radiolyse und chemischer Einwirkungen, so dass es von Zeit zu Zeit durch neues ersetzt werden muss. Um das unbrauchbar gewordene Lösungsmittel sicher beseitigen zu können, wurde ein Verfahren ausgearbeitet, nach dem das in höheren Kohlenwasserstoffen gelöste TBP mit konzentrierter Natronlauge zu  $Na_3PO_4$  und Butylalkohol verseift wird. Das  $Na_3PO_4$  geht in die wässrige Phase, die nach dem Ende der Verseifung durch Dekantieren von der organischen Phase getrennt werden kann. Die erstere wird in heisses Bitumen eingetragen, wobei das Wasser ausdampft und die Salzurückstände in Bitumen fixiert werden. Die organische Phase kann verbrannt werden.

Die Laborversuche [1] sind praktisch beendet; die Verseifung des TBP und die Verbrennung der organischen Lösungsmittel werden z.Z. noch in einer grösseren Apparatur erprobt.

### Die Fixierung flüssiger radioaktiver Rückstände in Bitumen

Die grossen Mengen der bei der Dekontamination radioaktiver Flüssigkeiten entstehenden Fällschlämme und Verdampferkonzentrate machen die wirtschaftliche Überführung dieser Stoffe in ein sicher lagerfähiges Endprodukt mit möglichst kleinem Volumen erforderlich. Als ein hierfür geeignetes Verfahren wird das Eintragen in heisses Bitumen angesehen. Dabei verdampft das Wasser und die radioaktiven Salze werden im Bitumen eingeschlossen. Das Endprodukt wird noch heiss in Fässer abgelassen und erstarrt in diesen.

Da das beschriebene Verfahren bei höherer Temperatur abläuft und in den Abfallösungen oftmals Stoffe enthalten sind, die unter diesen Bedingungen Reaktionen mit dem Bitumen eingehen können, waren in ausgedehnten Versuchsreihen die optimalen Arbeitsbedingungen zu ermitteln. Diese erlauben nunmehr die Verarbeitung auch von Lösungen extrem ungünstiger Zusammensetzung ohne nennenswerte Beeinträchtigung der Qualität des Endproduktes und der Sicherheit des Verfahrens.

Weitere Untersuchungen galten der Auslaugung von Radionukliden bei der Lagerung der Endprodukte in Wasser und Salzlauge. Hier zeigte sich, dass die Mehrzahl der Produkte um den Faktor 10 - 100 beständiger gegen Auslaugung sind als die gleichen beispielsweise in Zement fixierten Abfälle.

Auch Versuche über die Strahlenbeständigkeit wurden durchgeführt. Sie bestätigten die auch andernorts gemachte Feststellung, dass bei den in der Praxis vorgesehenen Bitumensorten Aktivitätskonzentrationen bis zu 1 Ci pro Liter Endprodukt noch zu keinen nennenswerten Schädigungen führten.

Untersuchungen der Brennbarkeit und Stossempfindlichkeit zeigten, dass auch Proben mit Natriumnitratgehalten bis zu 60 Gew.-% in die Klasse der schwer entflammaren und nicht stossempfindlichen Güter fallen.

Die umfangreichen Ergebnisse der Bitumenversuche wurden bereits ausführlich beschrieben [1, 2, 3].

#### Fixierung hochaktiver Spaltprodukte in Glas

Bei der Wiederaufbereitung bestrahlter Kernbrennstoffe entstehen neben einer Vielzahl schwach- und mittelaktiver Abfälle auch salpetersaure Spaltproduktlösungen mit Aktivitätskonzentrationen von mehreren tausend Ci pro Liter. Aus wirtschaftlichen, vor allem aber aus sicherheitstechnischen Gründen ist es dringend erforderlich, diese Lösungen nach einer Abklingzeit von wenigen Jahren in nicht mehr reaktionsfähige und wenig auslaugbare feste Stoffe zu überführen.

Die in den Labors der ADB durchgeführten Versuche hatten zum Ziel, die salpetersauren Spaltproduktlösungen in Glas einzuschmelzen. Die Versuche wurden zunächst zur Einarbeitung in die Arbeitstechnik im kleinen Maßstab und mit inaktivem Material begonnen. Es schlossen sich Untersuchungen der Eigenschaften des Endproduktes, wie Wärmeleitfähigkeit, Auswaschbeständigkeit, Strahlenbeständigkeit u.v.a. an. Anhand der Ergebnisse wurde unter den verschiedenen Glas-typen die Wahl zugunsten eines Borosilikatglases getroffen. Es folgten Versuche in einer etwas grösseren Anlage. Mit ihrer Hilfe konnten u.a. die Denitrifizierung der Ausgangslösung, die Flüchtigkeit einzelner Radionuklide während des Schmelzvorganges, verschiedene Abgas-Reinigungssysteme sowie Fragen der Dosierung der Glasrohstoffe, des Ablassens der Schmelze etc. untersucht werden. Nachdem die Apparatur mit dem Abschluss dieser Versuche eine gewisse Betriebsreife

erreicht hatte, wurde sie für den Einbau in eine kleine Heisse Zelle hergerichtet. Sie besteht im wesentlichen aus einer Denitrierstufe, aus den Schmelz- und Temperöfen sowie einer Abgasreinigungsanlage. Es können darin etwa 2 l hochaktiver Spaltproduktlösungen pro Charge verarbeitet werden. Ziel dieser Arbeiten ist vor allen Dingen die Untersuchung der Endprodukte hinsichtlich ihrer Langzeitbeständigkeit unter wirklichkeitsgetreuen Bedingungen. Daneben können aber auch einzelne Fragen des Prozesses selbst, wie etwa die der Abgasdekontamination untersucht werden. Die Installierungsarbeiten sind so weit fortgeschritten, dass im Laufe des Jahres 1970 mit den ersten hochaktiven Versuchen begonnen werden kann.

Im Zusammenhang mit der Spaltproduktverfestigung wurden weiterhin auch Korrosionsversuche durchgeführt; sie zeigten, dass Inconel 600 oder Gold-Platin-Legierungen geeignete Materialien für die Herstellung der Schmelzbehälter darstellen. Die Flüchtigkeit von  $^{137}\text{Cs}$  aus der Glasschmelze konnte durch Zusätze der Oxide von Bor, Titan oder Molybdän erheblich verringert werden. Andere Arbeiten zeigten, dass Ruthenium mit Dekontaminationsfaktoren von über 500 aus dem Abgasstrom entfernt werden kann.

Veröffentlichungen zu 1156:

- [1] H. KRAUSE, Jahresbericht 1967 der ASD-Dekontamination. Bericht KFK 888 [1968]
- [2] H. KRAUSE, Jahresbericht 1968 der Abteilung Dekontaminationsbetriebe. Bericht KFK 1030 [1970]
- [3] W. KLUGER, H. KRAUSE und O. NENTWICH, Fixing of Radioactive Residues in Bitumen. Bericht KFK 1037 [1969]

1157. Transport bestrahlter Brennelemente.

Eingehende Untersuchungen zeigen, daß die Brennstoffzykluskosten sowohl für bestehende Leichtwasserreaktoren als auch für projektierte schnelle Brutreaktoren wesentlich gesenkt werden können, wenn die Brennstoffzyklusindustrie (Fabrikation, Wiederaufarbeitung) in großen zentralen Anlagen statt in Reaktor-integrierten Anlagen installiert ist.

Die Standorte von Kernkraftwerken sind aus verschiedenen Gründen (Stromabnehmerstandort, Kühlmöglichkeiten, Sicherheitsaspekte usw.) über ein großes Gebiet verteilt, so daß für eine zentral gelegene Brennstoffzyklusindustrie Transporte frischer und abgebrannter Brenn- und Brutelemente durchgeführt werden müssen.

Während der Transport frischer Brennelemente und abgebrannter LWR-Brennelemente bzw. Brutelemente schon jetzt eine Routineoperation darstellt, wirft der Transport bestrahlter Brennelemente aus schnellen Brutreaktoren eine Reihe von technischen, wirtschaftlichen und Sicherheitsproblemen auf.

In den gegenwärtigen Entwürfen schneller Brutreaktoren enthalten die Brennelemente hunderte von langen dünnen Brennstäben, in denen oxydischer Brennstoff in Tablettenform mit 12-25 % Pu-Gehalt gasdicht eingeschweißt ist. Der Core-Brennstoff soll bis 80 000 MWd/t abgebrannt werden.

Wegen dieser im Vergleich zu LWR-Brennelementen extremen Auslegungsdaten (Tab. 1) wurde eine Studie<sup>(1)</sup> erstellt, die im Zusammenhang mit dem Brennelementtransport vor allem folgende Fragen behandelt:

- i) Sicherheitsvorschriften,
- ii) technische Probleme wie Kritikalitätssicherheit, Gamma- und Neutronenabschirmung, Kühlung und Unfallsicherheit,
- iii) Ökonomie des Transportes.

Hiermit sind Voraussetzungen für den Entwurf eines nach allen Gesichtspunkten optimalen Transportbehälters für bestrahlte Brennelemente schneller Brutreaktoren geschaffen worden.

Tabelle 1: Aktivität und Nachwärme bestrahlter Brennelemente aus  
Schnellen Brutreaktoren (PFB) und Leichtwasserreaktoren (LWR)

Reaktor		PFB	LWR
a) Abbrand		80.000 Mwd/to	24.000 Mwd/To
b) Pu- und U-Konzentration	[ % ]		
		abgereichert	
U-235			1,12
U-238		82,1	97,95
Pu-239		11,3	0,57
Pu-240		5,4	0,20
Pu-241		0,9	0,11
Pu-242		0,3	0,05
c) Zerfallwärme	1) 50 d	152,0	39,1
	100 d	102,0	28,3
	150 d	78,5	23,2
(W/kg)	200 d	61,5	20,2
d) Spaltproduktaktivität	1) 50 d	40	10
	100 d	25,8	7,5
	150 d	19,2	6,2
(kCi/kg)	200 d	15,3	5,3
e) Neutronenaktivität	2)	75,5	3,31
(10 <sup>3</sup> n/kg)			

1) für Abklingzeiten zwischen 50-200 d

2) bezogen auf Core-Brennstoff, schwere Kerne

#### Veröffentl.:

(1) G.Böhme, K.Gast, D.Gupta, A.Hagen, R.Kraemer, W.Schikarski, W.Schmidt, G.Sebold, H.W.Wiese, H.Zimmermann:

Transport bestrahlter Brennelemente aus schnellen Brutreaktoren

KFK 666, Nov. 1969

- (2) D. Gupta, R. Kraemer, H. Hagen:  
An Analysis of Cost Parameters for the Transport of  
Irradiated Fuels from Plutonium Breeders  
"Economics of Nuclear Fuels" IAEA Wien 1968
- (3) D. Gupta, P. Zühlke:  
Effect of Cooling Time of Irradiated Fuels on Different Aspects  
of Fast Breeder Fuel Reprocessing Costs  
"Economics of Nuclear Fuels", IAEA Wien 1968





121. Große physikalische Experimente1211. Experimentelle Reaktor- und Neutronenphysik

(H. Bluhm, K. Chou, G. Fieg, F. Kappler, D. Kuhn, W. Seifritz,  
H. Werle, INR;

M. Müller, E. Wattecamps, IAR)

Das Spektrum verzögerter Neutronen wurde mit Rückstoßprotonen-Zählern gemessen. Dazu wurden thermische Spaltungen in  $^{235}\text{U}$  ausgelöst und anschließend die Spektren der emittierten Neutronen in verschiedenen, den Gruppen verzögerter Neutronen entsprechenden Zeitintervallen bestimmt. Die Ergebnisse stimmen gut mit denen ähnlicher Messungen aus Harwell überein.

Mit dem Bleipilespektrometer wurden im Energiebereich zwischen 1eV und 40 keV die Einfangquerschnitte von  $^{99}\text{Tc}$ , Sm, Eu, Fe und Rh bestimmt.

Mit Hilfe einer neu entwickelten Abscheidetechnik wurden Präzisionsfolien aller interessierenden Spaltnuklide hergestellt und in Parallelplattenkammern sowie im Zusammenhang mit Spaltspurdetektoren eingesetzt.

Zur Messung kinetischer Reaktorparameter in schnellen Plutoniumanordnungen wurden rauschanalytische Methoden weiterentwickelt. Die neu entwickelte Methode der Polaritätskorrelation im Frequenzbereich gestattet es, die Kohärenzfunktion für einen Punktreaktor auch dann zu bestimmen, wenn die spektrale Leistungsdichte wegen zu starker Dämpfung der hohen Frequenzen nicht mehr gemessen werden kann.

SUAK

Zur Prüfung der Berechenbarkeit ortsabhängiger Spektren wurden Spektrumsmessungen nach der Flugzeitmethode in der Umgebung einer Natrium-Eisen-Grenzfläche durchgeführt.

Eine schon früher untersuchte Anordnung aus 20% angereichertem Uran wurde noch einmal aufgebaut, um  $k_{\text{eff}}$  genauer als vorher zu bestimmen. An dieser Anordnung wurde mit Protonenrückstoßzählern das Spektrum bis zu 4 MeV gemessen.

Weiterhin wurde die wasserstoffhaltige Anordnung UH1B aufgebaut, an der das Spektrum mit 3 verschiedenen Methoden bestimmt wurde, und zwar mit Rückstoßprotonenzählern, nach der Flugzeitmethode und durch Aktivierung von Resonanzsonden in der Sandwichanordnung (siehe Abb.1).

Schließlich wurde die Anordnung UHC aufgebaut, die eine sehr ähnliche Zusammensetzung wie die englische Anordnung VERA7A hatte. Das Spektrum dieser Anordnung war vorher in Aldermaston und Harwell gemessen worden, wobei sich Diskrepanzen im Energiebereich  $E > 100$  keV ergeben hatten. Die Spektrumsmessungen an der SUAK wurden im Bereich von 10 eV bis 7 MeV mit den 3 oben erwähnten Methoden sowie mit einem  ${}^6\text{Li}$ -Halbleiterspektrometer durchgeführt und führten zu Ergebnissen ähnlich denen in Aldermaston (8) (siehe Abb. 1).

Der Neutronenflugkanal wurde um 50 m auf 100 m verlängert. Mit den Vorbereitungen zur Verwendung von Plutonium in der SUAK wurde begonnen.

#### Veröffentlichungen zu 1211:

- (1) R.W. Albrecht, W. Seifritz  
The Coherence Function: A Measure of Spatially Dependent Nuclear Reactor Properties  
Proceedings of the Japan United States Seminar on Nuclear Reactor Noise Analysis  
Tokyo, Sept. 1969, S. 285-306
- (2) R.W. Albrecht, W. Seifritz  
Fundamental Properties of the Coherence Function on Symmetrical Two-Node System  
Nukleonik, 11 (1968) S. 143-148
- (3) R.W. Albrecht, W. Seifritz  
Die nodale Behandlung der dynamischen Kopplung zwischen Reaktorzonen mit Hilfe der stochastischen Kohärenzfunktion  
8. Reaktortheoretagung, München, März 1968,  
AED-Conf. 019-004

- (4) W. Seifritz, D. Stegemann  
An On-Line Reactivity Meter Based on Reactor Noise Using Two-Detector Crosscorrelation  
Vgl. Nucl. Appl. 6, 209 (1969)
- (5) W. Seifritz  
Die Bestimmung von kinetischen Reaktorparametern durch die Polarisationskorrelation des Neutronenrauschens im Frequenzbereich  
Dissertation, Univ. Karlsruhe 1969  
4/69-24
- (6) W. Seifritz  
The Polaritycorrelation of Reactor Noise in the Frequency Domain.  
Nuclear Applications, 7 (1969) S. 513-22
- (7) U. Twelmeier  
Ein Vergleich von Reaktorleistungsbestimmungen aus Aktivierungs- und Neutronenrauschmessung  
Diplomarbeit, Univ. Karlsruhe 1968
- (8) H. Bluhm, G. Fieg, F. Kappler, M. Kühle, M. Müller, H. Werle, E. Wattecamps  
Neutron Spectrum Measurements in Various SUAK Assemblies  
Proc. of the Conf. on the Physics of Fast Reactor  
Operation and Design, London 1969, p. 61
- (9) H. Werle, G. Fieg, H. Seufert, D. Stegemann  
Investigation of the Specific Energy Loss  $W$  of Protons in Hydrogen above 1 keV in View of Neutron Spectrometry  
Nucl. Instr. Meth.
- (10) H. Werle, G. Fieg, D. Stegemann  
Spektroskopie schneller Neutronen mit Protonen-Rückstoß-Proportionalzählrohren.  
Atomkernenergie 14, 333 (1969)

- (11) M. Kühle, E. Wattecamps  
Proposal for a Standard Spectrum to Check Techniques of Fast  
Neutron Spectrum Measurements  
EACRP-L-74 (1969)
- (12) F. Mitzel, K.E. Schroeter  
Gepulste Experimente an der Schnellen Unterkritischen Anlage  
Karlsruhe (SUAK) und Vergleich der Ergebnisse mit Berechnungen  
Nukleonik, 12 (1969) S. 110-17
- (13) K. Burkart, J. Schulz  
Anlage zur simultanen Aufnahme von Zerfallkurven vieler radio-  
aktiver Proben und zur Messung von Neutronenflußverteilungen in  
Kernreaktoren  
Kerntechnik 10 (1968) 131-135

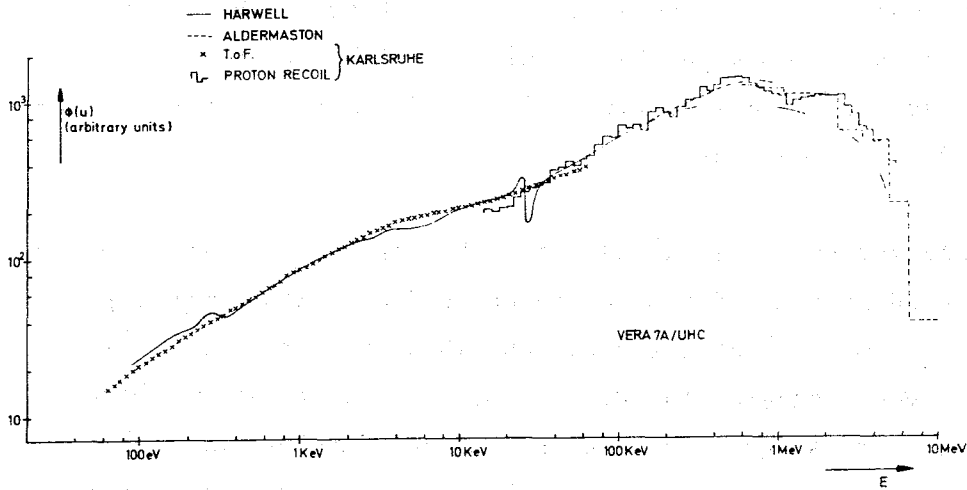
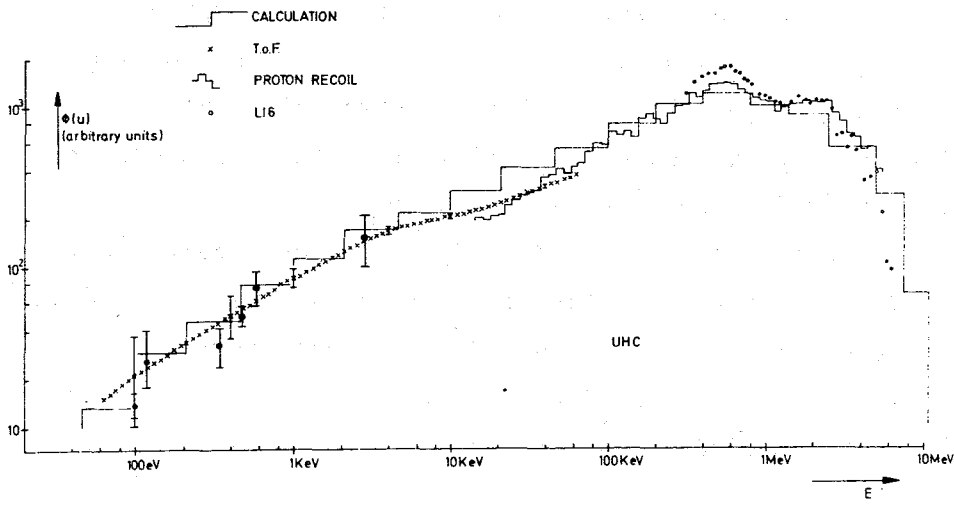
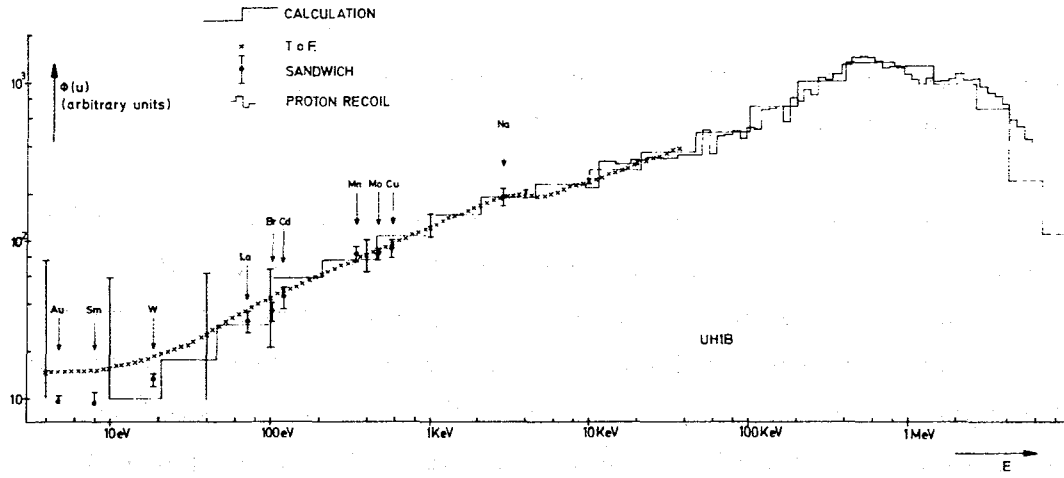


Abb. 1 Measured and calculated spectra of UH1B and UHC

1212. STARK ( L. Barleon, D.Kuhn, G.Kußmaul, H.Meister, W.Seifritz, INR  
Chr. Brückner, RB)

Im Februar 1968 wurde mit der bereits früher untersuchten Ladung 5 wieder eine schnell-thermische Anordnung aufgebaut, nachdem im Januar 1968 die Messungen an einer rein thermischen Anordnung abgeschlossen worden waren. Im Anschluß an Ladung 5 wurde im März 1969 bis September 1969 eine thermische Anordnung untersucht und im Oktober 1969 mit der ebenfalls schon früher untersuchten Ladung 3 wieder eine schnell-thermische Anordnung aufgebaut.

In der schnellen Zone der Ladung 5 wurde durch Zusatz von Polypropylen (s. Abb.2) ein Spektrum erzeugt, das dem eines dampfgekühlten schnellen Reaktors ähnelt. Mit Hilfe eines Pileoszillators wurde der Dopplerkoeffizient von geheizten  $U^{238}$ -Proben und die Reaktivitätswerte verschiedener Materialproben im Zentrum der schnellen Zone bestimmt. Eingehendere Untersuchungen galten dem Einfluß der Probengröße, der Frage der Additivität von Materialwerten und dem Übergangsverhalten des Neutronensignals während der Probenbewegung. Effekte, die durch Transport der im Oszillatorelement gebildeten Vorläufer verursacht werden, konnten durch ein kinetisches Modell beschrieben und bei der numerischen Auswertung absepariert werden.

Die gleichzeitige Auswertung mit Fourieranalyse und kinetischem Programm ergab übereinstimmende Werte. Ein Vergleich mit Störungsrechnungen auf der Grundlage verschiedener 26-Gruppen-Sätze zeigte, daß der H20-PMB-Satz im allgemeinen die Meßdaten am besten wiedergibt. Größere Abweichungen wurden bei Nb, Zr, C und  $B^{10}$  beobachtet.

Die Untersuchungen zur Frequenzanalyse des Reaktorrauschens wurden fortgeführt und die Anwendung eines darauf basierenden Reaktivitätsmeters erfolgreich erprobt. Im Rahmen der Arbeiten zur Absolutbestimmung von Spaltraten wurden eine Reihe von Standards für Parallelplatten-Spaltkammern hergestellt und Vergleichsmessungen mit anderen Methoden durchgeführt.

Die Ladung 3, deren Einheitszelle im Bereich der schnellen Zone in der Abb. 2 dargestellt ist, stand nach Wiederinbetriebnahme für umfangreiche Bestrahlungen zur Verfügung. Es wurden Bestrahlungen im Zusammenhang mit der Verfeinerung der Meßmethoden bei Sonden durchgeführt. Voruntersuchungen über die Anwendbarkeit einer Transmissionsmethode zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten wurden aufgenommen.

Veröffentlichungen zu 1212:

- (1) G. Kußmaul  
Zeitverhalten und Reaktivität schwach gekoppelter Spaltzonen  
Nukleonik, 12 (1968) S. 28-38
- (2) G. Kußmaul  
Theoretische und experimentelle Untersuchungen zum Zweipunktreaktor  
Dissertation, Univ. Karlsruhe 1968  
Externer Bericht 4/68-17
- (3) W. Seifritz, R.W. Albrecht  
Measurement and Analysis of the Coupled Core Coherence Function  
in a Two Node Symmetrical Reactor
- (4) H. Borgwaldt, M. Edelmann, F.W.A. Habermann, G. Kußmaul  
H. Meister, W. Seifritz, D. Stegemann  
Experience Obtained at Karlsruhe with Different Kinetic Methods  
of Reactivity Determination  
IAEA Panel on Reactivity Measurements, Wien, Dezember 1968  
KFK-Bericht 899
- (5) G. Kußmaul  
Prompt Jump Correction of Inverse Kinetics Rod Drop Measurements  
Nucl. Sc. Eng.

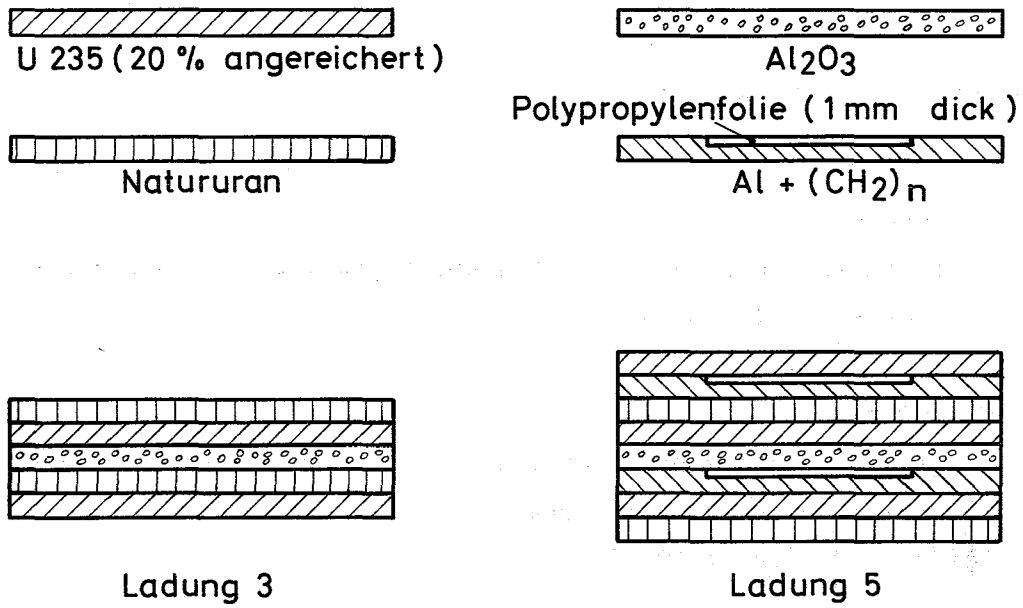


Abb. 2 Aufbau einer Einheitszelle in der schnellen Zone des STARK



1213. SNEAK

IAR: W.Bickel, R.Böhme, P.Engelmann, E.A.Fischer, P.Mc Grath, G.Günther, F.W.A.Habermann, F.Helm, G.Jourdan, E.Korthaus, M.Müller, W.Oosterkamp, S.Pilate (BN-Delegierter), F.Plum, A.M.Raberain, W.Scholtyssek, R.Schröder, P.L. van Velze, H.Walze, D.Wintzer, G. Wittek;

INR: L. Barleon, K.Böhnel, K.Durkart, M.Edelmann, G.Fieg, D.Kuhn, W.Seifritz, H.Seufert, H.Werle

Übersicht

Die Serie der Anordnungen SNEAK 3 diente der Untersuchung der physikalischen Eigenschaften dampfgekühlter schneller Reaktoren. Die Experimente an den Anordnungen 3A, die angereichertes Uran als Brennstoff benutzten, waren im Mai 1967 begonnen worden und wurden im März 1968 abgeschlossen. Darauf folgte die Reihe 3B, die in einer größeren Zone Plutonium als Brennstoff benutzte, diese Experimente dauerten bis September 1968.

SNEAK 4 diente zu Untersuchungen für das schnelle Core des KNK-Reaktors (KNK II). Diese Experimente dauerten 3 Monate, hierbei bestand ein enger Kontakt zur Firma INTERATOM.

Anfang 1969 folgte die Anordnung SNEAK-5, hierbei handelte es sich um ein  $k_{\infty} = 1$ -Experiment in einem Core von einfachem Aufbau.

Das INR beteiligte sich an den Experimenten, insbesondere im Falle von SNEAK 5, wo Coreauslegung und Experimentierprogramm im INR entworfen wurden.

Im 2. Quartal 1969 wurde die Serie der Anordnungen SNEAK 2 begonnen, die im Hinblick auf den SNR der Untersuchung physikalischer Eigenschaften von Natrium-gekühlten schnellen Reaktoren dienen. Die Anordnung 2A benutzte angereichertes Uran als Brennstoff, während SNEAK 2C einen größeren Plutoniumsektor enthielt.

Das Experimentierprogramm für SNEAK 2-SNR baute sich größtenteils direkt auf den vom SNR-Konsortium gegebenen Anregungen auf. Als "gemeinsames Experiment" wurden die Arbeiten an SNEAK-2-SNR in enger Zusammenarbeit mit französischen Gruppen in Cadarache durchgeführt. Erstmals wurden größere Mengen von MASURCA-Plutonium (in Stäbchenform) als wesentlicher Bestandteil eines SNEAK-Cores verwendet.

Ende 1969 begann der Umbau zur Anordnung SNEAK 6, an der ebenfalls Experimente zur Unterstützung der SNR Auslegung durchgeführt werden.

SNEAK wurde im Berichtszeitraum im 2-Schichtbetrieb gefahren.

### SNEAK 3

Die Anordnungen 3A (1) und 3B (2) hatten ein Corevolumen von etwa 500 l und eine Höhe von 80,3 cm, die Dicke des Blankets betrug zwischen 30 und 40 cm. Der Dampf wurde durch CH<sub>2</sub>-Plättchen simuliert. Zur Untersuchung von void Effekten wurde das CH<sub>2</sub> entfernt, während eine erhöhte Dampfdichte durch dickere Plättchen simuliert wurde. Die Anordnungen der Reihe 3B hatten im Zentrum eine Plutoniumzone von 29,9 cm Radius, die von einer Urankernzone umgeben war. In den 3B Anordnungen wurden auch zwei Modifikationen untersucht: Zunächst wurde das normalerweise verwandte Strukturmaterial Stahl in einer zentralen Zone durch Nickel und Molybdän ersetzt, um Inconel zu simulieren. Außerdem wurde in der Plutoniumzone ein Spaltproduktersatzgemisch zugegeben, um den Einfluß von Spaltprodukten zu simulieren.

Die Abbildungen 3 - 6 zeigen Geometrie und Einheitszelle der wichtigsten Anordnungen der Serie SNEAK 3, während Tabelle 1 die Zusammensetzung der homogenisierten Zonen zeigt. Die Ziffern hinter der Angabe 3A oder 3B haben folgende Bedeutung:

2: "normale Dampfdichte", d.h.  $0,0757 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$  im Kühlvolumen  
(35% des Corevolumens)

1: 40 % dieses Wertes.

In den verschiedenen Coreanordnungen wurden jeweils zahlreiche physikalische Parameter gemessen, wie kritische Masse, Bucklings, Spektrum, Importance-Spektrum, Ratenverhältnisse, Ratentraversen, Materialwerte, Dopplereffekt, Rossi- $\alpha$ . Hierzu traten noch die Reaktivitätsänderung bei Variation der Dampfdichte (3) sowie eingehende Experimente zur Ermittlung der Auswirkung von Heterogenitäten (4) (5).

Hierdurch gelang es, das Verständnis der Physik dampfgekühlter schneller Reaktoren zu verbessern und durch Vergleich der Meßdaten Fehler in den bei uns verwendeten Multigruppensätzen aufzudecken. Der für die Interpretation der Messungen an SNEAK-3A-1 relativ erfolgreiche SNEAK-Satz und seine Fortentwicklungen SNEAK-PMB und SNEAK-PMB-Alpha erwiesen sich bereits bei der Urananordnung 3A-2, in stärkerem Maße jedoch bei den Plutoniumanordnungen 3B-2 als weniger geeignet (s.Tab. 2). Die Gründe hierfür sind in fehlerhaften Kerndaten der Brennstoffnuklide zu suchen. Die Auswertung der Messungen an der mit Spaltproduktersatzgemisch vergifteten Anordnung gibt einen Hinweis, daß der Einfluß der Spaltprodukte kleiner (20%) als bisher angenommen ist.

Die Dopplereperimente mit Plutoniumproben wurden auch dazu benutzt, eine Aussage über die Größe des Pu- $\alpha$  Wertes zu erhalten (6). Es stellte sich eindeutig heraus, daß die Daten von Pitterle <sup>+</sup>) wesentlich bessere Übereinstimmung zwischen Rechnung und Experiment ergaben, als die bis dahin von der GfK benutzten Werte nach Schmidt <sup>++</sup>) (s.Abb.7).

Über die Messungen wurde die Firma AEG laufend unterrichtet, mit deren Physikern auch eine Reihe von Diskussionsbesprechungen geführt wurden. Die Messungen an SNEAK-3 drangen in Gebiete vor, die auch im internationalen Rahmen Neuland waren. Die Verwendung eines klar definierten Spaltprodukt-Ersatzgemisches zum Studium des Abbrandverhaltens erregte großes Interesse im Ausland.

#### SNEAK 4

Besondere physikalische und technische Probleme ergaben sich bei der Auslegung des KNK II-Reaktors daraus, daß in den bestehenden Reaktortank ein schnelles Core eingebaut werden mußte, das bei gleicher Gesamtleistung in einer zentralen Testzone geeignete Testbedingungen für Schnellbrüter-Brennelemente bietet und durch leichte Moderation einer umgebenden Treiberzone einen hinreichend großen negativen Dopplereffekt besitzt.

<sup>+</sup>) Pitterle, TA. et al "Calculations of Fast Critical Experiments Using ENDF/B Data File, 2nd Conf. on Neutron Cross Section Technology, Washington March 1968

<sup>++</sup>) J.J. Schmidt, KFK-Bericht 120 (1966)

Die Messungen an SNEAK-4 orientierten sich an dieser speziellen Problematik und konzentrierten sich deshalb auf die Bestimmung des Dopplereffekts in der Treiberzone und seiner Abhängigkeit von der Kontrollstabstellung und der Wasserstoffverteilung sowie auf die Messung der globalen und lokalen Leistungsverteilung, insbesondere an Zonengrenzen und in der Nähe von Kontrollstäben, und die Bestimmung der Stabwerte.

Die Anordnung 4A (7) (8), bestand aus einem geometrisch einfachen reflektierten 2-Zonen core (s. Abb. 8,9). Sie diente dazu, Datensätze und Rechenmethoden für einen dem KNK II ähnlichen, jedoch vereinfachten Aufbau zu testen. Die Ergebnisse der  $k_{\text{eff}}$  Berechnung zeigt Tab. 3. Die Anordnungen der Reihe 4B befaßten sich vornehmlich mit Kontrollstabeinflüssen auf den Dopplereffekt (s. Abb.10). Die Übereinstimmung zwischen Rechnung und Experiment für  $k_{\text{eff}}$  sowie für die Kontrollstabwerte zeigen die Tab. 3 und 4.

Weiterhin wurden die Leistungsverteilung bestimmt, sowie Materialwerte, Spektrum und Rossi- $\alpha$ .

#### SNEAK 5

Diese Anordnung (9) hatte hauptsächlich das Ziel, physikalische Untersuchungen über die Neutronenbilanz durchzuführen. Das Core bestand aus zwei Zonen, wobei die zentrale Testzone so ausgelegt war, daß  $k_{\infty} = 1$  angenähert wurde. Wegen des Verschwindens der Leckage in einer derartigen Zone läßt sich eine einfache Neutronenbilanz aufstellen, mit der die sonst in Null-Leistungsreaktoren schwer zu messende Einfangrate in  $\text{Pu}^{239}$  annähernd bestimmt werden kann:

Während in den ersten beiden Varianten SNEAK 5A und 5B nur eine  $k_{\infty}$ -Bestimmung mittels Void-Substitution und Traversen durchgeführt wurden, umfaßten die Arbeiten an SNEAK 5C ein ausführliches Experimentierprogramm. Es enthielt Spektrums-, Materialwert- und Dopplermessungen mit dem Loop. Außerdem wurden spezielle  $\text{U}^{235}$ - bzw.  $\text{Pu}^{239}$ -Miniatur-Spaltkammern entwickelt, um die  $\text{U}^{235}$ - bzw.  $\text{Pu}^{239}$ -Spaltrate innerhalb der  $\text{PuO}_2\text{UO}_2$ -Plättchen zu messen.

Die Geometrie der Anordnungen sowie der Aufbau der Einheitszelle zeigen die Abb. 11 bis 13. Den Vergleich zwischen Rechnung und Experiment für  $k_{\infty}$  in Abhängigkeit vom Verhältnis Graphit/Uran für die verschiedenen Anordnungen zeigt die Abb. 14. Die Übereinstimmung zwischen Rechnung und Experiment für die Feinstruktur der Spaltrate von  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$  innerhalb der Zelle zeigt Abb. 15.

#### SNEAK -2

Diese Serie dient zusammen mit den Serien SNEAK 6 (1970) und einer 1971/72 durchzuführenden Serie von Experimenten der Unterstützung der SNR-Auslegung. In der SNEAK-2 Serie wurden die Eigenschaften von natriumgekühlten Zweizonen-Cores mit Uran- und Plutonium-Brennstoff untersucht. In Geometrie und Zusammensetzung war die Anordnung in großen Zügen dem SNR-Konzept nachgebildet; eine genaue Simulierung der SNR-Daten wurde nicht angestrebt, da die Aufgabe der Anordnung mehr in der Verifizierung von Rechenmethoden als in der direkten Vorhersage technischer Daten des Prototyps bestand.

Das Experimentierprogramm konzentrierte sich auf die Gebiete, die die Industrie beim derzeitigen Status des Brüterprojekts besonders interessierten. Im Vordergrund standen dabei der Na-Void-Effekt sowie die Messung von Leistungsverteilungen und des Einflusses von Kontrollstäben auf Reaktivität und Flußverteilung.

SNEAK-2A war ein zylindrisches Core von 60 cm Höhe mit Uran als Brennstoff.

Die geometrische Anordnung sowie den Aufbau der Einheitszelle kann man aus der Abb. 16 und 17 entnehmen, die Zusammensetzung der homogenisierten Zonen zeigt Tab. 5. An dieser Anordnung wurden vornehmlich Leistungstraversen und Na-void-Traversen, außerdem Spektren und Materialwerte bestimmt. Zur Bestimmung der kritischen Masse einer entsprechenden Plutoniumanordnung wurde in mehreren Schritten ein  $90^{\circ}$  Plutoniumsektor eingebaut (SNEAK 2B).

Die Auswertung dieser Substitutionsexperimente ließ eine Extrapolation auf die kritische Größe eines reines Plutonium-Cores zu.

Um ein größeres, ungestörtes Experimentierfeld im Plutoniumsektor zu erhalten, wurde dieser mit einer ca. 15 cm dicken Pufferzone mit MASURCA-Pu als Brennstoff umgeben. (SNEAK-2C)

Die geometrische Anordnung zeigt Abb. 18, während die Abb. 19 bis 20 die mit SNEAK Plättchen gebildeten Einheitszellen der inneren und äußeren Corezone zeigt. Abb. 21 zeigt die Normalzelle der MASURCA Stäbe in der Pufferzone. Die homogenisierten Zusammensetzungen der Plutoniumzonen zeigt Tab. 6.

Radiale Spaltratentraversen durch Core und Blanket wurden in dieser Anordnung mit normalem SNEAK-Blanket ( $U_{abg}$ ) und mit einer an den Sektor anschließenden Brüterblanketzone ( $UO_2 + Na$ ) durchgeführt. Außerhalb des Brüterblankets wurde eine Absetzposition für bestrahlte Brennelemente simuliert, die Traversen wurden bis zu dieser Position fortgesetzt. Weiterhin wurde eine axiale und eine radiale Traverse des Na-Void-Effekts gemessen.

Hieran schlossen sich ausführliche Untersuchungen mit simulierten SNR-Kontrollstäben an. Messungen wurden sowohl für realistische Positionen an der Grenze der Anreicherungszonen (mit bis zu 3 simulierten Stäben) als auch in der rechnerisch leichter beherrschbaren Position im Core-Zentrum durchgeführt. Die Messungen zielten besonders auf Untersuchung der Leistungsspitzen zwischen den Kontrollstäben, sowie der gegenseitigen Abschattungseffekte der Stäbe. Schließlich wurde noch der Einfluß von Kontrollstäben auf die radiale Na-void-Traverse untersucht.

Die Auswertung der an den Aufbauten der Reihe SNEAK 2 gewonnenen Meßergebnisse war am Ende des Berichtszeitraumes noch im Gange, folgende Ergebnisse lagen vor:

Die Rechnungen zur Auswertung wurden mit den Querschnittsätzen NAPPMB und MOXTOT durchgeführt. Für beide Sätze lagen die Abweichungen bei  $k_{eff}$ -Berechnungen in der Größenordnung 1 %. Bei den Rechnungen zu den Kontrollstabexperimenten wurde erstmals in größerem Umfang der dreidimensionale Flußsynthese-Code KASY angewendet. In den Fällen, wo ein Vergleich mit den Ergebnissen herkömmlicher Diffusionsprogramme möglich war, zeigte sich eine sehr gute Übereinstimmung.

### Entwicklungsarbeiten für SNEAK

1968/69 wurden die an der SNEAK verwendeten experimentellen und theoretischen Methoden weiterentwickelt und ergänzt. Insbesondere sind folgende Gebiete zu nennen:

#### a) Spaltratenmessungen

Hierunter fällt die Entwicklung von Miniaturspaltkammern für Messungen innerhalb von  $\text{PuO}_2/\text{UO}_2$ -Plättchen, Verfeinerung von Ratentraversen durch Verwendung kleinerer Meßkanäle und Spaltkammern, Verbesserungen von Spaltkammern zur absoluten Folieneichung und die Verwendung von  $\text{PuO}_2/\text{UO}_2$  SNEAK-Plättchen als Aktivierungsdetektoren. Genaue Untersuchungen der  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlung von aktivierten Uranfolien und  $\text{PuO}_2/\text{UO}_2$ -Plättchen sind im Gange.

Mit der Entwicklung einer zuverlässigen Methode für die Messung mit Spaltspurdetektoren wurde begonnen.

#### b) Materialwertmessungen

Erstmals wurden Materialwertmessungen mit dem vertikalen Pile-Oszillator durchgeführt. Die Meßgenauigkeit erwies sich als um eine Größenordnung besser als mit der horizontalen Probenschublade.

Die theoretischen Arbeiten über Materialwerte in heterogener Umgebung wurden fortgeführt.

#### c) Messung der Neutroneneinflußfunktion

Unter Verwendung einer größeren Anzahl von Neutronenquellen wurden Messungen der Neutroneneinflußfunktion im Energiebereich zwischen 1 keV und 10 MeV durchgeführt (27).

Für die Messung mit moderierten Quellen wurde die Entwicklung einer neuen Technik eingeleitet, die eine höhere Meßgenauigkeit in Pu-Cores ermöglicht. Einige neue Quellen mit höherer Intensität und geringeren Materialwert wurden beschafft. Sie verwenden  $\text{Pu}^{238}$  als  $\alpha$ -Strahler anstelle von  $\text{Am}^{241}$ .

Mit diesen Quellen wird der Pile-Oszillator für die Messungen verwendet werden können.

d) Spektrumsmessungen mit Resonanzsonden im Bereich  $E < 10$  keV

Die Arbeiten zur Erweiterung des Meßbereiches der Sandwichtechnik wurden abgeschlossen. 21 verschiedene Resonanzabsorber konnten als Detektoren verwendet werden. Mit ihnen können Spektren ähnlich denen in dampfgekühlten schnellen Brutreaktoren auf 10 - 20 % und Spektren ähnlich denen in natriumgekühlten schnellen Brutreaktoren auf 10 - 40 % genau gemessen werden.

## e) Substitutionstechnik

Die Substitutionsmethoden zur Bestimmung von materiellen Bucklings und kritischen Radien wurde in SNEAK 3 in Zylindergeometrie und in SNEAK 2 in Sektorgeometrie angewandt.

Zur Substitution in Zylindergeometrie wurden eingehende analytische Untersuchungen angestellt. Die Anwendbarkeit der Methoden für Sektoren wurde durch numerische Rechnungen überprüft.

## f) Datenverarbeitung

Ein DDP 124 Rechner wurde installiert und zunächst im offline Betrieb zur Auswertung der Experimente verwendet. Nach Einbau einer Interface-Elektronik wurde auch der on-line Betrieb aufgenommen, der jetzt für viele SNEAK-Experiments eine schnellere und wirtschaftlichere Durchführung ermöglicht.



Veröffentlichungen zu 1213:

- (1) R. Schröder, L. Barleon, K. Böhnel, K. Burkart, M. Edelmann, P. Engelmann, G. Fieg, E.A. Fischer, F.W.A. Habermann, E. Korthaus, D. Kuhn, W. Maier, A. Müller, W. Oosterkamp, A.M. Raberain, H. Seufert, W. Seifritz, P.L. van Velze, P. Walze, H. Werle, D. Wintzer  
Physics Investigation of Uranium Fuelled Fast Steam Cooled Reactors in SNEAK, Assemblies 3 A-0, 3A-2, 3A-3  
KFK-Bericht 847, EUR 3721e
- (2) M. Edelmann, E.A. Fischer, F. Helm, R. Schröder  
Physics Measurements in the SNEAK facility on Steam-Cooled Fast Reactor Systems with Uranium and Plutonium Fuel  
Proceedings of the Conference on "The Physics of Fast Reactor Operation and Design, London 1969, p. 113
- (3) P. Engelmann, A.M. Raberain, D. Wintzer  
Untersuchung der Abhängigkeit der Reaktivität eines schnellen dampfgekühlten 500 l Reaktors von der Dampfdichte in SNEAK-3A  
KFK-Bericht 776, EUR 3955 d
- (4) R. Böhme, H. Seufert  
Uranium Reaction Rate Measurements in the Steam Cooled Fast Reactor SNEAK, Assembly 3 A-2  
KFK-Bericht 811, EUR 3970 e
- (5) R. Böhme, H. Seufert  
Comparison of Measured and Calculated Uranium Reaction Rates in a Steam-Cooled Fast Assembly in SNEAK  
Nuclear Appl. and Techn. 7 (6), S. 494-504 (1969)
- (6) E.A. Fischer  
Interpretation von Dopplerproben-Messungen in schnellen kritischen Nullenergieanlagen  
KFK-Bericht 844, EUR 3980 d

- (7) P. Engelmann, L. Barleon, W. Bickel, H. Bluhm, R. Böhme, K. Böhnel, D. Eitner, G. Fieg, E. A. Fischer, G. Günther, M. Müller, W. J. Oosterkamp, A. M. Raberain, E. Ruppert, W. Seifritz, P. L. van Velze, H. Werle, H. Wilhelm, G. Wittek, J. Woite  
SNEAK 4, A Series of Physics Experiments for KNK II  
KFK-Bericht 1022, EUR 4303 e
- (8) D. Eitner, P. Engelmann, E. Ruppert  
Physics Considerations of the Design and Mock-up Experiments on SNEAK for KNK II  
Proceeding of the Conf. on "The Physics of Fast Reactor Operation and Design, London 1969, p. 201
- (9) K. Böhnel, H. Meister, R. Böhme, R. Boix-Amat, R. Eberle, E. Korthaus, D. Kuhn, H. Küsters, W. J. Oosterkamp, H. Seufert, H. Werle  
A Fast Reactor Lattice Experiment for Investigation of  $k_{\infty}$  and Reaction Rate Ratios in SNEAK  
Assembly 5, KFK-Bericht 1176 (1970)
- (10) F. Helm  
A Method of Evaluating Progressive Substitution Experiments for the Determination of Bucklings and Critical Radii  
KFK-Bericht 975 (1969)
- (11) F. Helm  
Experiments on SNEAK Using the Method of Progressive Substitution for Critical Mass Determination in Fast Systems  
Transactions of the ANS, 11 (1968) 595
- (12) L. Barleon  
Messung des Dopplerkoeffizienten an verschiedenen Kernbrennstoffproben in einer schnellen und schnellthermischen Reaktorordnung mit der Pileoszillatormethode  
Dissertation, Univ. Karlsruhe 1969

- (13) H. Borgwaldt, M. Edelmann, F.W.A. Habermann, G. Kußmaul, H. Meister, W. Seifritz, D. Stegemann  
Experience Obtained at Karlsruhe with Different Kinetic Methods of Reactivity Determination  
KFK-Bericht 899, EUR 4166 e
- (14) D. Wintzer  
Zur Berechnung von Heterogenitätseffekten in periodischen Zellstrukturen thermischer und schneller Reaktoren  
Dissertation, Universität Karlsruhe 1968  
KFK-Bericht 743, EUR 3725 d
- (15) P. Engelmann  
Experimente zur Untersuchung des neutronenphysikalischen Verhaltens dampfgekühlter schneller Reaktoren an der SNEAK  
Vortrag, Öster. Phys. Gesellschaft, Tagung 23.-29.9.1968 in Graz  
Acta Physica Austriaca, 29, 54-85, 1969
- (16) P. Engelmann  
Integrale Experimente an schnellen Null-Energie-Reaktoren  
Plenarvortrag auf der Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums in Frankfurt  
ATOMKERNENERGIE 15, 39 (1970)
- (17) U. Däunert  
Experimentelle Bestimmung des Doppler-Koeffizienten in der Schnellen Null-Energie Anordnung Karlsruhe  
Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums in Frankfurt
- (18) F.W.A. Habermann  
Eine Methode zur Kompensation der Ortsabhängigkeit bei reaktorkinetischen Experimenten  
Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums in Frankfurt
- (19) E.A. Fischer  
A Method to Calculate Reactivity Worth by Integral Transport Theory  
KFK-Bericht 995

- (20) W.J. Oosterkamp  
The Measurement and Calculation of the Reactivity of Samples in a  
Fast Heterogeneous Zero Power Reactor  
KFK-Bericht 1036 (1969)
- (21) T.J. Connolly, F. de Kruijf  
Part A: An Analysis of Twenty-four Isotopes for Use in Multiple Foil  
(Sandwich) Measurements of Neutron Spectra below 10 keV  
KFK-Bericht 718 (1968)
- (22) J.J. Schmidt  
Part B: Recommended Resolved and Statistical Resonance Parameters  
for Twenty-four Isotopes  
KFK-Bericht 718 (1968)
- (23) M. Edelmann  
Neue Methoden zur Rossi- $\alpha$ -Messung  
Dissertation, Universität Karlsruhe 1967  
Externer Bericht 4/68-15
- (24) H. Seufert  
Untersuchung des Dopplereffektes in schnellen Neutronenspektren  
nach neuen experimentellen Methoden  
Dissertation, Universität Karlsruhe 1967  
Externer Bericht 4/68-19
- (25) F.W.A. Habermann, H. Walze  
An Iterative Method for Evaluation of Period Measurements in a  
Reactor Containing an Intrinsic Neutron Source  
Nuclear Science and Engineering, Technical Note 33 (1968) 264-265
- (26) H. Walze  
Aufbau und Betriebsweise des SNEAK-Reaktivitätsmessers  
KFK-Bericht 739, EUR 3722 d
- (27) E. Korthaus  
Messung der Energie- und Ortsabhängigkeit der Neutroneneinflußfunktion  
in schnellen kritischen Null-Energie-Anordnungen.  
KFK-Bericht 1141 (1970)

Tabelle 1

Atomkerndichten (in  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ) der SNEAK-Anordnungen 3A und 3B

	3A-1			3A-2			3B-2 <sup>b</sup>				
	core zone 1	core zone 2	blanket	core zone 1	core zone 2	blanket	Pu zone	U zone 1	U zone 2	Inconel zone	zone with fission products
Pu239							14.76			14.76	14.76
Pu240							1.33			1.33	1.33
Pu241							0.11			0.11	0.11
Pu242							0.06			0.06	0.06
U235	20.314	20.221	1.54	20.31	20.25	1.625	0.56	20.404	20.25	0.56	0.56
U238	81.023	81.066	399.3	81.04	81.21	399.414	81.86	81.39	81.26	31.86	81.86
Al	128.8	128.9		129.10	129.36		125.6	129.66	129.47	127.4	126.4
C	4.12	4.13	0.14	9.32	9.08	0.14	9.73	8.76	9.00	9.56	9.73
Co				0.19	0.18		0.14	0.18	0.19		0.14
Cr	36.6 <sup>c</sup>	36.7 <sup>c</sup>	11.9 <sup>c</sup>	34.53	34.36	11.08	33.72	34.09	34.31	17.41	33.72
Fe	123.1	123.3	40.1	121.85	121.33	39.55	119.7	120.47	121.16	61.99	119.7
H	7.40	7.42		17.92	17.45		18.49	16.81	17.29	18.49	18.49
Mg	0.37	0.37		0.64	0.64		1.31	0.65	0.65	1.33	1.31
Mn				1.94	1.96	0.87	2.23	1.99	1.97	1.47	2.23
Ni	19.0	19.0	10.2	18.54	18.27	9.84	17.55	18.43	18.23	95.00	17.55
O	144.7	144.8		145.29	145.67		122.2	146.28	145.80	122.2	128.2
Si	1.84	1.88	0.46	1.88	1.86	0.46	2.54	1.84	1.86	1.79	2.54
Ti	0.53	0.55	0.2	0.40	0.39		0.30	0.39	0.39		0.30
Mo				0.39 <sup>d</sup>	0.39 <sup>d</sup>	0.19 <sup>d</sup>	0.29	0.40 <sup>d</sup>	0.40 <sup>d</sup>	8.85	0.29
Nb							0.09			0.05	
SPP (fission products)											2.72

a Für die Rechnungen wurde Co zu Fe addiert, Mg zu Al, Mn zu Cr und Nb zu Mo

b Blanket wie 3A-2

c enthält Mn

d enthält Nb

Tabelle 2

Berechnete  $k_{\text{eff}}$ -Werte für die kritischen Anordnungen

Cross section set	SNEAK (original)	SNEAK (final)	PMB	PMB- $\alpha$	ABN	Heterogeneity correction
Assembly						
3A-1	0.9895				1.019	
3A-2	0.9835		0.9795		1.006	$4.31 \times 10^{-3}$
3B-2	0.9750	0.9791	0.9793	0.9652	1.0216	$2.55 \times 10^{-3}$
3B-2-Inconel	0.9731	0.9769	0.9771	0.9636	1.0180	$3.89 \times 10^{-3}$
3B-2S	0.9647	0.9686	0.9687	0.9556	1.0119	
3B-2 extrapolated ( $R_0=44.97\text{cm}$ ) <sup>a</sup>	0.9678	0.9740	0.9767	0.9567	1.0265	$2.06 \times 10^{-3}$
3B-2-Inconel extrapolated ( $R_0=46.9\text{cm}$ ) <sup>a</sup>	0.9625	0.968	0.971	0.951	1.018	

<sup>a</sup> Extrapoliert nach Substitutionsexperiment

Tabelle 3  $k_{\text{eff}}$  für die SNEAK-4 Anordnungen

Anordnung	Berechnungsmethode <sup>+) )</sup>	$k_{\text{eff}}$ berechnet	$k_{\text{eff}}$ gemessen	Benutzter $k_{\text{eff}}$ -Wert	$\frac{k_{\text{eff, ber.}}}{k_{\text{eff, gem.}}}$
SNEAK-4A	2-d (x,y) Diffusion	0.971	1.0056	$6.11 \cdot 10^{-3}$	
	S4	+ 0.015			
	ZERA	+ 0.007			
		<u>0.993</u>			0.987
	MOCA	0.986			
	ZERA	+ 0.007			
		<u>0.993</u>			0.987
SNEAK-4B-1	2-d (x,y) Diffusion	0.956	1.0007	$6.01 \cdot 10^{-3}$	
	S4	+ 0.020			
	ZERA	+ 0.005			
	STREAMING	+ 0.005			
		<u>0.986</u>			0.985
	MOCA	0.981			
	ZERA	+ 0.005			
		<u>0.986</u>			0.985
SNEAK-4B-2	2-d (r,z) Diffusion	0.963	1.0065	$5.85 \cdot 10^{-3}$	
	S4	+ 0.023			
	ZERA	+ 0.004			
	STREAMING	+ 0.002			
		<u>0.992</u>			0.986
	MOCA	0.986			
	ZERA	+ 0.004			
		<u>0.990</u>			0.984
SNEAK-4B-3	2-d (x,y) Diffusion	0.967	1.0060	$5.85 \cdot 10^{-3}$	
	S4	+ 0.022			
	ZERA	+ 0.004			
	STREAMING	+ 0.002			
		<u>0.995</u>			0.989
	MOCA	0.996			
	ZERA	+ 0.004			
		<u>1.000</u>			0.994

<sup>+) )</sup> ZERA Zellrechnung für Heterogenitätskorrektur  
MOCA Monte Carlo Rechnung, Standardabweichung 0,003

Tabelle 4

## Simulation der KNK-II Kontroll-Stäbe in SNEAK 4

Anordnung	Berechnungs- methode	$k_{\text{eff}}$ berechnet	$k_{\text{eff}}$ gemessen	Benutzter $\beta_{\text{eff}}$ Wert	$\frac{k_{\text{eff}} \text{ ber.}}{k_{\text{eff}} \text{ gem.}}$	Experiment. Stabwert
SNEAK-4B-1	2-d (x,y) diffusion	0.456				
	S4	+ 0.020				
	ZERA	+ 0.005				
	STREAMING	+ 0.005	1.0007	$6.01 \cdot 10^{-3}$	0.985	
		<u>0.986</u>				
SNEAK-4B-1-1 (1 Kontroll- stab)	2-d (x,y) diffusion	0.966				
	S4	+ 0.020				
	ZERA	+ 0.005				
	STREAMING	+ 0.004	1.0102	$5.95 \cdot 10^{-3}$	0.984	2.38 %
		<u>0.995</u>				
SNEAK-4B-1-2	2-d (x,y) diffusion	0.956				
	S4	+ 0.021				
	ZERA	+ 0.005				
	STREAMING	+ 0.004	1.0003	$5.95 \cdot 10^{-3}$	0.985	
		<u>0.986</u>				
SNEAK-4B-1-3 (2 Kontroll- stäbe)	2-d (x,y) diffusion	0.968				
	S4	+ 0.022				
	ZERA	+ 0.005				+ 2.63 %
	STREAMING	+ 0.003	1.0108	$5.89 \cdot 10^{-3}$	0.987	<u>5.01 %</u>
		<u>0.998</u>				
SNEAK-4B-3 (3 Kontroll- stäbe)	2-d (x,y) diffusion	0.967				
	S4	+ 0.022				
	ZERA	+ 0.004				+ 2.19 %
	STREAMING	+ 0.002	1.0060	$5.85 \cdot 10^{-3}$	0.989	<u>7.20 %</u>
		<u>0.995</u>				

Tabelle 5: SNEAK 6, Atomzahldichten in den Uranzonen ( $10^{24}$  at/cm<sup>3</sup>)

	Uranzone R1			Uranzone R2		
	SNEAK-2-SNR Normalzelle, Typ 10	SNEAK-2-SNR Vergiftungszelle, <sup>+</sup> Typ 10-2	MASURCA Normalzelle	SNEAK-2-SNR Normalzelle, Typ 11	SNEAK-2-SNR Ersatzzelle, Typ 11-2	MASURCA Normalzelle
U235	1.87592-3	1.8772-3	1.898696-3	2.53337-3	2.528375-3	2.519928-3
U238	6.51055-3	6.51505-3	6.432459-3	5.850224-3	5.838684-3	5.805567-3
Cr	3.43137-3 } 3.58857-3	3.40535-3 } 3.5764-3	3.27533-3	3.04468-3 } 3.18748-3	2.807126-3 } 2.985566-3	3.27533-3
Mn	1.572-4 }	1.7105-4 }		1.428-4 }	1.7844-4 }	
Fe	1.21953-2	1.215648-2	1.219745-2	1.21079-3	1.132391-2 } 1.133431-2	1.2119745-2
Co		5.2-6		5.3-7	1.04-5 }	
Ni	1.86662-3	1.9261-3	1.9430-3	2.359664-3	2.1539-3	1.974502-3
O	9.04535-3 } 1.207845-2	9.0516-3 } 1.227632-2	1.220392-2	1.00711-2 } 1.25861-2	1.00512-2 } 1.255965-2	1.220392-2
C	3.0331-3 }	3.22472-3 }		2.515-3 }	2.50845-3 }	
Na	8.76304-3	8.7691-3	9.111058-2	9.54279-3	4.9514-3 } 9.4294-3	9.111058-3
Al					4.478-3 }	
Mg					4.58-5	
Ti	2.6-5	1.94-5		1.6-5	2.16-5	
Si	1.64-4	1.6110-4		1.478-4	1.5813-4	
H	1.061-4	1.0616-4		8.78-5	8.76-5	
B10		1.5327-4				
B11		6.2875-4				

<sup>+</sup> pro Leerschachtel wurden 2g B<sub>4</sub>C verwendet

wobei n·m-p bedeutet n·mx10<sup>-p</sup>



Tabelle 6 : SNEAK 6, Atomzahldichten in den Pu-Zonen ( $10^{24}$  at/cm<sup>3</sup>)

	Pu-Zone Z1			Pu-Zone Z2		
	SNEAK-2-SNR Normalzelle, Typ 12	MASURCA	SNR Prototyp	SNEAK-2-SNR Normalzelle, Typ 13	MASURCA	SNR Prototyp
Pu239	1.27556-3	1.272516-3	9.6859-4	1.683966-3	1.6966891-3	1.32518-3
Pu240	1.1459-4	1.17360-4	2.8306-4	1.51277-4	1.564798-4	3.8729-4
Pu241	1.04-5	1.113-5	3.204-5	1.3748-5	1.484087-5	4.384-5
Pu242	5.23-7	1.38-6	6.4-6	6.9-7	1.84-6	8.73-6
U235	4.411-5	1.8127-5	1.2179-5	3.7422-5	1.25-5	9.8-6
U238	6.02236-3	6.23935-3	4.8234-3	5.082665-3	5.548093-3	3.9117-3
Cr	3.086813-3 } 3.233963-3	3.412666-3	2.938-3	3.673886-3 } 3.970456-3	3.4584447-3	2.995-3
Mn	1.4715-4			1.9657-4		
Fe	1.19602-2	1.294914-2	1.168-2	1.309755-2	1.319970-2	1.1908-2
Co	3.8-6			9.0-6		
Ni	2.2775-3	1.738203-3	2.114-3	1.988495-3	1.70142-3	2.156-3
O	1.259182-2 } 1.264232-2	1.220392-2	1.22513-2	1.394887-2 } 1.400957-2	1.220392-2	1.1373-2
C	5.05-5			6.07-5		
Na	8.974955-3	9.111058-2	1.0321-2	7.109095-3 } 9.121185-3	9.111058-3	1.0321-2
Al	3.9-6			2.01209-3		
Mg	1.7-6			1.82-5		
Ti	7.7-6			2.05268-5		
Si	1.53-4			1.886-4		

wobei n·m-p bedeutet n·mx10<sup>-p</sup>

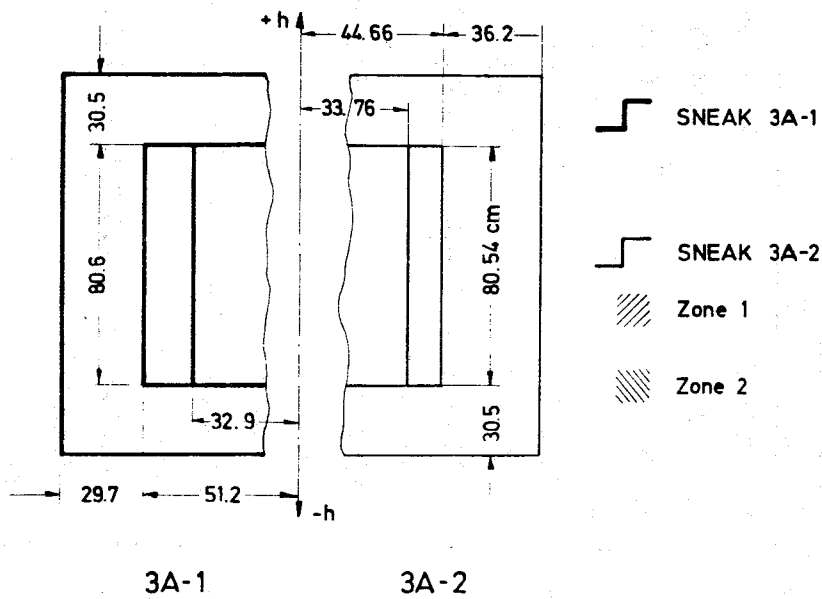
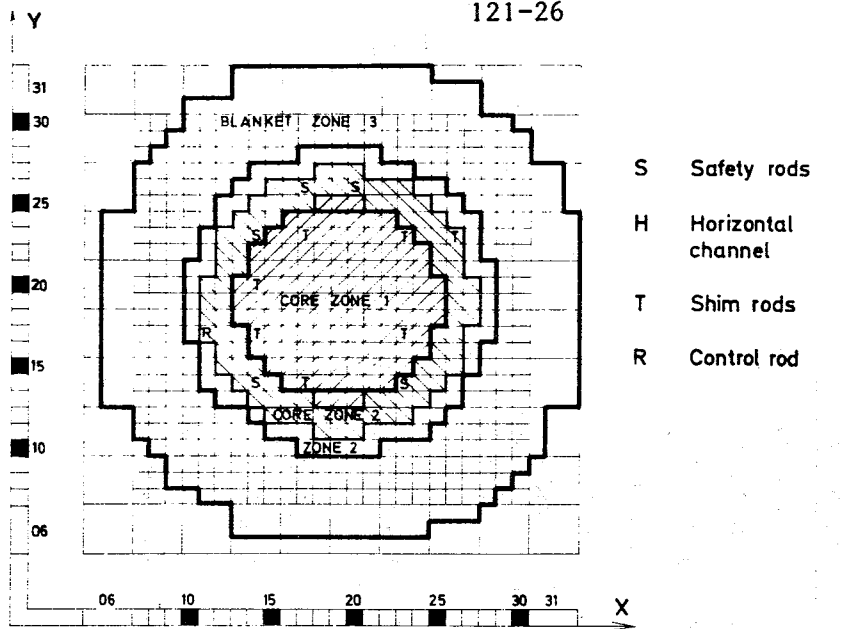
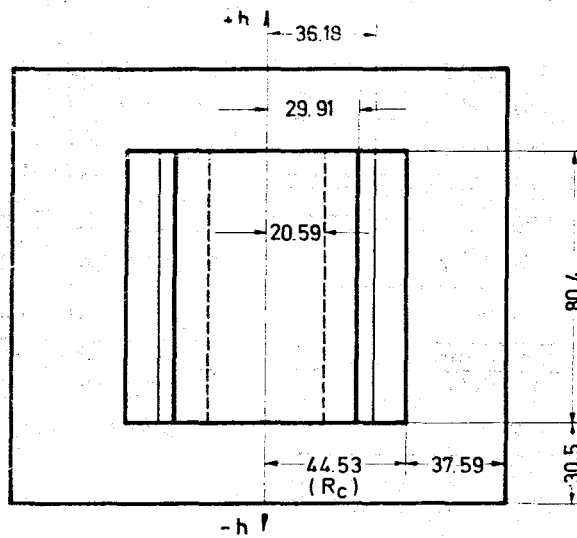
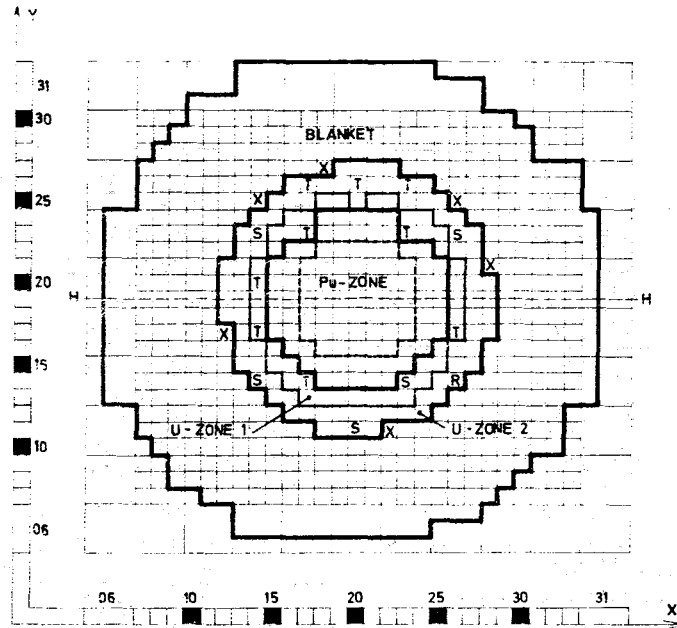


Abb. 3 Configuration and dimensions of SNEAK assembly 3A-1 and 3A-2

CH <sub>2</sub> in steel	CH <sub>2</sub> in steel
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
U 235 20% wt	U 235 35% wt
Al 25%	Al 25%
unit cell for zone 1	CH <sub>2</sub> in steel
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
	U nat
	Al 25%
	above sequence 4 times repeated
	CH <sub>2</sub> in steel
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
	U 235 35% wt
	Al 25%
	unit cell for zone 2

Abb. 4 Unit cells used in SNEAK 3A-1 and 3A-2



S, T, R, H, as in Fig. 1

$R_C$  (Inconel) = 45.6 cm

Zone modified  
 Core  
 Elements added

for Inconel experiment

Abb. 5 Configuration and dimensions of SNEAK assembly 3B

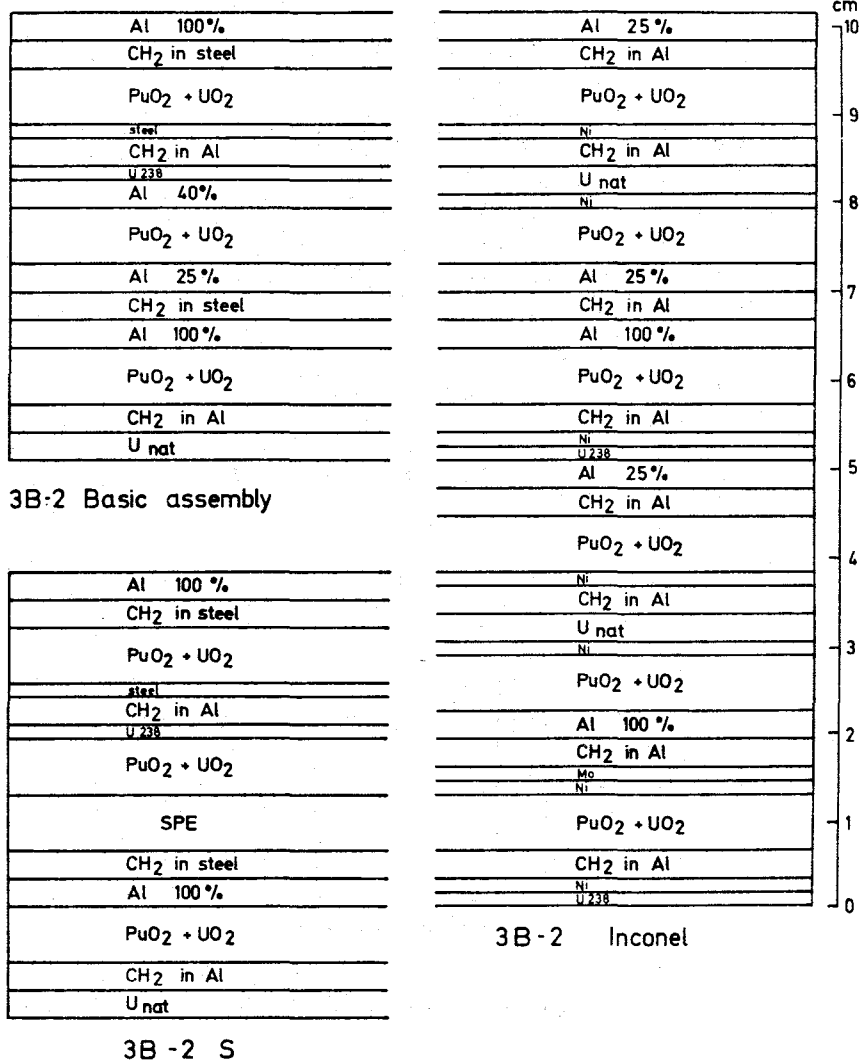


Abb. 6 Unit cells for plutonium zones of SNEAK 3B

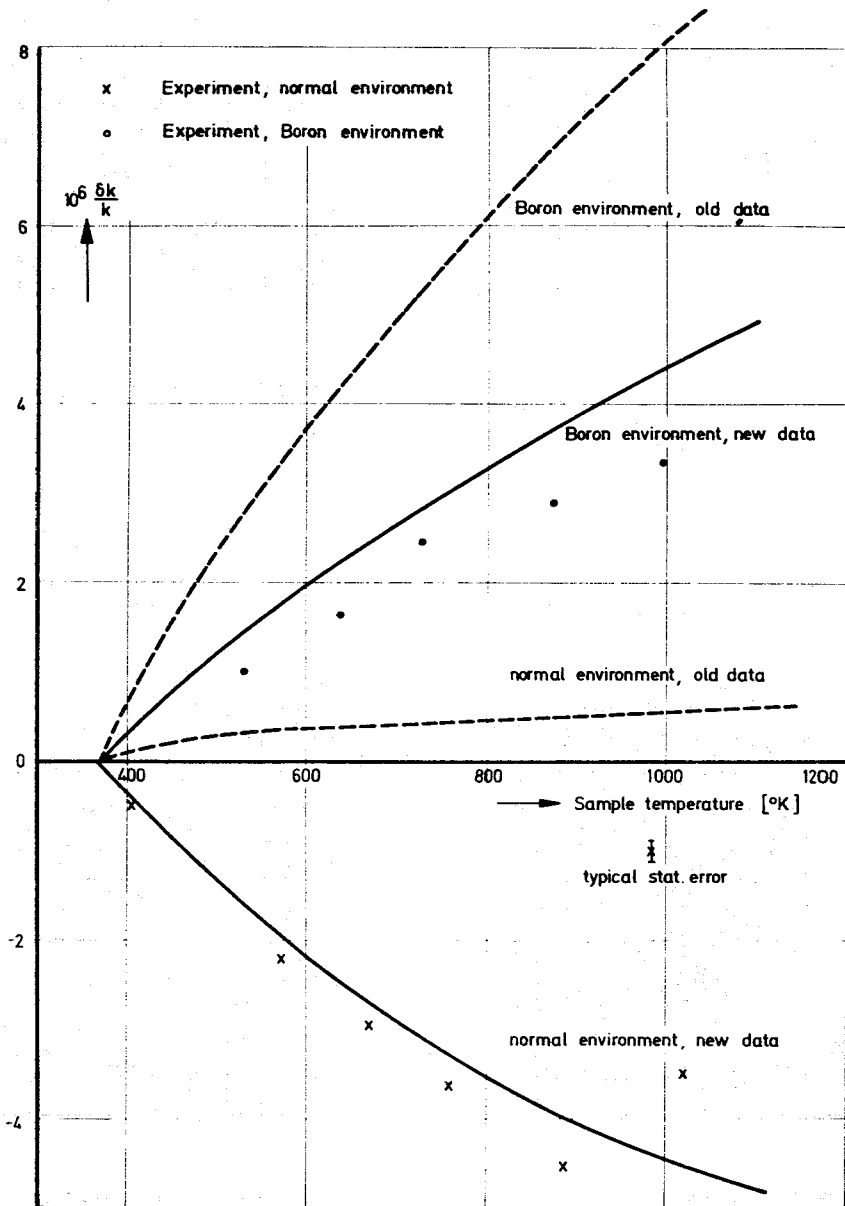
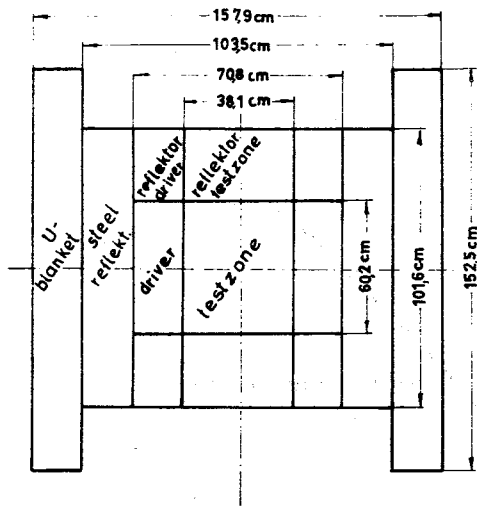
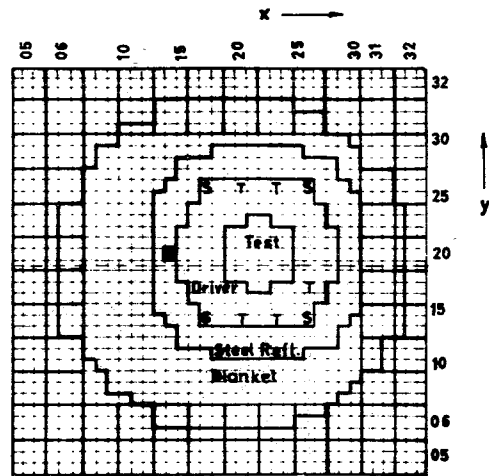


Abb. 7 Doppler reactivity measurements with  $\text{PuO}_2$  sample (451.7 g) in SNEAK 3B-2

SNEAK-4 A

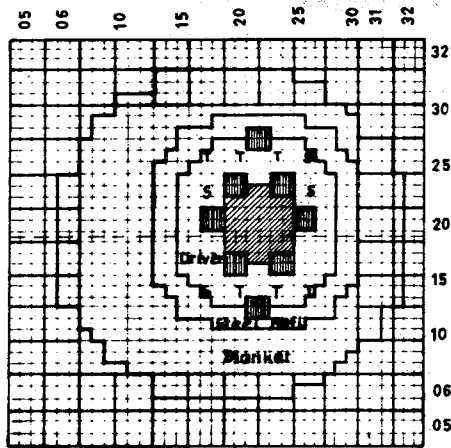


SNEAK-4 A

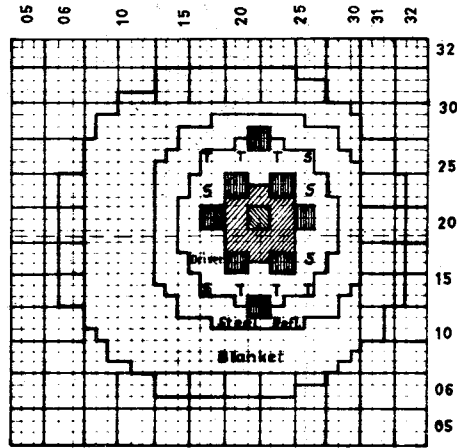


Testzone: Type 13 Elements

SNEAK-4 B-1



SNEAK-4 B-1  
with 4 central elements  
with KNK-II composition



- Type 14 Elements
- Type 18 Elements

- S = Safety Rod
- T = Shim Rod
- R = Fine Control Rod

- Type 14 Elements
- Type 24 Elements
- Type 18 Elements

- SS Reflector = Type 11 Elements
- Blanket = Type 3 Elements
- Driverzone = Type 12 Elements

Abb. 8 Geometry of SNEAK Assemblies: Vertical and Horizontal Cross Sections of 4 A and 4 B-1

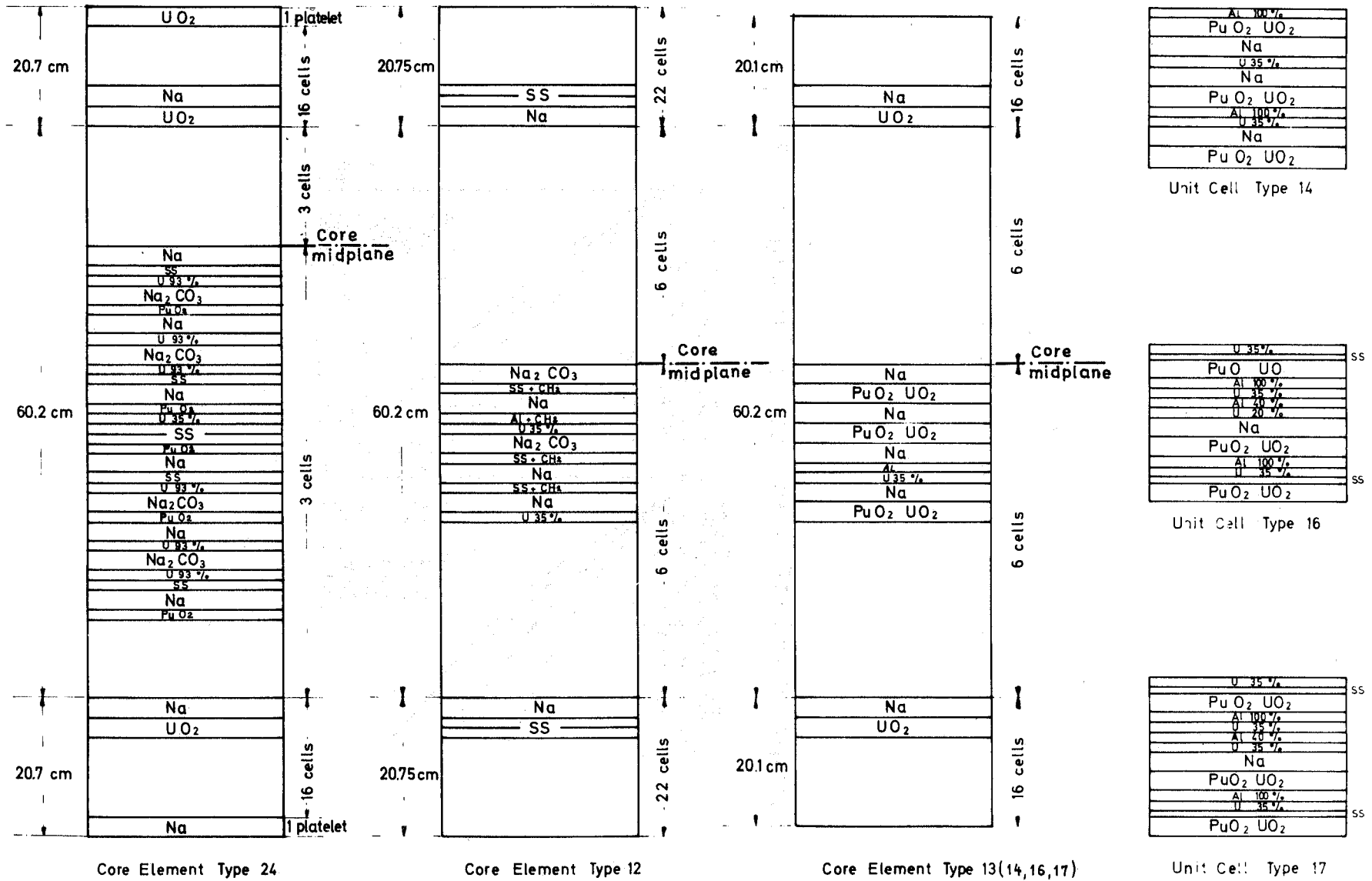


Abb. 9 Loading Schemes of the Basic Elements Used in the SNEAK-4 Assemblies

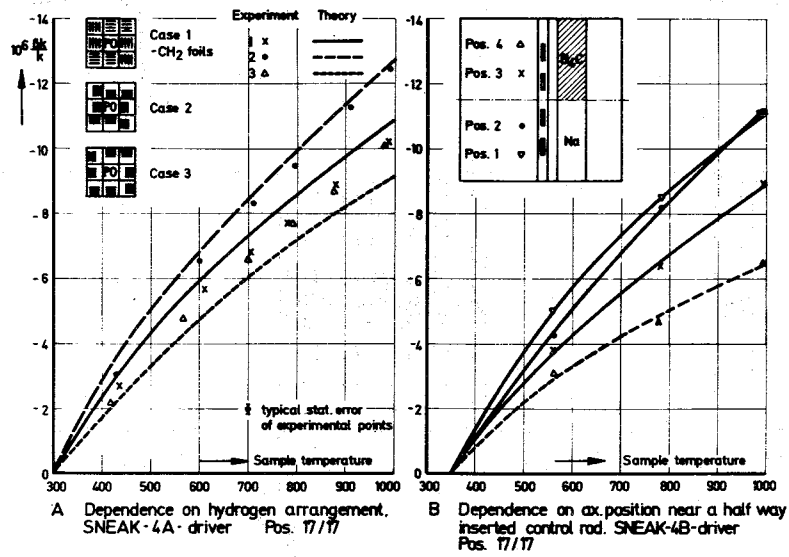


Abb. 10 Doppler Effect Investigations in SNEAK 4



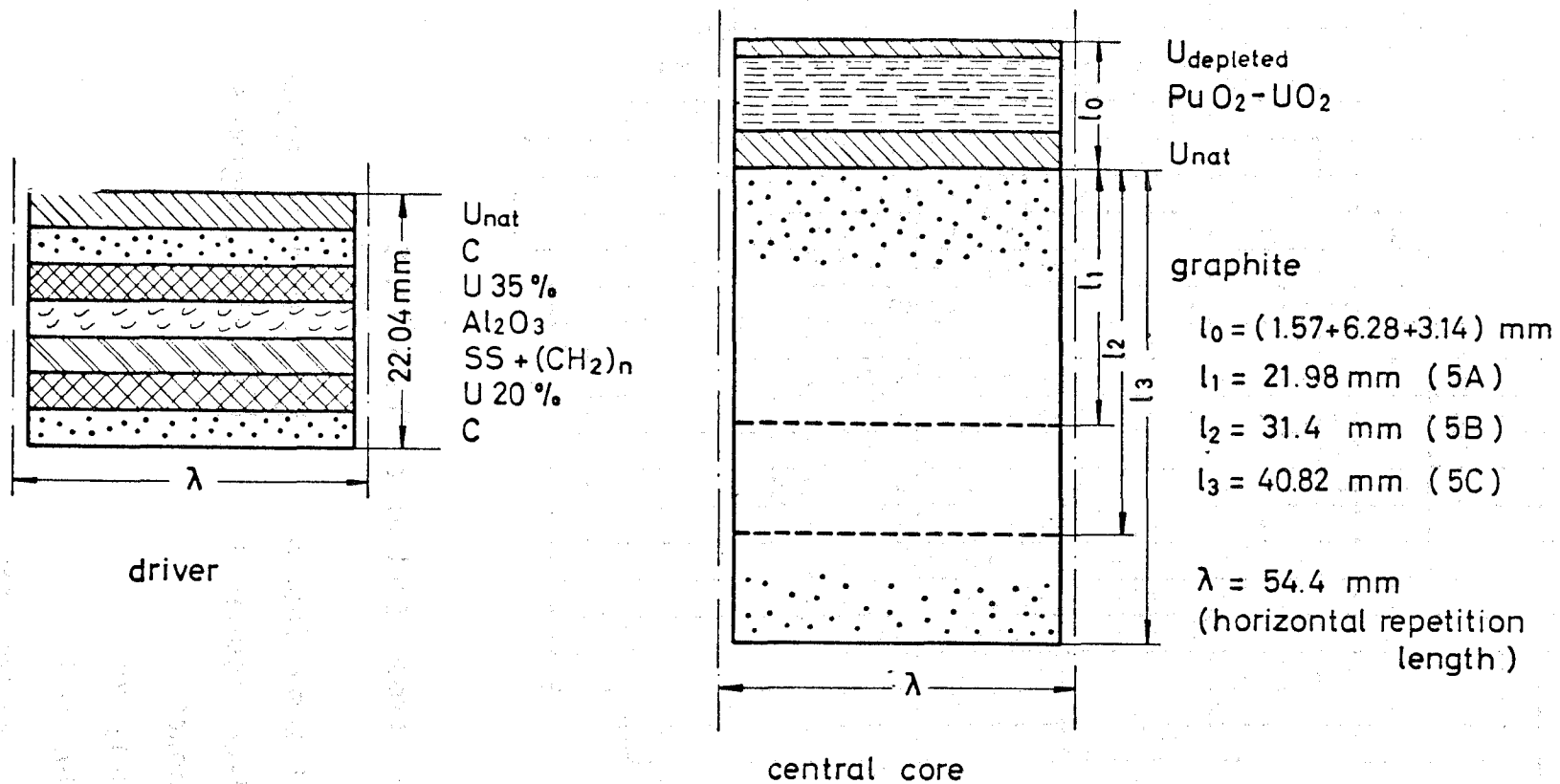


Abb. 11: Principal Cell Structures of SNEAK 5

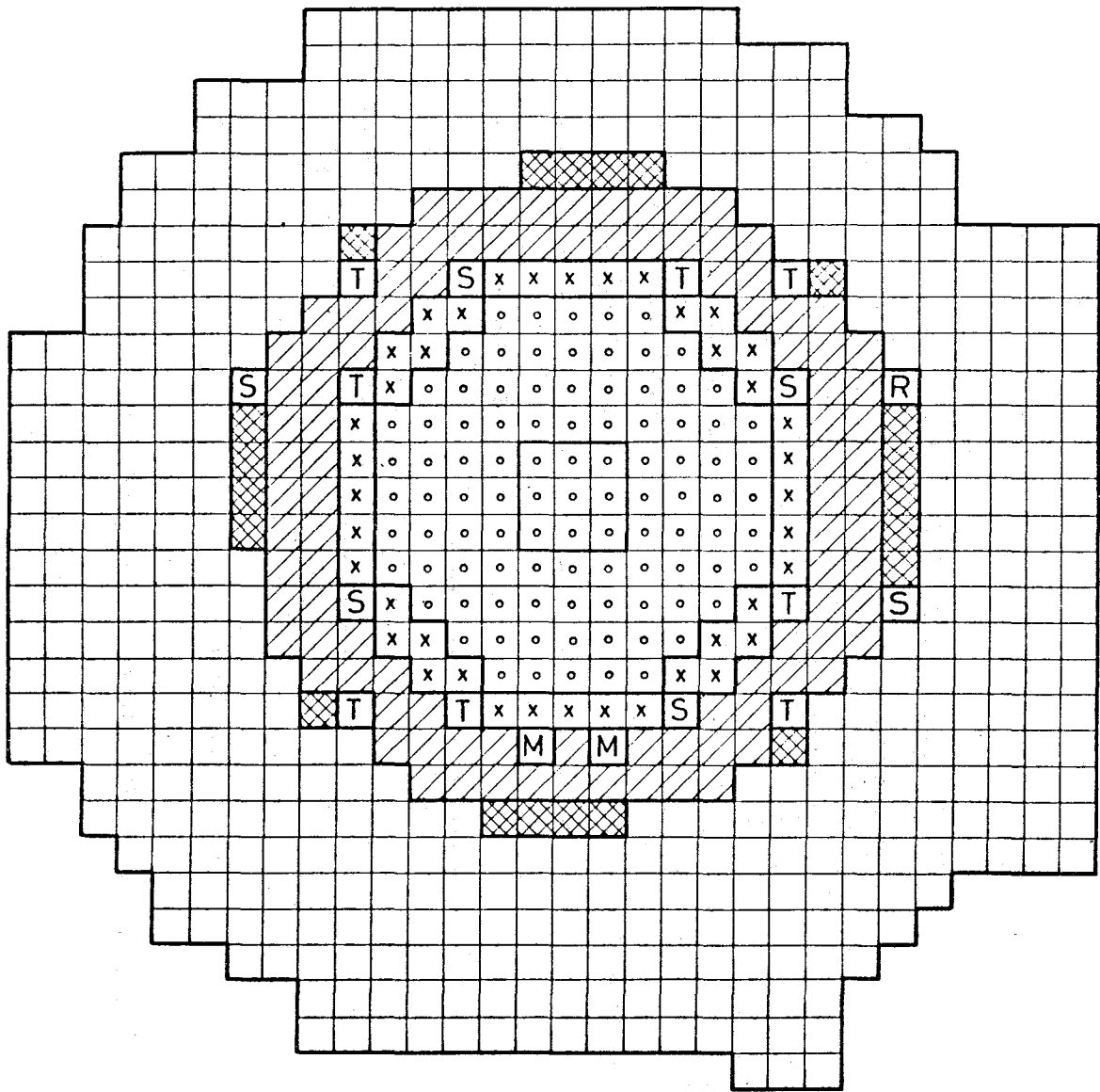









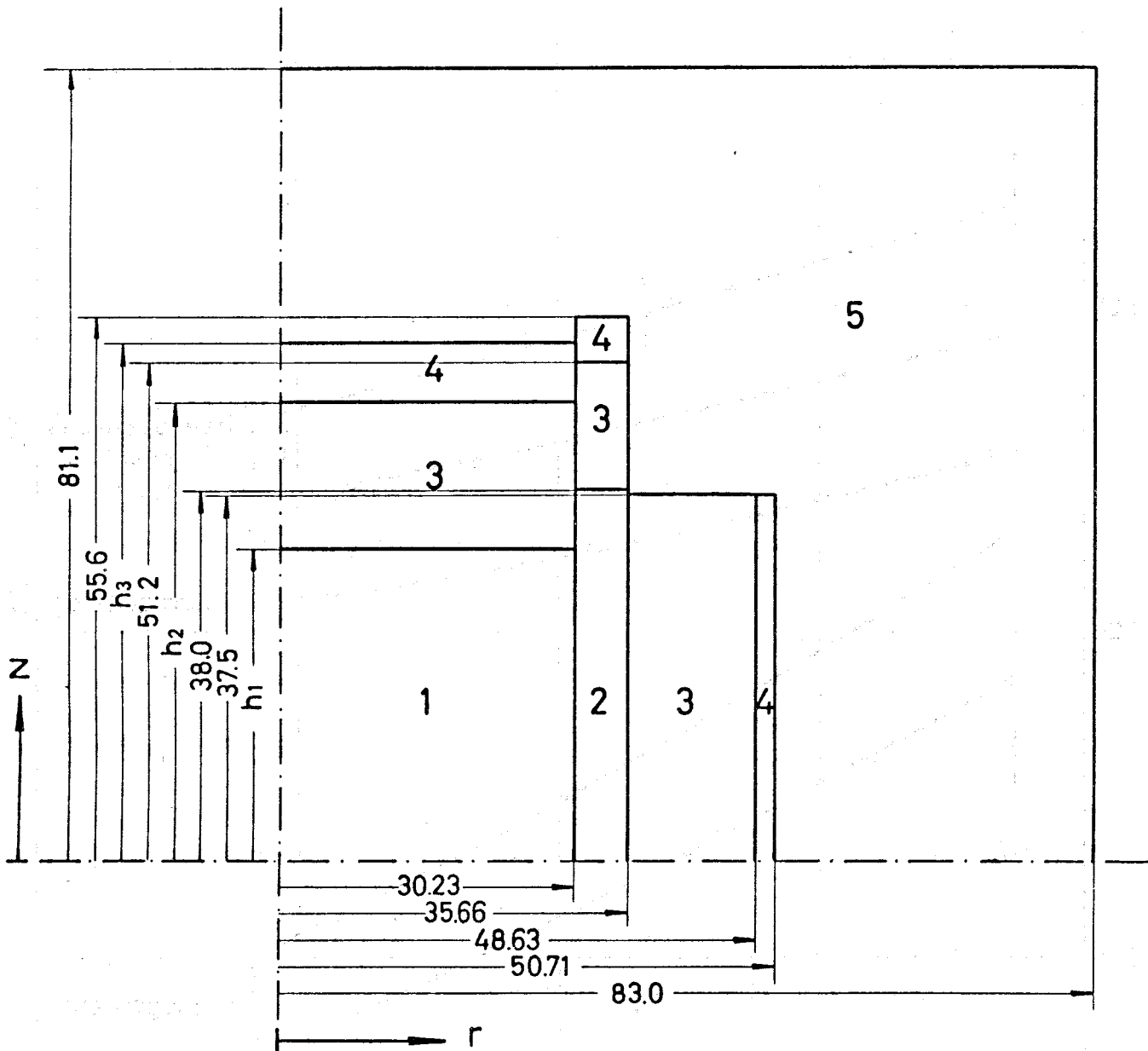


Abb. 12 : Cross Section of SNEAK 5C

- |   |                      |   |                      |
|---|----------------------|---|----------------------|
|  | test zone , region 1 |  | test zone , region 2 |
|  | driver , region 3    |  | driver , region 4    |
|  | blanket              |   |                      |
|  | safety rod           |   |                      |
|  | shim rod             |   |                      |
|  | fine control rod     |   |                      |
|  | monitor              |   |                      |



	5 A	5 B	5 C
$h_1$	38.0	36.1	33.7
$h_2$	51.2	49.3	46.9
$h_3$	55.6	55.9	54.2

Abb. 13; Idealized Reactor Geometry of SNEAK 5.

- region 1 } test zone
- region 2 } test zone
- region 3 } driver zone
- region 4 } driver zone
- region 5 } blanket

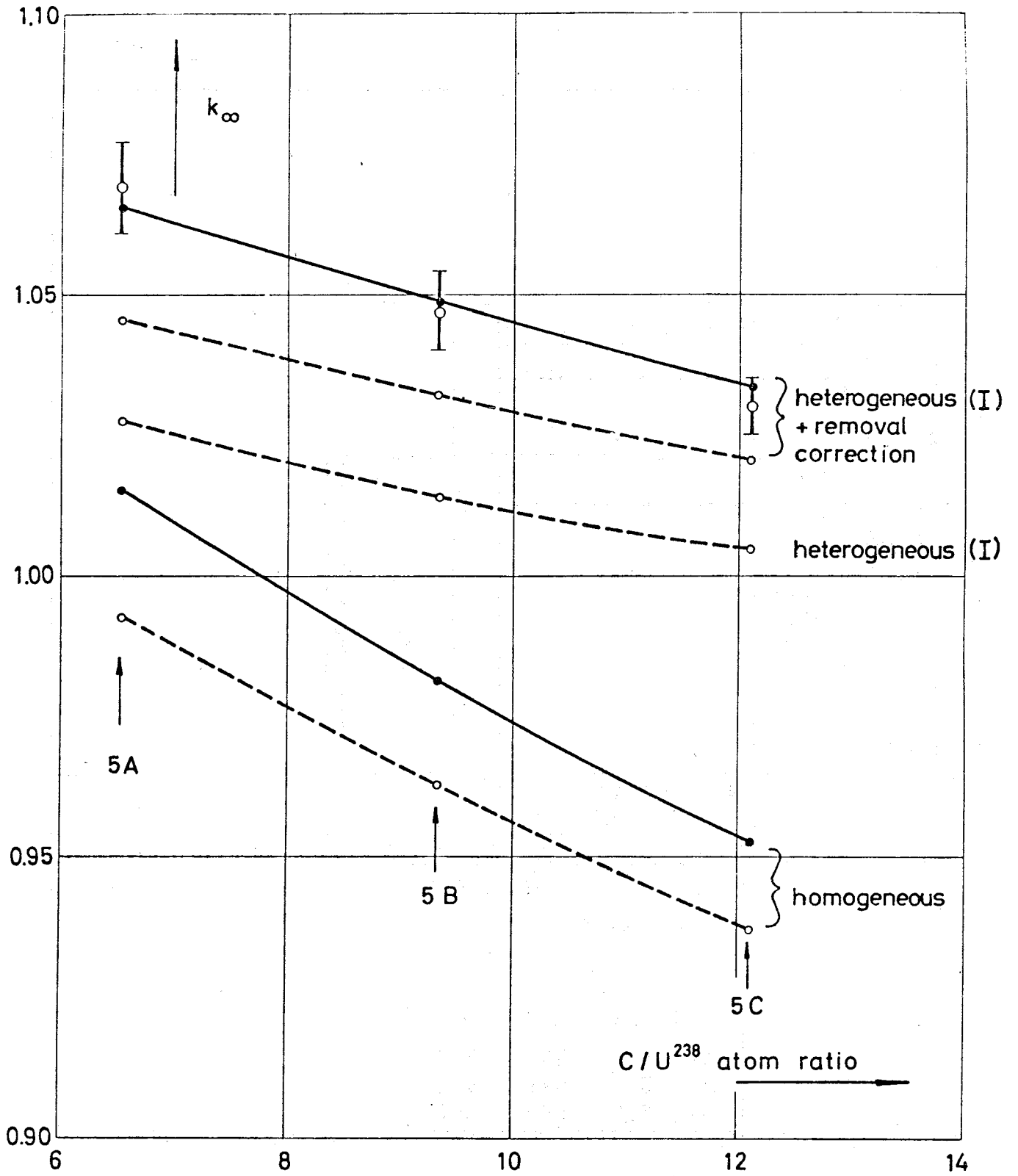





Abb. 14:  $k_{\infty}$  of SNEAK 5 as a Function of C/U-Ratio

-  Experiment
-  Calculation with SNEAK set
-  Calculation with modified SNEAK set (MOXTOT)

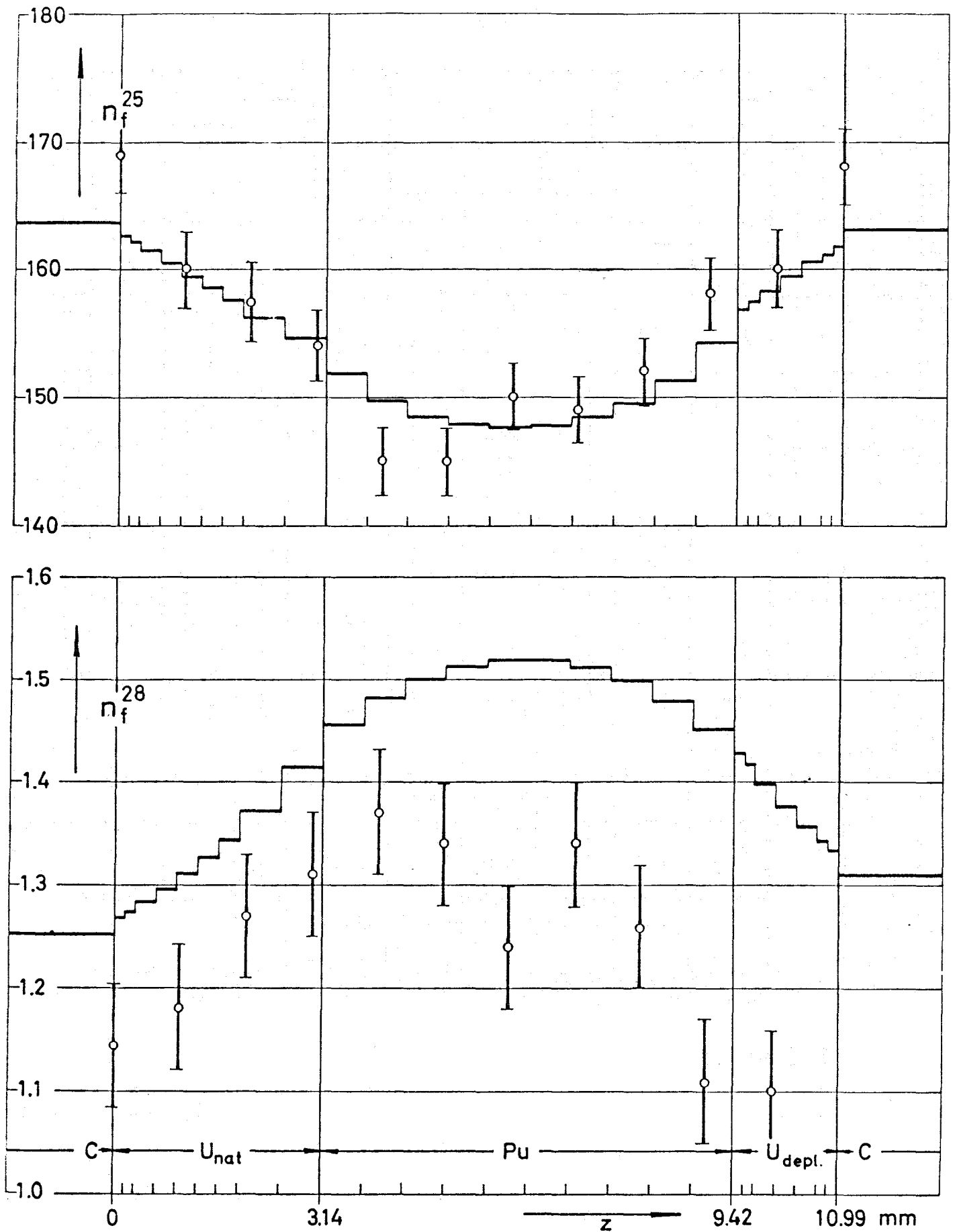
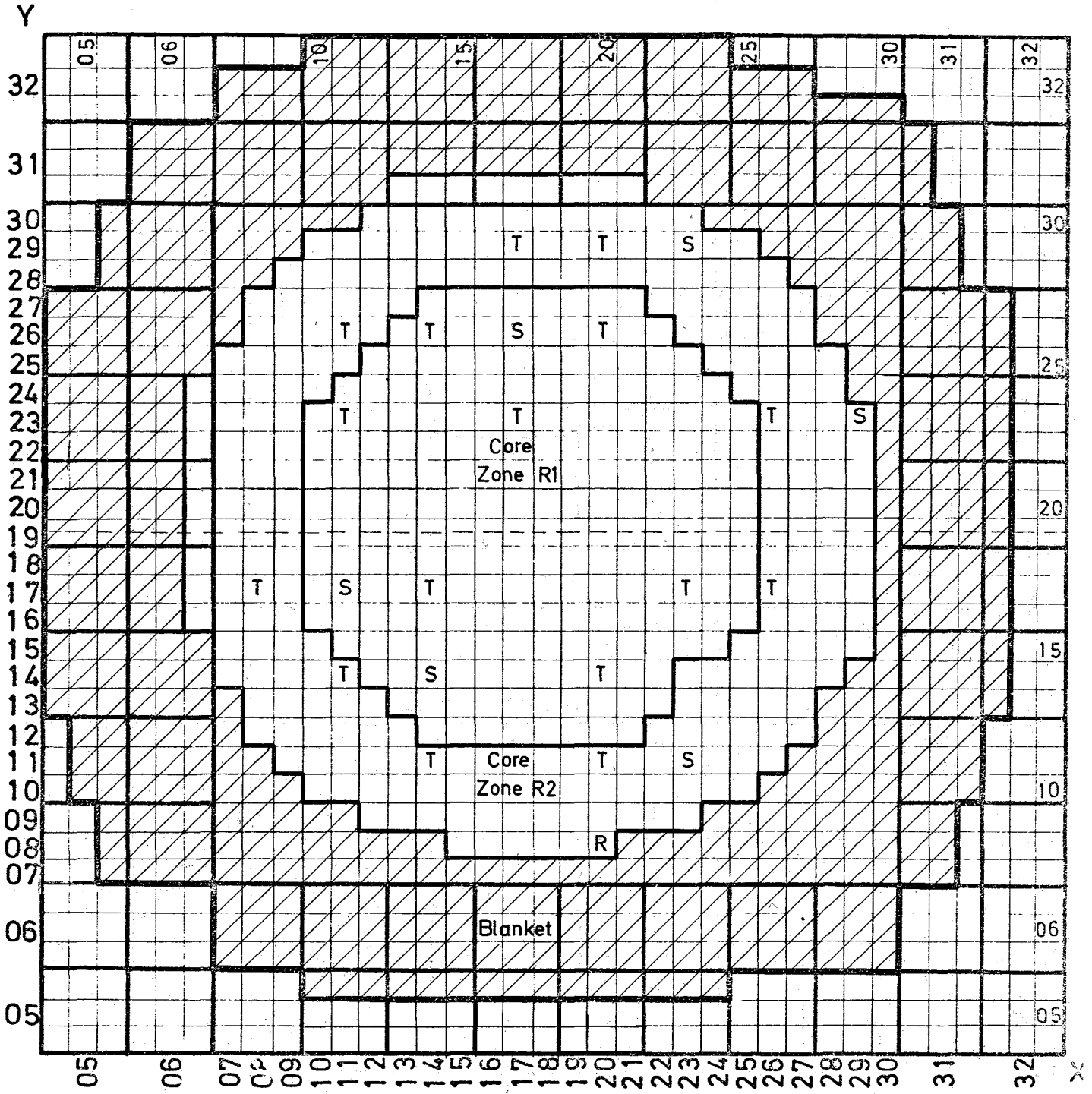


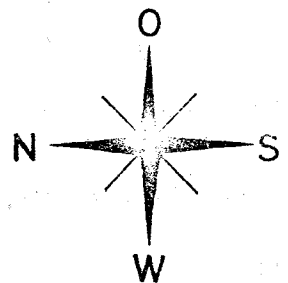
Abb. 15: Fine Structure of Fission Rates in the Central Lattice Cell

○ Measurement with SSTR technique;  $U^{235}$  data normalized to calculation



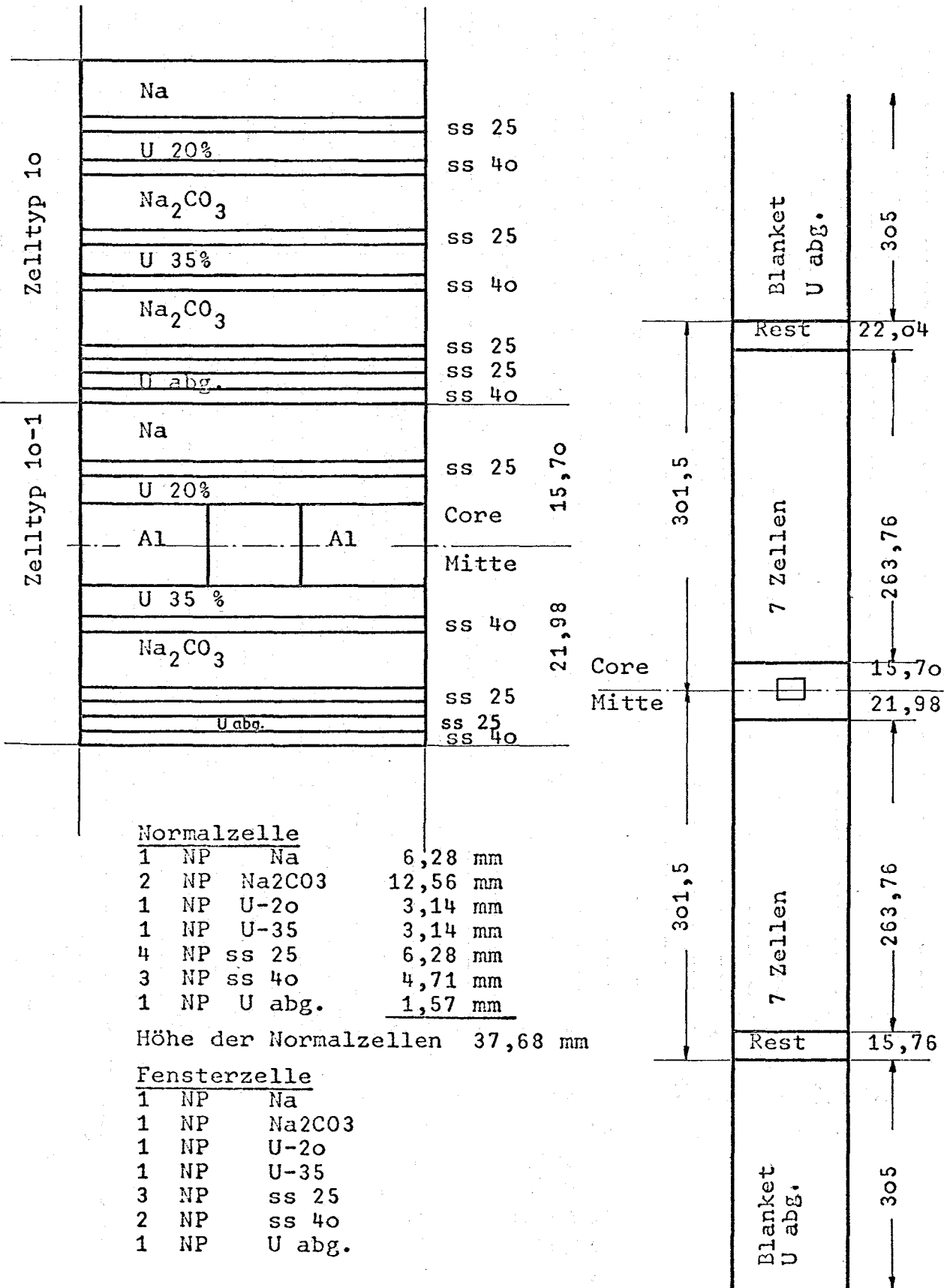
SNEAK-2A

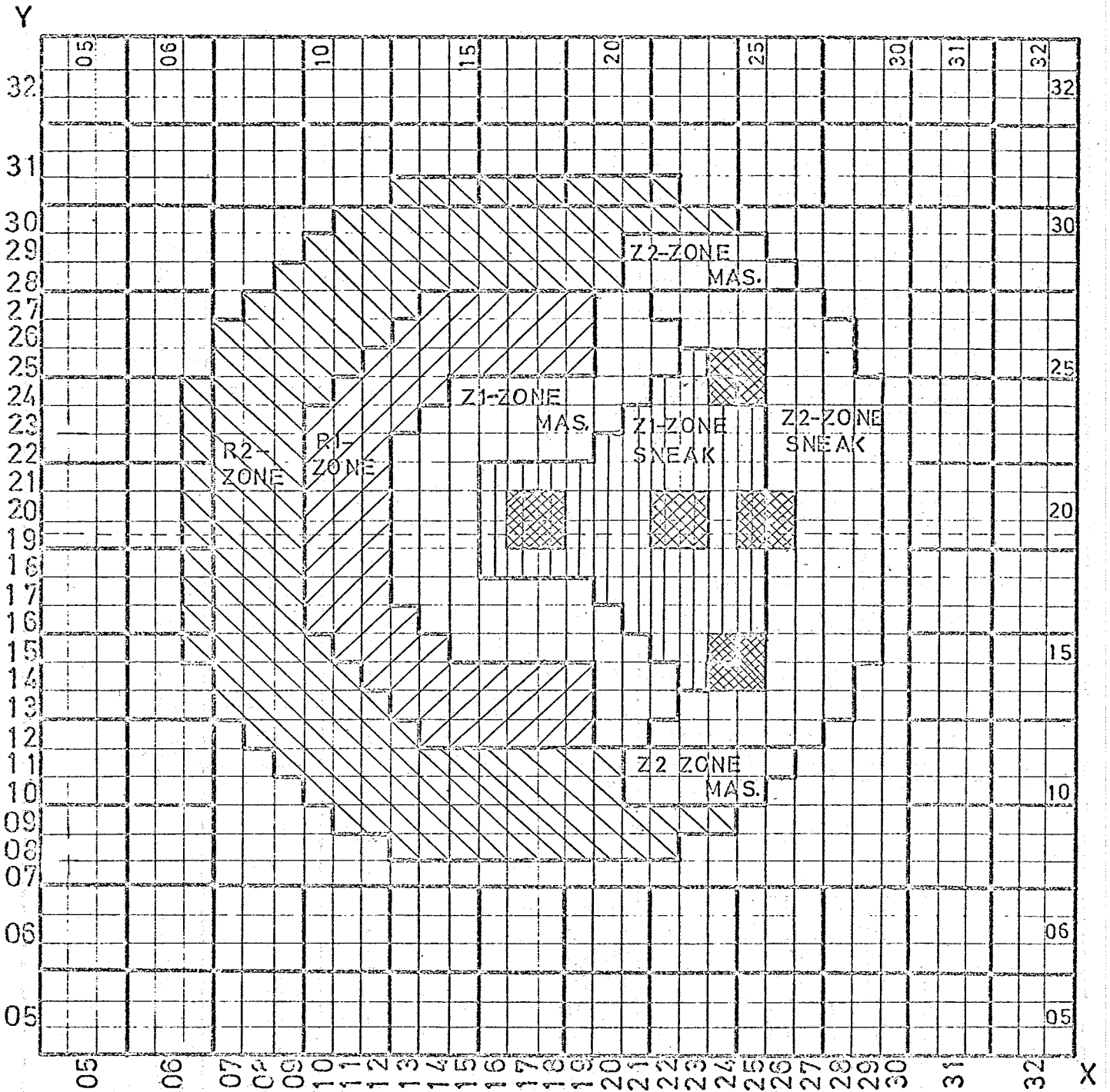
Abb.16



Maßstab 1:10

Element Typ 10 in SNEAK-2A-SNR Zone R<sub>1</sub>





SNEAK- 2C-SNR

HÖHE = 60.3 cm

ZONE

ELEMENTE

R1	76
Z1 SNEAK	70
Z1 MAS.	70
Z2 SNEAK	76
Z2 MAS.	22
R2	170

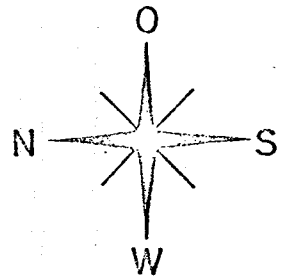
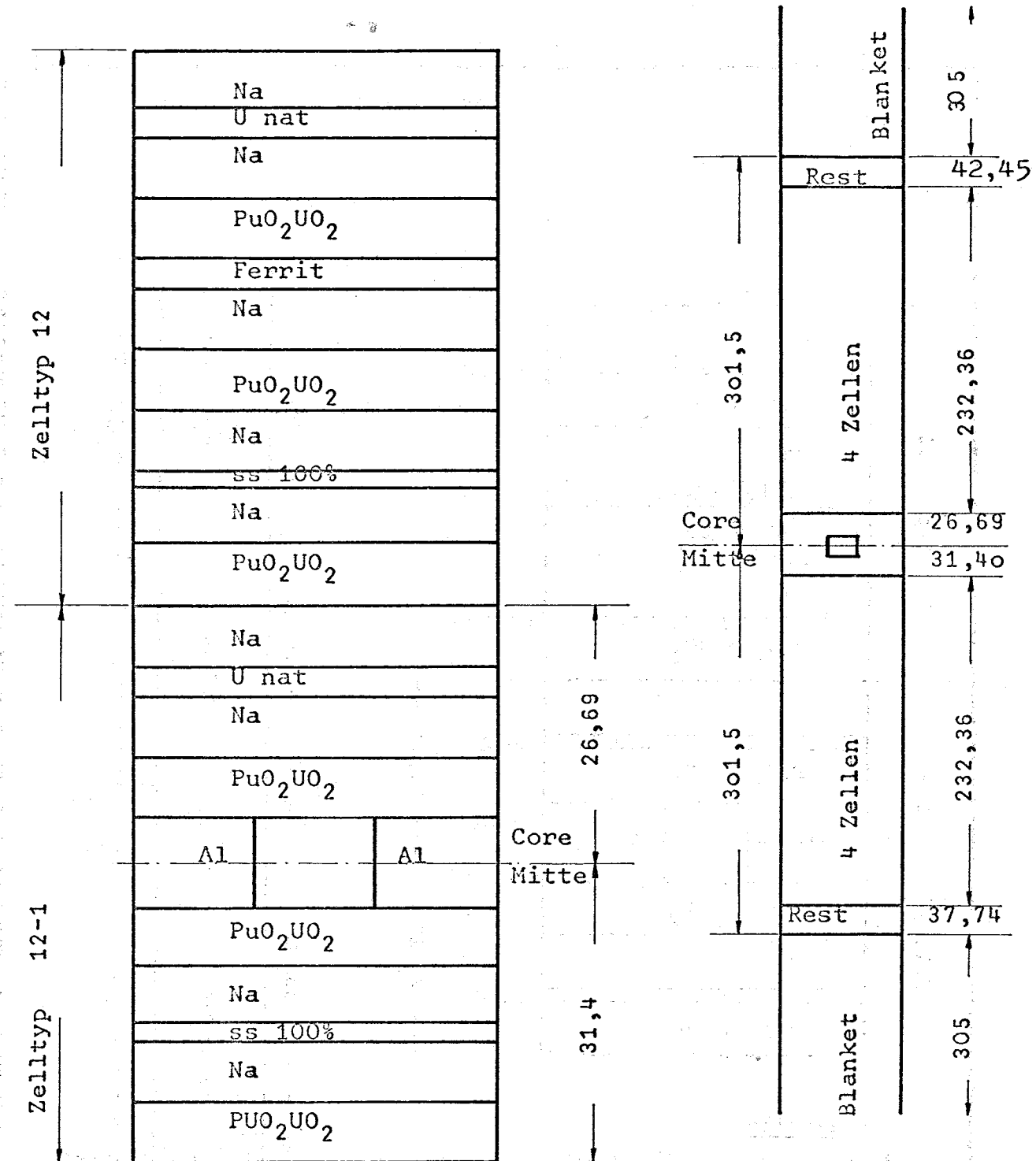


Abb. 18



C-Element Typ 12 in SNEAK-2-SNR in Z<sub>1</sub>-Zone

## Normalzelle

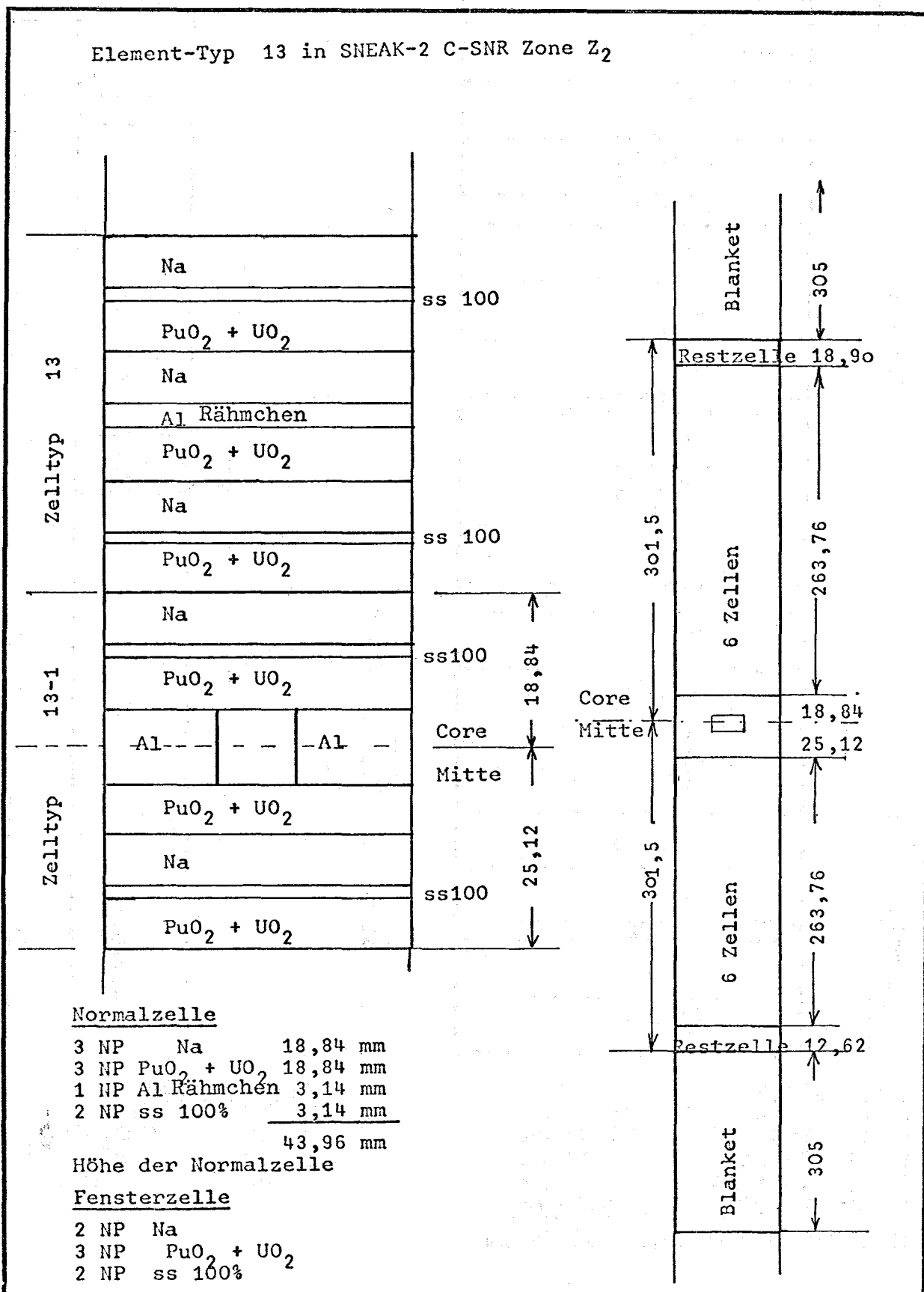
5	NP	Na	31,40 mm
3	NP	PuO <sub>2</sub> +UO <sub>2</sub>	18,84 mm
1	NP	Ferrit	3,14 mm
1	NP	ss 100%	1,57 mm
1	NP	U nat	3,14 mm

Höhe der Normalzelle 58,09 mm

## Fensterzelle

4	NP	Na
3	NP	PuO <sub>2</sub> +UO <sub>2</sub>
1	NP	U nat
1	NP	ss 100%

Element-Typ 13 in SNEAK-2 C-SNR Zone Z<sub>2</sub>



Normalzelle

3 NP	Na	18,84 mm
3 NP	PuO <sub>2</sub> + UO <sub>2</sub>	18,84 mm
1 NP	Al Rähmchen	3,14 mm
2 NP	ss 100%	3,14 mm
		43,96 mm

Höhe der Normalzelle

Fensterzelle

2 NP	Na
3 NP	PuO <sub>2</sub> + UO <sub>2</sub>
2 NP	ss 100%

Normalzelle SNEAK 2C äußere Core-Zone

Abb. 20

## Normalzelle Typ Z2 (MAS.)

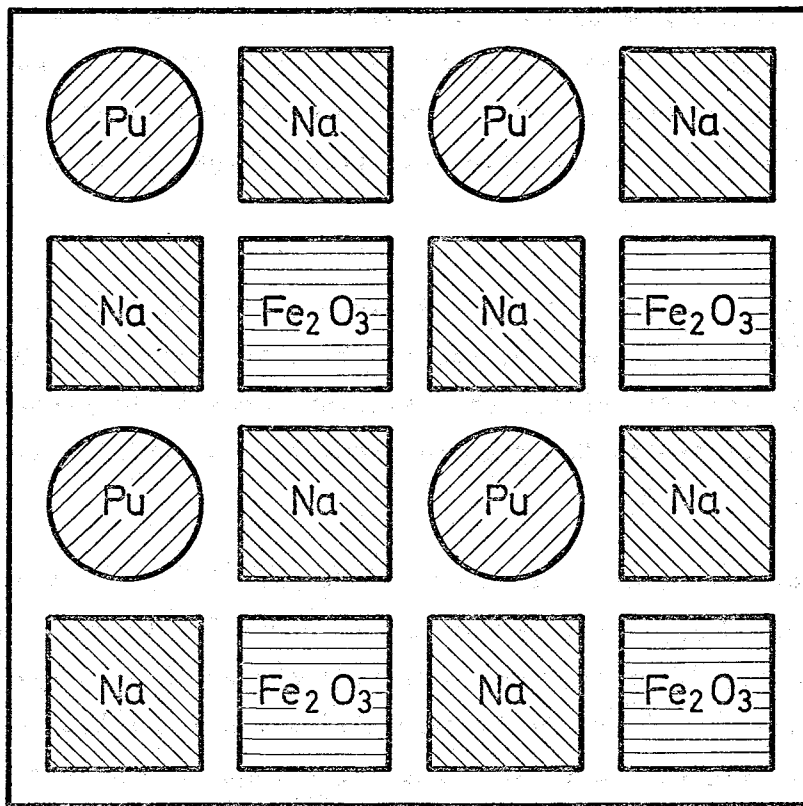


Abb. 21: Normalzelle der Pufferzone in SNEAK 2C

1215. WirkungsquerschnittsmessungenUntersuchungen mit dem 3 MeV-Van-de-Graaff-Beschleuniger

(A.Ernst, F.Fröhner, F. Käppeler, M.Kazerouni, D.Kompe,  
K.-N.Müller, E.Pfletscherer, G.Rohr, IAK)

Die Auswertung der Transmissionsdaten von  $^{57}\text{Fe}$ ,  $^{49}\text{Ti}$  und  $^{45}\text{Sc}$  ergab eine große Zahl von Halbwertsbreiten und Spins aufgelöster Resonanzen. Damit konnten statistisch signifikante Aussagen über die Spinabhängigkeit der s-Wellen-Stärkefunktion gewonnen werden. Durch den Nachweis der 14,4 keV-Linie beim  $^{57}\text{Fe}$  wurde auch experimentell bestätigt, daß hier Neutronen inelastisch gestreut werden. Weiterhin wurden erste Messungen des Temperatureinflusses auf die über Resonanzen gemittelte Transmission dicker Proben durchgeführt.

Zwischen 7 und 200 keV wurde mit hoher Auflösung der Resonanzeinfang von  $^{47}\text{Ti}$ ,  $^{56}\text{Fe}$ ,  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$  und  $^{61}\text{Ni}$  untersucht (Abb. 22). Viele Resonanzen konnten neu beobachtet und isotopisch zugeordnet werden. Im gleichen Energiebereich wurden gemittelte Einfangsquerschnitte von natürlichem Cer und Thallium bestimmt.

Das Verhältnis der Spaltquerschnitte von  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{233}\text{U}$  zu  $^{235}\text{U}$  im Energiebereich von 10 keV bis 1 MeV wurde mit einem Fehler zwischen 2 und 4% neu bestimmt. Die Messung von  $\alpha$  (Verhältnis von Neutroneneinfang zu Spaltquerschnitt) für  $^{239}\text{Pu}$  im Energiebereich von 7 keV bis 70 keV wurde begonnen. Hierbei wird ein neues Verfahren angewandt: Die Absorption wird aus dem Vergleich der Streuneutronenzahl von  $^{239}\text{Pu}$  mit der Streuneutronenzahl einer (absorptionsfreien) Bleiprobe gleicher Transmission ermittelt. Eine gleichzeitige Messung der Spaltneutronenzahl gestattet dann die Bestimmung von  $\alpha$ . Die Absolutbestimmung des Neutronenflusses ist bei allen Messungen von Partialquerschnitten (z.B. für Spaltung oder Einfang) besonders problematisch. Eine neue Methode zur Flußmessung mit Hilfe von Festkörper-Protonenrückstoßzählern wird entwickelt. Insbesondere wird versucht, bei möglichst niederen Neutronenenergien (unterhalb 300 keV) zu messen.

Untersuchungen am Isochron-Zyklotron (S.Cierjacks, P.Forti, G.J.Kirouac,

D.Kopsch, L.Kropp, J.Nebe, IAK)

Bei den Messungen des totalen n-p Streuquerschnitts wurde eine statistische Genauigkeit zwischen 0,3 - 1 % erreicht; die absoluten Wirkungsquerschnitte

wurden mit einer Genauigkeit von besser als 2 % bestimmt. Unsere Ergebnisse zeigten keine Hinweise auf die kürzlich in der Literatur erwähnten Oszillationen mit Amplituden zwischen 5 - 10 % der mittleren Wirkungsquerschnitte.

Die Auswertung der Ergänzungsmessung für Na zwischen 300 - 900 keV konnte zunächst abgeschlossen werden. Mit der erreichten Auflösung zwischen 0,2 keV bei 300 keV und 1 keV bei 800 keV konnten im untersuchten Energiebereich im Gegensatz zu früheren schlechter aufgelösten Messungen in Argonne nur 16 Resonanzen beobachtet werden.

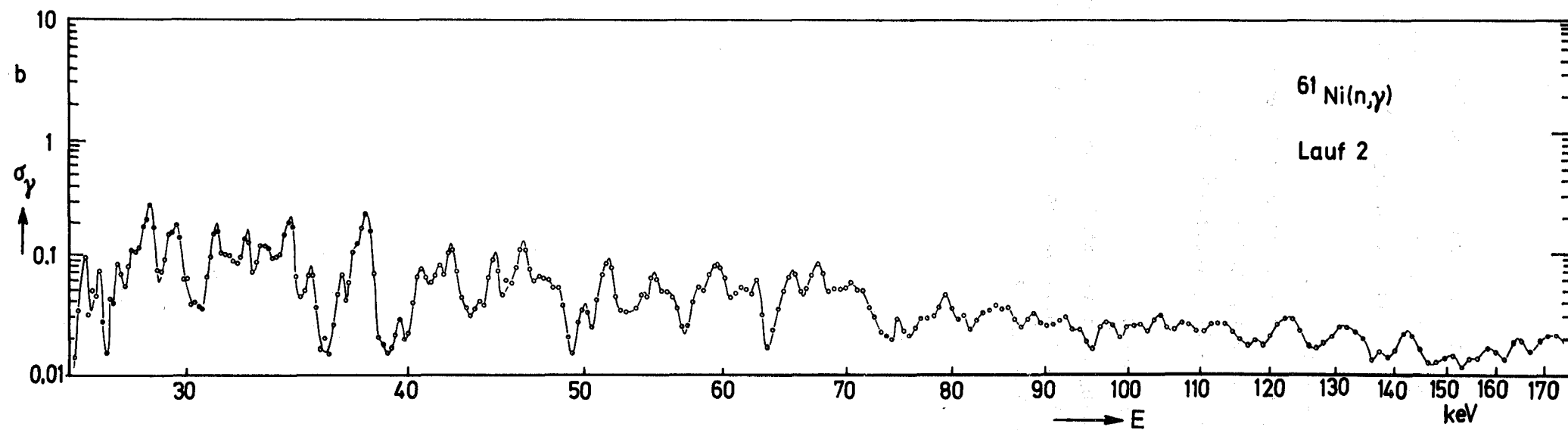
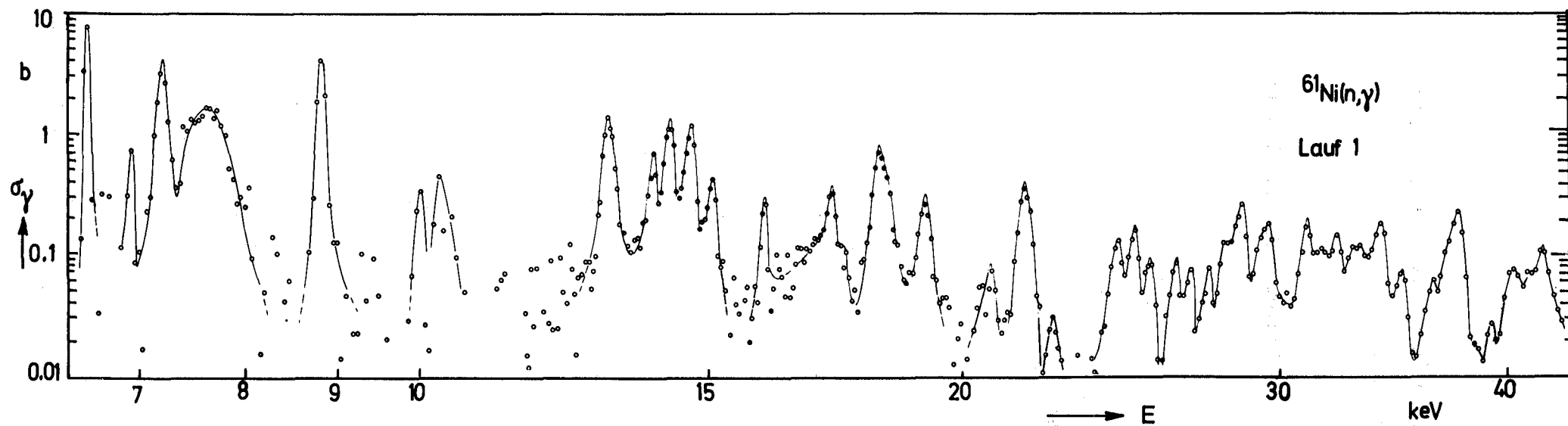
Mit dem 60 m langen Flugweg wurden Transmissionsmessungen an V, Cr, Ni, Mn, Co und einigen weiteren Materialien durchgeführt. Weitere Transmissionsmessungen wurden mit dem 190 m-Flugkanal an den Elementen O, Al, Ca und U durchgeführt. Die gemessenen Anregungsfunktionen zeigen zum größten Teil neue Strukturen, welche bei früheren Messungen mit dem 60 m langen Flugweg nicht aufgelöst werden konnten. Im Dezember des Jahres 1969 wurden erstmals Neutronenstreuexperimente an den Kernen C und Ca im Energiebereich von 0,5 - 6 MeV ausgeführt. Dabei wurde der differentielle elastische Streuquerschnitt unter den drei Winkeln  $54^\circ$ ,  $90^\circ$  und  $140^\circ$  gemessen. Aufgrund der empfindlichen Abhängigkeit der Resonanzformen vom Streuwinkel sollen im Zusammenhang mit den Resonanzparameteranalysen für die totalen Wirkungsquerschnitte gut gesicherte Spin- und Paritätszuordnungen für die Kernniveaus der Zwischenkerne  $^{13}\text{C}$  und  $^{41}\text{Ca}$  bestimmt werden.

Für die geplanten Untersuchungen der unelastischen Neutronenstreuung am großen Flugzeitspektrometer wurden im Berichtszeitraum Monto-Carlo-Rechnungen zur Bestimmung der Mehrfachstreuung für verschiedenen Streuprobengeometrien ausgeführt. Mit der Gegenüberstellung einiger am Zyklotron gemessener Wirkungsquerschnitte mit Ergebnissen aus anderen Laboratorien wurde eine ausführliche Diskussion bisher gemessener Kerndaten eingeleitet.

Veröffentlichungen zu 1215:

- (1) W.P. Pönitz  
A "Grey" Neutron Detector for the Intermediate Energy Region  
Nuclear Instruments and Methods, 58 (1968) 39-44  
KFK-Bericht 744
- (2) W. Michaelis, D. Lange  
A New Type of Internal Pair Formation Spectrometer  
Nuclear Instruments and Methods, 58 (1968) 349-350  
KFK-Bericht 752
- (3) S. Cierjacks, B. Duelli, Fp. Forti, L. Kropp, M. Lösel, J. Nebe,  
H. Schweickert, H. Unseld, D. Kopsch  
Fast Neutron Time-of-Flight Spectrometer used with the Karlsruhe  
Isochronous Cyclotron, Review of Scientific Instruments, 39 (1968) 1279-88  
KFK-Bericht 959
- (4) S. Cierjacks, J. Nebe, T. Tsien  
Comparison of Neutron Total Cross Sections with the Nonlocal  
Optical Model  
Nuclear Physics (im Druck)
- (5) S. Cierjacks, P. Forti, D. Kopsch, L. Kropp, J. Nebe  
High Resolution Total Fast Neutron Cross-Sections on Some Non-Fissile  
Nuclei in the Energy Range  $0,5 \leq E_n \leq 30$  MeV  
NSB Special Publication 299, Vo. II, 743  
KFK-Bericht 840
- (6) S. Cierjacks, P. Forti, D. Kopsch, L. Kropp, J. Nebe, H. Unseld  
High Resolution Total Neutron Cross-Sections between 0,5 - 30 MeV  
KFK-Bericht 1000 u. 1. Supplement, EUR 3963 e, EANDC (E) - 111 "U"
- (7) F. Horsch, O. Meyer, W. Michaelis  
Recent Progress in High Precision Nuclear Spectrometry with  
Semiconductor Counters  
KFK-Bericht 778

- (8) W.P.Pönitz, D.Kompe, H.O.Menlove  
The Neutron Capture Cross Section of Gold in the keV Energy Region  
Journal of Nuclear Energy, 22 (1968) 505-515
- (9) D. Kompe  
Capture Cross Section Measurements of some Medium and Heavy Weight  
Nuclei in the keV Region  
Nucl. Physics A141(1970) S.602
- (10) W. Michaelis  
Timing Unit for Semiconductor Spectrometers  
Nuclear Instr. and Meth. 61, 109 (1968)  
KFK-Bericht 773



Energieabhängigkeit des  $^{61}\text{Ni}(n,\gamma)$ -Querschnitts (vorläufig) aus 2 Flugzeitmessungen mit 800 l-Szintillator-Detektor am gepulsten 3 MV Van de Graaff. Auflösung: 2.5 ns/m. Man beachte die saubere Reproduzierbarkeit im Überlappbereich 27 ... 42 keV.

Abb. 22



1216. SEFOR (G. Keßler, IRE, F.Mitzel, INR, W.Schikarski, D.Wintzer, IAR)

SEFOR wurde am 3. Mai 1969 erstmals kritisch. Die fünfjährige Entwicklungs- und Bauphase fand damit ihren Abschluß, und das dreijährige experimentelle Programm konnte beginnen (Tab.7). Im Jahre 1969 wurden insbesondere physikalische Daten des SEFOR bei Nulleistung bestimmt sowie erste Betriebserfahrungen gesammelt (s.u.). Verfügbar wurden diese für Karlsruhe durch Delegation von Mitarbeitern der GfK nach Fayetteville und Sunnyvale (GE) und durch aktive Teilnahme an den regulären SEFOR-Projektsitzungen.

1969 wurde vom IAR, IMF und IRE die Entwicklung und Herstellung von energy probes für SEFOR abgeschlossen. "Energy probes" nutzen die direkte Temperaturerhöhung in spaltbarem Material als Folge von Kernspaltungen zur Messung der Leistung oder über die integrale Temperaturänderung zur Messung der Energie in einer Leistungsexkursion aus. Die dynamischen Eigenschaften der energy probes wurden am Zyklotron und am Forschungsreaktor München untersucht. Danach liegt die Ansprechzeitkonstante unter dem geforderten Wert von 1 msec. Die Wärmeableitkonstante ist mit ca. 350 msec genügend groß.

Eine Reihe von Reaktorrechnungen wurde in Karlsruhe durchgeführt, die der detaillierten Untersuchung und Auswertung des SEFOR Mock-up im ZPR III zugeordnet waren.

Die Frage, welcher Verwendung der SEFOR nach Abschluß des laufenden experimentellen Programms zugeführt werden soll, wurde zusammen mit dem IRE im Ansatz untersucht. Die weiter ins Detail gehenden Untersuchungen werden 1970 fortgeführt.

### Erste Erfahrungen mit SEFOR

#### 1. Vorbetriebsprüfungen

Vor Beginn der kritischen Beladung bildeten die Hydrauliktests einen wesentlichen Bestandteil der Vorbetriebsprüfungen. Neben der Messung der Druckverlustcharakteristiken und der Nennleistung der elektromagnetischen Pumpen in den primären und sekundären Haupt- und Hilfskreisläufen ist dabei die Messung des zeitlichen Verlaufes des Kühlmitteldurchsatzes der primären Hauptpumpe bei Ausfall der Stromversorgung wichtig.

Abb. 23 zeigt die Gegenüberstellung des gemessenen und des vorher berechneten zeitlichen Verlaufs für den Durchsatz im primären Kühlkreislauf, wenn die Stromversorgung der primären Hauptpumpe ausfällt. In diesem Fall laufen die Generatorsätze, die die Wicklungen der primären Hauptpumpe mit Strom versorgen, infolge ihrer Schwungradmassen innerhalb von 50 sec langsam aus.

Die Kalibrierung der elektromagnetischen Durchflußmesser, die Eichung der Na-Niveauanzeiger, die Durchführung der Notstromversorgung für die Aufrechterhaltung des Kühlmitteldurchsatzes im Hilfskühlkreislauf und die Überprüfung aller Kühlkreisläufe auf Vibrationen und freie Wärmedehnungen verliefen zufriedenstellend. Die Widerstands-Begleitheizung arbeitete einwandfrei.

Folgende Schwierigkeiten traten bei den Vorbetriebsprüfungen auf:

- a) Während der Überprüfung der Niveauanzeiger im Reaktortank wurde bei geschlossenem Ventil in der Überlaufleitung nach Versagen der Niveauanzeiger soviel Natrium in den Reaktortank gepumpt, daß außer dem Reaktortank auch die darüber angeordnete Dampffalle und auf kurzer Länge eine unbeheizte zum radioaktiven Abgassystem führende Rohrleitung mit Natrium gefüllt wurden. Das in dieser Rohrleitung erstarrte Natrium mußte mit Alkohol herausreagiert werden.
- b) Als Abschluß der Hydrauliktests war von der AEC ein 8-stündiger Test bei vollem Kühlmitteldurchsatz mit einem vor der primären Hauptpumpe angeordneten Sieb gefordert worden. Erst nach Einbau eines dritten Siebes konnten die Hydrauliktests erfolgreich abgeschlossen werden.
- c) Schwierigkeiten mit der Abdichtung zwischen Beladezelle und dem mit  $N_2$  gefüllten inneren containment existierten während der Vorbetriebsprüfungen und während der Nulleistungs-Testphase und konnten erst am Ende der Nulleistungstests im wesentlichen überwunden werden.

## 2. Brennstoffbeladung

Innerhalb von 4 Wochen wurden 550 Brennstäbe und 108 BeO-Stäbe ins Core geladen und das kritische Experiment abgeschlossen.

Während der Core-Beladung und der Nulleistungstests blieb das Core wochenlang geöffnet. Die Natriumtemperatur wurde bei 350°F gehalten, der O<sub>2</sub>- und H<sub>2</sub>O-Gehalt blieben <10 ppm. Diese Werte wurden nur während des Einschleusevorganges von Brennstoff kurzzeitig überschritten, wobei Spitzenwerte von 90 ppm (O<sub>2</sub>+H<sub>2</sub>O)-Gehalt erreicht wurden. Durch den Argon-Reiniger (NaK-bubbler) wurden diese Spitzenwerte aber in kurzer Zeit wieder unter dem geforderten Grenzwert 10 ppm gehalten. Niederschläge von Natriumdämpfen innerhalb der Beladezelle wurden nicht beobachtet. Lediglich NaK-Dämpfe wurden aus der Argon-Reinigungsanlage in die Beladezelle gedrückt und schlugen sich an den Wänden der Beladezelle teilweise als Oxide nieder; sie konnten später bei aufgesetztem Coredeckel relativ leicht wieder abgesaugt werden, nachdem man CO<sub>2</sub> in die Beladezelle eingeblasen und die NaK-Oxide zu NaK-Karbonaten reagiert hatten.

SEFOR wurde anfangs mit 550 Brennstäben kritisch, obwohl durch Rechnungen und ein kritisches Experiment am ZPR III nur 519 Brennstäbe vorhergesagt waren. Der Grund für diese Abweichungen in der kritischen Masse von 6% wurde wenig später in 30 Brennstäben mit Pellets zu geringer Anreicherung gefunden. Erneutes Umladen und Austauschen dieser falsch angereicherten Brennstäbe ergab mit 518 Brennstäben eine Übereinstimmung von 0,2% mit der Vorhersage. Die Suche nach 30 Brennstäben mit Pellets zu geringer Anreicherung erforderte aber längere Umladeperioden bei freier Natriumoberfläche in der Beladezelle, als ursprünglich vorgesehen war. Es bildeten sich Na-Oxid-Ablagerungen im oberen Teil des Reaktortanks, die bei Anheben des Na-Spiegels nicht sofort in Lösung gingen. Anfangs wurde die sich an der Na-Oberfläche bildende Oxidschicht durch Anheben des Kühlmittelspiegels in den primären Abblasttank gespült. Dichtschwierigkeiten in der Beladezelle und eine gleichzeitig auftretende Fehlanzeige des O<sub>2</sub>-Meßgerätes der Beladezelle verursachten dann Ende Juli 1969 einen solchen Anstieg der O<sub>2</sub>-Verunreinigungen des primären Natriums, daß beide Kühlfallen des primären Reinigungskreislaufes zeitweise nicht mehr einwandfrei arbeiteten. Infolge des hohen O<sub>2</sub>-Gehaltes des primären Natriums fielen auch zeitweise die Niveauanzeiger im Reaktortank und im primären Hilfswärmetauscher aus. Nach Aufsetzen des Reaktordeckels und Spülen des primären Kühl- und Reinigungskreislaufes bei vollem Kühlmitteldurchsatz und 800°F konnten die Niveauanzeiger nach Tagen wieder frei von Na-Oxid gespült und der O<sub>2</sub>-Gehalt durch die Kühlfallen auf 10 ppm gedrückt werden. Sowohl die Kühlfallen des primären Reinigungskreislaufes als auch alle Niveauanzeiger des primären Kühlkreises wurden am Ende der Nullenergie-

testphase ausgetauscht. Die Kühlfalle des sekundären Kreislaufes arbeitete bisher einwandfrei, der  $O_2$ -Gehalt des sekundären Natriums blieb immer  $< 10$  ppm. Mehr als 170 Reaktor-"start ups" wurden inzwischen ausgeführt.

### 3. Ergebnisse der physikalischen Tests

Nach der Beladung der kleinsten kritischen Cores wurden weitere Core-Konfigurationen, einschließlich des sog. Leistungscore, geladen und die folgenden Tests durchgeführt:

#### a) Messung der inhärenten Neutronenquelle:

Während der kritischen Beladung von SEFOR wurde keine äußere Neutronenquelle benutzt. Die inhärente Neutronenquelle des  $PuO_2/UO_2$  Brennstoffs (18.5%  $Pu^{239}$  + 1.74%  $Pu^{240}$ ) genügte zum Anfahren. Für das Leistungscore wurde eine gesamte inhärente Neutronenquelle:  $S_0 = 3.7 \cdot 10^7$  n/sec gemessen. Die Reaktorleistung, bei welcher der Reaktivitätsbeitrag dieser Quelle meßbar nicht mehr erfaßbar ist, betrug  $\approx 600$  W.

#### b) Reaktivitätswerte der Nickel-Reflektoren:

SEFOR wird mit Hilfe von 10 Nickel-Reflektorsegmenten geregelt, die außerhalb des Reaktortanks angeordnet sind. Die Kalibrierung dieser Reflektorsegmente erfolgte mit Hilfe von Periodenmessungen, einem reactivity meter und der rod swap technique. Der mittlere Reaktivitätsbeitrag eines Reflektorsegmentes betrug  $\approx 1.3$   $\%$ , der Gesamtreaktivitätshub aller Reflektoren ist 12.9  $\%$ . Vorausberechnet war ein Gesamtreaktivitätshub von 11  $\%$ . Die Messungen zeigten aber auch, daß die Stellung benachbarter Reflektorsegmente den Reaktivitätswert eines Reflektorsegmentes um 15 bis 20% beeinflussen kann.

#### c) Messung von $\beta/1$

Rausch-Messungen bei einer Leistung von 900 W ergaben  $\beta/1 = 0.231 \cdot 10^{-3} \pm 1\%$  sec. Rechnungen zeigten einen Wert von  $\beta/1 = 0.214 \cdot 10^{-3}$  sec, der um 8% niedriger liegt.

#### d) Messung des Reaktivitätswertes verschiedener Reaktormaterialien:

Einige Ergebnisse der Messungen von Reaktivitätswerten verschiedener Reaktormaterialien werden in Abb. 24 und 25 für Brennstoff und  $B_4C$  darge-

stellt. Ein Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Werten zeigt: Die Rechnungen überschätzen die gemessenen Werte in Coremitte um 15 - 25%. Am Corerand ist der gemessene Verlauf für Brennstoff flacher als der errechnete.

e) Messung des isothermen Temperaturkoeffizienten

In Tabelle 8 werden für den Temperaturbereich 350 bis 760°F der berechnete und gemessene isotherme Temperaturkoeffizient gegenübergestellt. Die Messungen haben eine Genauigkeit von  $\pm 1\%$  und stimmen mit den errechneten Werten innerhalb  $\pm 3\%$  Fehlergrenze überein. Die Rechnungen ergaben einen Gesamtausdehnungskoeffizienten von  $-0.36 \text{ } \mu/\text{ }^\circ\text{F}$  und eine Dopplerkonstante  $T_0 \frac{dk}{dT} = -0.0082$ .

4. Zusammenfassung

Das am SEFOR angewandte Konzept der Beladezelle und das damit verbundene Beladeprinzip haben sich während der Nullenergietestphase voll bewährt. Die anfänglichen Dichtschwierigkeiten an der mit Argon gefüllten Beladezelle sind im wesentlichen überwunden. Die extremen Belastungen des primären Reinigungskreislaufes wären kaum aufgetreten, wenn das Reaktorcore nicht durch die Suche nach Brennstäben mit Pellets zu geringer Pu-Anreicherung über unvorhergesehen lange Zeiten geöffnet gewesen wäre. Die Ergebnisse der bisherigen physikalischen Messungen zeigen gute Übereinstimmung mit den vorausberechneten Werten.

Veröffentlichungen zu 1216

- (1) W.Schikarski  
Der Southwest Experimental Fast Oxide Reactor (SEFOR) -  
ein internationales Reaktorprojekt der deutschen Schnellbrüter-  
Entwicklung  
Atomwirtschaft 14, Seite 414 (August 1969)
- (2) H.Bumm, H.W. Glauner, E.Rühl, W.Schikarski, M.Tavosanis  
Die Entwicklung der SEFOR ENERGY PROBES  
KFK-Bericht 1033, EUR. 4307 d (September 1969)
- (3) R.A.Becker, G.Kessler  
Erste Betriebserfahrung und Ergebnisse der Zero Power Tests  
an SEFOR. Vortrag auf der Reaktortagung 1970 des Deutschen  
Atomforums

Tabelle 7

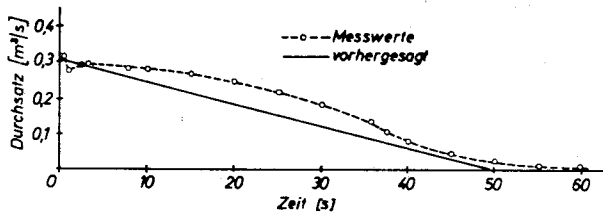
SEFOR	
BEGINN AN DER BAUSTELLE	SEPT. 1965
EINFUELLEN DES NATRIUMS	AUG. 1968
KRITISCH	MAI 1969
ENDE ZERO POWER TEST PHASE	OKT. 1969
VOLLE LEISTUNG 20 MW <sub>th</sub>	JUNI 1970
STATIC TESTS	
BLANCED OSCILLATOR TESTS	ENDE 1970
TRANSIENT TESTS	HERBST 1971

Tabelle 8

## ISOTHERMER TEMPERATURKOEFFIZIENT

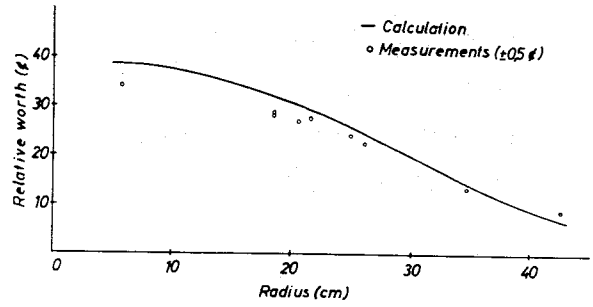
TEMPERATURBEREICH	GEMESSEN	BERECHNET
350 ÷ 450 °F	-0.67 (d/°F)	-0.66 (d/°F)
450 ÷ 550 °F	-0.65 (d/°F)	-0.63 (d/°F)
550 ÷ 650 °F	-0.58 (d/°F)	-0.61 (d/°F)
650 ÷ 760 °F	-0.57 (d/°F)	-0.58 (d/°F)

SEFOR ASSEMBLY I-D



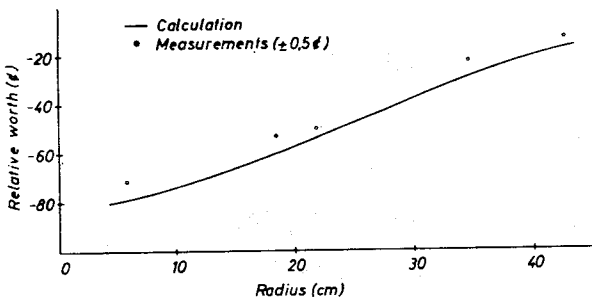
SEFOR Durchsatzabfall der primären EM-Pumpe bei Stromausfall

Abb. 23



SEFOR-fuel rod worth measurements (assembly I-D)

Abb. 24



SEFOR-B<sub>2</sub>C rod worth measurements (assembly I-D)

Abb. 25



122. Reaktortheorie1221. Wirkungsquerschnitte und Gruppenkonstanten

(B.Hinkelmann, R.Meyer, J.J. Schmidt, H.Bachmann, H.Huschke,  
B.Krieg, I.Langner, I.Siep, D. Woll, INR)

Als Ergänzung zu KFK 120/Teil I wurde zu Beginn des Jahres 1968 ein neuer, gegenüber der Erstauflage von 1962 (KFK 120/Teil II) wesentlich erweiterter und verbesserter, Band mit Tabellen von "Bestwerten" mikroskopischer Wirkungsquerschnitte und anderen Nukleardaten für die wichtigsten in Karlsruhe behandelten Reaktormaterialien aufgestellt. Er wurde zugleich als Dokumentation des Inhalts des KEDAK-Bandes ausgewerteter Kerndaten herausgegeben (1).

Der Inhalt des KEDAK-Bandes wurde um die vom Technion, Haifa, im Kontakt mit der GfK ermittelten "Bestdaten" für  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  und  $^{242}\text{Pu}$  erweitert. Dabei wurden die Einfangquerschnitte und Resonanzparameter für  $^{240}\text{Pu}$  entsprechend neuesten, umfangreichen Meßergebnissen aus dem BCMN/Geel abgeändert. Eine weitere Verbesserung der bisherigen Auswertungsergebnisse in Spalt-, Einfang- und unelastischen Streudaten für  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  und  $^{242}\text{Pu}$  wurde vom Technion, Haifa, als Teil eines neuen Zweijahreskontrakts mit der GfK begonnen.

Um die Übertragung des KEDAK-Bandes auf die IBM-Rechenanlage 360/65 und die von verschiedenen auswärtigen Stellen gewünschte Übernahme des Bandes zu ermöglichen, wurde ein Card-Image-Format für KEDAK entwickelt (2). In diesem Format wurde der Inhalt des KEDAK-Bandes, u. a. dem Kerndatenzentrum Saclay zur Befriedigung weiterer Anforderungen zur Verfügung gestellt.

Als besonderer Schwerpunkt der Auswertungsarbeiten wurde in enger Wechselwirkung mit den integralen Meßergebnissen von SNEAK und SUAK eine systematische Sichtung und Auswertung neuerer diskrepanter Absorptions- und Spaltquerschnittsmessungen an den wichtigsten Spalt- und Brutmaterialien in Angriff genommen (3). Zur Verbesserung der bisher in den Karlsruher Gruppensätzen noch verwandten unelastischen Streumatrizen des ABN-Satzes wurde im Rahmen von MIGRØS ein Programm erstellt, das unelastische Streumatrizen im Bereich aufgelöster Niveaus mit KEDAK-Daten, im Kontinuumbereich mit dem Weißkopf'schen Verdampfungsmodell errechnet.

Als einer der Hauptbenutzer beteiligt sich die Kerndatengruppe des INR an den grundsätzlichen Überlegungen der Kerndatensammelzentren Brookhaven, Saclay/ENEA, Wien/IAEA und Obninsk/UdSSR zur Schaffung einer fortgeschrittenen, internationalen Computerbibliothek experimenteller Kerndaten (SCISRS-II) mit zugehörigen Speicher- und Abfrageprogrammen zwecks späterer Übernahme und als Basis für zukünftige halbautomatische Kerndatenauswertung. Der deutsche Anteil an der EANDC-Requestliste für Kerndatenmessungen wurde wieder gründlich überarbeitet. Die Wirkungsquerschnitts-Meßprogramme von IAK und INR für totale, Einfang- und Spaltquerschnitte sind auf wichtige Forderungen der Requestliste ausgerichtet.

Der Schwerpunkt der Arbeiten zur Kerndatenauswertung im Jahre 1969 lag auf einer sorgfältigen Sichtung der neueren diskrepanten Absorptions- und Spaltquerschnitte für die besonders wichtigen Kerne  $U^{235}$ ,  $U^{238}$ ,  $Pu^{239}$  und der Austestung verschiedener Gruppenkonstantensätzen durch Vergleich mit den Ergebnissen integraler Experimente. Über die Ergebnisse dieser Studien wurde ausführlich auf der "International BNES-Conference on the Physics of Fast Reactor Operation and Design" in London 1969 vorgetragen (4). Im Zusammenhang mit diesen Untersuchungen wurde auf der Reaktortagung des Deutschen Atomforums in Frankfurt im April über den derzeitigen Stand der physikalischen Kenntnis der wichtigsten Reaktorkerndaten berichtet (5).

Im Rahmen der Erweiterung des KEDAK-Bandes auf Energien bis 15 MeV wurden für Cr, Fe, Ni und für verschiedene Schwellwerte die Daten bis zu 15 MeV hin bereitgestellt. Die auf KEDAK vorhandenen Winkelverteilungen für elastische Streuung wurden auf das Laborsystem transformiert und Legendre-analysiert. Für Wasserstoff wurden die Gruppenkonstanten bis zur 5. Ordnung in der Legendre-Entwicklung zunächst für 1/E-Wichtung berechnet.

Die Verfahren zur Berechnung von Gruppenkonstanten für natrium- und dampfgekühlte schnelle Reaktoren wurden zusammen mit den Zahlenwerten für die wichtigsten Isotope in einer ausführlichen Dokumentation zusammengestellt (6). Dieser Bericht sowie die entsprechenden Magnetbänder sind u.a. den Firmen AEG, Interatom und Belgonucleaire zugeleitet worden.

Ausgehend vom KFK-SNEAK-Satz wurden eine Reihe von Verbesserungen in neue Gruppensätze aufgenommen. Die wichtigsten Änderungen sind: Neuberechnung der inelastischen Streumatrix, Einführung der Meßergebnisse von GWIN für  $\alpha$  ( $\text{Pu}^{239}$ ), Berücksichtigung neuerer Einfang-Querschnitte für  $\text{U}^{238}$  nach MOXON und Spaltungs-Querschnitte für  $\text{U}^{235}$  nach PÖNITZ. Die vorgenommenen Änderungen sind in einem Beitrag zur BNES Konferenz (London) über "Physics of Fast Reactor Design and Operation" (4) aufgenommen. Eine umfassende Dokumentation erscheint 1970.

Bisher konnten die nuklearen Rechnungen lediglich für drei Betriebstemperaturen durchgeführt werden. Aus allgemein gültigen Gesetzmäßigkeiten wurde eine dreiparametrische Formel zur Interpolation zwischen den tabellierten Resonanzselbstabschirmfaktoren abgeleitet und in das existierende Programm zur Berechnung makroskopischer Querschnitte eingearbeitet. Der Bericht ist abgeschlossen und erscheint 1970.

Die Wirkungsquerschnitte und Resonanzselbstabschirmfaktoren sowie Interpolationsformeln zwischen verschiedenen Energiepunkten wurden für den 200-Gruppensatz bereitgestellt. Lösungsansätze zur Behandlung der energetischen Resonanzselbstabschirmung an Grenzflächen wurden aufgestellt. Die Arbeiten zur Umstellung der Gruppenkonstanten-Erstellungsprogramme (MIGRØS) auf die IBM 360/65 wurden abgeschlossen.

Analyse kritischer und unterkritischer Anordnungen (R.W.Albrecht, E.Kiefhaber, H.Küsters, E.Stein, D.Thiem, INR)  
 Zur Konferenz über "Constructive Uses of Atomic Energy" (Washington 1968) wurde eine Analyse schneller Nullenergieanordnungen mit einer erneuten kritischen Bewertung von Kerndaten fertiggestellt und als zusammenfassender Bericht veröffentlicht (3). Durch systematische Untersuchung verschiedener Anordnungen konnte ein Rückschluß auf die Qualität der verwendeten Kerndaten gezogen werden. Für verschiedene Anordnungen der unterkritischen SUAK-Anlage wurden die theoretische Analyse und der Vergleich mit dem Experiment ebenfalls veröffentlicht (7). Mit Hilfe der stochastischen Kohärenzfunktion wurde die dynamische Kopplung zwischen Reaktorzonen behandelt und am Reaktor STARK experimentell erfolgreich überprüft (8) (9) (10) (11). Die Berechnungsmethode zur Bestimmung der Neutronenlebensdauer und des Reaktivitätswertes von Materialproben im Rahmen der Störungstheorie wurde überprüft (12).

Der zur Zeit für die Rechnungen empfehlenswerteste Gruppensatz mit dem Namen MØXTØT-Set (Gwin-Werte für Pu- $\alpha$ , Moxon-Werte für  $\sigma$  von U238) sagt die Kritikalität von 12 untersuchten Anordnungen mit einer Unsicherheit von höchstens  $\pm 2\%$  genau voraus. Außerdem zeigt er, bis auf wenige, vermutlich durch unzureichende Berechnungsmethoden bedingte Ausnahmen, eine klare Trennung der Kritikalitätsergebnisse je nach Hauptspaltstoff. Demnach ist Pu239 in diesem Gruppensatz etwas unterreaktiv und U235 etwas überreaktiv. Eine Verwendung der neuen Meßdaten von Pönitz für den Spaltquerschnitt des U235 führt zu stark unterreaktiven Ergebnissen. Der größte Teil der Ergebnisse wurde auf der BNES Konferenz über die Physik Schneller Reaktoren in London (1969) vorgetragen (4).

Der Einfluß von Datenunsicherheiten auf einen Teil der in kritischen Anordnungen gemessene nuklearen Größen wurde in (13) untersucht

Veröffentlichungen zu 1221:

- (1) I. Langner, J.J. Schmidt, D. Woll  
Tables of Evaluated Neutron Cross Sections for Fast Reactor Materials  
KFK-Bericht 750, EUR 3715 e  
EANDC(E)-88 "U"
- (2) D. Woll  
Card Image Format of the Karlsruhe Evaluated Nuclear Data File KEDAK  
KFK-Bericht 880, EUR 4160 e  
EANDC(E)-112 "U"
- (3) H.Küsters, J.J.Schmidt, E. Eisemann, E.Metzenroth, K.E.Schroeter, D.Thiem  
Analysis of Fast Critical Assemblies and Large Fast Power Reactors  
with Group-Constant Sets Recently Evaluated at Karlsruhe  
Proceedings of the International Winter Meeting, ANS, Washington D.C.,  
Nov. 1968  
KFK-Bericht 793, EUR 3962 e  
EANDC (E)-113 "U"
- (4) H.Bachmann, B.Hinkelmann, E.Kiefhaber, B.Krieg, H.Küsters, J.J.Schmidt,  
I.Siep, E.Stein, D.Thiem, K.Wagner  
Evaluation of Fast Critical Experiments by Use of Recent Methods and  
Data  
Proceedings, BNES-Conf. on Physics of Fast Reactor Design and Operation,  
London, Juni 1969, p. 94
- (5) J.J. Schmidt  
Present Status of the Physical Knowledge of the Most Important Reactor  
Nuclear Data  
Atomkernenergie (im Druck)
- (6) H. Huschke, H.Bachmann, R. Fröhlich, B.Krieg, H.Küsters, M.Metzenroth,  
D. Woll  
Gruppenkonstanten für dampf- und natriumgekühlte schnelle Reaktoren in  
einer 26-Gruppendarstellung  
KFK-Bericht 770, EUR 3953 d

- (7) F. Mitzel, K.E. Schroeter  
Gepulste Experimente an der Schnellen Unterkritischen Anlage Karlsruhe (SUAK) und Vergleich der Ergebnisse mit Berechnungen  
Nukleonik, 12 (1969) S. 110-17
- (8) R.W. Albrecht, W. Seifritz  
The Coherence Function: A Measure of Spatially Dependent Nuclear Reactor Properties  
Proceedings of the Japan United States Seminar on Nuclear Reactor Noise Analysis, Tokyo, Sept. 1968, S. 285-306
- (9) R.W. Albrecht, W. Seifritz  
Fundamental Properties of the Coherence Function in Symmetrical Two-Node System  
Nukleonik, 11 (1968) S. 143-148
- (10) R.W. Albrecht, W. Seifritz  
Die nodale Behandlung der dynamischen Kopplung zwischen Reaktorzonen mit Hilfe der stochastischen Kohärenzfunktion  
8. Internationale Reaktortheoretagung, München, März 1968,  
AED-Conf. 019-004
- (11) W. Seifritz, R.W. Albrecht  
Measurement and Analysis of the Coupled Core Coherence Function in a Two Node Symmetrical Reactor  
Nukleonik, 11 (1968) S. 149-154
- (12) E. Kiefhaber  
Comment on the Calculation of Neutron Lifetime and Material Worth  
KFK-Bericht 882, EUR 4161 e
- (13) C.H.M. Broeders  
The Influence of Nuclear Data Uncertainties on Properties of Critical Assemblies  
KFK-Bericht 939 (Januar 1969), EUR 3956 e

- (14) J.J. Schmidt  
Principles of Cross Section Evaluation  
Proceedings of the 2nd Conference on Neutron Cross Sections and Technology  
USAEC, NBS, APS, ANS, Washington D.C., März 1968  
KFK-Bericht 772
- (15) J.J. Schmidt  
Organizational and Technical Aspects in the Field of Neutron Nuclear  
Data Evaluation  
KFK-Bericht 791
- (16) J.J. Schmidt  
Basic Requirements of Advanced Neutron Data Storage and Retrieval  
System (CSISRS)  
IAEA Panel and Neutron Data Compilation Brookhaven, Februar 1969 und  
KFK-Bericht 941
- (17) J.J. Schmidt  
Aktueller Stand der physikalischen Kenntnis der wichtigsten Reaktor-  
kerndaten  
KFK-Bericht 966
- (18) J.J. Schmidt  
Neutron Nuclear Data Compilation and Evaluation-Past, Present and Future  
KFK-Bericht 1075, EUR 4316 e  
EANDC (E)-124 "U"
- (19) J.J. Schmidt et al.  
Evaluated Microscopic Neutron Cross Sections and 26 Group Constants  
for Cd  
KFK-Bericht 1080, EUR-4318 e  
EANDC (E)-125 "U"
- (20) E. Kiefhaber  
Konsistente Behandlung des Einflusses der neuen  $\alpha$ -Werte von Pu-239 auf  
nukleare Kenngrößen unter Berücksichtigung der Plutonium-Gleichgewichtszu-  
sammensetzung ( $Pu_{\infty}$ )  
KFK-Bericht 846, EUR 4152 d

1222. Neue Methoden und Rechenprogramme

(G.Arnecke, H.Bachmann, H.Borgwaldt, V.Brandl, G.Buckel, W.Kinnebrock, D. Gorenflo, L. Günther, W. Höbel, B.Krieg, M. Lalović, L. Mayer, D.Sanitz, W.Schwetje, INR)

Bei der Umstellung auf die IBM/360 entstand aus dem NUSYS-Programm DIXY ein selbständiges Programmpaket zur Durchführung von zweidimensionalen Flußberechnungen, Auswertungen und Störungsrechnungen in Diffusionsapproximation. Der Zusammenhang zwischen dem neuen NUSYS-System und dem neuen DIXY wurde auf der Ebene des Betriebssystems (Job-Step-Konzept) ermöglicht.

Es wurde das Programm KASY erstellt (6), das nach einem von S.KAPLAN vorgeschlagenen Syntheseverfahren dreidimensionale Neutronenverteilungen aus vorgegebenen zweidimensionalen Versuchsfunktionen berechnet. Die Ergebnisse sind zufriedenstellend.

Aus dem Code DTF-IV wurde als  $S_N$ -Programm DTK zur Berechnung eindimensionaler, winkel- und energieabhängiger Neutronenverteilungen entwickelt und bereitgestellt. Das zweidimensionale  $S_N$ -Programm SNØW wurde erstellt und erfolgreich getestet. Da Programme dieser Art einen hohen Rechenzeitaufwand haben, gehen die Bestrebungen dahin, das Programm SNØW schneller als vergleichbare andere Codes zu machen.

Der von Interatom übernommene Multigruppen-Monte-Carlo-Code MOCA wurde an das NUSYS-System angekoppelt und im Vergleich zu  $S_4$ -Ergebnissen getestet. Ein Bericht erscheint 1970.

Der Monte-Carlo-Code der GfK, der nicht im Multigruppenbild arbeitet, wurde in den Versionen M5C und M4CG schrittweise auf FORTRAN IV umgestellt, dabei jedoch auch in der Struktur erheblich vereinfacht. Die Umstellung erfolgte im Berichtszeitraum bis zu etwa 90%.

Daneben wurden wirksame Schätzverfahren für spezielle Probleme untersucht. Die Unterstützung der Experimentatoren durch kleinere Monte Carlo Codes zur Analyse von Spektrumsmessungen ist hervorzuheben.

Die Berechnung der Totvolumen- und Randkorrekturen von Protonenrückstoßzählern wurde abgeschlossen und dokumentiert (1). Ferner wurde zur Berechnung der Empfindlichkeit eine Bor-Schicht-Neutronenzählern in Abhängigkeit von der Energie der Neutronen ein neues Verfahren entwickelt. Die Untersuchung ist abgeschlossen.



Veröffentlichungen zu 1231:

- (1) Braess, D., Thurnay, K.  
Theoretische Behandlung hypothetischer schwerer Unfälle bei  
schnellen Leistungsreaktoren  
KFK-Bericht 813  
EUR 3971 d
- (2) Kluge, F.G., Thurnay, K.  
Theoretische Behandlung von denkbaren schweren Unfällen bei  
schnellen Brutreaktoren im Rahmen des Bethe-Tait-Modells  
KFK-Bericht 1057  
EUR 4314 d
- (3) Thurnay, K.  
FAUN-Z, Berechnung schwerer Unfälle nach der modifizierten  
Bethe-Tait-Methode in (r, z)-Geometrie  
KFK-Bericht 1044  
EUR 4310 d
- (4) Borgwaldt, H., Küsters, H., Kußmaul, G.  
Meister, H., Thurnay, K.  
Reactor Dynamics Topics Recently Investigated at Karlsruhe  
Proceedings of the Brookhaven Conference on Industrial Needs  
and Academic Research in Reactor Kinetics.  
BNL 50117, T-497  
KFK-Bericht 786  
EUR 3958 e
- (5) Borgwaldt, H., Edelmann M., Habermann, F.W.A.,  
Kußmaul, G., Meister, H., Seifritz, W., Stegemann, D.  
Experience Obtained at Karlsruhe with Different Kinetic Methods  
of Reactivity Determination  
IAEA Panel on Reactivity Measurements, Wien, Dezember 1968  
KFK-Bericht 899  
EUR 4166 e
- (5a) F.G.Kluge, H.Küsters  
Reaktivitätswerte von Kavitäten in einem Schnellen Reaktor als mögliche  
Folge einer Brennstoff-Natrium Reaktion  
Reaktortagung des DATF/KTG, K3-112, Berlin 1970

- (6) Schlechtendahl, E.G. D. 1818eX (S1)  
Sieden des Kühlmittels in natriumgekühlten schnellen  
Reaktoren  
KFK-Bericht 1020  
EUR 4302D, Juni 69
- (7) Amendola, A.  
A Statistical Method for Evaluation of Hot Channel  
Factors in Reactor Design  
KFK-Bericht 843  
EUR 3979 e
- (8) Fischer, M.  
Temperaturverteilung und thermische Stabilität im asymmetrischen  
Brennstabbünel  
KFK-Bericht 964
- (9) Fischer, M., H. Shimamune  
Temperature Distribution and Thermal Stability in Asymmetrical  
Triangular Rod Clusters.  
KFK-Bericht 724,  
EUR 4178 e, April 1969
- (10) Keßler, G.  
Zur numerischen Lösung der ortsabhängigen dynamischen Gleichungen  
schneller Brutreaktoren mit Hilfe eines Variationsprinzips  
Dissertation, Universität Karlsruhe 1968  
KFK-Bericht 781/I
- (11) Keßler, G.,  
RADYVAR-Programm zur Behandlung der ortsabhängigen Dynamik  
schneller Brutreaktoren mit Hilfe des Variationsverfahrens  
von Kantorowitsch  
KFK-Bericht 781/II

- (12) Keßler, G.  
Space Dependent Dynamic Behaviour of Fast Reactors Using  
the Time-Discontinuous Synthesis Method  
ANS International Conference, Washington, 10.-15. Nov. 1968  
Transactions of the ANS, 11 (1968) S 569
- (13) Frisch, W., Wilhelmi, G.  
Dynamische Simulatoren in der Reaktorentwicklung.  
Ein Vergleich.  
Ext. Bericht 8/69-1, Januar 1969
- (14) Uhrig, H.  
Die Abschaltkriterien des Sicherheitssystems eines Kernreaktors  
zum Schutze vor Übertemperaturen  
Dissertation, Universität Karlsruhe 1967  
Nukleonik, 11 (1968) S. 117-125
- (15) Frisch, W.  
Stabilitätsprobleme bei dampfgekühlten  
schnellen Reaktoren  
KFK-Bericht 759  
EUR 3730 d
- (16) Doetschmann, K.  
Drei FORTRAN-Programme zur Bestimmung der Heißkanal-  
temperaturen in dampf- und gasgekühlten Reaktorkernen  
unter Berücksichtigung der Kühlmittel-Quervermischung  
KFK-Bericht 815  
EUR 3973 d
- (17) Doetschmann, K.  
Kühlmittel-Quervermischung und deren Auswirkung auf die  
Heißkanaltemperaturen in dampfgekühlten schnellen Reaktoren  
KFK-Bericht 848  
EUR 4151 d

(18) Hoang, Y.S.

Struktur-Ausdehnungs- und Verbiegungseffekte

im schnellen Reaktor

KFK-Bericht 964

EUR 4171 d, April 1969

(19) Hornyik, K.

Models, Methods and Digital Computer Programs for

Analyses in Reactor

Dynamics with Emphasis in Fast Breeder Reactors and

Compressible Single Phase Coolants

KFK-Bericht 799,

EUR 3964 a

(20) Smidt, D.

Fast Reactor Core Heat Removal

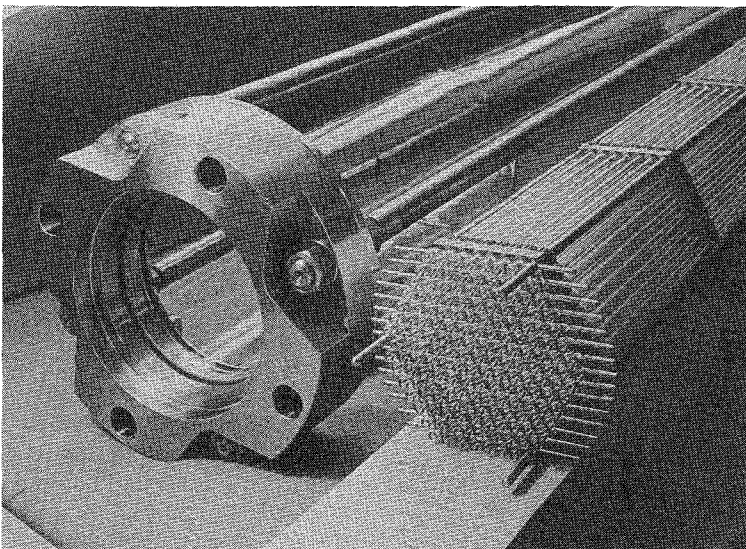
KFK-Bericht 883

EUR 4162 e

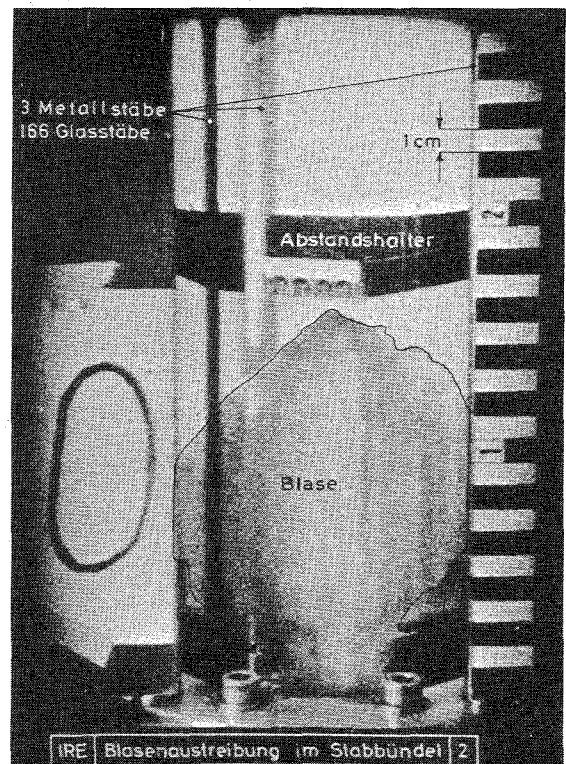
1233. Untersuchungen lokaler Kühlungsstörungen(Peppier, Schleisiek,  
Fette, IRE)

1. Die Simulations-Experimente zur Kühlmittelaustreibung in Ein-  
kanalanordnung mit Wasser wurden abgeschlossen. Der Einfluß von  
Überhitzung, Temperaturprofil im Kühlkanal, Systemdruck und Heiz-  
leistung auf die Austreibungsgeschwindigkeit konnte mittels Hoch-  
frequenzkinematografie analysiert werden. Die Versuche haben be-  
wiesen, daß das Einzelblasensieden in einfacher Geometrie  
phänomenologisch und quantitativ theoretisch beherrscht wird. (1).

Zur Untersuchung der hydrodynamischen Probleme in Stabbündel-  
geometrie wurde eine Kühlmittelaustreibung in einem Na 2 -  
Brennelement im Maßstab 1:1 simuliert. In einer durchsichtigen  
Anordnung von 169 Stäben wurde die Ausbreitung einer Gasblase  
und die Verdrängung der die 169 Stäbe umgebenden Flüssigkeit ge-  
filmt. Es konnte nachgewiesen werden, daß die Blase - auch bei  
Variation verschiedener Versuchsparameter (Einlaßquerschnitt 0,5  
bis 5 cm<sup>2</sup>, Druck des die Blase simulierenden Gases von 0,5 bis  
8 atü) - immer den ganzen verfügbaren Brennelementquerschnitt  
ausfüllt und dann diesen Querschnitt beibehaltend die über ihr  
stehende Flüssigkeitssäule auswirft. Damit wurde eine der wesent-  
lichen im Code BLOW-2 gemachten Annahmen als richtig nachge-  
wiesen. (2) (3).



(a)



(b)

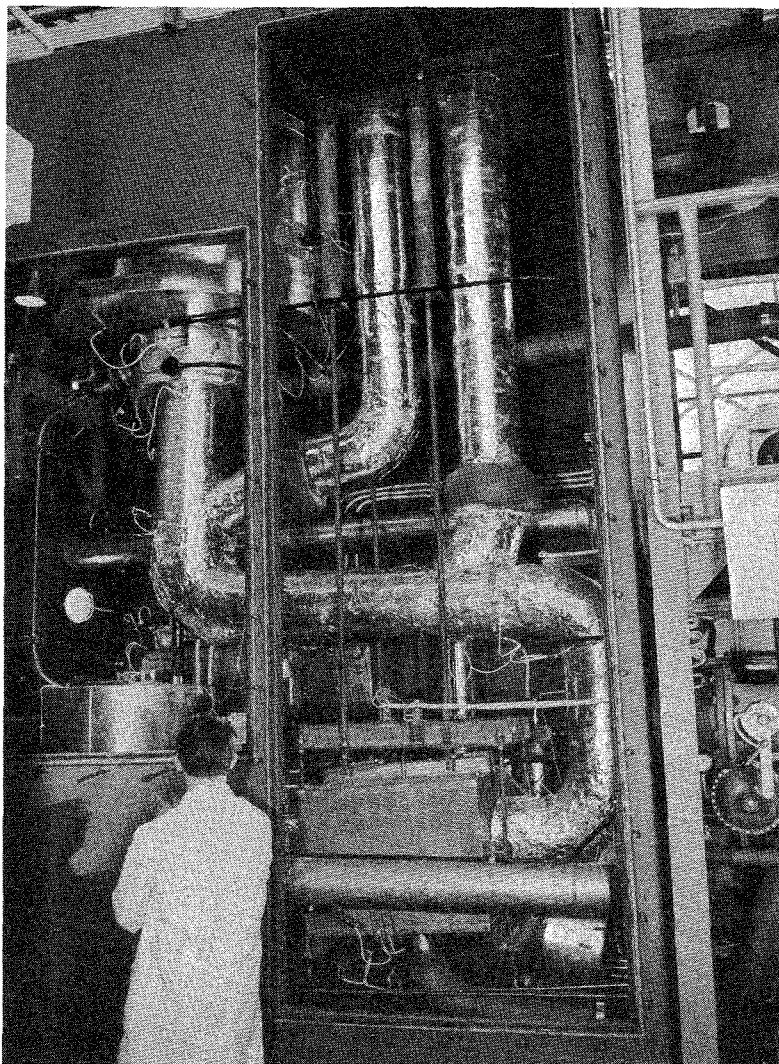
Simulation des Blasenwachstums im Brennelement  
a) Versuchsstrecke  
b) Ausstoßvorgang

2. Mit dem Natriumsiedekreislauf NSK, der mit einer induktiv beheizten Teststrecke das Primärkühlsystem eines natriumgekühlten Reaktors und die halbe Höhe eines Brennelementkanals simuliert, wurden Versuchsserien mit folgenden Ergebnissen durchgeführt:

(4) (5)

- Die Phänomene der Siededynamik sind erkannt.  
Es wurden Überhitzungen vor Beginn des ersten Siedens zwischen 20 und 250°C gemessen. Das Schwergewicht mit einem Anteil von 70% lag zwischen 20 und 60°C. Mit steigendem Wärmefluß nehmen die Mittelwerte der Überhitzung zu. Es wurden Ausstoßgeschwindigkeiten zwischen 2 und 30 m/sec gemessen.
- Nach dem ersten Ausstoß dringt das flüssige Natrium nicht mehr oder nur unwesentlich wieder in den beheizten Teil ein. Dies gilt jedoch nur für spezifische Flächenbelastung über ca. 50 W/cm<sup>2</sup>.
- Eine Wärmemenge, die einer spezifischen Heizleistung unter 40 W/cm<sup>2</sup> entspricht, konnte durch pulsierendes Sieden quasi-stationär abgeführt werden, ohne daß eine Überhitzung der Teststrecke erfolgte.
- Vom Ausstoß bleibt immer ein Natriumfilm an der Teststreckenwand zurück, der bei hoher spezifischer Heizflächenbelastung rasch abdampft.
- Während der Ausstöße und Oszillationen werden hohe Na-Dampfgeschwindigkeiten zwischen Verdampfungs- und Kondensationsflächen ermittelt. Diese ergeben zum Teil beachtliche Reibungsdruckverluste, so daß ein deutlicher Unterschied zwischen Verdampfungstemperatur und Kondensationstemperatur besteht.
- Die maximalen Drucke beim ersten Ausstoß entsprechen dem gemessenen Siedeverzug.
- An den Kondensationsflächen wurden Wärmeflüsse bis zu 1000 W/cm<sup>2</sup> ermittelt.

Außerdem wurde im Natrium-Siedekreislauf NSK in einem induktiv beheizten Testrohr von 152 mm Länge und 9mm hydraulischem Durchmesser das Sieden des Natriums bei erzwungener Strömung untersucht.



Natrium-  
Siedekreislauf NSK

Die wichtigsten Ergebnisse dieser Versuche waren:

- Im gesamten untersuchten Bereich, auch bei Stabilisierung des Natriumzulaufs zur Teststrecke durch Drosseln, wurde kein stabiles, sondern immer heftig pulsierendes Sieden beobachtet.
- Der Siedeverzug an der Rohrwand lag zwischen  $40$  und  $125^{\circ}\text{C}$ . Er nahm mit steigender Wärmestromdichte zu und mit steigender Natriumgeschwindigkeit ab.
- Die kritische Wärmestromdichte, von der an es nicht mehr zu einer Wiederbenetzung der Teststrecke zwischen den einzelnen Siedestößen kam, lag bei den Versuchen ohne Drosselung bei  $200$ - $250$   $\text{W}/\text{cm}^2$ . Mit Drosselung wurde auch bei Wärmestromdichten bis zu  $400$   $\text{W}/\text{cm}^2$  kein Austrocknen der Teststrecke beobachtet.

3. Die im Zusammenhang mit der Siedekeimbildung durchgeführten Versuche zur Bestimmung der Löslichkeit von Argon und Helium in Natrium in Abhängigkeit von Temperatur ( $300$ - $600^{\circ}\text{C}$ ), Druck

(05 - 4 ata) und Zeit sind abgeschlossen. Die Löslichkeiten sind stark temperaturabhängig. Die Löslichkeit des Heliums in Natrium ist im Mittel um etwa den Faktor 8 größer als die des Argons. Parallel zu den Versuchen ist ein theoretisches Modell entwickelt worden, das die hier gemessenen Löslichkeitswerte (He, Ar) und amerikanischen Versuche (Kr) gut bestätigt. Unter Verwendung dieses Modells ist auch die Löslichkeit von Xenon in Natrium bestimmt worden.

4. Der Aufbau des als abschließender Demonstrationsversuch gedachten Experiments zum Brennelementversagen unter Siedeverzug in einer Anordnung von insgesamt 7 Brennelementmodellen (BEVUS) wurde fortgesetzt. Durch Verzögerungen bei einigen Lieferterminen hat sich der Beginn des Experiments auf das Jahr 1970 verschoben (vgl. 1262)

Veröffentlichungen zu 1233:

(1) Fette, P.

Simulation der Kühlmittlejektion in Na-gekühlten Brutreaktoren durch Experimente mit Wasser  
KFK-Bericht Nr. 94/, EUR 3976 d, März 69

(2) Fette, P., Großgarten, H.D.

Simulation der Kühlmittelaustreibung im Na 2-Brennelement,  
KFK 925, EUR 4169d, Januar 1969

(3) Fette, P.

Simulationsexperimente zum Rückstrom- und Rekondensationsvorgang im Na-2-Brennelement  
KFK-Ext.-Bericht 8/69-4, Juli 69

(4) Pepler, W., Schultheiß, G.F.

Liquid Metal Boiling Research  
KFK-Bericht 874  
EUR 4157 e

(5) Smidt, D., Fette, P., Pepler, W., Schlechtendahl, E.G.

Schultheiß, G.F.  
Problems of Sodium Boiling in Fast Reactors  
KFK-Bericht 790  
EUR 3960 e



Die Programme zur näherungsweise Berechnung der Lösung der eindimensionalen Boltzmann-Gleichung mit Hilfe von vorzugebenden Winkel- und Ortsfunktionen oder Winkel- und Energiefunktionen wurden fertiggestellt (Transportsynthese). Eine Reihe von Modellproblemen wurde berechnet. Ziel ist die Ermittlung der Qualität der verschiedenen Näherungen und die schließliche Verwendung geeigneter Approximationen in mehrdimensionalen Programmen.

Es wurde eine verbesserte Theorie der Vielfachstoßwahrscheinlichkeit entwickelt, mit der es möglich ist, sowohl Rand- und Abschirmprobleme als auch Zellprobleme bei schnellen und thermischen Reaktoren zu behandeln (15). Weiterhin wurden Methoden zur Vereinfachung und Automatisierung nuklearer Berechnungsmethoden untersucht und erprobt.

#### Veröffentlichungen zu 1222:

(1) V. Brandl

Ein Monte-Carlo-Programm für Rückstoßprotonenzähler mit Zylindergeometrie

KFK-Bericht 860, EUR 4154 d

(2) L. Mayer

Berechnung von Flußverteilungen in Reaktorrandschichten und Zellen mit erweiterten Mehrfachstoßwahrscheinlichkeiten

Dissertation, Univ. Karlsruhe 1968

Externer Bericht 4/68-21

(3) H. Borgwaldt

Zwei modifizierte ELP-Verfahren zum Schätzen der zeitabhängigen Leckage in Monte Carlo-Reaktorcodes

Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums, Frankfurt

- (4) H.Th. Klippel  
Control Rod Calculations for the Steam Cooled Fast Breeder Reactor D-1  
Diplomarbeit, Techn. Hochschule Amsterdam 1967  
KFK-Bericht 792, EUR 3961 e
- (5) W. Schwetje  
Numerische Untersuchungen zu Methoden der Kritikalitäts- und Brutraten-  
berechnung für Reaktoren mit Zylindergeometrie und teilweise eingefah-  
renen Regelstäben  
KFK-Bericht 741, EUR 3723 d
- (6) G. Buckel, W. Höbel  
Approximation der dreidimensionalen Neutronen-Diffusionsgleichung  
durch ein Syntheseverfahren  
Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums, Frankfurt

1223. Sicherheitskoeffizienten (K.-E. Schroeter, I.Siep, INR)

Der mit dem Technion-Haifa (Israel) abgeschlossene Vertrag über die Berechnung des Dopplerkoeffizienten schneller Reaktoren wurde auftragsgemäß abgeschlossen. Die Ergebnisse sind in einem zusammenfassenden Bericht (The Doppler Effect in Fast Reactors, TNSD-147, Technion, Haifa, April 1968) aufgeführt. Ein neuer Vertrag über "Special Problems in Fast Reactor Physics" wurde mit demselben Institut für eine Dauer von zwei Jahren abgeschlossen.

Das existierende Programm zur Berechnung des Dopplerkoeffizienten Schneller Leistungsreaktoren wurde überarbeitet, und auf neue Daten umgestellt (1). Die methodischen Unsicherheiten bei der Berechnung der Natriumblasenkoeffizienten wurde in einer systematischen Arbeit untersucht (2).

Statistische Schwankungen (H.Borgwaldt, INR)

Die theoretischen Untersuchungen der statistischen Schwankungen in Reaktoren mit Reaktivitätsrückwirkung wurden fortgesetzt(3). Es wurde ferner diskutiert, welchen Einfluß korrelierte Neutronenschwankungen auf die Auswertung einiger dynamischer Experimente haben.

Veröffentlichungen zu 1223:

- (1) I. Siep  
Zur Berechnung von Dopplerkoeffizienten für Schnelle Reaktoren  
KFK-Bericht 983 (April 1969)
- (2) K.-E. Schroeter  
Einfluß von Berechnungsmethoden auf den Multiplikationsfaktor  $k_{\text{eff}}$  und den Voideffekt  $k_v$  für einen großen schnellen natriumgekühlten Brutreaktor  
Dissertation, Univ. Karlsruhe 1969
- (3) H. Borgwaldt  
Neutron Noise in a Reactor with an External Control Loop  
Nukleonik, 11 (1968) 76-84  
KFK-Bericht 788

1224. Abbrand- und Langzeitverhalten (L.Mayer, D.Sanitz, E.Stein,  
G.Willerding, INR)

Es wurde ein nulldimensionaler Code PYGMY hergestellt und ausgetestet (1).

Der Code hat folgende besonderen Eigenschaften:

1. Berücksichtigung von (n,2n)-Prozessen,
2. Zulassung von Verzweigungen der Isotopenketten bei Zerfall, Einfang und (n,2n)-Prozessen
3. Berücksichtigung von Be- und Entladeprozessen, Abschaltzeiten und Leistungsänderungen
4. Berechnung der Aktivitäten
5. Durchführung reiner Bestrahlungsrechnungen
6. Einführung einer Schrittweitenautomatik
7. Einführung eines numerisch stabileren Lösungsverfahrens für die Isotopen-gleichungen.

Eine erste Version des von der Firma INTERATOM übernommenen zweidimensionalen Abbrandprogrammes wurde auf die IBM/360-65 umgestellt (2).

Veröffentlichungen zu 1224:

- (1) L. Mayer  
PYGMY - A Zero-Dimensional Burn-up Program for Fast Reactors  
KFK-Bericht 1056
- (2) L. Mayer, D. Sanitz, E. Stein, G. Willerding  
Vorläufige Beschreibung des zweidimensionalen Abbrandprogramms ASB,  
Version des Programms von INTERATOM für den IBM 360/65  
KFK-Bericht 1079

1225. Abschirmung (H.W. Wiese, INR)

Es wurde mit einer systematischen Studie über Berechnungsverfahren zur Abschirmung schneller Reaktoren begonnen. In diesem Zusammenhang wird die Karlsruher Version DTK des eindimensionalen  $S_n$ -Code DTF4 durch eine hohe  $P_N$ -Darstellung der anisotropen Streuung erweitert und durch ein  $\gamma$ -Abschirmungsprogramm ergänzt.

1941

1. The first part of the year was spent in the office.

2. The second part of the year was spent in the office.

3. The third part of the year was spent in the office.

4. The fourth part of the year was spent in the office.

5. The fifth part of the year was spent in the office.

6. The sixth part of the year was spent in the office.

7. The seventh part of the year was spent in the office.

8. The eighth part of the year was spent in the office.

9. The ninth part of the year was spent in the office.

10. The tenth part of the year was spent in the office.

11. The eleventh part of the year was spent in the office.

12. The twelfth part of the year was spent in the office.

13. The thirteenth part of the year was spent in the office.

14. The fourteenth part of the year was spent in the office.

15. The fifteenth part of the year was spent in the office.

16. The sixteenth part of the year was spent in the office.

17. The seventeenth part of the year was spent in the office.

18. The eighteenth part of the year was spent in the office.

19. The nineteenth part of the year was spent in the office.

20. The twentieth part of the year was spent in the office.

21. The twenty-first part of the year was spent in the office.

22. The twenty-second part of the year was spent in the office.

23. The twenty-third part of the year was spent in the office.

24. The twenty-fourth part of the year was spent in the office.

25. The twenty-fifth part of the year was spent in the office.

26. The twenty-sixth part of the year was spent in the office.

27. The twenty-seventh part of the year was spent in the office.

28. The twenty-eighth part of the year was spent in the office.

29. The twenty-ninth part of the year was spent in the office.

30. The thirtieth part of the year was spent in the office.

123. Sicherheit schneller Reaktoren1231. Theoretische Untersuchungen zur Dynamik und Sicherheit1. Reaktorexkursionen (H.Küsters, D.Braess, F.G.Kluge, K.Thurnay, INR)

Die theoretische Behandlung schwerer Reaktorunfälle im Rahmen des Bethe-Tait-Verfahrens wurde 1968 abgeschlossen (1) (2) (3).

Zum Mechanismus des Versagens von Brennstoffstäben wurde eine kritische Literaturdurchsicht vorgenommen. Diese bildet den Ausgangspunkt für eine detaillierte heterogene Unfallanalyse, die im internationalen Rahmen als ungelöst zu betrachten ist. Im Mittelpunkt dieser Untersuchungen steht die Erfassung der grundsätzlichen Vorgänge bei einer Vermischung von heißem Brennstoff und relativ kühlem Natrium. Eine Übersicht über die in Karlsruhe behandelten Probleme der Reaktordynamik wurde auf der Brookhaven Conference on Industrial Needs and Academic Research (4) vorgetragen. Über die Erfahrungen mit verschiedenen kinetischen Methoden zur Reaktivitätsbestimmung wurde auf einem Diskussionstreffen der IAEA (5) referiert.

Die Berechnung der Reaktivitätsstörungen durch Kavitäten im SNR-Core als mögliche Folge einer Brennstoff-Natrium-Reaktion wurden 1969 zu einem ersten Abschluß gebracht (5a). Aus den transporttheoretisch berechneten unsymmetrischen Störungen ergab sich, daß die Störung im Core-Zentrum den größten Effekt liefert. Die Reaktivität stammt zum überwiegenden Teil von der Na-Void-Reaktivität, Materialverschiebungen liefern nur geringe Beiträge. Zweidimensionale Diffusionsrechnungen für die lediglich von Natrium befreiten Störzonen im Core-Zentrum bestätigen die aus den eindimensionalen Rechnungen gewonnenen Resultate. Natriumverlust bis zum inneren axialen Blanketrand ergaben keinen negativen Reaktivitätseffekt, vielmehr kompensieren sich erwartungsgemäß in etwa die positiven und negativen Beiträge im oberen und unteren Core-Drittel. Damit ist also das Erreichen einer Reaktivitätsstörung von 1 \$ bei hinreichender Größe der Störzone im Core-Zentrum möglich. Untersucht wurde ferner ein Core, bei dem die innere Zone mit Uran-Brennstoff beladen ist. Die zentralen Reaktivitätsstörungen sind dann erheblich kleiner.

Der Aufbau eines Programms zur Berechnung des Energietransfers und des Druckaufbaus bei einer Na-Brennstoff-Reaktion wurde in Angriff genommen. Die kritischen Daten von Na wurden überprüft.

## 2. Theorie der Natriumaustreibung (E.G.Schlechtendahl, IRE)

Der Code BLOW zur Berechnung des dynamischen Blasenwachstums in beheizten Kanälen wurde 1968 fertiggestellt und mit den Ergebnissen von Siedeversuchen mit Wasser (vgl. 1233) verglichen. Die Übereinstimmung war sehr befriedigend (6).

## 3. Berechnung von Heißstellen (A.Amendola, M.Fischer, IRE)

Erstmals konnte eine Beziehung zwischen der Wahrscheinlichkeit einer Überschreitung kritischer Temperaturen und der Größe der davon betroffenen Bereiche in Reaktorkernen mit Hilfe der statistischen Heißstellenanalyse aufgestellt werden. Erste Ergebnisse wurden veröffentlicht. Ein zusammenfassender Bericht erscheint 1970. Die Untersuchungen zur thermischen Stabilität und zur Berechnung des lokalen Wärmeübergangs in enggepackten asymmetrischen Brennstab-Bündeln führt zu Kriterien für die Abstände der Stützstellen in Brennelementen mit Gitterabstandshaltern und zu einer wesentlich genaueren Ermittlung der Temperaturfelder im Kühlmittel, Hüllrohr und Brennstoff (7) (8) (9).

## 4. Technische Zuverlässigkeit (G.Weber, IAR)

Es wurde ein Rechenprogramm zur Auswertung von Unfallbäumen mit Hilfe des Monte-Carlo-Verfahrens erstellt und getestet. Es erlaubt eine Berechnung der Ausfallrate eines technischen Systems aus den Ausfallraten der Komponenten. Darüber hinaus läßt sich die Empfindlichkeit berechnen, mit der die System-Ausfallrate vom Verhalten der einzelnen Komponenten abhängt. Das Programm ist auf den Entwurf eines Notstromversorgungssystems für Kernkraftwerke angewandt worden.

## 5. Ortsabhängige Dynamik (G.Kessler, IRE, L.Mayer, INR)

Mit der Codierung eines quasestatischen Dynamik-Programms in zwei Ortsdimensionen und mit thermodynamischer Rückkopplung wurde begonnen. Abgesehen von der numerischen Effektivität des Codes soll die Möglichkeit geschaffen werden, das Reaktorsystem vom Moment der auslösenden Störung unter Umständen bis hin zur Coreverformung verfolgen zu können.

Die Untersuchungen des Einflusses der zeitlich veränderlichen Neutronenflußverteilung während einer schnellen Exkursion wurden mit Erstellung des Programms RADYVAR abgeschlossen (10) (11) (12).



(6) Gast, K., Keller, K., Pepler, Schikarski, W., Schlechtendahl, E.G., Schultheiß, G.F., Wild, H.

Beiträge zur Sicherheitsanalyse des schnellen Natrium-  
gekühlten Reaktors (SNR)

Externen Bericht 2/69-9 vom 9. September 1969  
Eine physikalische Wärmeübertragung zwischen geschlossenen  
Natrium ist als eine Möglichkeit, die zu einer Propagation von Brennelement-

(7) Fischer, M., im Bd. 10, S. 110-111, 1969, Sept.

The Dynamics of Waves including shocks in two phase flow.  
Nuclear Engineering and Design, Vol. 10, No. 9, 1969, Sept.

dieses sehr stark in zwei Phasen ablaufenden Phänomens  
erforderlich ist, werden bei den einzelnen Gruppen jeweils nur Teilaspekte  
des Gesamtproblems behandelt. Zur Förderung des internationalen Erfahrung-

1234 Störfallverhalten von Brennstäben

ausgewechselt wurde im Februar 1969 im Rahmen der 1. Internationalen  
Tagung wurde das Experimentelle Untersuchungen zum Brennstabversagen  
erörtert, an der 24 Experten aus 7 Ländern teilnahmen. Anlässlich dieser

Tagung wurde das Experimentelle Untersuchungen zum Brennstabversagen  
erörtert, an der 24 Experten aus 7 Ländern teilnahmen. Anlässlich dieser  
Tagung wurde das Experimentelle Untersuchungen zum Brennstabversagen  
erörtert, an der 24 Experten aus 7 Ländern teilnahmen. Anlässlich dieser

Versuche mit direkt beheiztem UO<sub>2</sub> - Stab  
(D. Freund, W. Schikarski, IAR/AFTS)

Die Methode des direkt elektrisch beheizten UO<sub>2</sub>-Brennstabes gestattet eine  
Reihe von Untersuchungen, die zum Verständnis des thermischen und thermo-  
dynamischen Verhaltens von UO<sub>2</sub>-Brennstäben beitragen. Es können Struktur-  
änderungen und brennstoffphysikalische Vorgänge des UO<sub>2</sub>-Stabes mit variablen  
und reproduzierbaren Temperaturverteilungen als Funktion der Zeit simuliert  
werden. Die Untersuchung eines Unfalls als Folge eines Schmelzschlages  
lokaler Kühlungsstörungen oder Brennelementschäden kann nach dem heutigen

Die Probleme des Brennstabverhaltens unter dynamischen Bedingungen, soweit  
sie thermisch bedingt sind, lassen sich für Einzelbrennstäbe und Brennstab-  
bündel untersuchen. Insbesondere wird der Einfluß des Energietransports  
sowie der Zeitskala beim Brennstabversagen einer Untersuchung zugänglich.

Im IAR haben Vorversuche stattgefunden, um das Verhalten eines Brennstabes  
bei einer nuklearen Exkursion in gewissen Grenzen zu simulieren, indem  
einem direkt beheizten UO<sub>2</sub>-Stab durch Kondensatoren entladene elektrische  
Energie zugeführt wird. (1) Eine Prüfung, ob bei Anwendung des Prinzips der  
Einen stranggepressten UO<sub>2</sub>-Sinterkörper (40 mm lang, 4,2 mm  $\phi$ , 96% th.D.)  
wurden 900 Wsec in 10 msec zugeführt. Es bildete sich eine zentrale

Schmelzzone von 1,4 mm  $\phi$ . Bei einem Versuch mit 1,6 kWsec war die Schmelz-  
zone größer; außerdem bildete sich ein Kanal. Weitere Erhöhung der Energie  
erbrachte eine weitere Zunahme des inneren Kanals (1,9 mm  $\phi$ ), jedoch  
zerplatzte die UO<sub>2</sub>-Probe in einige Bruchstücke, ferner entstanden größere  
Aerosolmengen (3).

(Veröffentl. vgl. S.123-11)

1236. Untersuchungen zu Brennstoff-Natrium-Reaktionen1. Theoretische Bearbeitung (P.Gast, Th.Malmberg, IRE; K.Thurnay, INR)

Eine plötzliche Wärmeübertragung zwischen geschmolzenem Brennstoff und Natrium ist als eine Möglichkeit, die zu einer Propagation von Brennelementschäden als Folge lokaler Kühlungsstörungen führen kann, im Berichtszeitraum stärker in den Mittelpunkt der Betrachtungen gerückt. Da zur Lösung dieses sehr komplexen Problems eine Reihe spezieller Forschungsprogramme erforderlich ist, werden bei den einzelnen Gruppen jeweils nur Teilaspekte des Gesamtproblems behandelt. Zur Förderung des internationalen Erfahrungsaustauschs wurde im Februar 1969 im IRE eine Tagung zu diesem Thema veranstaltet, an der 24 Experten aus 7 Ländern teilnahmen. Anlässlich dieser Tagung wurde das Propagationsproblem analysiert, und die sich aus Karlsruher Sicht daraus ergebenden Forschungsaufgaben wurden skizziert. Die Diskussion ergab eine sehr weitgehende Übereinstimmung in der Beurteilung des Problems in allen Ländern. Es wurde ein reger Informationsaustausch verabredet.

Im Zusammenhang mit der Brennstoff-Natrium-Reaktion wurde eine erste systematische Analyse über mögliche Ursachen und Auswirkungen von lokalen Kühlungsstörungen und Brennelementschäden durchgeführt, aus der u.a. folgender Schluß gezogen wurde: Die Entstehung eines Unfalls als Folge lokaler Kühlungsstörungen oder Brennelementschäden kann nach dem heutigen Kenntnisstand bei Einsatz von präventiven Core-Überwachungsinstrumenten mit ausreichender Sicherheit ausgeschlossen werden.

Die theoretische Behandlung der Brennstoff-Natrium-Reaktion ist bisher beschränkt auf die Ermittlung der maximal dabei freigesetzten Energie auf rein thermodynamischer Grundlage. Diese maximale Energie wurde unter Variation verschiedener Parameter nach der Methode Hicks/Menzies berechnet. Eine Prüfung, ob bei Anwendung des Prinzips der korrespondierenden Zustände (Tabellen von Hough/Watson, Zustandsgleichung von Hirschfelder) genauere Ergebnisse erzielt werden können, ergab ein negatives Ergebnis.

## 2. Experimente zur Brennstoff-Natrium-Reaktion

Ein Weg zur Lösung des Propagationsproblems besteht in dem experimentellen Nachweis, daß die Brennstoff-Natrium-Reaktion in einem Brennelement selbst dann nicht zu untolerierbaren Coreverformungen führt, wenn sie im Sinne maximaler Energiefreisetzung optimal verläuft. Dieser Nachweise soll durch Simulationsversuche an Coremodellen erbracht werden, bei denen die BNR durch eine energiemäßig äquivalente Menge Sprengstoff simuliert wird.

Solche Sprengversuche werden in England im Auftrag der UKAEA von dem Atomic Weapons Research Establishment durchgeführt. Nachdem im Sommer 1969 die UKAEA einer Karlsruher Beteiligung an diesem Versuchsprogramm zugestimmt hatte, wurden im Berichtszeitraum die technischen Details des Programms und der Umfang unserer Beteiligung abgesprochen. Wegen einiger Unterschiede in der Corekonstruktion sind die Ergebnisse von Versuchen mit dem englischen Coremodell nicht auf den SNR übertragbar, so daß Experimente mit speziellen SNR-Modellen notwendig sind.

### Veröffentlichungen zu 1234 und 1236:

(1) Schikarski, W., Freund, D.

Experimentelle Untersuchungen zum Brennstab-Versagen  
(pin failure)  
Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums  
Frankfurt, April 1969

(2) Schmidt, G.

Ein Rechenverfahren zur festigkeitsmäßigen Auslegung der  
Brennstabhüllrohre bei flüssigmetallgekühlten schnellen Reaktoren  
KFK-Bericht 808  
EUR 3968 d

(3) D. Freund, W. Schikarski

Der direkt elektrisch geheizte  $UO_2$ -Brennstab  
KFK-Bericht 1031

123-12

2. Experimente zur Brennstoff-Metallum-Reaktion

Ein Weg zur Lösung des Propagationsproblems besteht in dem experimentellen Nachweis, daß die Propagationsreaktion in einem Brennelement selbst dann nicht zu unkontrollierten Energieumformungen führt, wenn sie im Sinne maximaler Energieabfuhr optimal verläuft. Dieser Nachweis soll durch Simulationsversuche an Coremodellen erbracht werden, bei denen die SNR durch eine energetisch äquivalente Menge Sprengstoff simuliert wird.

Solche Sprengversuche werden in England im Auftrag der UKAEA von dem Atomic Weapons Research Establishment durchgeführt, nachdem im Sommer 1969 die UKAEA einer Karlsruher Beteiligung an diesem Versuchsprogramm zugestimmt hatte, wurden im Berichtszeitraum die technischen Details des Programms und der Umfang unserer Beteiligung abgeprochen. Wegen einiger Unterschiede in der Corekonstruktion sind die Ergebnisse von Versuchen mit dem englischen Coremodell nicht auf den SNR übertragbar, so daß Experimente mit speziellen SNR-Modellen notwendig sind.

Veröffentlichungen zu 123A und 123B:

(1) Schikarski, W., Freund, D.  
Experimentelle Untersuchungen zum Brennstoff-Versagen  
(pin failure)  
Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums  
Frankfurt, April 1969

(2) Schmidt, G.  
Ein Rechenverfahren zur Festigkeitsmäßigen Auslegung der  
Brennstabhalter bei Flüssigmetallgekühlten schnellen Reaktoren  
FKK-Bericht 808  
EUR 3968 A

(3) D. Freund, W. Schikarski  
Der direkt elektrisch gehaltene  $UO_2$ -Brennstab  
FKK-Bericht 1031

## 124. Entwicklung von Instrumentierung und Signalverarbeitung zur Kernüberwachung

### 1241. Thermoelement-Entwicklung (Siemens u. IRE)

Es sollen Thermoelemente verschiedener Hersteller einem Performance-Test unter Bestrahlung unterzogen werden. Dabei soll in mehreren Stufen bei niedrigen und höheren Temperatur bis  $650^{\circ}$  eine Dosis von  $> 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup> erreicht werden. Die Bestrahlungen werden im BR2 (Belgien) durchgeführt. Ein erster Versuchseinsatz für etwa 180 Thermoelemente wurde 1969 fertiggestellt, mit Thermoelementen beladen, geprüft und zum BR2 (verschickt) ist hierfür eine Bestrahlung von  $3 \times 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> vorgesehen, nach der die Auswertung in den Heißen Zellen der GfK erste Informationen liefern wird.

### 1242. Hüllenüberwachung von Brennelementen

#### Gesamtaktivitätsmessung und Präzipitationsverfahren (Jacobi, IRE)

Auf dem Gebiet der Hüllenüberwachung am Reaktor Brennelementen wurden folgende Arbeiten durchgeführt:

#### 1244. Hüllenschadensverfahren (Rohrbacher, IRE)

Der out-of-pile-Aufbau des Hüllenschadendampfkreislaufes (HSD-Loop, Projekt FR 2/55) wurde in Zusammenarbeit mit RB abgeschlossen. Die out-of-pile-Erprobung ergab die volle Funktionsfähigkeit der Anlage, so daß mit dem Einbau in den Reaktor begonnen werden konnte.

Nach Erarbeitung der theoretischen Grundlagen folgten die ersten praktischen Versuche. Der Hüllenschaden-Dampfkreislauf wurde 1969 im FR 2 aufgebaut. Der in-pile-Probetrieb ohne Prüfling konnte erfolgreich abgeschlossen werden. Sicherheitsbericht und Betriebshandbuch wurden erstellt. Seit dem 05. Oktober 69 läuft das Loopgerätee in einem Experimentierprogramm mit angebohrten Brennstabprüflingen. Diese Arbeiten wurden in Zusammenarbeit mit der Firma AEG durchgeführt.

Für die Überwachung von Natriumbreiter-Elementen wurden geeignete Detektoren beschafft. Für Aufbau und Erprobung eines Monitors für verzögerte Neutronen im KNK (Absprachen mit Firma Interatom und KBG) und FR 2 wurde das Konzept erstellt.

### Abscheidung und Nachweis von Spaltgas am BE-Austritt (Gast, IRE)

Zur Entwicklung eines schnell ansprechenden Hüllschadendetektionssystems wurde im Wasserkreislauf des IRE eine Anordnung erprobt, bei der das Kühlmittel durch Leit-

bleche in Rotation versetzt wird. Vom Brennelemente austretende Spaltgase sammeln sich auf der Rotationsachse, wo sie durch einen geeigneten Fühler (z.B. ein beheiztes Thermolement) nachgewiesen werden. Die Nachweisgrenze dieses Gasabschneiders konnte auf Gasmengen von etwa  $3 \text{ cm}^3$  herabgesetzt werden.

Die Vorrichtung zur Gasinjektion wurde so abgeändert, daß bei weiteren Versuchen auch die integrierende Wirkung des Gasabschneiders untersucht werden kann.

#### 1243. Detektion von Na-Sieden durch Reaktivitätsmessungen (Glauner und RB)

Die mit dem Na-Ausstoß beim siedendem BE verbundene Reaktivitätsstörung im Bereich  $>2 \%$  soll vom übrigen Störuntergrund differenziert gemessen werden. Für grundsätzliche Untersuchungen wurde deshalb ein Siedesimulator entworfen und gebaut, der im FR2 eingesetzt werden soll. Dieser Siedesimulator besteht aus einem wassergefüllten Tauchrohr, in das durch eine Injektionsleitung Helium eingepreßt wird. Erste Versuche an einem Wasserbehälter zeigten eine Blasenentwicklung im Tauchrohr, wie sie etwa beim Na-Reaktor entstehen könnte.

#### 1244. Ultraschall-Meßverfahren (Rohrbacher, IRE)

Im Frühjahr 1968 wurden die Arbeiten im Rahmen des Ultraschall-Meßverfahrens zur Blasenerkennung in Natrium aufgenommen.

Nach Erarbeitung der theoretischen Grundlagen folgten die ersten praktischen Versuche im Ersatzmedium Wasser, wobei die Parameter Dämpfung, Anpassung, Übertragungswirkungsgrad und Schallfeldverteilung untersucht wurden. Einzelne Blasen, sowie Blasengruppen und Größe von Blasen konnten in verschiedenen Systemaufbauten ermittelt werden. Es wurden dabei Reinstquarze und verschiedene Arten von keramischen Piezo-Wandlern auf ihre Einsatzmöglichkeit untersucht. In einem weiteren Versuchsaufbau wurden Blasen in Na bei Temperaturen bis zu  $350^\circ\text{C}$  detektiert. Ein Versuchsaufbau mit einem Facetten-System wurde mit dem Ziel vorbereitet, Siedezentren in Na nach dem Prinzip des Schallbildwandlers abzubilden und in einer X-Y-Ebene oszillographisch darzustellen. Schließlich wurden Untersuchungen angestellt, inwieweit sich schlanke

VA-Stäbe als Schalleiter mit extrem kleinem Sensor-Öffnungswinkel in einem breiten Frequenzbereich als Core-Sonden einsetzen lassen. Dabei wird auch daran gedacht, ähnlich ausgebildete Schallsonden zur Abtastung von Coreoberflächen nach dem Reflexions-Echo-Verfahren heranzuziehen. Die Voruntersuchungen hierzu sind noch im Gange.

1245. Bestimmung der Unterkritikalität eines abgeschalteten Reaktors  
(Glauner, Heusener)

Es wurde rechnerisch untersucht, ob sich die Unterkritikalität eines abgeschalteten schnellen Reaktors wie folgt ermitteln läßt:

Am Corerand wird eine Neutronenquelle eingesetzt. Die Asymmetrie des sich einstellenden Neutronenflusses ist ein Maß für die Unterkritikalität. Die Asymmetrie wird durch zwei Neutronendetektoren gemessen, die - möglichst auf gleichem Radius - an zwei gegenüberliegenden peripheren Orten angeordnet sind. Die mit einem 2-dimensionalen 4-Gruppen-Code durchgeführte Rechnung zeigt bei einer um  $180^\circ$  peripher versetzten Anordnung der Detektoren im Brutmantel:

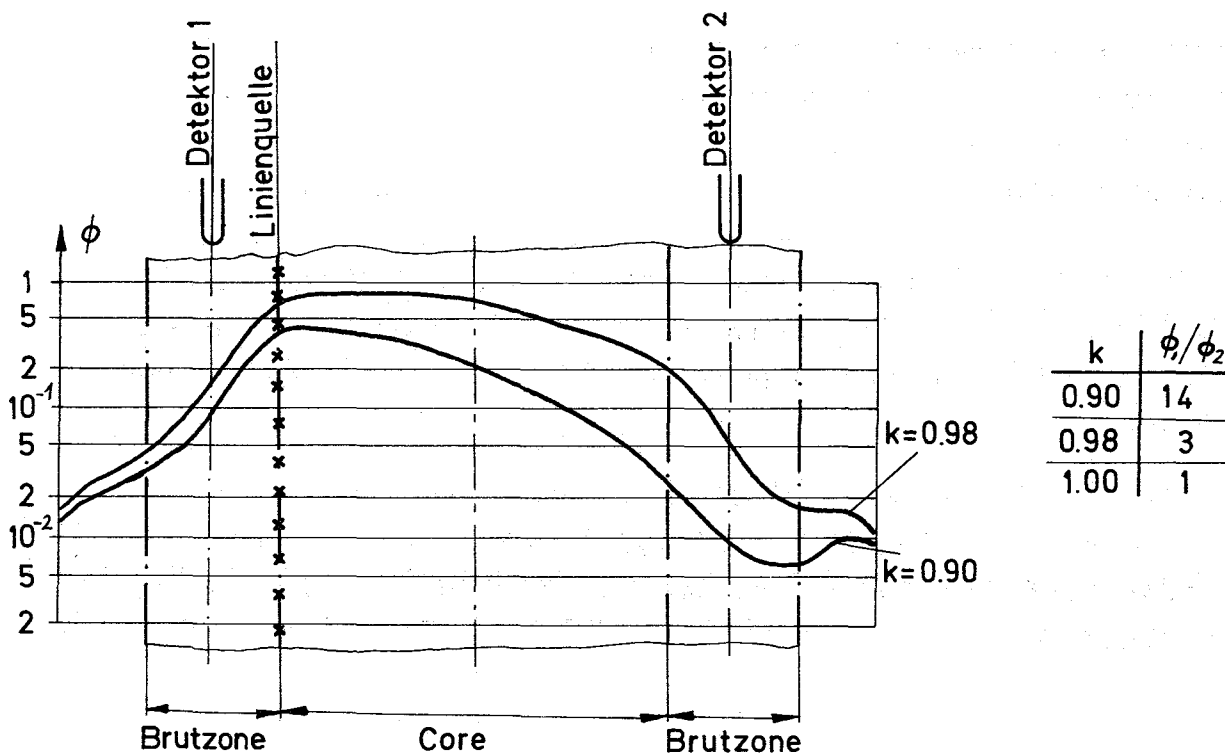


Abb.1: Unterkritische Flußverteilung bei exzentrischer Neutronenquelle

Die Rechnungen sollen noch erweitert werden und die betrieblichen Verhältnisse beim BE-Umladen genauer erfassen. Gegebenenfalls sollen die Rechnungen durch Versuche in SNEAK abgestützt werden. (IAR) Wichtig ist auch, dass daran daran gedacht, ähnlich wie bei den Reflexions-Echo-Verfahren heranzusehen. Die Vorunter-

1246. Untersuchungen zur Detektion rampenförmiger Störungen in der Austrittstemperatur eines Reaktorsubassemblies (Borgwaldt, Broeders, INR)

Bei den Untersuchungen zur Detektion rampenförmiger Störungen in der Austrittstemperatur eines Reaktorsubassemblies wird von folgenden Voraussetzungen ausgegangen: Es wurde hierin auch die Untersuchung der Unterkritikalität eines abgeschalteten Reaktors

- am Thermoelement liegt eine Temperaturrampe vor
  - es soll eine Aktion unternommen werden, wenn der Sollwert der Ausgangstemperatur um einen Schwellwert überschritten wird
- Am Core wird eine Neutronenrampe vor, die durch die Asymmetrie wird durch die Häufigkeit falscher Alarmer dieser Schwellwert wird so bestimmt, daß die Häufigkeit falscher Alarmer verursacht durch die Rauschsignale ein tragbares Maximum bei einer um 180° peripher versetzten Anordnung der Detektoren nicht überschreitet.

Es wurde eine Studie durchgeführt, wobei der Einfluß folgender Parameter auf die Abschaltzeit und die Übertemperatur untersucht wurde:

- Steilheit der Temperaturrampe
- Leistungsdichte und Spektrum der Rauschsignale
- Häufigkeit falscher Alarmer
- Filteranordnung

Die mögliche Abschaltverzögerung, verursacht durch die Rauschsignale, wurde abgeschätzt. Für einen großen Bereich der untersuchten Parameter wurde ein optimaler Wert für die Thermoelementzeitkonstante zwischen 1 und 5 Sek. gefunden.

Mit Hilfe eines Filters mit extremer Tiefpasscharakteristik (gut realisierbar mit einem Prozessrechner) können Temperaturrampen mit Steilheit  $> 0,1^\circ\text{C}/\text{Sek}$  detektiert werden, ohne daß dabei eine vorgegebene Solltemperatur erforderlich ist.

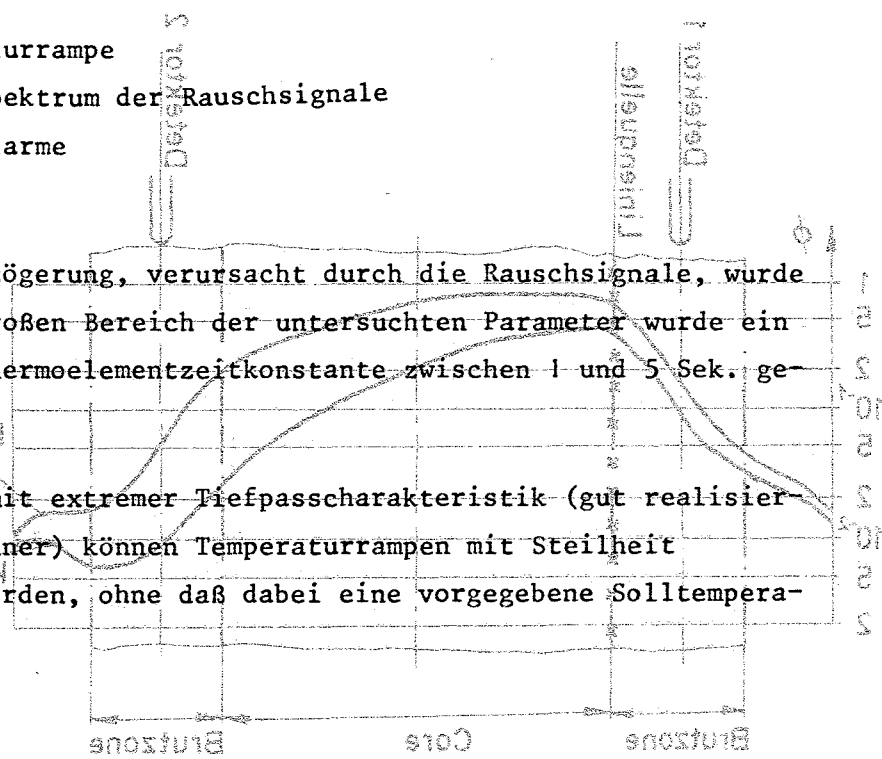


Abb. 1: Unterkritische Flußverteilung bei exzentrischer Neutronenquelle



Veröffentlichungen zu 124: Entwicklung von Instrumentierung und Signal-  
verarbeitung zur Kernüberwachung

---

1. W. Golly, S. Jacobi:

Detection and Localization in the FR2 of a Fuel Element with a  
Simulated Failure

IAEA Panel on Failed Fuel Element Detection, Vienna 1967

2. S. Jacobi:

Nachweis von Brennelement-Hüllschäden

IAEA Panel on Failed Fuel Element Detection, Vienna 1967

Atomwirtschaft 13, 220 (1968)

3. S. Jacobi:

Hüllenüberwachung an Reaktorbrennelementen

Siemens-Druckschrift EG 5/58, Juni 1968



125. Auswirkung von Reaktorstörfällen auf die Umwelt  
Aktivitätsfreisetzung

1251. Theoretische Studien zum Brand von Natrium (Keller, IAR/  
AFTS)

Es wurden Temperatur- und Druckanstieg im Containment eines natriumgekühlten Reaktors als Folge von Natriumbränden, die aus schweren Reaktorunfällen entstehen können, untersucht. Als Modell wurde das Containment des Na-2-Reaktors verwendet.

Es können drei Arten von Natriumbränden auftreten, nämlich ein Lachenbrand, ein Spritzbrand, bei dem der Natriumstrahl dampfförmig und ein Spritzbrand, bei dem der Natriumstrahl flüssig ist.

Es zeigte sich, daß beim Lachenbrand die chemischen Reaktionen verhältnismäßig langsam ablaufen, so daß selbst bei größeren Natriumlachen nur kleine Temperatur- und Druckanstiege im Containment zu erwarten sind.

Die Rechnungen ergaben, daß bei einer Natriumlache von  $39\text{m}^2$  in der Zeiteinheit 700 Kcal freigesetzt werden. Damit bleibt die Temperatur im Containment unter  $300^\circ\text{C}$  und der Druck unter 1 atü.

Liegt nach einem Reaktorunfall ein Natriumdampfstrahl vor, so wird die Wärmefreisetzung nur durch die pro Zeiteinheit in den Reaktionsraum eintretende Natriummolzahl bestimmt. Da die Dampfstrahldichte verhältnismäßig klein ist, muß, um eine größere Energiemenge freizusetzen, entweder das Leck verhältnismäßig groß oder die Dampfgeschwindigkeit hoch sein.

Bei einer z.B. angenommenen Leckgröße von  $10\text{ cm}^2$  und einer Strahlgeschwindigkeit von 100 m/sec ergab sich eine freigesetzte Wärmemenge von 520 Kcal/sec. Diese Wärmefrei-

setzung entspricht etwa einer Lachengröße von  $29 \text{ m}^2$ .

Der flüssige Natriumstrahl wird zu kleinen Tropfen zerblasen, dadurch wächst die Reaktionsoberfläche mit zunehmender Strahldauer sehr stark an. Damit werden in verhältnismäßig kurzen Zeiten große Energiemengen freigesetzt, die das Containment gefährden können. So wird z.B. bei einer angenommenen Leckgröße von  $10 \text{ cm}^2$  und einer Strahlgeschwindigkeit von  $15 \text{ m/sec}$  bei einer Branddauer von  $100 \text{ sec}$  etwa fünfzehnmal mehr Wärme freigesetzt als bei einer Na-Lache von  $39 \text{ m}^2$ .

Gleichgewichtsbetrachtungen haben ergeben, daß bei allen vorkommenden Reaktionsarten die Reaktionen nahezu vollständig ablaufen. Keine der Zustandsgrößen (Druck und Temperatur) bringt den Reaktionsablauf vorzeitig zum Stillstand (1).

1252. Versuche zum Natriumbrand (S.Jordan, W.Schikarski, IAR/AFTS)

Für Versuche zum Na-Brand hinsichtlich der Aktivitätsfreisetzung bei Störfällen ( $\text{Na}_2\text{O}$  - Filter usw.) wurde ein Programm ausgearbeitet, das 1970 bis etwa 1973 durchgeführt werden soll.

1253. Untersuchungen an nuklearen Aerosolen (W.Schikarski, H.Wild, IAR/AFTS)

Obwohl eine vollständige Corezerstörung (Verdampfung) als Folge eines großen Reaktorstörfalls heute als ein sehr unwahrscheinliches Ereignis angesehen wird, ist es sinnvoll, die maximal denkbaren Folgen durch die Aktivitätsfreisetzung in einem solchen hypothetischen Störfall zu untersuchen. Es ist zu klären, unter welchen Bedingungen radioaktive Stoffe (Plutonium und Spaltprodukte) als Aerosol das Reaktorgebäude nach dem Störfall verlassen können (vgl. (2) bis (9)).

Ziel der Untersuchungen ist die Entwicklung eines Modells, das Freisetzung und Transport der signifikanten, als Aerosole nach einem schweren Reaktorunfall auftretenden radioaktiven Stoffe in Abhängigkeit von Unfallablauf und Zeit beschreibt. Dabei interessieren besonders Art, Form, Aggregatzustand und chemische Zusammensetzung der Aerosolpartikel während des Transports aus dem Reaktorgebäude. Insbesondere werden die zu erwartenden Mischaerosole (z.B.  $UO_2$ -Na-Fe) und ihr Einfluß auf die Aktivitätsfreisetzung untersucht. Für die Arbeiten ist der Teststand für die Untersuchung nuklearer Aerosole TUNA im IAR 1967/68 errichtet worden. In dieser Anlage werden die Reaktorstörfallbedingungen hinsichtlich der Aerosolerzeugung durch die Technik der explodierenden Drähte, hinsichtlich des Aerosolverhaltens durch eine geeignete Atmosphäre in dem Versuchsbehälter nachgebildet. Der Versuchsbehälter simuliert den Sicherheitsbehälter des Reaktors.

Technische Angaben über TUNA (vgl. Bild auf Seite 125-8):

	Versuchsbehälter	(oberh. d. Versuchsbeh.) Aerosolkammer (Glocke)
Material	stainless steel	stainless steel
Volumen (zylind.)	2,22 m <sup>3</sup>	0,02 m <sup>2</sup>
Oberfläche	8,8 m <sup>2</sup>	0,5 m <sup>2</sup>
Höhe	2,9 m	0,34 m
Durchmesser	1,0 m	0,30 m
Entfernung vom Boden zur Probe	3,1 m	0,17 m

#### Überblick über die bisherigen Experimente

Im TUNA wurden bisher folgende Experimente durchgeführt:

- Messung der Massenkonzentration von reinen  $UO_2$ -Aerosolen in Stickstoff unter Normalbedingungen als Funktion der Zeit
- Messung der Teilchenkonzentration von reinen  $UO_2$ -Aerosolen in Stickstoff unter Normalbedingungen als Funktion der Zeit
- Messung der Partikelgrößenverteilung als Funktion der Zeit
- Untersuchung des Einflusses des Volumen-Oberflächen-Verhältnisses bzw. der Höhe des freien Volumens auf die Massen- bzw. Teilchenkonzentration.

Die Aerosolerzeugungstechnik war in allen Versuchen konstant. Die Aerosole wurden durch Stoßströme, die in einen vorgeheizten  $UO_2$ -Sinterkörper geschickt wurden und diesen dadurch teilweise zur Verdampfung brachten, erzeugt.

#### Die wichtigsten Resultate der bisherigen Experimente

Die Meßergebnisse zur Zeitfunktion der Aerosolkonzentration zeigen folgende charakteristischen Merkmale (vgl. Abb. 1 und 2):

- In einem ersten Zeitbereich von größenordnungsmäßig 1 Tag nimmt die Massenkonzentration bei Anfangswerten von etwa  $50 \text{ mg/m}^3$  Werte unter  $10 \text{ mg/m}^3$  ab.
- Die Abnahme ist umso schneller, je höher die Anfangskonzentration ist.
- In einem zweiten Zeitbereich (etwa nach 1 Tag) beginnt bei Konzentrationen von etwa  $5 \text{ mg/m}^3$  ein langsamerer Abfall der Massenkonzentration mit Halbwertszeiten über 100 Stunden (größte gemessene bzw. extrapolierte Halbwertszeit).
- Die Abnahme im ersten Zeitbereich ist rascher, wenn man von Anfangswerten von etwa  $1.000 \text{ mg/m}^3$  in einem kleinen Volumen ausgeht. Bei gleichen Erzeugungsbedingungen der Aerosole, jedoch einem etwa 100 mal kleinerem Volumen geht die Massenkonzentration in

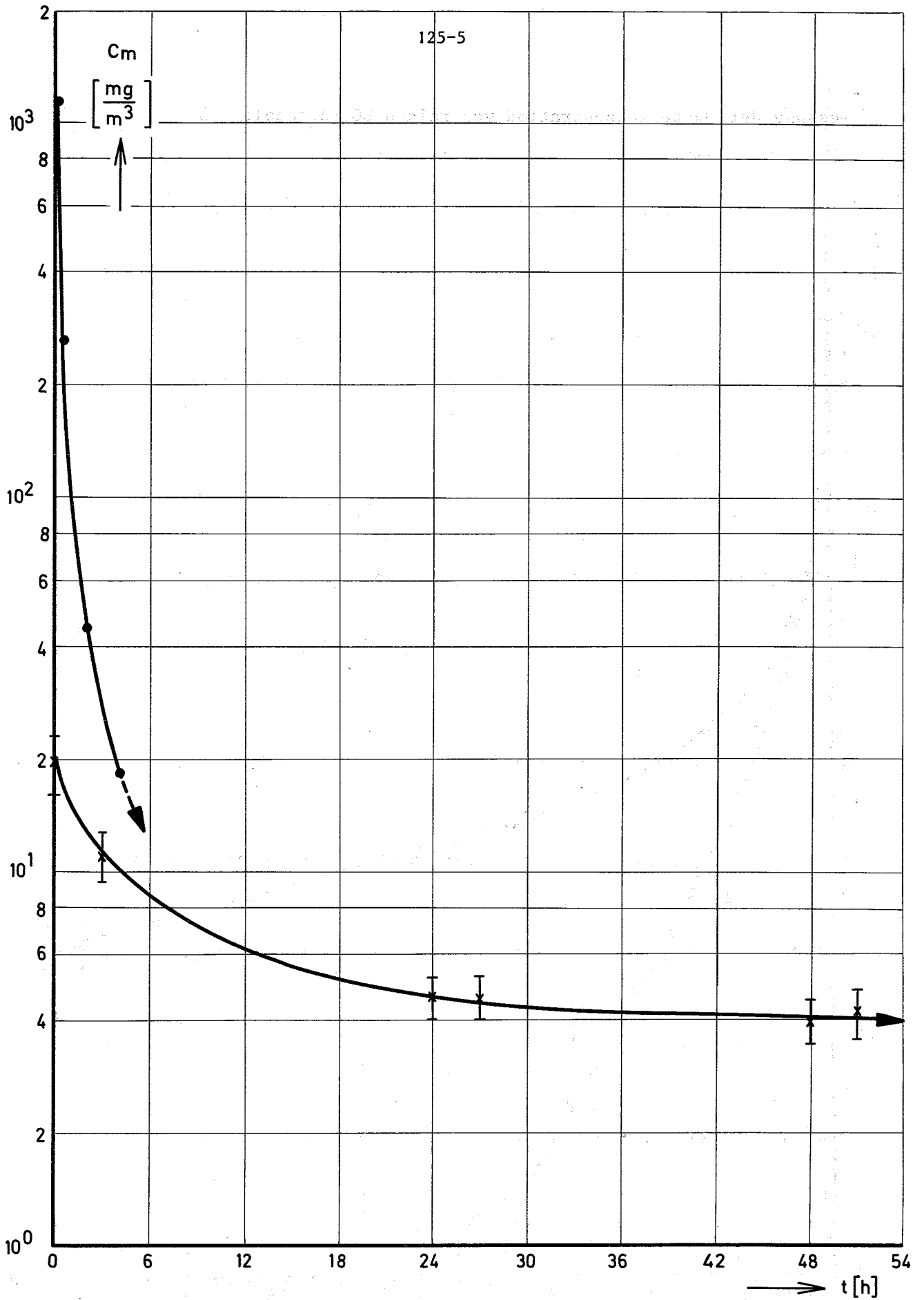


Abb. 1 Vergleich der Massenkonzentrationen im Kessel x (147)  
in der Glocke • (152)

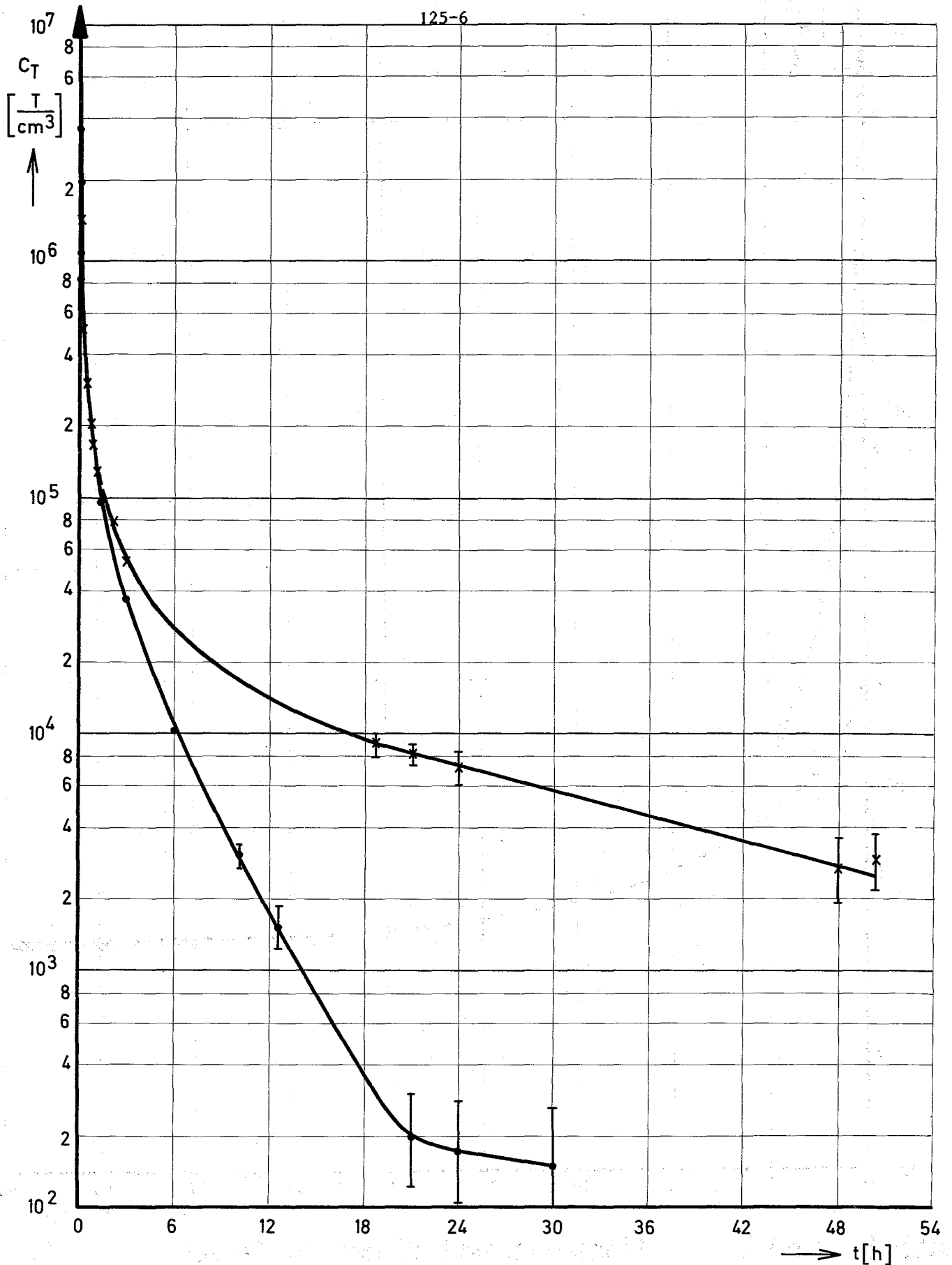


Abb.2 Vergleich der Teilchenkonzentrationen im Kessel x (149)  
in der Glocke • (163)



5 Stunden auf  $20 \text{ mg/m}^3$  zurück.

- Die primäre Partikelgrößenverteilung besitzt einen mittleren geometrischen Durchmesser von unter  $0,1 \mu\text{m}$ . Der Partikeldurchmesser nimmt im luftgetragenen Aerosol in etwa 5 Stunden auf  $0,2 - 0,8 \mu\text{m}$  zu. Im weiteren Verlauf nimmt der Partikeldurchmesser wieder ab.

Die bisherigen Versuche weisen auf eine deutliche Abhängigkeit der Aerosol-Konzentration vom Versuchsvolumen und von der Höhe des freien Volumens hin. Diese Frage bedarf noch einer Klärung.

Ferner ist die Partikelgrößen-Abhängigkeit von der Zeit noch nicht ausreichend geklärt.

Weiterhin ist der Einfluß von Natriumdampf, der zur Bildung von Misch-Aerosolen führt, bisher nicht untersucht worden.

Die vorliegenden Ergebnisse lassen jedoch konservative obere Abschätzungen zu, indem durch korrespondierende Rechnungen mit dem MUNDO-Programm (1967) die Signifikanz der genannten Aerosol-Parameter für die Strahlenbelastung in der Umgebung des SNR geklärt wurde.

#### Diskussion der bisherigen Ergebnisse des Aerosolprogramms

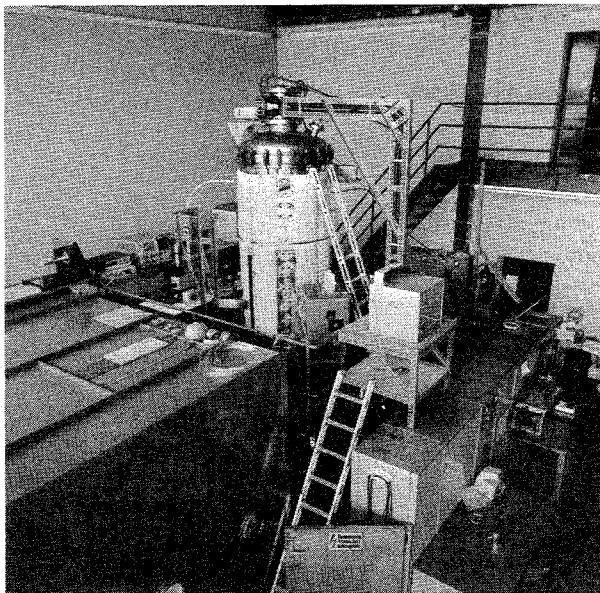
Die bisherigen Ergebnisse lassen den Schluß zu, daß das "Aerosolmodell" die Aktivitätsfreisetzung im Reaktorstörfall vernünftig beschreiben kann. Die detaillierte Entwicklung dieser Modelltheorie ist allerdings erst im Ansatz vorhanden. Insbesondere die Zuordnung spezifischer Aerosolprozesse (wie z.B. Koagulation, Sedimentation, Diffusion) zu den gemessenen Zeitfunktionen der Aerosolkonzentration ist noch nicht abgeschlossen.

Einige Folgerungen aus den durchgeführten Experimenten und

den korrespondierenden Rechnungen mit dem MUNDO-Programm lassen sich jedoch bereits ziehen. Danach trägt die zu Unfallbeginn erzeugte relativ hohe Aerosolkonzentration zur Strahlenbelastung in der Umgebung nicht wesentlich bei, wenn sie, wie in den Experimenten beobachtet, innerhalb weniger Stunden abfällt. Dagegen rührt der Hauptteil der Umgebungsdosis von der "langlebigen", aber relativ niedrigen Aerosolkonzentration her, die sich nach mehreren Stunden einstellt und mit einer großen Halbwertszeit von über 100 Stunden abfällt.

Danach ist also die zentrale Frage nicht die Anfangskonzentration der Aerosole, sondern die langfristige, relativ langsam abfallende Konzentration. Die experimentellen Ergebnisse zeigen, daß die Konzentration nach etwa 5 Stunden stets unter  $20 \text{ mg/m}^3$  gesunken war. Somit ist der 1967 abgeschätzte Rechenwert von  $30 \text{ mg/m}^3$  konservativ als obere Grenze anzusehen.

Die hier diskutierten Ergebnisse sind in den Beiträgen zur Sicherheitsanalyse des SNR verwertet worden.



Versuchsstand T U N A

Veröffentlichungen zu 1251 bis 1253:

- (1) K. Keller  
Natrium-Luft-Reaktionen als Reaktorstörfall  
KFK-Bericht 1034 (Dezember 1969)
- (2) W. Schikarski  
The Karlsruhe Research Program on Nuclear Aerosols and its  
Relation to the Plutonium Hazard of Fast Sodium Reactors  
Treatment of Airborne Radioactive Wastes, New York,  
26-30 Aug. 1968  
IAEA, Vienna 1968, 77-91, SM 110/61
- (3) W. Schikarski, H. Wild  
Das Verhalten von  $UO_2$ -Aerosolen in geschlossenen Systemen  
KFK-Bericht 1032  
EUR 4306 d (Dezember 1969)
- (4) W. Schikarski, D. Freund, H. Wild  
Untersuchungen an durch Stoßströme erzeugten Metall- und Metall-  
oxyd-Aerosolen  
Tagungsberichte der Schwebstofftechnischen Arbeitstagung  
Universität Mainz, 25-27. Oktober 1968
- (5) D. Freund, W. Schikarski  
Primary particle size distribution of vaporized materials and  
their energy dependence  
Specialist meeting on the sodium-fuelinteraction and related  
problems in the sodium fast breeder reactor, Karlsruhe  
26./27.2.1969
- (6) W. Schikarski, H. Wild  
Experiments on the Behaviour of  $UO_2$  Aerosols in Fast Breeder Reactor  
Containments  
Congrès international sur la diffusion des produits de fission,  
Saclay (France), Nov. 1969

- (7) W. Schikarski  
Evaluation of Experimental Results on Mass-Concentration Time  
Functions of Nuclear Aerosols  
Specialist Meeting on the Behaviour of Nuclear Aerosols in Closed  
Systems  
Karlsruhe, Nov. 1969  
KFK-Bericht 1206
- (8) H. Wild  
Some Recent Results on the Behaviour of Nuclear Aerosols Observed  
in TUNA,  
Specialist Meeting on the Behaviour of Nuclear Aerosols in Closed  
Systems  
Karlsruhe, November 1969  
KFK-Bericht 1206
- (9) A. Bayer  
Die Ausbreitung der radioaktiven Wolke und die für die Gesamtbe-  
völkerung zu erwartenden Dosen  
KFK-Bericht 868

1254. Kontamination von Kühlkreisläufen1254.1 Kontamination von Dampfkreisläufen (Waibel, IRE; Jacobi, LEM; RB)

Zur Untersuchung der Detektierbarkeit und des Verlaufes von Dampfkühlkreis-Kontaminationen ("DK") und der Dekontaminationsmöglichkeiten wurde 1968 der Heißdampfkreislauf ("ABCD-Loop") fertiggestellt. Zunächst wurde er out-of-pile getestet. Nach Erstellung des Sicherheitsberichtes und Betriebshandbuches und nach Einbau in den FR2 wurde er erstmals im August 1969 probe-weise in Betrieb genommen. Ab Mitte Oktober 1969 lief die Anlage (mit einer ausfallbedingten Unterbrechung) mit einem ersten und dann einem zweiten HDR-Brennstoffprüfling. Die Prüflinge hatten einen vorsätzlichen Hüllrohr-schaden von 1 mm  $\emptyset$  im Plenum. Der Kreislauf wurde bei Drücken zwischen 50 und 160 at und Dampfdurchsätzen zwischen 85 und 100 kg/h betrieben. Die Versuche wurden in Zusammenarbeit mit der AEG durchgeführt.

Die Vorbestrahlungskapseln für das DK-Programm im FR2 laufen zufrieden-stellend. Bis zum Jahresende haben die  $UO_2$ -Stäbe einen mittleren Abbrand von etwa 30 000 MWd/t, die  $UO_2$ - $PuO_2$ -Stäbe etwa von 26 000 MWd/t erreicht.

Veröffentlichung:

E. Waibel

INVENT- A FORTAN IV Computer Program for the Calculation of Fission Product Inventory and its Application to Fission Release Studies at EVESR

Externer Bericht 8/68-3

## 1254.2 Kontamination und Dekontamination von Materialproben

(Stamm, IRCh)

Schadhafte Brennelemente geben Spaltprodukte an das Kühlmittel eines Kernreaktors ab. Diese Spaltprodukte, ausgetragener Brennstoff und aktivierte Korrosionsprodukte werden in den Komponenten des Reaktorsystems verschieden stark abgelagert. Eine solche Kühlkreislaufkontamination ist bei Kernkraftwerken mit direktem Kreislauf (Siedewasser-R., Heißdampf-R., gasgekühlter R. mit He-Turbine) besonders interessant, weil die radioaktiven Substanzen hier bis in die Turbine gelangen und notwendige Wartungs- und Reparaturarbeiten an der Anlage stark beeinträchtigt werden können. Bei Direktkreisreaktoren mit gasförmigen Kühlmitteln entfällt zusätzlich der inhärente Dekontaminationsschritt, der beim Siedewasserreaktor durch die Phasentrennung Wasser/Dampf gegeben ist.

Am Heißdampfreaktor EVESR (General Electric, Vallecitos/Calif.) konnten bis zum Frühjahr 1967 erste Erfahrungen über die Systemkontamination eines solchen Reaktors beim Betrieb mit beschädigten Brennelement-Hüllrohren gesammelt werden. In Karlsruhe wurde die systematische Fortsetzung der am EVESR begonnenen Versuche möglich durch den Einbau von mehreren "Kontaminationskammern" in das FR2-Heißdampfloop, das zum Betrieb mit vorsätzlich beschädigten Brennelementstäben geeignet ist.

Im ersten Halbjahr 1968 wurden zwei Radiochemie-Laborräume und ein Meßraum im FR2-Betriebsgebäude eingerichtet, um eine möglichst enge räumliche Verbindung der Labors zum FR2-Dampfloop zu erreichen. Ein 1024-Kanal- $\gamma$ -Spektrometer mit Ge(Li)-Halbleiterdetektor wurde aufgebaut und mit Eichmessungen in Betrieb genommen.

Im 2. Halbjahr war der Dampfkreislauf 1400 Stunden zur Erprobung out of pile in Betrieb, davon 450 Stunden mit Reaktoreinsatz. Während dieses Testbetriebes wurden aus dem Niederdruckteil an verschiedenen Stellen Kühlmittelproben zur Analyse entnommen. Zur Anreicherung von Stoffen geringer Konzentration wurden 56 Versuche mit Filterpacks durchgeführt, bei denen Membranfilter, Kationenaustauscher-, Anionenaustauscher- und Aktivkohlepapiere eingesetzt wurden. Die Ergebnisse der Versuche führten zur Konzeption einer Probenahmestation für den Niederdruckteil, die an 6 Stellen eine zuverlässige Probenahme für chemische und radiochemische Untersuchungen von Speisewasser, Niederdruckdampf und Kondensat des Kreislaufs ermöglichen soll.

Nach Abschluss des Versuchsbetriebs wurden Proben unlöslicher Rückstände ("Crud") aus Reaktoreinsatz und Kondensator entnommen und mit konventionellen chemischen Methoden sowie aktivierungsanalytisch untersucht. Neben den erwarteten Edelstahlkomponenten Fe, Cr, Ni, Nb und Mo wurden geringe Mengen Zn, W, Ag und Cd gefunden. In einer Probe des Mischbetaustauschers aus der Kondensatreinigungsanlage ließen sich Fe, Cr, Ni, Na, Zn, Ca und Mg nachweisen. Eisen war mit 30 mg Fe/kg Kationenaustauscher häufigste Komponente.

Im Reaktoreinsatz des Loops befanden sich während des Probelaufs 40 Materialcoupons aus Edelstahl (W.Nr.4961), Nickel und Platin. Die auf diesen Proben abgelagerten Korrosionsprodukte wurden aktivierungsanalytisch untersucht. Auffallend war der hohe Anteil Antimon in den Ablagerungen: Sb-122 und Sb-124 waren neben W-187 und Zn-65 dominierende Aktivitäten in den Aktivierungsproben.

Der erste inpile Betrieb des Kreislaufs (noch ohne Test-Brennelement) erfolgte im August und September 1969. In den Kontaminationskammern I und II wurden dabei je 16 Proben aus Edelstahl bzw. Nickel für 600 Vollast-Stunden mit Dampf beaufschlagt, der durch aktivierte Korrosionsprodukte aus dem Reaktoreinsatz kontaminiert war. Nach dem Ausbau waren die Coupons aus Kammer I (zwischen Überhitzer und Reaktoreinsatz) aktivitätsfrei, d.h. Korrosionsprodukte wurden in der Kondensatreinigung und im Ver-

dampfer quantitativ zurückgehalten. Die Proben in Kammer II (zwischen Reaktoreinsatz und Kondensator) waren z.T. erheblich kontaminiert (bis zu 2r/h), doch ließ sich zeigen, daß die Kontamination im wesentlichen aus festen Partikeln (Abrieb) bestand, die sich durch Spülen mit Wasser entfernen ließen. Hauptaktivitäten waren Cr-51, Sb-122, Sb-124 und Fe-59, daneben wurden Co-60, Co-58, Mn-54 und Ta-182 gemessen. Auf den geschmirgelten Edelstahlcoupons war die deponierte Aktivität etwa doppelt so hoch wie auf den elektropolierten Proben (vgl. Tabelle 1); auf Nickel war der Unterschied nicht so ausgeprägt, jedoch waren die Aktivitäten auf Nickelblechen allgemein höher als auf Edelstahl.

Tabelle 1 Aktivität auf Edelstahl-Coupons (Serie A) am Ende der Probenahme (Mittelwerte)

Nuklid	Halbwertszeit	Edelstahl W.Nr. 4961	
		elektropoliert	geschmirgelt
		nCi/cm <sup>2</sup>	nCi/cm <sup>2</sup>
Cr-51	27.8 d	127	232
Mn-54	303 d	0.74	1.97
Co-58	71 d	0.95	1.79
Fe-59	45 d	48.0	98.2
Co-60	5.26 a	5.69	11.75
Sb-122	2.68 a	170	440
Sb-124	60.3 d	21.3	55.3
Ta-182	115 d	2.6	2.7

Von Mitte Oktober bis Mitte Dezember war der Kreislauf erstmals mit einem Brennstoffprüfling in Betrieb, der einen vorsätzlichen Hüllrohrschaden (1 mm  $\varnothing$ , Plenum) hatte. In den Kontaminationskammern waren Coupons (Serie B) aus Bronze SnBz6, aus ferritischem Stahl, aus den Edelstählen W.Nr.4550 und W.Nr.4961 für 1253 Vollleistungsstunden dem strömendem Dampf exponiert. Die Proben aus Kammer I waren nach dem Ausbau wieder aktivitätsfrei, d.h. die Kondensatreinigung hielt auch flüchtige Spaltprodukte quantitativ zurück. Die Aktivität auf den Proben aus Kammer II war allgemein niedriger als auf vergleichbaren Coupons der Serie A; so lagen



z.B. die effektiven Depositionsraten für Fe-59 und Cr-51 in Serie B eine Zehnerpotenz niedriger. Dominierend waren wieder Sb-122 und Sb-124.

Als Spaltprodukte wurden J-131, Te-132/J-132, Mo-99/Tc-99m, Ba-140/La-140 und Ru-103 gefunden. Die auf den Proben abgelagerten Aktivitäten unterschieden sich bei den verschiedenen Werkstoffen qualitativ und quantitativ (Einfluß der chemischen Zusammensetzung):

Die Abscheidung von Spaltjod auf Bronze war sehr viel höher als auf den Stählen; Co-60 wurde auf Cr-Ni-Stahl gegenüber Kohlenstoffstahl und Bronze bevorzugt abgelagert. Die Gesamtaktivitäten auf den Proben (Dosisleistungsmessungen) stiegen in der Reihenfolge

Edelstahl < Kohlenstoffstahl < Bronze

an (vgl. Tabelle 2).

Tabelle 2 Kontaminationsproben Serie B  
Dosisleistungsmessungen

Werkstoff	Zusammensetzung Typ	Dosisleistung (mrem/h)			Ratemeter (Imp/Sek) (+)
		$\gamma$	$\beta(+)$	$\beta(o)$	
4550	Nb-stab. Austenit 18/8	0.5	3.8	2.9	$5.6 \times 10^3$
4961	Nb-stab. Austenit 16/13	<0.5	2.0	2.6	$4.4 \times 10^3$
C-Stahl	unleg. Ferrit	2.8	18	14	$1.8 \times 10^4$
SnBz6	Bronze, 6% Sn	4.9	40	?	$2.5 \times 10^4$

### 1254.3 Kontamination von Na-Kreisläufen

(H. Schweizer, IRCh)

Erste Arbeiten zu dieser Thematik bezogen sich auf die Freisetzung von Spaltprodukten aus kontaminiertem Kreislaufnatrium ins Schutzgas Helium:

Bauelemente und Kühlmittel des GfK-Natriumloops Mol 7a im BR 2 waren durch BE-Leckage stark kontaminiert worden, so daß die bei einem angenommenen Unfall (schlagartiges Entweichen des Schutzgases durch ein bereits vorhandenes weiteres Leck in der He-Rückleitung) freigesetzte Menge langlebiger und fester Spaltprodukte ermittelt werden mußte. Das Ergebnis dieser Untersuchungen sollte über den weiteren Betrieb des Loops entscheiden.

Die Ergebnisse der ersten Tests sprachen für den Weiterbetrieb des Loops. Die beiden weiteren Tests zeigten eine fortschreitende Erhöhung der Freisetzungsraten von Sr-89 und Cs-137, so daß Mol 7a stillgelegt werden mußte. Nach der Außerbetriebsetzung des Loops wurde die Notwendigkeit einer Nachuntersuchung auch der out of pile-Bauelemente erkannt. Ein Untersuchungsprogramm wurde erstellt, das Depositionsmessungen und Dekontaminationsversuche im Rahmen der Aufgaben der AFTS umfaßt. Ein Zerschneideplan zur Materialproben-Entnahme an den wichtigsten Bauelementen des Loops wurde vorbereitet.

126. Natrium-Technologie-Versuche1261. Schwingungsversuche (J. Kadlec, IRE)

Auf dem Gebiet der Brennstabuntersuchungen wurde eine theoretisch-experimentelle Methode für die Bestimmung des durch die Kühlmittelströmung hervorgerufenen Schwingungszustandes der Brennstäbe ausgearbeitet und praktisch erprobt. Dieses Verfahren, welches die Bestimmung der Spektraldichtefunktionen der Auslenkungen und der Biegespannungen für alle gefährdeten Stellen des schwingenden Brennstabes ermöglicht, hat die Firma Interatom mit dem entsprechenden Rechenprogramm für die Schwingungsuntersuchungen am SNR-Brennelement übernommen. Im Rahmen der Zusammenarbeit mit Euratom, Ispra, wurde eine ausführliche Untersuchung der Brennstabschwingung und der Grenzschichtdruckpulsationen am Na-1 Modellsbassemble im IRE-Wasserversuchskreislauf durchgeführt. Dabei wurde eine markante Abhängigkeit des Spektrums der Druckpulsationen von den Eigenschaften des Versuchskreislaufes festgestellt.

Bei entsprechenden Untersuchungen mit Na2-Abstandshaltergittern wurde eine nicht-lineare Abhängigkeit der Dämpfung von der Schwingungsamplitude und von dem Spiel in den Abstandhaltern gefunden.

Auf dem Gebiet der Untersuchung der Mikrostruktur der Kühlmittelströmung wurde eine Messung der turbulenten Temperaturpulsationen bei Wärmeübergang in Natrium durchgeführt.

Veröffentlichungen:

## (1) J. Kadlec, K.D. Appelt

Methode für die experimentelle Untersuchung des durch die Kühlmittelströmung hervorgerufenen Schwingungszustandes der Brennstäbe

KFK-Bericht 1082

## (2) J. Kadlec, V. Pfrommer

Methode für die experimentelle Untersuchung der Eigenfrequenzen, der Normal- und der Dehnungsfunktionen sowie der Dämpfung der querschwingenden Brennstäbe

KFK-Bericht 731, EUR 3718 d

## (3) K.D. Appelt, J. Kadlec

Untersuchungen der Eigenfrequenzen, der Normal- und der Dehnungsfunktionen sowie der Dämpfung des querschwingenden Brennstabes der Na1-Studie

KFK-Bericht 923, EUR 3977 d

## (4) J. Kadlec

Untersuchungen der durch die hydrodynamischen Kräfte des Kühlmittels hervorgerufenen Schwingungen der Brennstäbe.

Beitrag im KFK-Bericht 964, EUR 4171 d

1262. Versuche an der Natriumbehälteranlage NABEA

(A. Müller, K. Benndorf, F. Huber, K. Kleefeld, M. Cramer, IRE)

Die 1967/69 im wesentlichen fertiggestellte NABEA besteht aus einem kleinen und einem großen Versuchsbehälter, in denen das Verhalten der verschiedenartigsten mechanischen, elektrischen und apparativen Bauteile in flüssigem, nicht strömendem Natrium bzw. in einer mit Na-Dampf gesättigten Schutzgasatmosphäre untersucht werden kann.

Die bisherigen Versuche wurden alle in dem 4-fach-Behältereinsatz im kleinen Versuchsbehälter durchgeführt:

1. Im Rahmen der Phase IIa wurden insgesamt 4 Brennelement-Verschleißversuche an Brennstabbündeln mit Gitterabstandshaltern durchgeführt. Dabei wurde mit einem äußeren Antrieb über längere Zeit eine bestimmte zyklische Relativbewegung zwischen dem Stabbündel und den Gitterabstandshaltern in Natrium erzeugt. Bei den gewählten Toleranzen ergab sich kein nennenswerter Verschleiß. Nach  $2 \cdot 10^5$  Doppelhüben bei 600 bzw. 700°C betrug der Abrieb an den Abstandshaltern rund 0,05 mm. Die Testelemente für diese Versuche hat teilweise die GfK und teilweise die Industrie bereitgestellt.
2. Die Diffusionsverschweißversuche (ebenfalls Phase IIa) wurden fortgesetzt. Insgesamt wurden in 7 Versuchen ca. 60 Materialpaarungen aus austenitischem und ferritischem Material und aus Sonderlegierungen bei Temperaturen von 580 bzw. 700°C und Anpreßdrücken von 50 bis 500 kp/cm<sup>2</sup> untersucht. Nach einer Einsatzzeit von ca. 200 Stunden zeigte ein großer Teil der Materialpaarungen teilweise recht erhebliche Haftkräfte. Die Meßwerte lagen bei diesen, mit der im Reaktorbau üblichen technischen Oberflächengüte hergestellten Proben allerdings in einem recht großen Streubereich. Für eine weitere Versuchsserie ist deshalb zu Vergleichszwecken die Verwendung von Proben mit besonders sorgfältig bearbeiteten (geläpften) Oberflächen vorgesehen. Ein erster zusammenfassender Bericht über diese Versuche steht kurz vor der Fertigstellung.

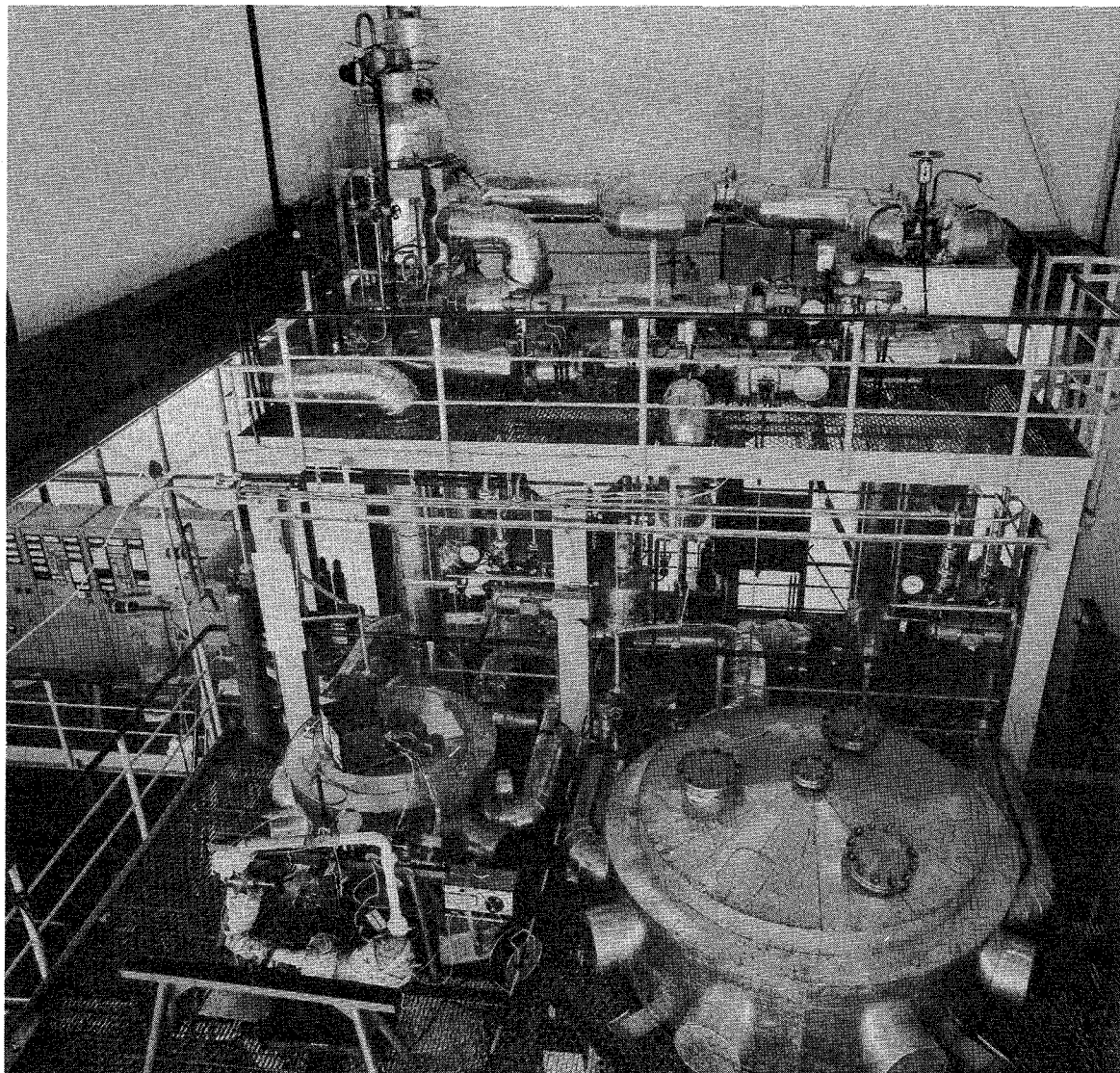
Vorbereitet wurden die folgenden Versuche:

1. Für die Erprobung von Wälzlagern in Natrium wurde ein detailliertes Versuchsprogramm ausgearbeitet und die Versuchsvorrichtung konstruiert. Mit der Herstellung der Vorrichtung wird in Kürze begonnen.
2. Zur Untersuchung des Brennelementverhaltens eines Na-gekühlten Reaktors unter Siedeverzug wurde eine umfangreiche Versuchseinrichtung entworfen, hergestellt und weitgehend montiert. Sie erlaubt den Einbau einer Gruppe von 7 SNR-Brennelementen in natürlicher Größe. Das zentrale Brennelement ist beheizbar. Der Siedevorgang wird durch schnelles Absenken des Druckes im Natriumraum (ca. 5 atü) ausgelöst. Die Druckentlastungsvorrichtung arbeitet mit einem durch Hochdruckgas beschleunigten Kolben, der von geeigneten, eindeutig verformbaren Dämpfwaben wieder abgebremst wird.

An der Anlage wurden die folgenden Ergänzungen und Erweiterungen vorgenommen:

1. Erweiterung der Instrumentierung in der Weise, daß die Anlage bei bestimmten Versuchen mit automatischer Überwachung, d.h. ohne ständige Aufsicht betrieben werden kann.
2. Installation einer Schutzgas-Umwälzanlage, die es gestattet, rückgekühltes Schutzgas für Kühlzwecke innerhalb der Versuchsbehälter zur Verfügung zu stellen.

Die neu errichtete Anlage zur Reinigung von mit Natrium verunreinigten Bauteilen mit Hilfe eines Dampfstrahls ist fertiggestellt und erfolgreich in Betrieb genommen worden.



Natriumbehälteranlage NABEA

Veröffentlichungen zu 1262:

- (1) E. Schönfeld:  
Vergleichende dynamische Untersuchungen an einem natriumbeheizten Zwangsdurchlauf-Dampferzeuger für moderne Kernkraftwerke  
KFK-Bericht 955, Februar 1969
- (2) K. Thormeier:  
Solubility of Helium in Liquid Sodium  
Atomkernenergie, 14, 1969, 6, S. 449
- (3) M. Cramer, U. Hitzschke, G.F. Schultheiss:  
Entwurf einer Reparaturvorrichtung für einen Natrium/Natrium-Zwischenwärmetauscher  
KFK-Ext.-Ber. Nr. 8/69-5
- (4) Institut für Reaktorentwicklung:  
Zur Entwicklung schneller Brutreaktoren  
Beiträge zur Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums vom  
15. - 18.4.1969 in Frankfurt  
KFK-Bericht 964, EUR 4171D, April 1969
- (5) A. Pee:  
Stoffdaten von Natrium  
KFK-Bericht 924, EUR 4168 d, Februar 1969
- (6) Seminar über die Technologie des Reaktorkühlmittels Natrium (IRE)  
Externer Bericht 8/68-4

1263. Untersuchungen zur thermo- und hydrodynamischen  
Core-Auslegung

(W. Baumann, V. Casal, G. Drechsler, G. Frees,  
H. Hoffmann, G. Hofmann, S. Malang, R. Möller,  
K. Rust, H. Tschöke, IRB)

Die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten der Jahre 1968/69 an Brennelementen gas- und flüssigmetallgekühlter Reaktoren befaßten sich im IRB mit:

- der Entwicklung von Rechenprogrammen und Untersuchungen zur thermodynamischen Optimierung von Abstandshaltern;
- der Bestimmung der Druckverlustbeiwerte für Brennelemente mit verschiedenen Abstandshaltern und Druckverlustvergleichsrechnungen.
- Untersuchungen zum Aufbau eines Brennelementes mit wendelförmigen Abstandshaltern, Entwicklung von Hüllrohren mit integralen Wendelrippen und Erprobung der Abstützwirkung und des Langzeitverhaltens von Brennelementen mit integralen Wendelrippen;
- Entwicklung und Erprobung von Hochleistungs-Heizstäben;
- Bestimmung der mittleren und lokalen Wärmeübergangsbeziehungen;
- Untersuchungen der Kühlmittelquervermischung und der zeit- und ortsabhängigen Temperaturprofile bei regelmäßigen und unregelmäßigen Stabanordnungen.

Die experimentellen Untersuchungen wurden in vorhandenen, den jeweiligen Betriebsbedingungen anpaßbaren Prüfständen mit Natrium, Wasser, Luft, CO<sub>2</sub> oder Heißdampf als Strömungsmedien durchgeführt.

1. Entwicklung von Rechenprogrammen und Untersuchungen zur thermodynamischen Optimierung von Brennelementen mit verschiedenen Abstandshaltern.

Während des Reaktorbetriebes darf die maximal zulässige Hüllrohrtemperatur nicht überschritten werden. Bei



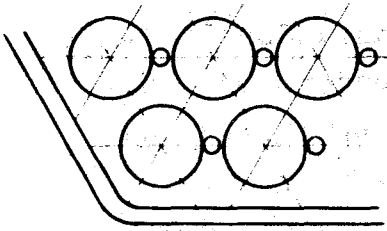
vorgegebener Temperaturdifferenz zwischen wärmeabgebender Wand und Kühlmittel ist damit die maximal zulässige Kühlmitteltemperatur festgelegt. Diese Temperaturdifferenz hängt in zweifacher Weise vom Abstandshalter ab:

- Der Abstandshalter bestimmt die Geometrie der Strömungskanäle im Bündel; insbesondere legt er den Abstand der peripheren Stäbe zur Kastenwand des Brennelementes und damit die Größe der Kühlkanäle an der Kastenwand fest. Da diese Kühlkanäle in Form und Abmessung von den inneren Kanälen des Bündels abweichen, ergeben sich unterschiedliche Strömungsverhältnisse, Kühlmittelmassenströme und Aufheizspannen des Kühlmittels über den Brennelementquerschnitt.
- Die existierende Parallelschaltung der Brennelement-Kühlkanäle ermöglicht den kontinuierlichen Massen- und Energieaustausch zwischen heißen Kanälen und ihrer Umgebung, den man als Kühlmittelquervermischung bezeichnet. Dieser wirkt ausgleichend auf die Temperaturunterschiede benachbarter Kanäle. Die Größe des Massen- und Energieaustausches wird durch die Geometrie des Bündels sowie durch die Art und Anordnung der Abstandshalter bestimmt.

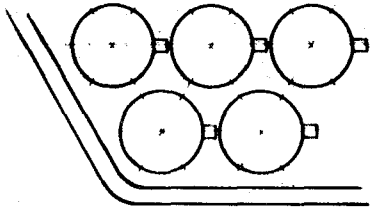
Für die Berechnung der Temperaturprofile eines Brennelementquerschnittes an jeder beliebigen axialen Stelle wurde das Rechenprogramm MISTRAL /1/ entwickelt. Mit ihm wurden die Temperaturprofile einer Natriumströmung am Austritt eines Brennelementes für die in Abb. 1 gezeigten Abstandshaltertypen ermittelt, wobei die Betriebsbedingungen und Abmessungen des SNR-Brennelementes (Na 2 KFK-Ber.660) zugrundegelegt wurden. Die Ergebnisse dieser Rechnung sind in Abb.2 dargestellt /2; 3/.

Es zeigt sich, daß bei drahtförmigem Abstandshalter im zentralen Bündelteil die höchsten Temperaturen erreicht werden, obwohl er von allen Abstandshaltertypen die größte Kühlmittelquervermischung erzeugt. Durch diese Übertemperatur wird der Sicherheitsabstand zur maximal zulässigen Hüllrohrtemperatur

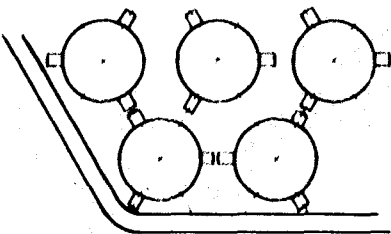
verringert. Durch Verwendung eines anderen Abstandshalters kann entweder dieser Sicherheitsabstand vergrößert oder die Kühlmittelaustrittstemperatur erhöht werden. Letzteres gestattet eine Vergrößerung der Reaktorleistung oder die Drosselung des Durchsatzes und damit die Reduzierung des Druckverlustes.



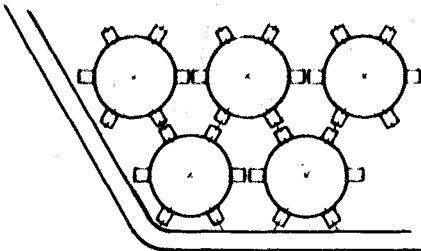
*1 Draht pro Stab*



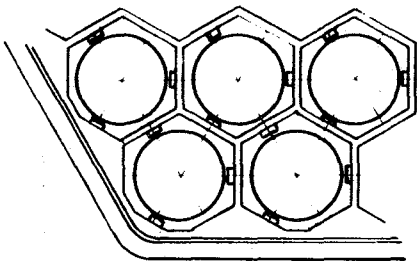
*1 Rippe pro Stab*



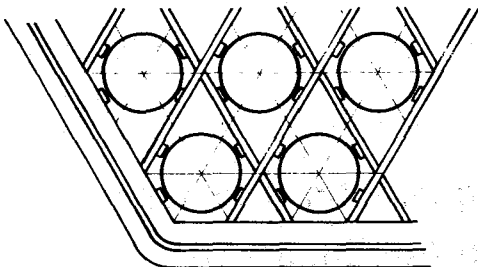
*3 Rippen pro Stab*



*6 Rippen pro Stab*



*Wabengitter*



*Rhombusgitter*

**Abb.1 Abstandshalterungen für die Brennelemente natriumgekühlter Brutreaktoren**

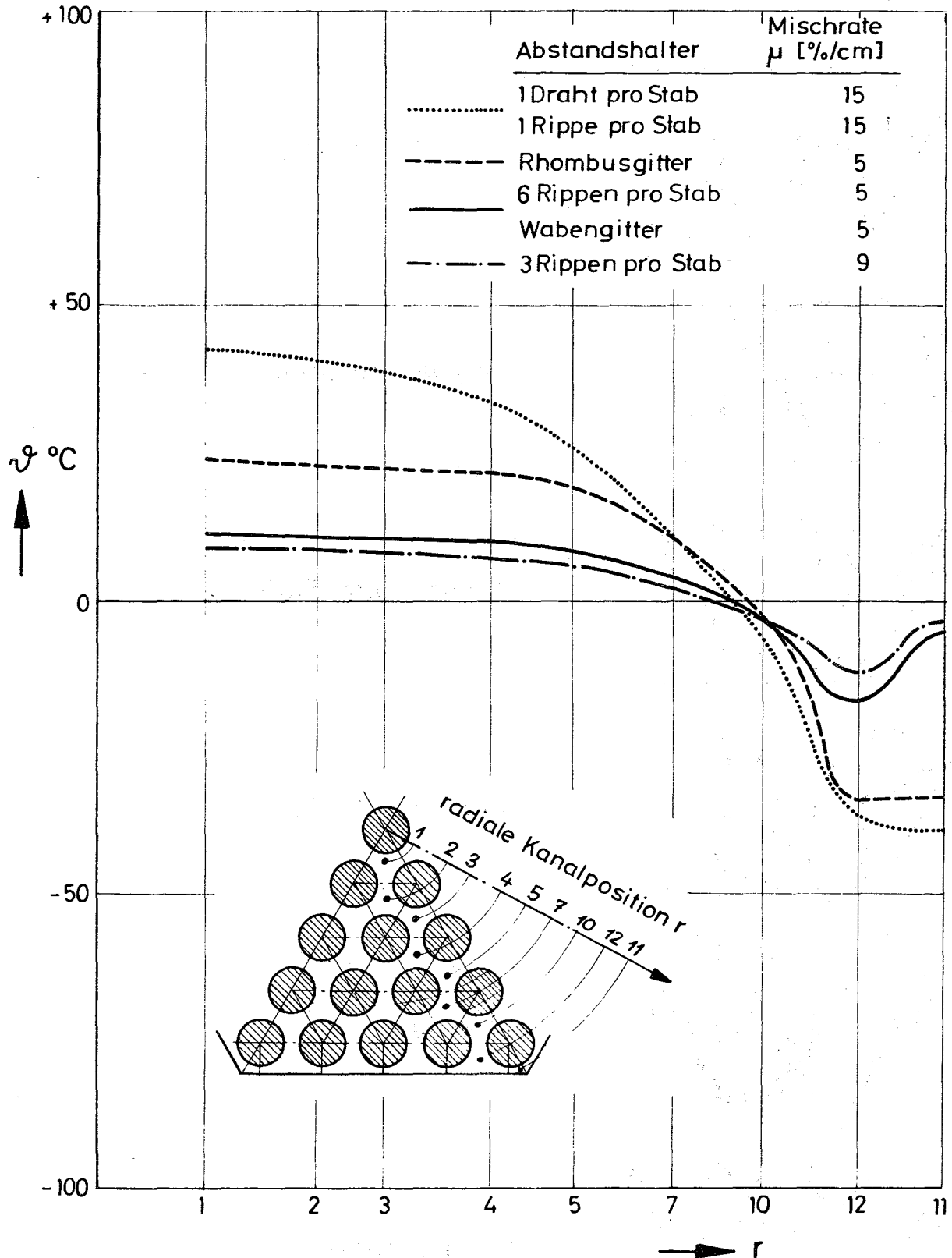


Abb. 2 Kühlmitteltemperatur im Austrittsquerschnitt eines Brennelementes  $\vartheta = t_{\text{aus}} - (t_{\text{aus}})_m$  in Abhängigkeit von der radialen Kanalposition  $r$  für verschiedene Abstandshalter

Abstützlänge:  $l = 100 \text{ mm}$

Stabteilungsverhältnis  $p/d = 1,32$

Die vorliegenden Betrachtungen gelten für ein 61-Stabbündel. Beim Übergang auf ein 169 (469)-Stabbündel reduzieren sich die Übertemperaturen auf etwa  $3/5$  ( $1/3$ ) des hier angegebenen Wertes.

Um die Temperaturverteilungen in komplizierten Geometrien zu ermitteln, wurden der RELAX-Code /4/ erstellt. Hiermit wurden die Temperaturprofile in Hüllrohren mit integralen Wendelrippen bestimmt. Bei Na-Kühlung trat in keinem der untersuchten Fälle im heißen Kanal ein 'hot spot' oder 'cold spot' unter der Rippe an der Innenseite des Hüllrohres auf, der im Vergleich zum glatten Rohr größer als  $5^{\circ}\text{C}$  war.

## 2. Bestimmung der Druckverlustbeiwerte für Brennelemente mit verschiedenen Abstandshaltern und Druckverlustvergleichsrechnungen

---

Der Gesamt-Druckverlust im Brennelement setzt sich zusammen aus 3 Anteilen:

- Druckverlust des Bündels ohne Abstandshalter,
- Druckverlust der Abstandshalter,
- Bündel-Ein- und Auslaßverluste.

Zur Berechnung dieser Verluste müssen die Druckverlustkoeffizienten bekannt sein. Sie werden entscheidend von der Geometrie und Anordnung der Brennstäbe und Abstandshalter im Bündel mitbestimmt. Ergebnisse aus Bündeluntersuchungen ohne Abstandshalter wurden durch Referenzversuche bestätigt und die Koeffizienten für wendelförmige Abstandshalter bestimmt /2, 5/ Bündel-Ein- und Auslaßdruckverluste wurden für ein Brennelement aus Hüllrohren mit 6 Wendelrippen ermittelt /6/.

Damit liegen die für einen Druckverlust-Vergleich notwendigen Unterlagen vor, der für folgende Voraussetzungen durchgeführt wurde:

- Konstanter Kühlmittelmassenstrom durch das Brennelement. Die thermodynamischen Verhältnisse bleiben unverändert, d.h. bei konstanter Stableistung ergibt sich die gleiche Aufheizspanne des Kühlmediums,
- Die Abstützlänge der Stäbe im Bündel wird mit  $l = 100, 150$  und  $200$  mm festgelegt.
- Die Betriebsdaten des SNR werden den Berechnungen zugrundegelegt.
- Das Teilungsverhältnis der Stäbe im Bündel ist variabel und beträgt  $1.17 \leq p/d \leq 1.32$ .

Das Ergebnis dieser Berechnung ist in Tabelle 1 wiedergegeben, bezogen auf ein Brennelementbündel aus Hüllrohren mit 3 Wendelrippen.

Eine Änderung der Betriebsdaten ist von untergeordnetem Einfluß auf den Druckverlust-Vergleich, da sich die Reynolds-Zahl nur in einem sehr kleinen Bereich ändert und damit die Druckverlustbeiwerte kaum beeinflusst.

Einseitige Veränderungen der Geometrie des Bündels und der Abstandshalter (z.B. Abstützlänge, Rippenbreite, Stegblechdicke) wirken sich jedoch auf die absolute Größe der Druckverluste aus.

### 3. Untersuchungen zum Aufbau eines Brennelementes mit wendelförmigen Abstandshaltern und Entwicklung von Hüllrohren mit integralen Wendelrippen

In den thermo- und hydrodynamischen Betrachtungen an Brennelementen mit verschiedenen Abstandshaltern wurde gezeigt, daß Brennelemente aus Hüllrohren mit integralen Wendelrippen bei niedrigem Druckverlust ausgeglichene Temperaturprofile erzeugen./2/.

Abstützlänge l (mm)	100			150			200		
Teilungsverhältnis p/d	1,167	1,25	1,317	1,167	1,25	1,317	1,167	1,25	1,317
<u>Abstandshaltertyp</u> -----									
1 Wendeldraht	0,90	1,16	1,53	0,75	0,86	1,00	0,69	0,78	0,91
1 Wendelrippe b=0,6	0,85	0,98	1,17	0,71	0,72	0,76	0,65	0,66	0,70
3 Wendelrippen	b=0,6	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
	b=0,4	0,94	0,94	0,94	0,94	0,94	0,94	0,94	0,94
6 Wendelrippen	b=0,6	1,22	1,30	1,35	1,22	1,30	1,35	1,22	1,30
	b=0,4	1,09	1,13	1,17	1,09	1,13	1,17	1,09	1,13
Rhombus- gitter	s=0,4	-	1,22	1,26	-	0,98	1,00	-	0,85
	s=0,3	-	1,03	1,10	-	0,85	0,90	-	0,76
Waben- gitter	s=0,4	1,69	1,95	2,22	1,33	1,50	1,67	1,15	1,26
	s=0,3	1,33	1,58	1,86	1,09	1,25	1,43	0,97	1,08

**Tab. 1:** Normierte Druckverluste für Bündel mit verschiedenen Abstandhaltern, bezogen auf das Bündel mit 3 Wendelrippen pro Stab und in Abhängigkeit von der Abstützlänge l sowie dem Teilungsverhältnis p/d der Stäbe.  
Voraussetzung: Gleicher Massendurchsatz.

Die Brennelemente eines Brutreaktors bestehen aus einigen hundert Stäben. Um eine gleichmäßige Kühlung und ein möglichst schwingungsfreies Verhalten zu gewährleisten, müssen die Stabpositionen eingehalten werden.

Die Stäbe weisen fertigungs- und betriebsbedingte Toleranzen auf, die sich über den Bündelquerschnitt addieren und zu Veränderungen im Gitteraufbau führen können. Diese Probleme wurden in /5/ eingehend untersucht und die Spezifikationen für die Rohrerstellung erarbeitet.

Für Hüllrohre mit integralen Wendelrippen müssen gegenüber handelsüblichen runden Rohren zusätzliche Toleranzforderungen hinsichtlich Rippengeometrie, -steigung und -kopfdurchmesser eingehalten werden. Da die zunächst verwandten Fertigungsverfahren der deutschen Industrie nicht das gewünschte Ziel erreichten, wurde im April 1968 ein spezieller Entwicklungsvertrag zwischen GfK und der Firma Mannesmann AG abgeschlossen mit dem Ziel, innerhalb einer Zeitspanne von 1 Jahr Hüllrohre mit 6 integralen Wendelrippen in den geforderten Toleranzen und Geometrien herzustellen. Das Vertragsziel wurde im Jahre 1969 erreicht. Der GfK wurden Versuchsrohre ausgeliefert, die den Spezifikationen entsprachen.

Zur Prüfung der Rohre wurden von der GfK eine kontinuierlich arbeitende Steigungsmeßvorrichtung entwickelt sowie die grundsätzlichen Möglichkeiten zerstörungsfreier Prüfmethoden untersucht.

Zur Untersuchung der Abstützwirkung von Bündeln aus Rippenrohren wurde aus der ersten Rohrlieferung ein 37-Stabbündel gefertigt. Die Rohre lagen hierbei außerhalb der geforderten Toleranzen. Das Bündel wurde in einem 2 x 500 - Stunden - Langzeitversuch in einer isothermen Heißdampfströmung erprobt,



welche die Anforderungen der Na-Kühlung übertraf. Dieses in Abb. 3 gezeigte Bündel hat die ausgezeichnete gegenseitige Abstützwirkung der Brennstäbe durch integrale Wendelrippen bewiesen /7/.

Für einen isothermen Dauerversuch in Natrium wurde ein 61-Stabbündel aus Hüllrohren mit 6 Wendelrippen mit den spezifischen Abmessungen des SNR-Cores vorbereitet.

#### 4. Entwicklung und Erprobung von Hochleistungs-Heizstäben

Zur Durchführung thermodynamischer Untersuchungen sowie für die weiterführenden Arbeiten zum Korrosions- und Festigkeitsverhalten gas- und flüssigmetallgekühlter Brennelemente, werden elektrisch beheizbare Brennstäbe benötigt. Die indirekte Beheizung erlaubt dabei eine einfache Simulation der Reaktor-brennstäbe auch bei kompliziertem geometrischem Aufbau des Bündels und hohen Kühlmitteltemperaturen.

Es wurden bisher Heizstäbe mit MgO und BN als Isolation untersucht, in Luft, Wasser, Heißdampf und Natrium /8, 9/. Die niedriger belastbaren MgO-isolierten Heizelemente erreichten bei 700°C Hülltemperatur mit 150 W/cm<sup>2</sup> fast die zur Zeit bei Schnellen Brutreaktoren vorgesehene Leistungsdichte, während die höher belastbaren BN-isolierten Heizstäbe bei gleicher Hülltemperatur mit max. 450 W/cm<sup>2</sup> diese bei weitem übertrafen, Abb. 4. Es wurden Verfahren entwickelt, die Heizelemente in allen interessierenden Durchmessern und Längen mit berippten und unberippten Hüllrohren zu fertigen und für die interessierenden thermodynamischen Versuche zu instrumentieren.

#### 5. Bestimmung der mittleren und lokalen Wärmeübergangsbeziehungen in verschiedenen Strömungsgeometrien

Bei gasförmigen Strömungsmedien wird der Wärmeübergang in Brennstabbündeln von der Art und Anordnung der Abstandshalter

126-15

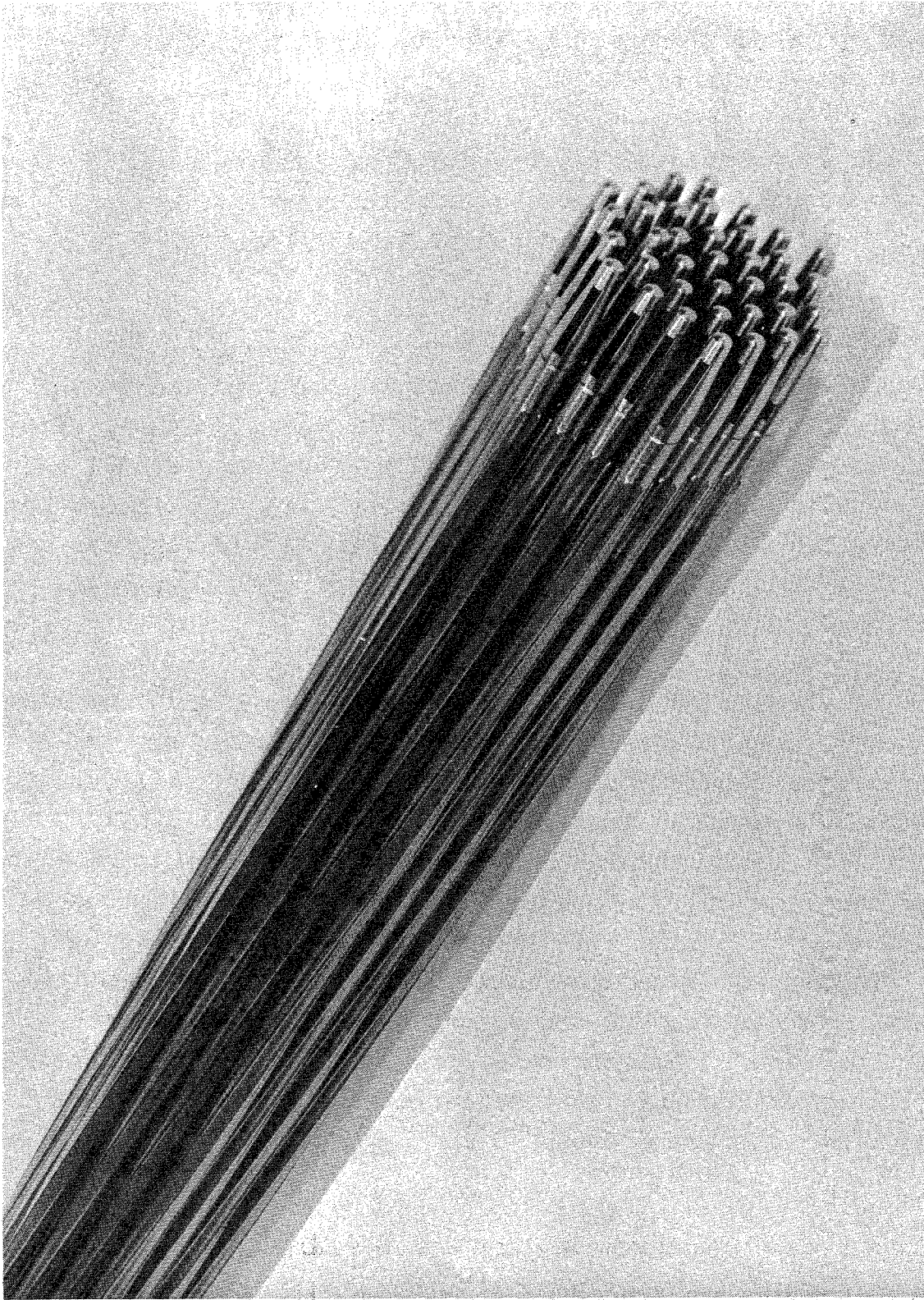


Abb. 3

Brennelement aus Hüllrohren  
mit 6 integralen Wendelrippen

JRB - 170

G.f.K.

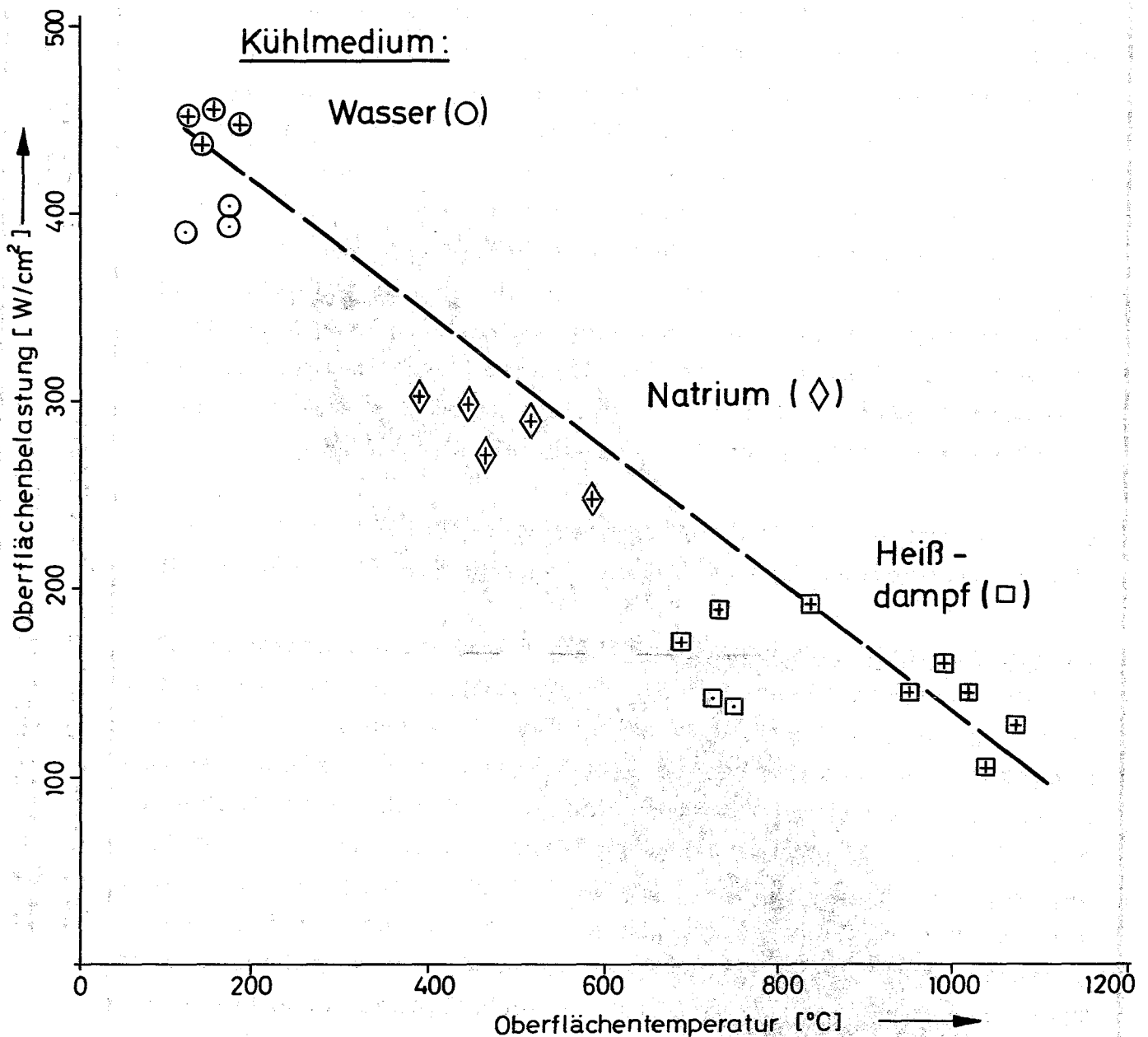


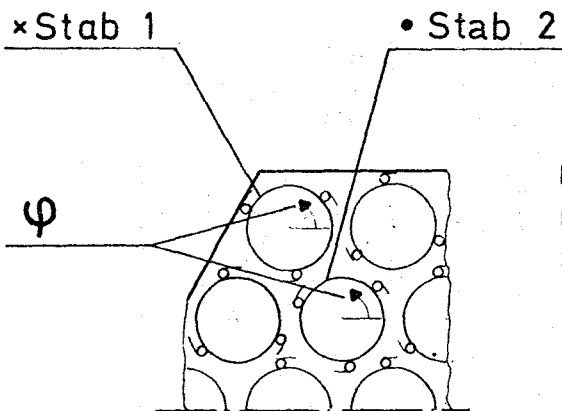
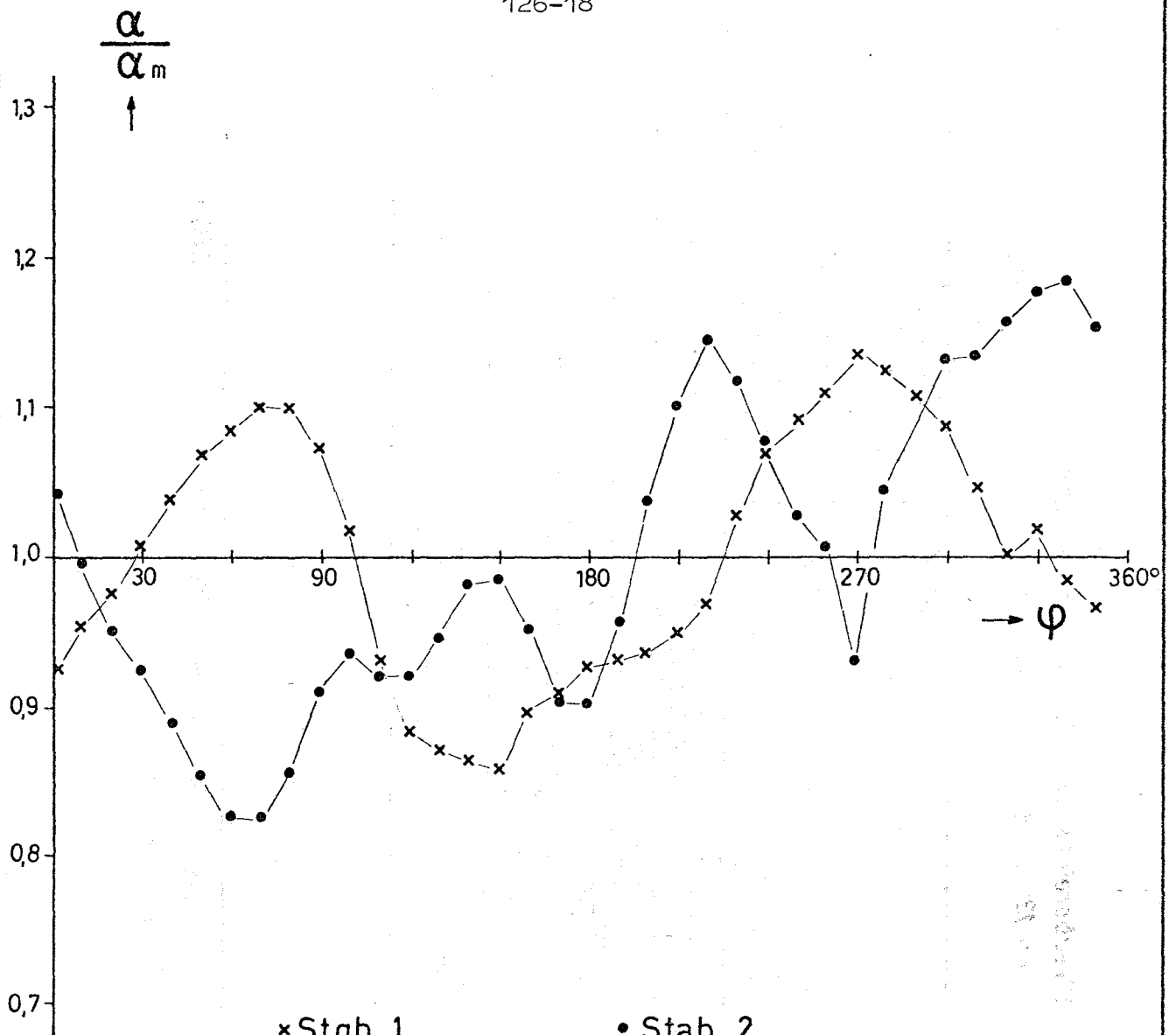
Abb. 4 Experimentelle Untersuchungen an  $\text{MgO}$ -isolierten Hochleistungs-Heizstäben.  
Oberflächenbelastung als Funktion der Hüllrohrtemperatur für Wasser, Natrium und Heißdampf als Kühlmedien.

- keine Beschädigung des Heizleiters
- + Burn-out des Heizleiters

und Stäbe, dem Steigungs-Durchmesser-Verhältnis sowie von der Anzahl wendelförmiger Abstandshalter pro Stab bestimmt /5/. Bei gleicher Abstützlänge im Bündel wird der Wärmeübergang umso besser, je kleiner das Steigungs-Durchmesser-Verhältnis der Abstandshalter ist. Gleichzeitig damit wird jedoch der Druckverlust erhöht. Die bisherigen Untersuchungen an Bündelgeometrien wurden in 10-Stabbündeln mit 1 und 3 wendelförmigen Abstandshaltern pro Stab und verschiedenen Abstandshaltersteigungen durchgeführt. Sie werden nun durch solche mit 6 Wendelrippen pro Stab ergänzt, wobei gleichzeitig verschiedene Stabteilungen untersucht werden. In Ergänzung hierzu wurden die lokalen Wärmeübergangszahlen an einem 19-Stabbündel mit 3 Wendelrippen ermittelt, wobei verschiedene Stabpositionen untersucht wurden /10/.

Abb. 5 zeigt die Variation des Wärmeüberganges am Eckstab eines 19-Stabbündels mit 3 Wendelrippen als Abstandshalter.

In Flüssigmetallströmungen ist der Einfluß unsymmetrischer Strömungsverhältnisse auf das thermodynamische Verhalten der wärmeabgebenden Oberfläche ungeklärt. Unsymmetrische Strömungsverhältnisse treten in Brennelementen mit Einbauten wie Abstandshalter, bei Stabverbiegungen und Kühlkanalblockagen auf. Um einen Einblick in diese Probleme zu erhalten, wurde der Wärmeübergang zunächst im zentrischen Ringraum bestimmt, Abb. 6, und erste Versuche in einer Teststrecke mit fester Exzentrizität und Radienverhältnis wurden durchgeführt. Eine Teststrecke mit kontinuierlich veränderlichen Exzentrizitäten und variablen Radienverhältnissen wurde weitgehend fertiggestellt. Sie besitzt Einrichtungen zur Messung von Geschwindigkeitsprofilen in Wasser sowie für die Temperaturprofilbestimmung in Natrium.



Stabdurchmesser  $d = 13 \text{ mm}$   
 Rippenzahl 3  
 Rippensteigung  $h = 610 \text{ mm}$   
 Stabteilung  $p/d = 1,17$   
 Strömungsrichtung nach unten  
 $Re = 10^5$

Abb. 5

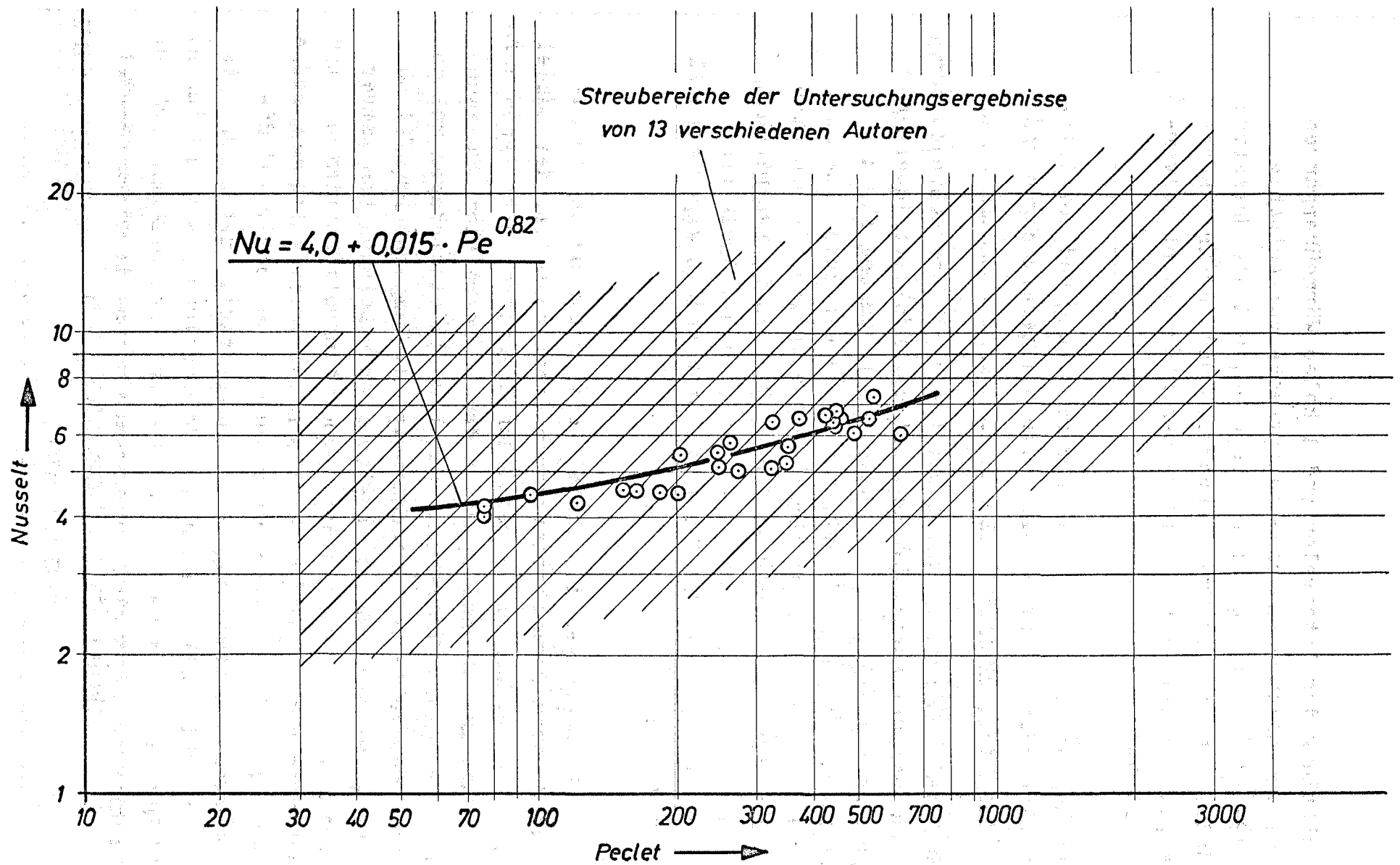


Abb. 6 Wärmeübergangsverhalten von Flüssigmetallen im konzentrischen Ringraum

Zur Ermittlung des integralen und lokalen Wärmeüberganges in Flüssigmetallen wurde eine Teststrecke zur Aufnahme eines 19-Stabbündels in Auftrag gegeben, und die Heizstäbe des Bündels sowie eine Stabdrehvorrichtung zur Erfassung der Temperaturvariation am Umfang der Stäbe in Einzelversuchen erprobt.

6. Untersuchungen der Kühlmittelquervermischung und der zeit- und ortsabhängigen Temperaturprofile bei regelmäßigen und unregelmäßigen Stabanordnungen

Für gasförmige Strömungsmedien zeigten die Untersuchungen zur Erfassung der Heißkanalfaktoren, daß der Kühlmittelquervermischung im Brennelement entscheidende Bedeutung für die Brennelementauslegung zukommt, und daß diese durch die Art, Anordnung und Anzahl wendelförmiger Abstandshalter pro Stab beeinflußt wird. Daher wurden die Größen und Quervermischung durch natürliche Turbulenz, sowie durch ein-, drei- und sechsfach berippte Brennstäbe in 61-Stabbündeln experimentell bestimmt (Abb. 7) /11/.

Für die Untersuchungen der Kühlmittelquervermischung in Natrium wurde ein Brennelementkasten fertiggestellt, der Bündel mit bis zu 61 Stäben und verschiedenen Abstandshaltertypen aufnehmen kann. Am Natriumausgang wurden 50 Thermoelemente angebracht, die in die Unterkanäle des Bündels hineinragen und es erlauben, das zeit- und ortsabhängige Na-Temperaturprofil zu bestimmen, das sich aus der gesteuerten Beheizung bestimmter Stabpositionen ergibt. Aus der Temperaturprofilbestimmung sind Rückschlüsse auf die Größe der Kühlmittelquervermischung sowie auf das zeitabhängige Temperaturrauschen und damit auf die instrumentelle Überwachung der Brennelemente, insbesondere im Falle von Kühlkanalblockagen und Stabverbiegungen zu gewinnen. Die bisherigen experimentellen Untersuchungen bezogen sich auf die Bestimmung der Kühlmittelquervermischung in einem 61-Stab-

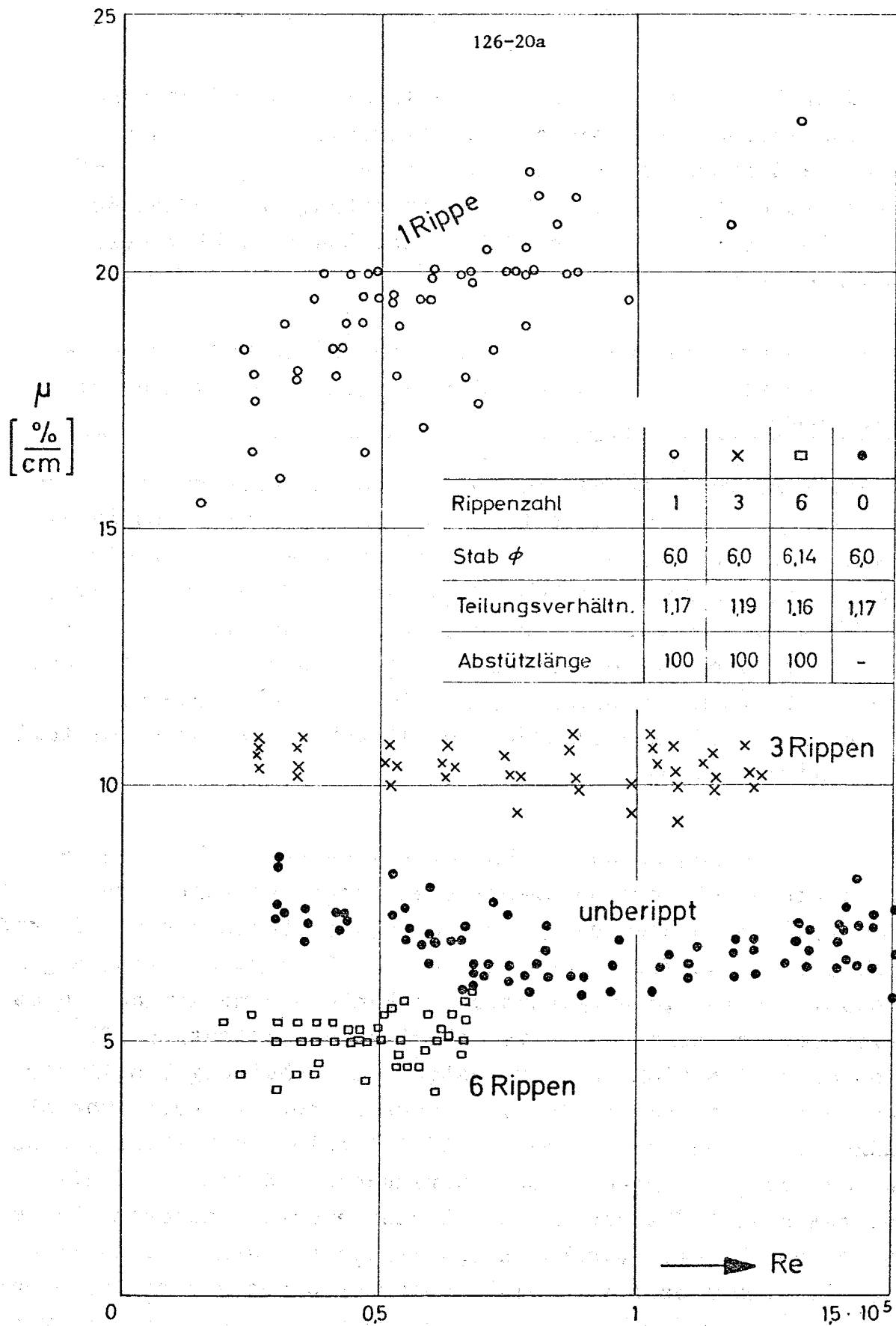


Abb. 7



bündel in den SNR-Abmessungen und mit wabenartigen Abstandshaltergittern. Dabei wurden 3 verschiedene Stabpositionen (Wand-, Eck-, Zentralstab) beheizt. Die ersten Ergebnisse in Natrium bestätigen die in Luftströmungen gewonnenen Daten /2/.

Mit Hilfe des MISTRAL-Programmes /1/ wurden die Na-Temperaturprofile über den Brennelementquerschnitt bei Stabverbiegungen und lokalen Kühlkanalblockagen bestimmt und damit die Voraussetzungen und Betriebsdaten für die ergänzenden Experimente festgelegt.

Veröffentlichungen zu 127 2:

1. W. Baumann: MISTRAL - Thermodynamischer Mischströmungsalgorithmus für Stabbündel (16740);  
- ein digitales Rechenprogramm zur Ermittlung örtlicher Temperaturen und Massenströme in 61-Stabbündeln unter Berücksichtigung der Kühlmittel-Quervermischung und des Energieaustausches durch Wärmeleitung -.  
KFK-988, Juni 1969
2. W. Baumann, H. Hoffmann, R. Möller: Fuel Rod Bundle with Various Spacer Designs for Sodium Cooled Fast Reactors.  
KFK-1154, März 1970  
IAEA-SM-130/38
3. W. Baumann: Örtliche Temperaturen in natriumgekühlten Vielstabbündeln - berechnet mit Hilfe eines digitalen Programmes -  
Teil I: Einfluß der Kastenwand des Brennelementes.  
KFK-1042, September 1969
4. S. Malang; K. Rust: RELAX - Ein Fortran-Programm zur numerischen Berechnung von Temperaturfeldern mittels der Relaxationsmethode der Thermodynamik.  
KFK-1053, 1969
5. W. Baumann, V. Casal, R. Möller, K. Rust, H. Hoffmann: Brennelement-Hüllrohre mit integralen Wendelrippen für schnelle Brutreaktoren.  
KFK-768, April 1968
6. H. Tschöke: Experimentelle Bestimmung der Druckverluste an einem 37-Stabbündel aus Rohren mit 6 integralen Wendelrippen pro Stab als Abstandshalter.  
KFK-1038, Februar 1970
7. H. Hoffmann, G. Hofmann, S. Leistikow: Experimentelle Untersuchungen des Druckverlustes und des Langzeitverhaltens der Abstützstellen an einem Modell-Brennelement aus Incoloy-800-Rohren mit sechs integralen Wendelrippen als Abstandshalter in einer isothermen Heißdampfströmung.  
KFK-1028, September 1969
8. V. Casal: Heizstäbe mit indirekter Widerstandsbeheizung zur Simulierung von Kernbrennstäben.  
KFK-894, März 1969

9. H.Hoffmann: Thermo- und hydrodynamische Untersuchungen  
in Flüssigmetall-Strömungen.  
Status: Dezember 1968  
PSB-319, Januar 1969
10. W. Baumann; V. Casal, H. Hoffmann, G. Hofmann, R. Möller:  
Experimentelle Untersuchungen an Brennelementen  
mit wendelförmigen Abstandshaltern für Schnelle  
Reaktoren.  
Reaktortagung 1970 des Deutschen Atomforums,  
Berlin, 1970
11. W. Baumann, R. Möller: Experimentelle Untersuchung der  
Kühlmittel-Quervermischung an Vielstabbündeln,  
bestehend aus unberippten, ein-, drei- und  
sechsfach berippten Brennstäben.  
KFK-807, März 1969

1267 Untersuchungen zur Thermoschockbeanspruchung (Lang, IRE)

Versuche am He-Kreislauf zur Erprobung der im IRE entwickelten Methode zur Thermoschockanalyse wurden abgeschlossen. Es zeigte sich, daß die am Testkörper eingesetzten Thermolemente und Dehnmeßstreifen eine zuverlässige Messung erlaubten.

Die Meßsignale, welche von der Datenerfassungsanlage digital auf Magnetband registriert wurden, sind auf der Rechenanlage IBM 360/65 ausgewertet worden. Mit Rechenprogrammen für die Fourier-Analyse bzw. Spektral-Analyse wurden die für die vorgeschlagene Methode interessierenden Frequenzgangfunktionen des Temperatur- und Wärmespannungsfeldes für einige interessante Punkte aufgestellt. Ein Programm für die Fourier-Rücktransformation wurde aufgestellt und für die Berechnung der Gewichtsfunktionen eingesetzt, welche für die Anwendung des Duhamel'schen Integrals benötigt werden.

Die Gültigkeit der Methode wurde dadurch nachgewiesen, daß die Ergebnisse eines realen Thermoschocks am He-Kreislauf mit denjenigen verglichen wurden, welche man bei Anwendung der zuvor bestimmten Gewichtsfunktionen vorausberechnet hat.

Veröffentlichung:

W. Lang: "Ein Beitrag zur experimentellen Thermoschockanalyse"  
Externer Bericht Nr. 8/69-3

127. Thermo- und hydrodynamische Versuche in Gas und Dampf1271 Heliumversuche (M.Dalle Donne, K.Maubach, E.Meerwald, W.Priem, K. Rehme, INR)

Am Heliumversuchsstand wurden Messungen von Druckverlustbeiwerten und Wärmeübergangszahlen an Stabbündeln mit 9 und 16 Stäben in quadratischer Anordnung bis zu Reynoldszahlen von  $2 \cdot 10^5$  und Stableistungen von 40 W/cm durchgeführt. Die Konstruktion eines Rohrbündels mit 19 rauhen Stäben wurde abgeschlossen und der Bau begonnen. Ein 750 kW-Heiztrans wurde installiert.

Am Luftversuchsstand wurden Messungen des Druckverlustbeiwertes und der Wärmeübergangszahl an Ringspalten mit künstlich rauhem Zentralrohr bei verschiedenen Formen, Höhen und Abstandsverhältnissen der Rauigkeit vorgenommen. Nach Abschluß der statischen Eichmessungen an den glatten und rauhen Teststrecken wurden die Messungen an den glatten Teststrecken abgeschlossen. An den rauhen Teststrecken mit  $2 \leq p/h \leq 8$  ( $p$ =Abstand,  $h$  = Höhe der Rauigkeitselemente) und Temperaturen bis  $1.200^\circ\text{C}$  wurden die Messungen beendet und die Ergebnisse so ausgewertet, daß sie für jede geometrische Anordnung gültig sind (1).

Am Wasserversuchsstand wurden die Druckverlustmessungen an Stabbündeln mit Spiraldrahtabstandshaltern abgeschlossen (2) (3).

Weiter wurden Druckverlustmessungen und Berechnungen über das Strömungsverhalten in glatten axial durchströmten Stabbündeln ohne Abstandshalter durchgeführt. Druckverluste von Gitterabstandshaltern verschiedener Konstruktionen wurden gemessen; die Meßergebnisse konnten in einem Druckverlustgesetz zusammengefaßt werden (4).

Der Aufbau des Hochtemperatur-Helium-Versuchsstandes zur Messung des Reibungsbeiwertes und der Wärmeübergangszahl bei sehr hohen Temperaturen wurde abgeschlossen und die Meßtechnik zur Messung von Wärmeübergang und Druckverlusten an glatten Rohren bei extrem hohen Temperaturen weiterentwickelt. Bei ersten Vorversuchen wurden Wandtemperaturen bis zu  $2.000^{\circ}\text{C}$  erreicht.

Neben den umfangreichen experimentellen Untersuchungen galt das besondere Interesse der Ergänzung und Zusammenfassung der Ergebnisse durch theoretische Überlegungen. Eine theoretische Arbeit über den Einfluß der Kanalgeometrie und der Wandrauigkeit auf die Reibungswerte turbulenter Strömungen wurde abgeschlossen (5) (6).

Veröffentlichungen zu 1271:

- (1) M. Dalle Donne, E. Meerwald  
Heat Transfer from Surfaces Roughened by Thread-Type Ribs at High Temperatures  
Proceedings of the 1970 Heat Transfer and Fluid Mechanics Institute. Stanford University Press, Stanford, Calif., U.S.A.
- (2) K. Rehme  
Systematische experimentelle Untersuchung der Abhängigkeit des Druckverlustes von der geometrischen Anordnung für längs durchströmte Stabbündel mit Spiraldrahtabstandshaltern  
Dissertation, Universität Karlsruhe 1967  
Externer Bericht 4/68-16
- (3) K. Rehme  
Druckverlust in Stabbündeln mit Spiraldrahtabstandshaltern  
Forschung im Ingenieurwesen, 35 (1969), S. 107-112
- (4) K. Rehme  
Widerstandsbeiwerte von Gitterabstandshaltern für Reaktorbrandelemente  
Atomkernenergie 15 (1970), S. 127-130
- (5) K. Maubach  
Reibungsgesetze turbulenter Strömungen  
Chemie-Ingenieur-Technik - im Druck -
- (6) K. Maubach  
Reibungsgesetze turbulenter Strömungen in geschlossenen glatten und rauhen Kanälen von beliebigem Querschnitt  
Dissertation, Univ. Karlsruhe 1969  
Ext. Bericht 4/69-22

1272. Entwicklung und experimentelle Untersuchungen auf dem Gebiet der Dampf-Kreisläufe und -Komponenten

(F. Erbacher, H. Schmidt, J. Vasarhelyi, IRB)

1. Untersuchungen zum direkten Wärme- und Stoffaustausch unter Phasenwechsel

Diese Untersuchungen haben neben ihrer grundlegenden Ausrichtung zum Ziel, Auslegungsunterlagen für Mischverdampfer dampfgekühlter Reaktoren zu erstellen. Hierbei interessieren im wesentlichen die erzielbare Leistungsdichte im Wasserraum und die erreichbare Reinheit und Trockenheit des den Dampfraum verlassenden Dampfes sowie die diese beeinflussenden Parameter. Eine hohe Leistungsdichte im Verdampfer ermöglicht niedrige Anlagekosten sowie ein günstiges Stabilitätsverhalten des Kühlkreislaufes. Einem Kenntnis der Qualität des in Mischverdampfern erzeugten Dampfes kommt Bedeutung zu, da das Betriebsverhalten der hochbelasteten Brennelemente eines dampfgekühlten Reaktors und insbesondere deren Korrosion von der Reinheit und Trockenheit des erzeugten Dampfes beeinflusst werden.



Die im Jahre 1968 durchgeführten Experimente erfolgten im Rahmen der Entwicklung von Mischverdampfern für dampfgekühlte Reaktoren und hatten zum Ziel, möglichst frühzeitig Auslegungsgrundlagen für die Industrie zu erstellen. Die Ergebnisse der Versuche fanden Anwendung bei der Auslegung des Löffler-Verdampfers für den DSR-Prototypreaktor.

Zur Durchführung detaillierter und grundsätzlicher Untersuchungen über den Bildungsmechanismus sowie die Dynamik und den Aufstieg von Dampfblasen im Wasserraum wurde ein Dampfblasenprüfstand gebaut. Die Aufzeichnung der Blasenbildung, der Grösse von Grenzflächen sowie des Blasen volumens erfolgt mittels Zeitdehneraufnahmen bei einer Filmgeschwindigkeit von etwa 2 000 Bildern pro Sekunde. Zur Führung des optischen Strahlenganges wurden Saphir-druckscheiben entwickelt, deren Sicherung gegen Bersten mittels Verbund-Panzerglas erfolgt.

Das Messen der Temperatur der von der Düse sich ablösenden Blasen erwies sich als recht schwierig. Wegen der geringen Wärmekapazität der Blasen und der sehr kleinen Blasenverweilzeiten von etwa 10 ms an der Messstelle, ist zur Durchführung solcher Versuche eine Messzelle mit sehr geringer Masse und kurzer Ansprechzeit Voraussetzung. Thermoelemente, welche durch Verschweissen von 30  $\mu\text{m}$   $\emptyset$  NiCr-Ni-Drähten hergestellt wurden, konnten trotz kurzer Ansprechzeit nicht verwendet werden, da nicht auszuschliessen ist, dass an der Messstelle noch eine Wasserlamelle anhaftet. Die Vorstellung, die Blase wie mit einer Nadel anzustechen, führte zu einer coaxialen Thermoelement-Ausführung. Ein 30  $\mu\text{m}$  Ni-Draht wurde sehr dünn mit Glas ummantelt, auf das im Ionenplasmazerstäubungs-Verfahren die zweite Thermopaarung, in einem Fall NiCr, im anderen Pt, aufgebracht wird. Diese Thermoelementart zeichnet sich durch extrem kurze Ansprechzeiten im  $\mu\text{s}$ -Bereich aus. Sie konnte jedoch nicht eingesetzt werden,

da die aufgebrachte Schicht unter Temperaturwechsel abblättert. Die aussichtsreichste Thermoelement-Version besteht aus einer Glaskapillare, in die zwei  $30 \mu\text{m } \varnothing$  NiCr-Ni-Drähte isoliert eingezogen sind und deren Messstelle galvanisch aufgebracht ist.

Der Massenstrom durch die Düse wird durch das Oszillogramm eines Piezzo-Quarzes ermittelt. Dabei zeigte sich pulsierendes Einströmen in die entstehende Blase. Die aufgezeichneten Messwerte konnten durch Rechnungen bestätigt werden.

Bei einem Systemdruck von 80 bis 110 ata und einem Vorkammervolumen von  $4 \text{ cm}^3$  wurden an einer Düse mit 4 mm Höhe und 2 mm Durchmesser Versuchsreihen unter Variation des Massenstromes, der Heissdampf-temperatur in der Vorkammer sowie der Wasserhöhe aufgenommen. Diese erstmals durchgeführten systematischen Messungen gaben Aufschluss über den Bildungsmechanismus und den Ablösevorgang von Dampfblasen. Die Abb. 1 zeigt als Beispiel drei kennzeichnende Momentanaufnahmen der verschiedenen Bereiche der Blasenbildung, welche im wesentlichen durch die Dampfgeschwindigkeit in der Düse, d.h. durch den Massendurchsatz bestimmt sind. Die Abbildungen sind in 10-facher Vergrößerung dargestellt.

## 2. Untersuchungen zur Heissdampf-Korrosion (Vgl. 1142)

Diese gemeinsam mit dem Institut für Material- und Festkörperforschung (IMF) durchgeführten Arbeiten konzentrieren sich im wesentlichen auf Probleme des Korrosionsmechanismus unter Wärmeübergang und spezielle Fragen der allgemeinen, ebenmässigen Heissdampf-Korrosion verschiedener Werkstoffe unterschiedlicher Werkstoffzusammensetzung, Kaltverformung, Oberflächengeometrie und -struktur bei veränderlichen Kreislaufbetriebsbedingungen. Das Ziel

der Versuche ist u.a. die Erstellung quantitativer Unterlagen für die Auslegung dampfgekühlter Brennelemente.

Die Versuche werden in dem sich im Aufbau befindlichen grosstechnischen Heissdampf-Korrosionskreislauf durchgeführt. Die Abb. 2 zeigt schematisch den Wärmeschaltplan des Korrosionskreislaufes. Dieser Kreislauf ist für einen Dampfdurchsatz von 3000 kg/h, einen max. Heissdampfdruck von 300 at und eine max. Heissdampf Temperatur von 540 °C ausgelegt. Die Untersuchungen werden an massstäblichen Hüllrohren durchgeführt, welche durch elektrische Hochleistungsheizstäbe beheizt werden. Die im IRB entwickelten, mit Bornitrid isolierten Heizstäbe in Brüterabmessungen erlauben Stableistungen von rund 900 W/cm bei Hüllrohrtemperaturen von 700 °C. Die Langzeiterprobung dieser Hochleistungsheizstäbe wurde im Jahre 1969 begonnen.

Die in den Jahren 1968 und 1969 durchgeführten Arbeiten erstreckten sich auf Auslegung und Errichtung des Kreislaufes, dessen Inbetriebnahme für Mitte 1970 vorgesehen ist. Die Abb. 3 vermittelt einen Eindruck vom Stand der Montage im März 1970.

### 3. Untersuchungen zum dynamischen Verhalten von Reaktorkühlkreisläufen

Die Untersuchungen werden an dem im IRB erstellten Niederdruck-Dampfkreislauf durchgeführt. Dieser Kreislauf ist ein grosstechnisches Modell des für den dampfgekühlten Schnellen Brutreaktor ausgewählten Kreislaufes. Die Abb. 4 zeigt schematisch das Wärmeschaltbild des Versuchskreislaufes sowie dessen Auslegungsdaten.

Die erste im Jahre 1968 abgeschlossene Phase des Versuchsprogrammes erstreckte sich zunächst auf den Nachweis des funktionsfähigen Betriebes eines derartigen Kreislaufes und die Feststellung der Betriebssicherheit der einzelnen Komponenten. Die experimentellen Arbeiten befassten sich darüber hinaus mit der Untersuchung des Kreislaufverhaltens beim An- und Abfahren und bei langsamen Regelvorgängen. Diese erste Phase der Versuche am Niederdruck-Dampfkreislauf wurde erfolgreich abgeschlossen und der Nachweis erbracht, dass der ausgewählte Reaktor-Kühlkreislauf funktionsfähig ist. Die einzelnen Komponenten erwiesen sich als betriebssicher und deren Schaltung und Zusammenwirken im Kreislauf als geeignet.

Die zweite, vorgesehene Phase des Versuchsprogramms wurde vorbereitet. Sie befasst sich mit dynamischen Untersuchungen im Rahmen von Sicherheits- und Stabilitätsbetrachtungen für Reaktor-Kühlkreisläufe. Dabei soll das Schwergewicht der experimentellen Untersuchungen in zunehmendem Masse auf grundsätzliche Fragen gelegt und verschiedene Analog- und Digitalrechenmodelle an dem vorhandenen Versuchskreislauf getestet werden, um somit ganz allgemein Aufschluss zu gewinnen über die Anwendbarkeit theoretischer Modellvorstellung auf Reaktorkühlkreisläufe mit kompressiblen Medien.

#### 4. Erzielter Stand der im Jahre 1969 eingestellten Forschungsarbeiten:

##### 4.1 Entwicklung und Untersuchung von Dampfgebläsen

Der Entwurf und Bau von zwei Versuchsgebläsen kleiner Leistung für Drücke von 32 ata und 150 ata diente der Erstellung von Auslegungsunterlagen für grössere Gebläse von Leistungsreaktoren. Um die Übertragbarkeit der erzielten Ergebnisse zu gewährleisten, wurden bereits

diese Versuchsgebläse für die speziellen Erfordernisse des Reaktorbetriebes ausgelegt, jedoch für die relativ kleinen Dampfmen gen der Versuchskreisläufe im IRB bemessen.

Das Niederdruckdampfgebläse für 32 ata wurde eingehend erprobt und weiterentwickelt. Die gesammelten Erfahrungen wurden von der Industrie beim Entwurf der grossen Dampfgebläse für den 300 MWe dampfgekühlten Schnellen Reaktor (DSR) verwertet. - Das Hochdruckdampfgebläse für 150 ata konnte lediglich einem kurzen Funktionstest mit Druckluft unterzogen werden.

#### 4.2 Untersuchungen an hochtourigen, flüssigkeitsgeschmierten Gleitlagern

-----

Die bei der Erprobung der mit wassergeschmierten Gleitlagern ausgerüsteten Dampfgebläse und beim Literaturstudium gesammelten Erkenntnisse zeigten, dass noch grundlegende Forschungsarbeiten zur Entwicklung betriebssicherer, flüssigkeitsgeschmierter Gleitlager durchgeführt werden müssen. Zur Untersuchung der anstehenden Probleme der Tragfähigkeit, Stabilität, Feder- und Dämpfungseigenschaften sowie der Turbulenz im Schmier spalt wurde ein Versuchsprogramm aufgestellt und zwei Gleitlagerprüfstände entworfen.

Ein grösserer Prüfstand wurde für die Abmessungen und Betriebsdaten der DSR-Prototypgebläse ausgelegt, ein kleinerer derart, dass er unabhängig von einem speziellen Anwendungsfall allgemein gültige Untersuchungen für flüssigkeitsgeschmierte Gleitlager ermöglicht. Die Entwurfsarbeiten für beide Prüfstände wurden abgeschlossen. Eine angefertigte Literaturstudie gibt einen "Überblick über theoretische und experimentelle Ergebnisse dynamischer Radial- und Axiallager im laminaren und turbulenten Bereich" und erfasst alle im In- und Ausland bekannten Publikationen.

#### 4.3 Entwicklung eines voll-hydraulischen Regel- und Abschaltstabes

Für eine integrierte Bauweise wasser- und dampfgekühlter Kernreaktoren sind Regel- und Abschaltstäbe zweckmässig, bei denen die Bewegung des Stabes und die Erfassung der Stellungsgrössen auf nichtelektromagnetische Weise, d.h. eine von der Strahlung des Cores weitgehend unbeeinflussbare Art erfolgen. Hierfür wurden die hydraulische Verschiebung und hydraulische Massentnahme als vorteilhaft erkannt. Daher wurde ein entsprechendes vollhydraulisches Konzept erarbeitet.

Das wesentliche Bauteil dieser Einrichtung ist ein hydraulisches Potentiometer zur Erfassung der Regelstabstellung. Dieses neuartige Bauelement wurde entwickelt und erprobt. Eine zweite unabhängige, ebenfalls hydraulisch arbeitende Einrichtung zur Erfassung der Regelstabstellung wurde entworfen und getestet.

Für das Schnellschalten des Regelstabes wurde ein rasch ansprechendes Ventil entworfen, gebaut und erprobt, welches Ansprechzeiten von 3 - 6 msec ermöglicht.

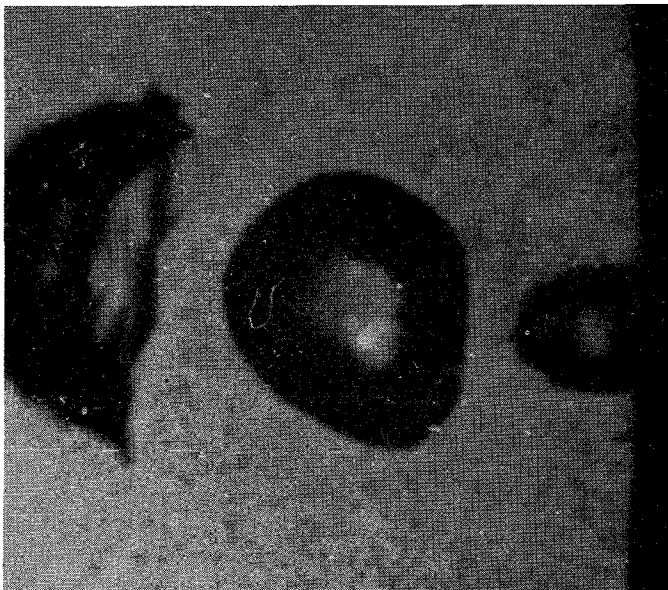
Im Zusammenhang mit diesen Arbeiten wurde eine Brems- und Abfangfeder entwickelt, die auf besonders einfache Weise gute Dämpfungseigenschaften ermöglicht. Die Feder wurde patentiert und ein Lizenzvertrag mit einer Herstellerfirma abgeschlossen.

Ein komplettes Regelstabmodell wurde unter Verwendung der oben beschriebenen Bauelemente und für einen Betriebsdruck von 150 at konstruktiv durchgearbeitet.

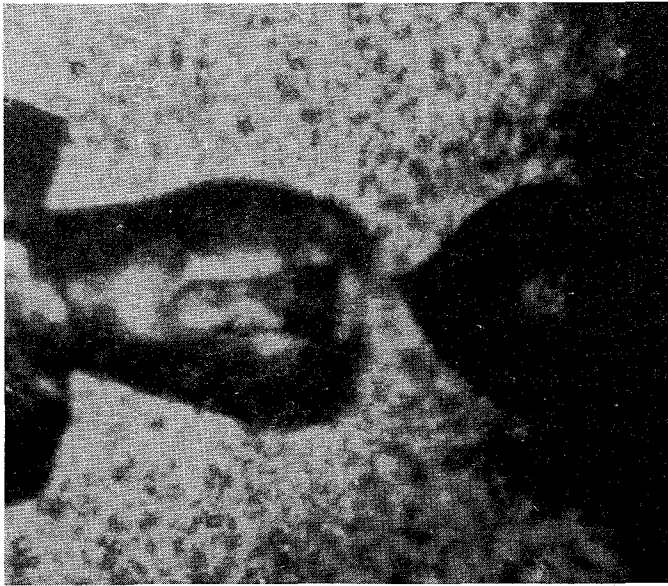
#### 4.4 Der Entwurf des K-D-Kreislaufes wurde abgeschlossen.

Veröffentlichungen zu 1271:

- (1) O. Mühlhäuser  
Das hydraulische Potentiometer als Steuerelement und Wege-  
anzeigegerät  
KFK-Bericht 734, März 1968
- (2) O. Mühlhäuser  
Ein hydraulisch gedämpftes Federpaket hoher Leistungsfähigkeit  
als Brems- und Abfangelement für Kernreaktor-Regelstäbe  
KFK-Bericht 735, Februar 1968
- (3) F. Erbacher, F. Radtke  
Zur Entwicklung von Dampfgebläsen für dampfgekühlte Schnelle  
Brutreaktoren  
Atomkernenergie (ATKE), 14. Jg., 1969, Heft 2, S. 118 - 124
- (4) F. Erbacher, U. Harten  
THEDYBER - ein Programm zur thermodynamischen Berechnung von  
Kreisläufen für dampfgekühlte Kernreaktoren  
KFK-Bericht 824, EUR 4165 d, März 1969
- (5) G. Rothley  
Überblick über theoretische und experimentelle Ergebnisse  
dynamischer Radial- und Axiallager im laminaren und turbulen-  
ten Bereich  
KFK-Bericht 968, Mai 1969



Einzelblase



Zwillingsblase



Strahlgasen

Abb.1 Dampfblasenbildung an einer 2mm  $\phi$  Düse  
(Dampfzustand 110 ata/500°C)



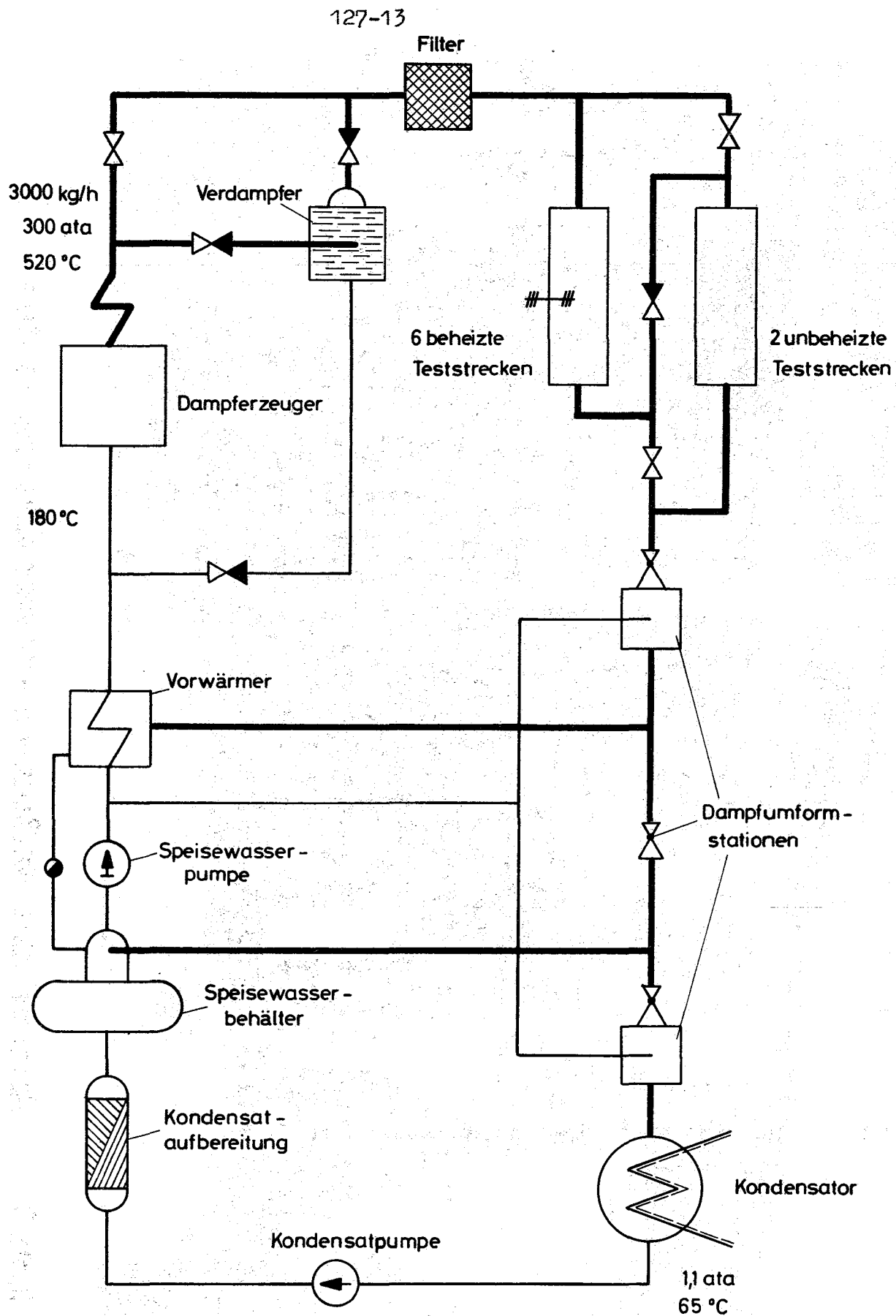


Abb. 2 Wärmeschaltplan des Korrosionskreislaufes

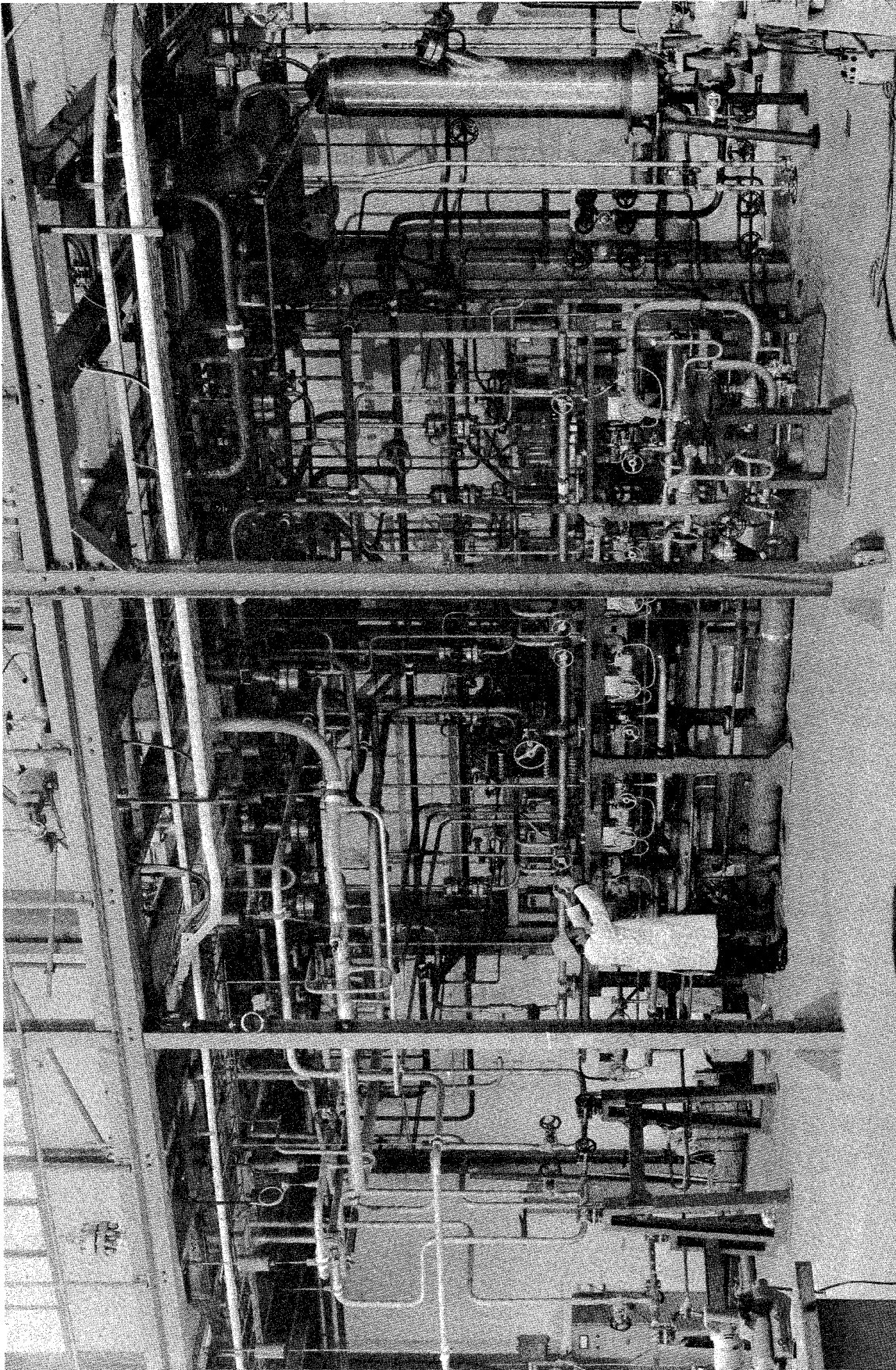


Abb.3 Ansicht des Heißdampf - Korrosionskreislaufes  
( Stand der Montage im März 1970 )

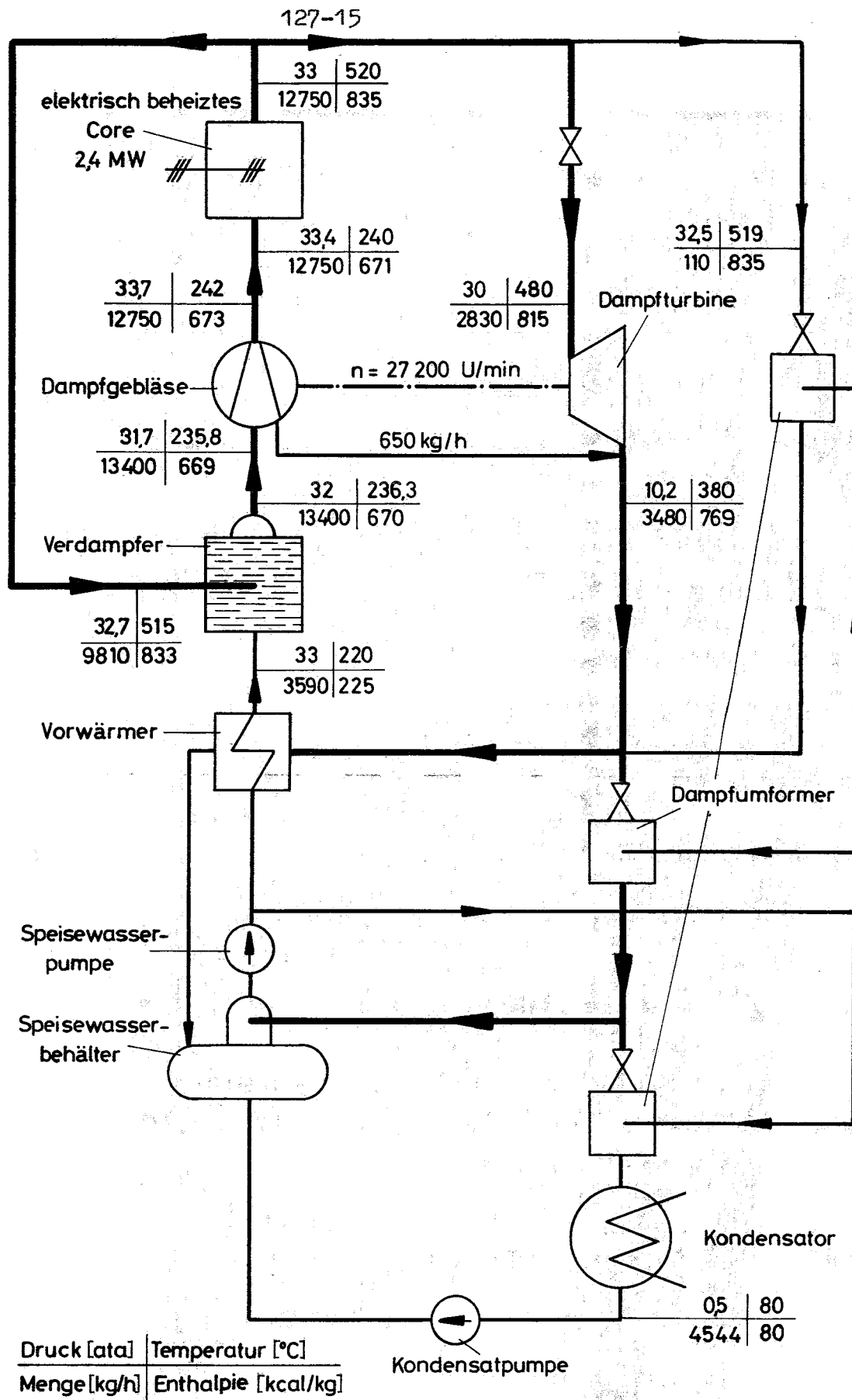


Abb. 4 Wärmeschaltbild des Niederdruckdampfkreislaufes



128. Reaktorentwürfe1280. Dampfgekühlte schnelle Brüter

Im Rahmen der von Experten aus 7 Ländern und 11 Industriefirmen bzw. Forschungszentrum 1968 erarbeiteten ENEA-Studie über das wirtschaftliche und technische Potential dampfgekühlter Brüter oblag dem IRE die Federführung. Das IRE, INR und IRB führten die für diese Studien erforderlichen thermohydraulischen und konstruktiven Auslegungsarbeiten durch. Kostenstudien erarbeiteten das IAR und IRE (1).

Die nuklearen Rechnungen des INR zur Systemanalyse eines 1.000-MWe-Reaktors (D1) und eines 300 MWe-Prototyp-Reaktors (D2) wurden beendet. Für die Studie der ENEA über dampfgekühlte schnelle Reaktoren wurden die nuklearen Rechnungen durchgeführt und mit der Fertigstellung des "Final Report" im Oktober 1968 abgeschlossen. Der Einfluß der Kerndatenungenauigkeiten auf die Sicherheitskenngrößen eines schnellen 1.000 MWe-Reaktors mit Dampfkühlung (D1) wurde eingehend untersucht (8). Die konsistente Behandlung des Einflusses der neuen Werte von  $\alpha = \sigma_c / \sigma_f$  für  $^{239}\text{Pu}$  auf nukleare Kenngrößen wurde unter Berücksichtigung der quasistationären Isotopenzusammensetzung des Plutoniums untersucht. Die Abhängigkeit der wichtigsten nuklearen Kenngrößen für einen 1.000-MWe (D1)- und einen 300-MWe (D2)-Reaktor wie Brutrate, Verdopplungszeit, Dampfdichtekoeffizient, Dampfdichte und kritische Masse von den in Karlsruhe neu erstellten Datensätzen sind eingehend diskutiert (vgl. Veröffentlg. zu 122).

Das IAR und IRE erstellten im Anschluß an die ENEA-Studie eine Analyse des technischen Entwicklungspotentials und der Marktchancen eines dampfgekühlten Schnellbrüters (9). Eingehende Diskussionen dieses Themenkreises führten Anfang 1969 zu dem Beschluß des BMWF, die Arbeiten am dampfgekühlten Schnellbrüter auf Einzelvorhaben im Rahmen des Basisprogrammes zu reduzieren. Diese Vorhaben werden zum Teil im IRB durchgeführt. Die Untersuchungen des IRE für den dampfgekühlten schnellen Brüter wurden 1969 mit zusammenfassenden Darlegungen der Brennelementproblematik (10), der technischen und ökonomischen Situation und der Stabilitätsprobleme dieses Brüter-Typs und einer Konzept-Studie weitgehend abgeschlossen.

Veröffentlichungen zu 1280:

- (1) An Assessment Study of Steam - Cooled Fast Reactors for Civil Power Generation  
ENEA Specialist Group, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Sept. 25, 1968
- (2) Frisch, W., Woite, G.  
Analogrechenmodell für dampfgekühlte Reaktoren mit Direktkreislauf  
KFK-Bericht 657  
EUR 3693
- (3) Krebs, L.  
Die Stabilität von starr zurückgeführten Regelstrecken ohne Ausgleich am Beispiel des dampfgekühlten Reaktor  
KFK-Bericht 656
- (4) Franze, H.  
Die numerische Berechnung der Dampfkreisläufe von Kernkraftwerken  
KFK-Bericht 816
- (5) W. Frisch, W. Hübschmann  
Zur inhärenten Stabilität des dampfgekühlten Brutreaktors.  
KFK 851, EUR 4153 d
- (6) Erbacher, F.J., Harten, U.  
THEDYBER - ein Programm zur thermodynamischen Berechnung von Kreisläufen für dampfgekühlte Kernreaktoren  
KFK-Bericht 824  
EUR 4165 d
- (7) Ritz, L.  
Zu den Brennelementproblemen beim dampfgekühlten Schnellen Brüter  
Atomwirtschaft 14, April 1969, S. 207-210
- (8) Broeders, C.  
The influence of nuclear data incertaintie of reactor materials on the main safety and stability parameters of a large steamcooled fast reactor (D- 1 design)  
KFK-Bericht 1045  
EUR 4311 e

(9) Fischer, M., Seetzen, J., Jansen, P., Faude, D.  
Untersuchung der technischen und ökonomischen Situation dampfgekühlter schneller Brutreaktoren  
KFK-Bericht 918

(10) Fischer, M.  
Zu den Brennelementproblemen beim dampfgekühlten Schnellen Brüter  
Atomwirtschaft XIV, Nr. 4, April 69, S. 203/06

1281. Vorstudien zu gasgekühlten schnellen Reaktoren (M.Dalle Donne,  
E. Eisemann, INR)

Parallel zu der ENEA-Studie über dampfgekühlte Brüter wurde unter Beteiligung der GfK an einer ENEA-Studie über heliumgekühlte Brüter gearbeitet (1).

Die Reaktorauslegungs- und Brennelement-Entwicklungsarbeiten in Karlsruhe für gasgekühlte Brüter sind grundsätzlich auf höhere Temperaturen ausgerichtet. Dabei stehen Brennelemente mit keramischem Brennstoff und Vanadinhüllen und außerdem Brennelemente mit Chrom- und Vanadin-Cermets oder große metallbeschichtete "Coated-Particles" im Vordergrund (2), vgl. 1125. Ein He-Hochdruckloop (150 at) ist im Bau, das bis Ende 1970 betriebsbereit sein wird. Wärmeübergangsversuche laufen schon seit einigen Jahren. (Vgl. 127).

Die nuklearen Eigenschaften der oben angeführten Entwürfe von gasgekühlten schnellen Reaktoren wurden im INR berechnet (3).

Zur wärmetechnischen Auslegung dampf- und gasgekühlter Reaktoren wurde im IRE ein neues Rechenprogramm, einschließlich der Unterprogramme für die Stoffwerte der wichtigsten gasförmigen Kühlmittel, ausgearbeitet (4).

Die GfK, die KFA und die Firmen Siemens, GHH, BBK, BBC und AEG arbeiten seit Mitte 1969 im Auftrag des BMBW ein Memorandum über die Möglichkeiten eines gasgekühlten Brüters aus, das bis zum September 1970 vorgelegt werden soll.

Belgien, Deutschland (u.a. die GfK), England, die Niederlande, Österreich, Schweden und die Schweiz haben im Rahmen der "Lugano-Gruppe" einen Informationsaustausch zum gasgekühlten Brüter beschlossen.



Veröffentlichungen zu 1281:

- (1) An Assessment Study of Gas-Cooled Fast Reactors for Civil Power Generation  
ENEA Specialist Group, AEE Winfrith, July 22, 1968
  
- (2) Dalle Donne, M., Eisemann, E., Thümmel, F., Wirtz, K.,  
High Temperature Gas Cooling for Fast Breeders  
Symposium on Advanced and High Temperature Gas Cooled Reactors  
Kerntechnik 11, 2, 99-104 (1969)  
KFK-Bericht 841  
EUR 3978 e
  
- (3) Eisemann, E.  
Nukleare Eigenschaften heliumgekühlter schneller Brutreaktoren  
KFK-Bericht 864  
EUR 4155 d
  
- (4) Doetschmann, K., Hofmann, F., Kirsch, D.  
PRAWDA - Ein FORTAN-Programm zur wärmetechnischen Auslegung dampf- und gasgekühlter Reaktoren  
KFK-Bericht 725  
EUR 3974 d

## 1282. Natriumgekühlte schnelle Reaktoren

### 1282.1 Vorstudien zu einem 1.000 MWe Na-Brüter mit oxydischen Brennstoffen

In einer System-Studie wurde untersucht, welche Möglichkeiten zur weiteren Verbesserung der Wirtschaftlichkeit und welches zusätzliche Entwicklungspotential bei einem natriumgekühlten schnellen 1.000 MWe-Brüter mit oxydischem Brennstoff durch eine ähnlich fortschrittliche Auslegung wie in den ENEA-Studien für Dampf- und Gas-Kühlung gegeben sind (1). Diese Arbeiten werden im Sommer 1970 abgeschlossen werden.

Der Einfluß verschiedener Kerndatensätze auf die wichtigsten integralen Parameter von 1.000 MWe und 300 MWe Reaktoren wurde im INR bestimmt. Ferner wurde die Genauigkeit des Berechnungsverfahrens für den Na-Void-Koeffizienten untersucht.

Für den Referenzentwurf der Na-Oxid-Studie wurden zweidimensionale stationäre und Abbrandrechnungen durchgeführt.

Der Start eines Natriumbrüters mit U 235 wurde im Hinblick auf das Brennstoffmanagement untersucht.

### 1282.2 Studien zum 300 MWe SNR-Prototyp

Mit dem für Konstruktion und Bau des Brüter-Prototyps SNR zuständigen Industrie-Konsortium werden Erfahrungen und Versuchsergebnisse ausgetauscht. In zahlreichen Besprechungen zur Abstimmung der Entwicklungsarbeiten wurde die endgültige Konzeption wesentlicher Konstruktionsmerkmale des SNR festgelegt. Dazu gehören insbesondere die Gestaltung des gesamten Primärkreislaufes im Hinblick auf die Vermeidung eines Kühlmittelverlustunfalls sowie die Core-Überwachungsinstrumentierung und die Störfallphilosophie (siehe auch 123 und 124 ).

In Zusammenarbeit von IRE, IAR, IMF und INR konnten die von der GfK zu klärenden Auslegungs- und Entwurfsfragen beim SNR für die termingerechte Abgabe des Angebots durch die Industrie gelöst werden.

Die theoretischen Arbeiten zur Auslegung und Konstruktion schneller Reaktoren brachten erhebliche Fortschritte bei der thermo- und hydrodynamischen Berechnung und Optimierung von Reaktorkernen. Erstmals konnte eine Beziehung zwischen der Wahrscheinlichkeit einer Überschreitung kritischer Temperaturen und der Größe der davon betroffenen Bereiche in Reaktorkernen mit Hilfe der statistischen Heißstellenanalyse aufgestellt werden. Erste Ergebnisse wurden veröffentlicht. Ein zusammenfassender Bericht erscheint 1970. Die Untersuchungen zur thermischen Stabilität und zur Berechnung des lokalen Wärmeübergangs in enggepackten asymmetrischen Brennstab-Bündeln führten zu Kriterien für die Abstände der Stützstellen in Brennelementen mit Gitterabstandshaltern und zu einer wesentlich genaueren Ermittlung der Temperaturfelder im Kühlmittel, Hüllrohr und Brennstoff.

Eine Analyse der mechanischen Beanspruchung und Verformung in schnellen Reaktorkernen durch das neue Phänomen des Strukturmaterialschwellens bei hohen Abbränden und Dosen, lieferte die Ansatzpunkte für neuartige konstruktive Lösungen beim Brennelement-Entwurf und für die Kernverspannung.

Für natriumbeheizte Zwangsdurchlauf-Dampferzeuger eines Brüterkraftwerks wurden in Zusammenarbeit mit der Firma Interatom vergleichende dynamische Untersuchungen durchgeführt<sup>(4)</sup>.

Auf folgenden Forschungsgebieten wurden die Arbeiten erfolgreich weitergeführt (vgl. Veröffentl. zu 123):

- Ortsabhängige Dynamik schneller Reaktoren unter Verwendung des Variationsprinzips.
- Festigkeitsauslegung von Brennstabhüllrohren mit und ohne Berücksichtigung der Stützwirkung des Brennstoffes.
- Verformung des Reaktorkerns durch Temperatur- und Strahlungseffekte.
- Festigkeitsberechnung von Rohrleitungssystemen.
- Spezielle Entwurfsarbeiten für Komponenten natriumgekühlter Brüter<sup>(2)</sup><sup>(3)</sup><sup>(5)</sup>.

Veröffentlichungen zu 1282:

- (1) D. Smidt, G. Schuster  
Die Vergleichsstudie der ENEA über schnelle Reaktoren.  
Atomwirtschaft 8, Aug. 1969, S. 410
- (2) M. Cramer  
Studie über einen 527 MWth natriumbeheizten Dampferzeuger und  
einen 98 MWth natriumbeheizten Zwischenüberhitzer  
(Bearbeitet von VKW)  
Externer Bericht 8/68-1
- (3) M. Cramer  
Studie über einen 1.250 MWth Na/Na-Zwischenwärmetauscher  
(Bearbeitet von Borsig AG, Berlin)  
Externer Bericht 8/68-2
- (4) E. Schönfeld  
Vergleichende dynamische Untersuchungen an einem natriumbeheizten  
Zwangsdurchlauf-Dampferzeuger für moderne Kernkraftwerke  
KFK-Bericht 955
- (5) M. Cramer, U. Hitzschke, G.F. Schultheiß  
Entwurf einer Reparaturvorrichtung für einen Na/Na-Zwischenwärme-  
tauscher  
Externer Bericht 8/69-5
- (6) D. Faude, J. Seetzen  
Sodium FBR Programme  
Nuclear Engineering, 13 (1968) 750-752
- (7) Institut für Reaktorentwicklung  
Zur Entwicklung schneller Brutreaktoren  
Beiträge zur Reaktortagung 1969 des Deutschen Atomforums vom 15. -  
18.4.1969 in Frankfurt  
KFK 964, EUR 4171 D, April 1969

1284. Allgemeine Wirtschaftlichkeitsstudien

Die Entwicklung zukunftsweisender Reaktorkonzepte schließt sorgfältige Analysen der Chancen ein, die diese Konzepte in den nächsten Jahrzehnten voraussichtlich auf dem Energiemarkt haben werden. Die Abschätzung der spezifischen Stromerzeugungskosten und die Strategie bezüglich der Spaltstoffversorgung sind im Zusammenhang mit Fragen des technischen Entwicklungspotentials der verschiedenen Kernkraftwerkstypen wesentlich.

Das Programmsystem zur "Berechnung der Anlagekosten von Kernkraftwerken im Projektstadium" wurde im Berichtszeitraum durch Aufnahme zahlreicher weiterer Kostenwerte in die Datenbank weiter vervollständigt. Über dieses System wurde auf der Reaktortagung in Frankfurt/M. 1969 erstmals vorgetragen (1).

In einer Reihe von Studien über voraussichtliche Brennstoffzykluskosten und Spaltstoffversorgung wurde die Bedeutung der Schnellbrüterentwicklung im Rahmen der Gesamtentwicklung der Energiewirtschaft in den kommenden Jahrzehnten abgeschätzt (2). Besonderes Gewicht bei diesen Untersuchungen hatten Kostenparameter (z.B. Abklingzeit) für den Transport bestrahlter Brennelemente (3) (4), die Abhängigkeit der Brennstoffzykluskosten vom Plutoniumpreis, die voraussichtlich erforderliche Isotopen-Trennarbeit, sowie die Erarbeitung eines umfassenden Optimierungskriteriums für Schnellbrüter.

Veröffentlichungen zu 1284 :

- (1) A. Müller, J. Schramm, J. Schmidtborn  
Berechnung der Anlagekosten von Kernkraftwerken im Projektstadium  
mit Hilfe elektronischer Datenverarbeitungsanlagen  
KFK-Bericht 954  
EUR 41760
- (2) P. Jansen  
Methoden zur Beurteilung von Kernkraftwerksentwicklungen, insbesondere  
der Schnellen Brüter  
KFK-Bericht 1066
- (3) D. Gupta, R. Kraemer, H. Hagen  
An Analysis of Cost Parameters for the Transport of Irradiated  
Fuels from Plutonium Breeders  
Proceedings of the Symposium on Economics of Nuclear Fuels, held  
at Gottwaldov, 27-31 May 1968  
IAEA, Vienna 1968, SM 105/26, 534-555
- (4) D. Gupta, P. Zühlke  
Effect of Cooling Time of Irradiated Fuels on Different Aspects of  
Fast Breeder Fuel Reprocessing Costs  
Proceedings of the Symposium in Economics of Nuclear Fuels,  
held at Gottwaldov, 27-31 May 1968  
IAEA, Vienna 1968, SM 105/27, 557-569
- (5) D. Gupta, K.D. Fischer, M. Stephany  
Expected Fuel Fabrication Costs in an Expanding Nuclear Economy  
Proceedings of the Symposium on Economics of Nuclear Fuels,  
held at Gottwaldov, 27-31 May 1968
- (6) D. Gupta, P. Jansen, R. Kraemer  
Comparison between Actual and Present-Worth Methods of Fuel Cycle  
Costs for Fast Breeders  
Proceedings of the Symposium on Economics of Nuclear Fuels,  
held at Gottwaldov, 27-31 May 1968  
IAEA, Vienna 1968, SM 105/25, 183-199

- (7) W. Häfele, D. Gupta, R. Kraemer, W. Gmelin  
Der geschlossene Brennstoffzyklus, seine technischen Komponenten,  
seine Kostenanalyse und seine Sicherheitsüberwachung  
KFK-Bericht 866
- (8) H. Krämer, J. Seetzen  
Mögliche Entwicklung einer künftigen Kernenergiewirtschaft in  
der Bundesrepublik Deutschland  
Studie, Dez. 1968
- (9) D. Gupta, P. Jansen, J. Seetzen  
Wirtschaftlichkeitsbetrachtungen zur Entwicklung Schneller Brut-  
reaktoren  
Chemie-Ingenieur-Technik, 40 (1968) 413-424
- (10) P. Jansen  
Die Bedeutung der Entwicklung Schneller Brutreaktoren  
Energie, 20 (1968) 219-223
- (11) J. Seetzen  
Wird Atomstrom nur durch verkappte Subventionen billig?  
Atomwirtschaft, 13 (1968) 534
- (12) J. Seetzen  
Kohlesubventionen und Kernenergieförderung - ein Gegensatz?  
Atomwirtschaft, 13 (1968) 586-587
- (13) J. Seetzen  
Technische und wirtschaftliche Probleme der zukünftigen Ent-  
wicklung von Leistungsreaktoren  
Energie und Technik, 20 (1968) 271-274
- (14) D. Faude, R. Hüper  
Die Schnellbrüter-Entwicklung in Deutschland  
ENERGIE Jahrg. 21 (1969), 287





130. Der Schnelle Hochfluß-Testreaktor FR 3 (M. Fischer, IRE)Zielsetzung und Konzeption

Die ersten orientierenden Arbeiten für einen schnellen Hochfluß-Testreaktor begannen im Kernforschungszentrum Karlsruhe gegen Ende 1968. Im September 1969 wurde diese einleitende Phase (Projekt-Definitionsphase) mit einem ersten Zwischenbericht (1) abgeschlossen. Die Schwerpunkte dieser Arbeit lagen in der Ermittlung der maßgebenden nuklearen und technischen Kenngrößen, der wesentlichen technischen Probleme und in der Erarbeitung der Zielsetzung eines schnellen Hochfluß-Testreaktors.

Auf dieser Basis wird bis Mitte 1970 ein erster konsistenter Reaktorentwurf im Rahmen einer bereits sehr konkreten Durchführbarkeits-Studie gemeinsam mit der Firma AEG-Telefunken und in enger Wechselwirkung mit der Firma Interatom durchgeführt. Neben der Erarbeitung der prinzipiellen technischen Lösungen ist es ein Ziel dieser Studie, die Investitions- und Betriebskosten für den FR 3 erstmals relativ detailliert und konsistent zu ermitteln. Auf dieser Grundlage wird dann das weitere Vorgehen überprüft werden.

Die Zielsetzung für den FR 3 gründet sich auf folgende Tatsachen: Das im Zentrum unserer Anstrengungen stehende Nahziel des Gesamtprojektes Schneller Brüter im Deutsch-Benelux-Rahmen ist eindeutig die Errichtung und der erfolgreiche Betrieb des natriumgekühlten Brüter-Prototyps SNR. Das heute noch mehr im Hintergrund stehende Fernziel der Schnellbrüter-Entwicklung sind aber schließlich die in den späteren 80-iger Jahren in möglichst großem Maßstab einzusetzenden sogenannten Hochleistungs-Brutreaktoren. Das zentrale Problem bei der Entwicklung dieser Hochleistungsbrüter mit Na- oder auch mit Gas-Kühlung ist der Entwurf von Brennelementen hoher Leistungsdichte (d.h. gleichzeitig mit hohem Neutronenfluß), die hohen Abbränden und Neutronendosen sowie hohen Temperaturen mit vorausberechenbarer Zuverlässigkeit standhalten.

In den heute existierenden sogenannten schnellen Performance-Test-Reaktoren, wie z.B. im amerikanischen EBR II, im englischen DFR und im französischen Rapsodie-Reaktor, ist die Entwicklung von solchen Hochleistungs-Brennelementen aus folgenden Gründen nur sehr beschränkt möglich:

1. Die meisten Bestrahlungsexperimente in diesen existierenden schnellen Testreaktoren können mangels geeigneter Testloops nur unzureichend instrumentiert werden.
2. Die Entwicklung von Brennelementen mit verschiedenen Kühlmitteln unter höheren Druck- und Temperaturbedingungen ist ebenfalls mangels geeigneter Testloops im schnellen Fluß kaum möglich.
3. Schließlich ist für eine echte Erprobung zukünftiger Hochleistungsbrennelemente in diesen Anlagen der schnelle Neutronenfluß bei weitem zu niedrig, insbesondere für eine gezielte Materialentwicklung für hohe, schnelle Neutronendosen, wie sie im Schnellen Brüter bei den angestrebten hohen Abbränden auftreten werden.

Der schnelle Hochfluß-Testreaktor FR 3 soll dagegen in entsprechenden Testloops das systematische und kontrollierte Aus-testen von Brennstoffen, Strukturmaterialien und ganzen Brennelementen, von Absorbermaterialien und Sicherheitsinstrumentierung unter den echten Bedingungen zukünftiger schneller Brutreaktoren mit verschiedenen Kühlmitteln ermöglichen.

### Auslegungsziele für die Entwicklung und den Entwurf des FR 3

1. Ein maximaler Neutronenfluß von  $1,5 \cdot 10^{16}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> sec zur
  - Struktur- und Hüllrohrmaterial-Entwicklung von schnellen Hochleistungs-Brutreaktoren
  - Entwicklung von Karbid- und Nitrid-Brennstoffen und Weiterentwicklung der Oxid-Brennstoffe
  - Bestrahlung und Entwicklung von ganzen Brennelementen
2. Die Bestrahlung von Hochtemperatur-Brennelementen gasgekühlter schneller Brüter und evtl. auch von dampfgekühlten schnellen Brütern in entsprechenden Testloops.
3. Große und flexible Bestrahlungsräume
4. Entwicklung einer exzessiven Testloop-Kontaktinstrumentierung
5. Instrumentierung der Treiberzone für Langzeit-Performance-Tests
6. Optimierung des Reaktorkerns für Testzwecke, und nicht zur Stromerzeugung; auch keine Verquickung mit prototypischen Zügen von Leistungsreaktoren
7. Eventuell ein Moderationsloop zur Transplutonium-Erzeugung

### Stand der wesentlichsten bisherigen Entwicklungsarbeiten

#### 1. Konzeption der Treiberzone

Bei der Auslegung der mit den Brennelementen bestückten Treiberzone ist zu unterscheiden zwischen Brennelementen für die erste Flußstufe mit einem maximalen Neutronenfluß von  $1,0 \cdot 10^{16}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> sec und der zweiten Stufe mit dem Zielfluß von  $1,5 \cdot 10^{16}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> sec (Abb. 1)

Es wurden bereits relativ detaillierte Untersuchungen durchgeführt, die eine tragfähige Basis für die nukleare und technische Bewertung der infrage kommenden Brennelementkonzepte abgeben. Die untersuchten Brennelemente haben jedoch einen sehr unterschiedlichen Entwicklungsstand.

Für die erste Flußstufe mit  $1,0 \cdot 10^{16}$  maximalem Fluß stellt ein Treiberbrennelement mit relativ dünnen Misch-oxyd-Brennstäben die geringste Extrapolation von bereits erprobten Schnellbrüter-Brennelementen dar. Es handelt sich hierbei um Brennstäbe mit einem Außendurchmesser von 4,7 mm, einem Pellet-Durchmesser von 4 mm und 3 oder 6 integralen Wendelrippen. Die maximale nominelle Stableistung beträgt 526 W/cm. Mit diesem Treiberbrennelement kann die erste Flußstufe bei einer Corehöhe von 80 cm mit einer thermischen Reaktorleistung von etwa 460 MW erzielt werden.

Die Probleme, die mit dünnen Brennstäben auftreten, sind im wesentlichen mechanischer Natur, d.h. insbesondere Biegeschwingungen und hydrodynamische und thermische Stabilitätsprobleme. Ein entsprechendes out-of-pile-Versuchsprogramm wurde eingeleitet. Beim Bestrahlungsverhalten sind keine ungünstigen Einflüsse zu erwarten. Mit der Bestrahlung derartiger Brennstäbe - die auch für verbesserte Oxid-Leistungsbrüter von besonderem Interesse sind - soll 1970 begonnen werden.

Das Flußziel von  $1,5 \cdot 10^{16}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> sec kann nicht unmittelbar erreicht werden, da entsprechende Treiberbrennelemente in den existierenden schnellen Bestrahlungsreaktoren nicht voll ausgetestet werden können. Dazu braucht man den FR 3 mit dem oxidischen Erstcore selbst als Instrument (vgl. erste Spalte in Abb. 1)

Die relativ größeren Aussichten zur Erzielung des Flußzieles haben zum gegenwärtigen Zeitpunkt Cermet-Brennstäbe mit normalen Gefügen und höherem Metallgehalt, wie z.B. das Cr-Cermet in der zweiten Spalte von Abb. 1. Bei solchen Cermets beträgt der Metall- oder Matrixanteil etwa 50 bis 60 %, der Brennstoff ist voll angereichert, d.h. ohne Uran 238, was sich beim schnellen Testreaktor günstig auswirkt. Der Zielfluß kann dann im großen FR-3-Zentralloop bei einer Corehöhe von 80 cm mit einer Leistung von etwa 660 MW<sub>th</sub> erreicht werden.

Eine Art Back-up-Lösung für den hohen Fluß stellt ein Treiberbrennelement mit Ringspalt-Brennstäben dar, wie sie im Euratom-Transurane-Institut im Kernforschungszentrum Karlsruhe entwickelt werden, und die ebenfalls für den Oxid-Leistungsbrüter von besonderem Interesse sind (vgl. dritte Spalte in Abb. 1).

Dagegen hat eine karbidische Treiberzone im FR 3 praktisch keine Chance, vergl. die vierte Spalte in Abb. 1. Trotz der angesetzten hohen Leistungsdichte im Karbidbrennstoff von 1300 W/cm bei 5 mm Pellet-Durchmesser ergibt sich für das Flußziel von  $1,5 \cdot 10^{16}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> sec eine unrealistisch hohe Reaktorleistung von knapp 1000 MW<sub>th</sub>.

## 2. Auslegung der Bestrahlungseinrichtungen

Zu den wichtigsten Auslegungszielen des FR 3 gehören die Bestrahlungseinrichtungen. Den Untersuchungen wurden vier große Testloops und drei Test-Rigs zugrunde gelegt. (Abb. 2). Der große zentrale Loopraum kann sowohl natrium- als auch gasgekühlte Bestrahlungseinrichtungen mit Außendurchmessern bis zu 260 mm und mit bis zu 24 MW Loopleistung aufnehmen und stellt damit Bestrahlungsraum für ganze Brennelemente zukünftiger Brutreaktoren zur Verfügung. Jedes der drei peripheren Testloops kann mit bis zu 8 MW belastet werden.

Für die Bestrahlungseinrichtungen des FR 3 wurden bereits detaillierte Entwürfe durchgeführt. In Abb. 3 ist das FR 3-Zentralloop mit Helium-Kühlung schematisch dargestellt, das natriumgekühlte Zentralloop ist ganz ähnlich aufgebaut. In koaxialer Bauweise stehen die Loops leicht auswechselbar in der Kerntragplatte. Die Fußteile der Loops wurden so gestaltet, daß anstelle des Loops auch Treiberbrennelemente abgesetzt werden können. Das doppelwandige Druckrohr wird separat gekühlt. Zum Auswechseln des Testobjekts oder für eine Zwischeninspektion wird der Testeinsatz mit dem Testobjekt in die Wechselmaschine gezogen.

Die Hauptprobleme bei der Entwicklung der Testloops liegen:

- 1) In den sehr beengten Raumverhältnissen über dem Reaktordeckel, da jeder Loopkopf mit einer sekundären Sicherheits-hülle umgeben werden muß;
- 2) in den inneren Spannungen der Loop-Trennröhre infolge  $\gamma$ -Heizung und des dadurch hervorgerufenen differentiellen Strukturmaterialschwellens;
- 3) In der Notwendigkeit, die In-core-Bestrahlungseinrichtung relativ häufig und leicht auszuwechseln (aufgrund der hohen schnellen Neutronendosis) und
- 4) im Verband mit der Treiberzone und den Regel- und Abschaltstäben.

### 3. Konstruktion der Brennelemente und des Kernverbandes

Für schnelle Reaktorkerne mit maximalen Neutronendosen von  $\geq 10^{23}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> ( $\geq 0,1$  MeV) gibt es zurzeit noch keine bewährte Konstruktion.

Zu dem thermischen Ausbiegen der Brennelemente, das durch im Prinzip erprobte Maßnahmen zu beherrschen ist, tritt nämlich das in den letzten zwei Jahren stark beachtete und in seinem Ausmaß noch nicht voll übersehbare Schwellen der Stahlstruktur im Reaktorkern durch hohe schnelle Neutronendosen.

Insbesondere das differentielle Schwellen der Brennelemente durch Fluß- und Temperaturgradienten erfordert noch sehr eingehende Untersuchungen im Hinblick auf eine zuverlässige und sichere Konstruktion des Reaktorkerns.

Die Auswirkungen dieses neuartigen Phänomens wurden am Beispiel eines konventionellen Brennelementes mit einem durchgehenden hexagonalen Brennelementkasten untersucht, aber es wurden auch neuartige Konstruktionen entwickelt, die trotz Strukturmaterialschwellens hohe Abbrände und Neutronendosen erlauben sollen.

In Abb. 4 ist ein solches Brennelement schematisch dargestellt. Es ist dadurch gekennzeichnet, daß der Brennelementkasten in einem ganz bestimmten Bereich mehrfach derart unterteilt ist, daß die einzelnen Teilstücke um geringe Beträge gegeneinander kippen können. Dadurch ist der Brennelementkasten in der Lage, in diesem ganz bestimmten kritischen Bereich der nun vom "weichen" Brennstabbündel bestimmten Biegelinie mit sehr geringem Kraftaufwand zu folgen. Die Länge der einzelnen Teilstücke ist dabei auf die Krümmung der Biegelinie abzustimmen.

Die Lage der beiden Verspannungsebenen wurde so gewählt, daß sie sich einerseits möglichst nahe am Core befinden - um nämlich die Ausbiegungen im Corebereich möglichst klein zu halten - andererseits aber dem integralen Schwellen in nur möglichst geringem Maße ausgesetzt sind.

In Abb. 5 sind einige Ergebnisse der Untersuchungen dargestellt: auf der linken Seite für das eben erläuterte geteilte Brennelement, rechts ein konventionelles Brennelement mit durchgehendem Kasten. Gezeigt sind die Biegelinien der auf den Corebereich entfallenden Brennelementreihen. Zu sehen sind jeweils nur die Brennelementachsen, d.h. die Brennelemente sind auf ihre Achsen verdichtet zu denken. Der Abstand zwischen diesen Brennelementachsen stellt den Spalt zwischen den Brennelementen dar; das sind im frischen und kalten Zustand 3 mm. Zu beachten ist die Maßstabverzerrung in horizontaler Richtung um den Faktor 50. Die dargestellten Biegelinien gelten für eine Standzeit von 210 Volllasttagen und für die herrschenden Betriebstemperaturen: Eintrittstemperatur in den Reaktorkern  $200^{\circ}\text{C}$ , mittlere Austrittstemperatur  $500^{\circ}\text{C}$ .

Wie aus dem Verlauf der Biegelinien zu entnehmen ist, kommen diese selbst nicht zur gegenseitigen Anlage. Der Verlauf der Biegelinien allein ist jedoch noch nicht das Kriterium für eine Anlage der Brennelemente untereinander im Core, da auch die Vergrößerung des Brennelementquerschnitts infolge des integralen Schwellens und der Temperaturdehnung berücksichtigt werden muß. Diese Vergrößerung des Brennelementquerschnitts ist schraffiert dargestellt.

Auch unter Berücksichtigung dieses Effekts tritt in beiden Fällen praktisch keine gegenseitige Berührung ein, obwohl beim konventionellen Brennelement nahezu kein Spielraum mehr vorhanden ist.

Der entscheidende Unterschied zwischen den beiden Brennelementkonstruktionen liegt in den aufzubringenden Kräften in den Verspannungsebenen und der dadurch hervorgerufenen Beanspruchung der Brennelementkästen.

Aus den bisherigen Untersuchungen kann gefolgert werden, daß das Konzept eines biegeweichen Brennelements im Hinblick auf Biege- und Druckbeanspruchung durch die Kernverspannung auch bis zu hohen Abbränden und Neutronendosen realisierbar erscheint, während ein Core-Verband mit konventionellen Brennelementen in der Standzeit und damit im Abbrand sehr starken Beschränkungen unterworfen sein dürfte. Dies scheint für alle schnellen Reaktoren mit hohem Neutronenfluß relevant zu sein.

#### 4. Räumliche Anordnung von Komponenten

Beim FR 3-Reaktorentwurf ergeben sich, wie schon erwähnt, schwierige Raumprobleme über dem Reaktordeckel, vergl. Abb. 6. Bedingt durch das sehr kompakte Core, müssen hier die Köpfe der Testloops und Testtrigs, die Antriebe der Regel- und Abschaltssysteme, die Komponenten der Treiber-Instrumentierung und der Beschickungssysteme auf kleinstem Raum untergebracht werden.

Es scheint sich jedoch eine gute Lösung abzuzeichnen:

- 1) durch die Anordnung von zwei Montage- und Beschickungsebenen über dem Reaktordeckel und
- 2) durch das Einfahren des Trimmregelsystems in den Reaktor-kern von unten über Traversen, die aber trotzdem von oben mit weiter außenliegenden Antrieben bewegt werden, wo genügend Platz ist. Dadurch bleibt der Reaktorbehälter unterhalb der Kühlmittel-Austrittsstutzen integral erhalten.



### Entwicklungsphasen für den FR 3

Bis zum Baubeschluß sind für den FR 3 die folgenden Entwicklungsphasen vorgesehen:

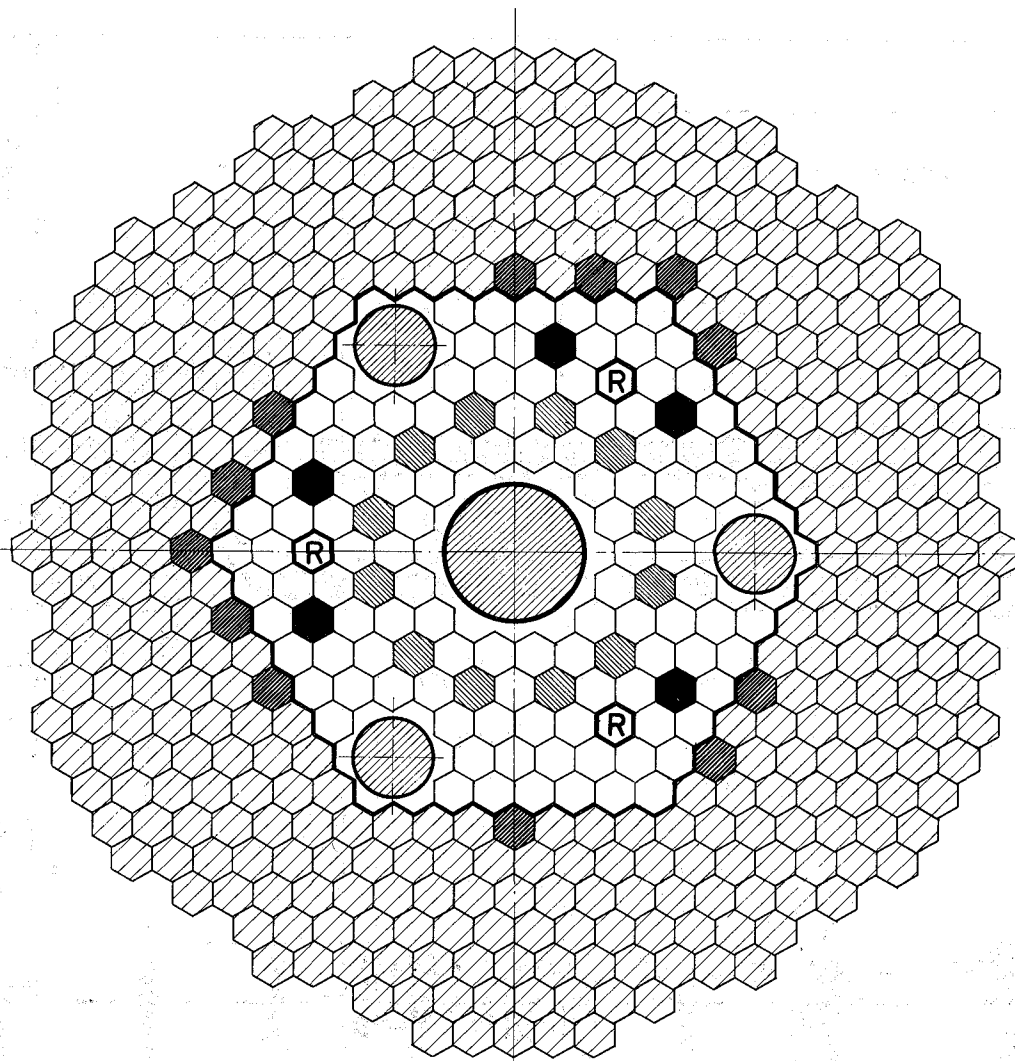
1. Orientierende Studie bis Mitte 1969 (wurde mit dem ersten FR 3-Zwischenbericht abgeschlossen)
2. Durchführbarkeitsstudie (inkl. einer ersten detaillierten Ermittlung der FR 3-Investitions- und Betriebskosten) gemeinsam mit AEG-Telefunken bis Mitte 1970
3. Vorlage der Durchführbarkeitsstudie bei der Deutschen Atomkommission  
Specialist-Meeting mit allen daran interessierten Gruppen
4. Referenzentwurf bis Ende 1971, unter starker Mitarbeit der Industrie und unter möglichst breiter internationaler Beteiligung
5. Erstellung der baureifen Unterlagen durch ein Industriekonsortium bis Ende 1973, auf der breiten Basis des Referenzentwurfes, der Brüter-Prototypverfahren und der vorhandenen großtechnischen Natrium-Versuchsstände
6. Baubeschluß 1974/75

### Veröffentlichung:

- (1) Schneller Hochfluß-Testreaktor FR 3
  1. Zwischenbericht mit Beiträgen aus dem IRE, INR, IAR u. IMF  
KFK-Ext.-Bericht 8/69-7

Abb.1: Kenngrößen des Schnellen Hochfluß-Testreaktors FR3

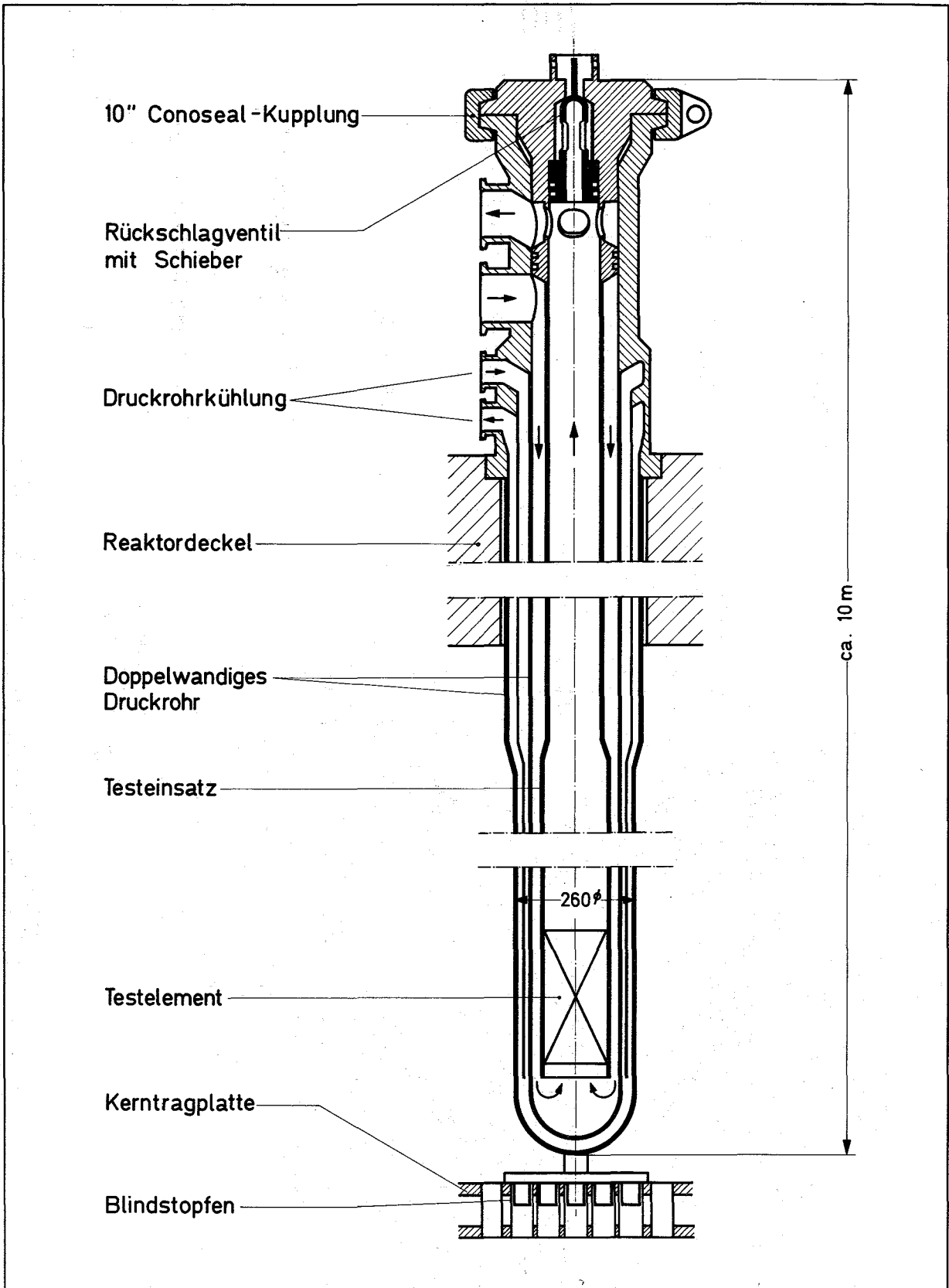
	1. Stufe	2. Stufe			
	$\phi_{\max}=1,0 \cdot 10^{16}$				
Treiber - BE	Oxid - Stab	Cr. Cermet- Stab	Ringspalt- Stab	Cermet- <u>Platte</u>	Karbid- Stab
Stabdurchm. } mm Plattendicke }	4,7	5,5	5,5	1,0	5,5
Kühlmittel %	36	34,7	32,6	45,5	45
Brennstoff %	39,4	11,3	24,4	11,7	31
Stableistung $\frac{W}{cm}$	526	1000	997		1300
Wärmefluß $\frac{W}{cm^2}$				261	
Anreicherung %	31,6	77,5	50,6	77,5	22
Max. Literleistg. $\frac{MW}{l}$	1,65	1,68	2,14	1,87	2,02
Angen. max. Abbrand $\frac{MWd}{to Br. St.}$	$10^5$	$2,2 \cdot 10^5$	$10^5$	$1,8 \cdot 10^5$	$10^5$
Reaktorleistg. MWth	466	663	631	673	980
Krit. Masse kg	472	400	504	440	609
Standzeit d	216	131	90	110	200



- Testloop
- 1.Abschaltsystem
- ▨ 2.Abschaltsystem
- ▧ Trimm-Regelsystem
- Ⓜ Test-Rig
- Treiber-Brennelement
- ▨ Reflektor(Brutmantel)

50 cm

Abb.2: **FR3-Corequerschnitt**



GfK Karlsruhe IRE	<b>Abb.3: Zentrales Testloop</b>	FR 3
		102 - 1970

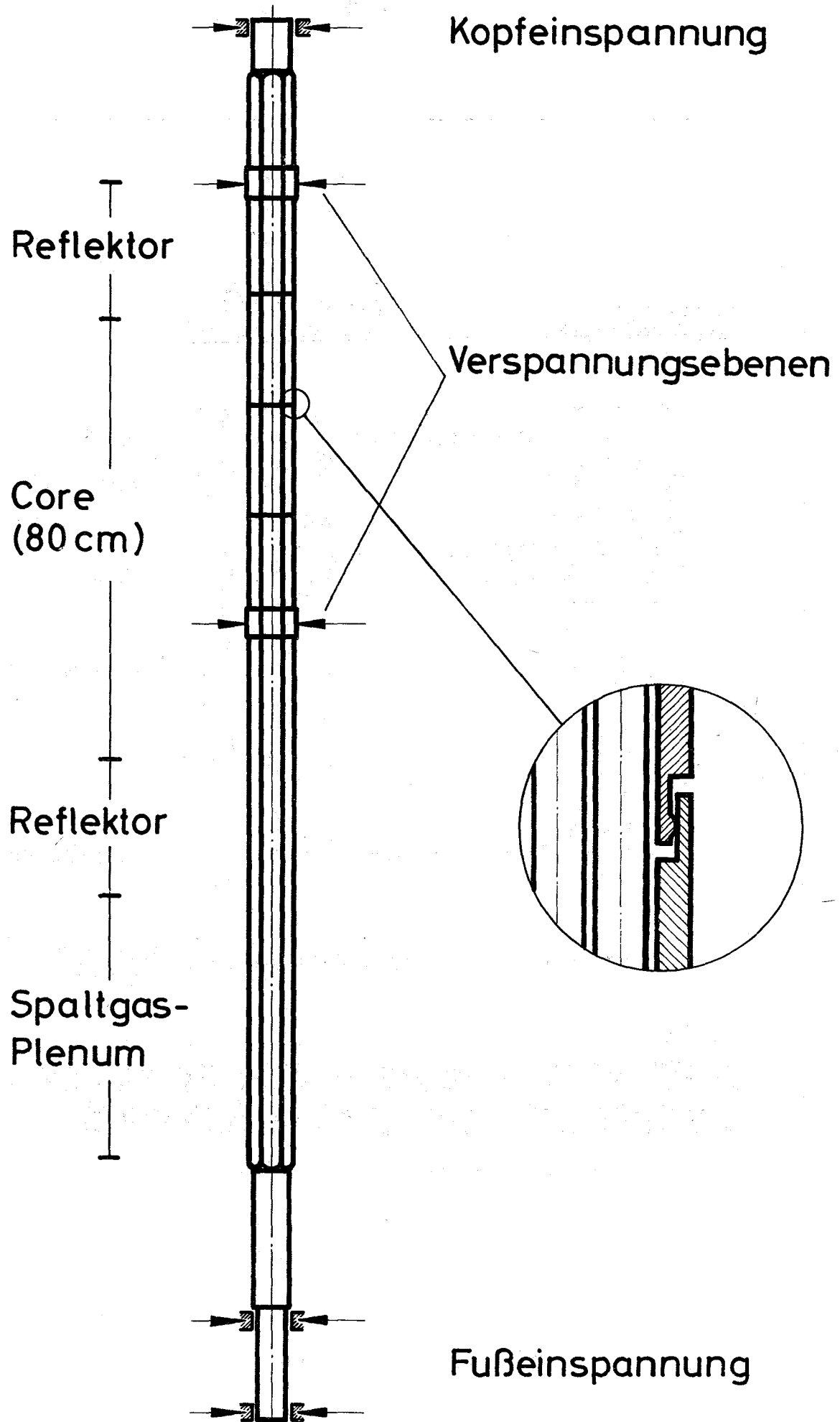


Abb. 4 :

Prinzip eines geteilten Brennelementes

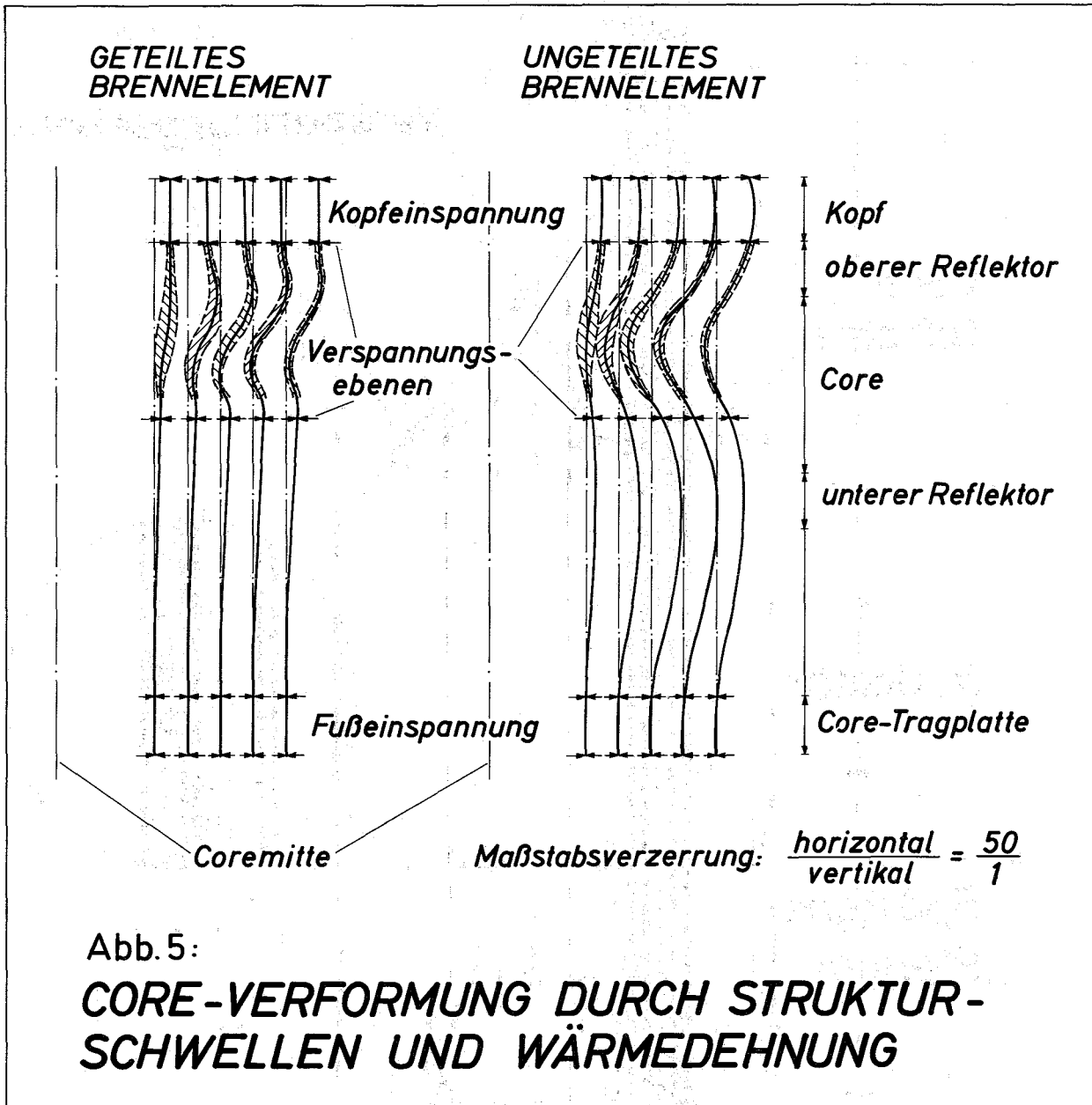
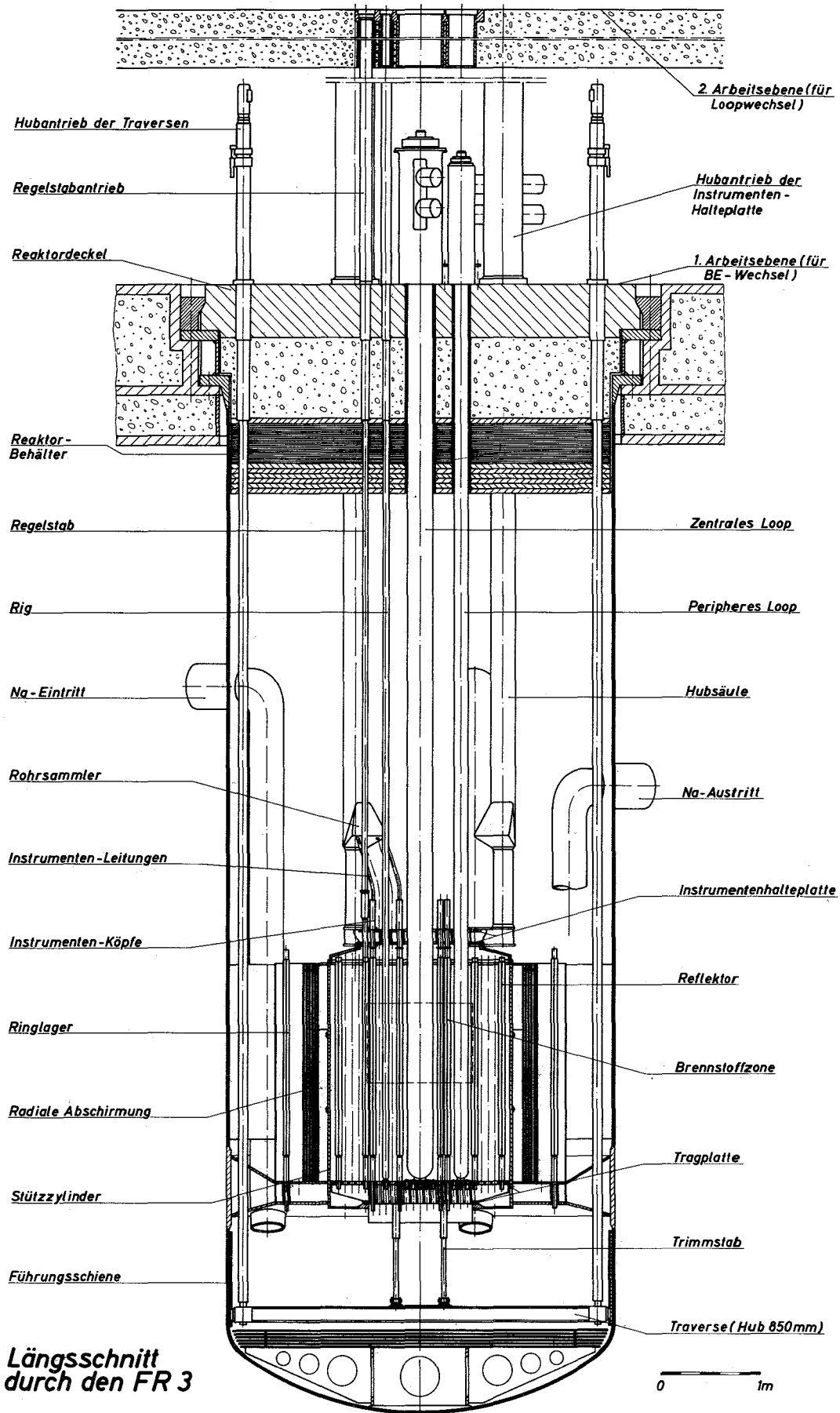


Abb.5:

**CORE-VERFORMUNG DURCH STRUKTURSCHWELLEN UND WÄRMEDEHNUNG**



Längsschnitt durch den FR 3

Abb. 6:

The first part of the document discusses the importance of maintaining accurate records of all transactions. It emphasizes that every entry, no matter how small, should be recorded to ensure the integrity of the financial statements. This includes not only sales and purchases but also expenses and income.

In the second section, the author details the various methods used to collect and analyze data. This involves a combination of manual entry and the use of specialized software to track trends and identify anomalies. The goal is to provide a clear and concise overview of the company's financial health.

The third part of the report focuses on the challenges faced during the data collection process. It highlights the need for consistent data entry and the importance of regular audits to catch any errors early on. The author also discusses the impact of external factors, such as market fluctuations, on the company's performance.

Finally, the document concludes with a summary of the findings and recommendations for future improvements. It suggests that implementing more robust data management systems and increasing staff training could lead to more accurate and timely financial reporting. The author expresses confidence in the company's ability to overcome these challenges and achieve long-term success.