

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM**

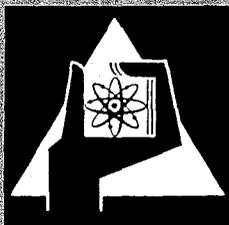
**KARLSRUHE**

Mai 1971

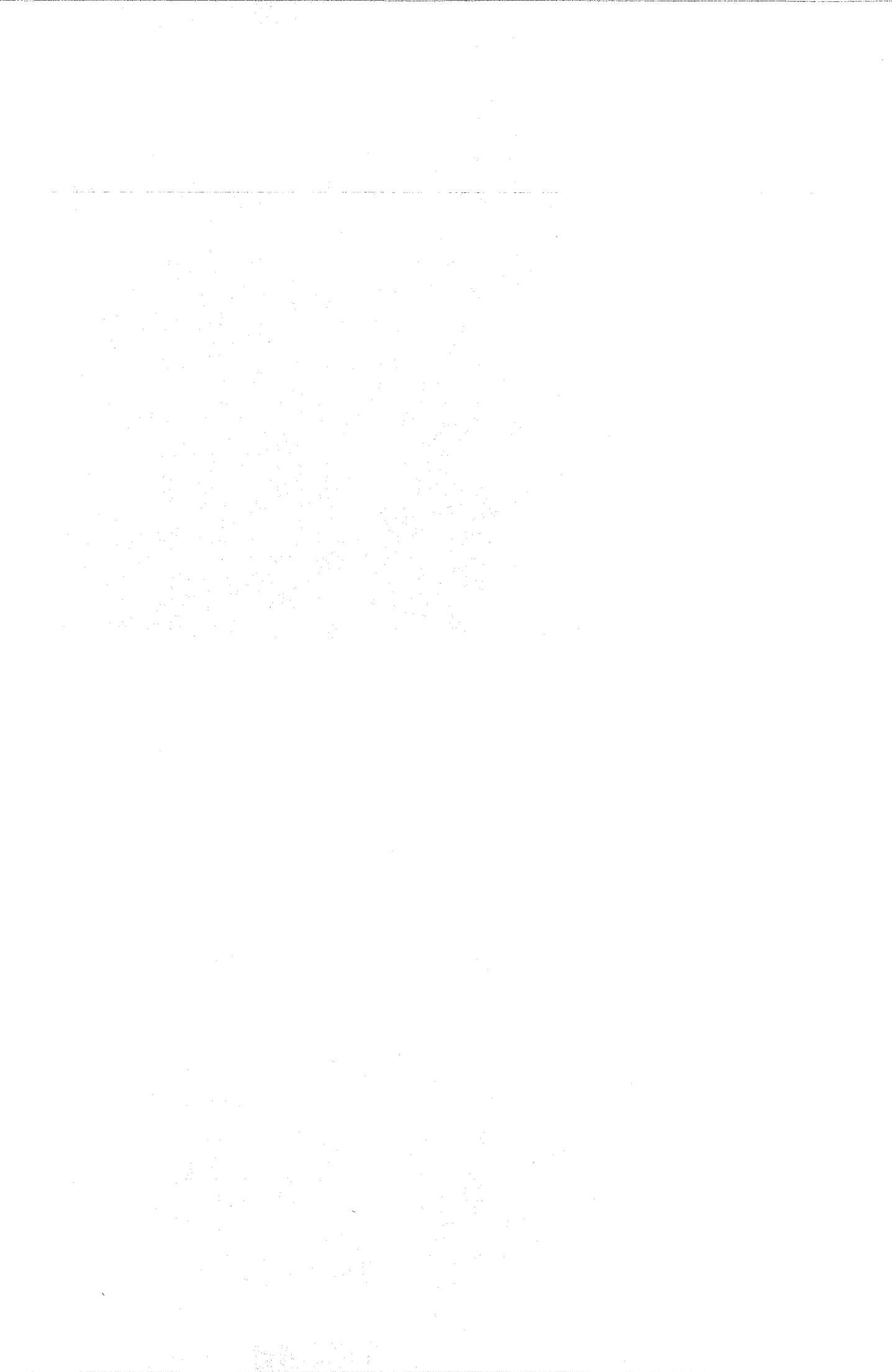
KFK 1271/1  
EUR 4579 d

Projekt Schneller Brüter

**1. VIERTELJAHRESBERICHT 1971**



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Mai 1971

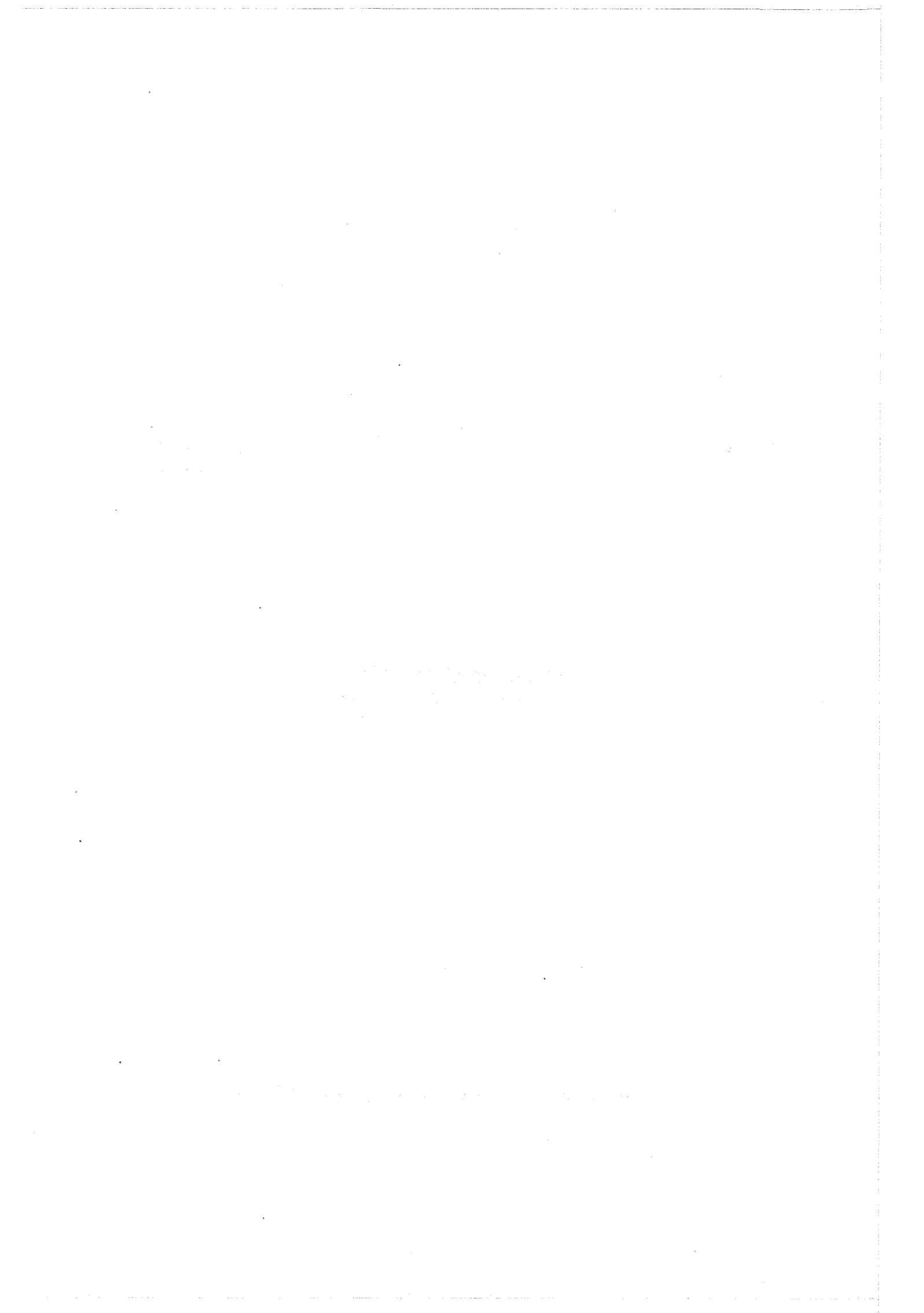
KFK 1271/1

EUR 4579 d

Projekt Schneller Brüter

1. Vierteljahresbericht 1971

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe



Der vorliegende 1. Vierteljahresbericht 1971 beschreibt Arbeiten am Projekt Schneller Brüter, die von Instituten der GfK in Karlsruhe durchgeführt worden sind. Darüber hinaus enthält der Bericht Beiträge von Industriefirmen und von den deutschen, belgischen und niederländischen Kernforschungszentren, soweit sie am Koordinierten Karbidprogramm im Rahmen des Basisprogramms Schneller Brüter mitwirken.

Dieser Bericht wurde zusammengestellt von R. Hüper.



## Inhaltsübersicht <sup>+)</sup>

- 112. Brennstabentwicklung
- 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. Entwurfsstudien für gas- und dampfgekühlte Brutreaktoren
- 129. Entwurfsstudien zu natriumgekühlten Brutreaktoren

<sup>+)</sup>  Teilprojekte mit den zugehörigen PSB-Basisprogramm-Nummern.  
Die Seiten sind innerhalb jedes Teilprojektes durchnummeriert.  
Das bisherige Teilprojekt 128 ist nunmehr in die Teilprojekte 128  
und 129 aufgeteilt worden.  
Das bisherige Teilprojekt 111 ist nunmehr in Teilprojekt 112 enthalten.

1. The first part of the document discusses the importance of maintaining accurate records of all transactions. This is essential for ensuring the integrity of the financial data and for providing a clear audit trail. The records should be kept up-to-date and should be easily accessible to all relevant parties.

2. The second part of the document outlines the procedures for handling any discrepancies or errors that may arise. It is important to identify the source of the error as soon as possible and to take appropriate steps to correct it. This may involve reviewing the original records and consulting with the relevant staff members.

3. The third part of the document describes the process for reconciling the accounts. This involves comparing the internal records with the external statements and ensuring that they match. Any differences should be investigated and explained. This process is crucial for ensuring the accuracy of the financial statements.

4. The fourth part of the document discusses the importance of regular reviews and audits. These are necessary to ensure that the financial system is operating effectively and that there are no significant risks or weaknesses. Regular audits can also help to identify areas for improvement and to ensure compliance with relevant regulations.

5. The fifth part of the document outlines the responsibilities of the various staff members involved in the financial process. It is important that each person understands their role and is held accountable for their actions. This helps to ensure that the financial system is run efficiently and effectively.

6. The sixth part of the document discusses the importance of communication and collaboration between different departments. This is essential for ensuring that the financial system is integrated with the other parts of the organization and that there are no silos or information gaps. Regular communication and collaboration can help to identify and resolve any issues that may arise.

112 BRENNSTABENTWICKLUNG1120 BrennstabmodelltheorieEntwicklung des SATURN 1 - Rechenprogrammes

(F. Depisch, AEG; H. Elbel, H. Kämpf, IMF)

Es wurden Anwendungsfälle des Programmes SATURN 1 berechnet, u. a. die Leistungsabhängigkeit der Temperaturverteilung von SEFOR-Brennstäben (1,2). Bei diesen Stäben sind während ihrer gesamten Lebensdauer und bei allen Leistungen Spalte zwischen Brennstoff und Hülle vorhanden. Die berechnete lineare Abhängigkeit zwischen Maximaltemperatur und Stabileistung (Abb. 1) stand in guter Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen und zeigt daß die in SATURN 1 integrierten Modelle bezüglich des Wärmedurchganges durch den Spalt und der thermischen Ausdehnung zutreffend sind. Weiterhin ergab sich für den Fall des in Kontakt mit der Hülle stehenden schwellenden und kriechenden Brennstoffes, daß oberhalb ca. 1150 °C im Brennstoff ein hydrostatischer Spannungszustand nach Maßgabe des Gasdruckes vorliegt (Abb. 5 und 6). Dieses Verhalten wird auch aus dem Abbau der thermischen Spannungen des freistehenden Brennstoffes deutlich (Abb. 7 und 8). Dies führte zur Einführung eines 2-Zonen-Brennstoff-Modells: Nur die äußere relativ schlecht kriechende Zone wird spannungstheoretisch berechnet, die Verformungen in der inneren unter hydrostatischem Druck stehenden Zone werden spannungsfrei berechnet. Die Grenztemperatur hängt stark vom Kriechgesetz ab.

Eine der Aufgaben des SATURN 1-Rechenprogrammes besteht darin, gezielte experimentelle Untersuchungen zu stimulieren, deren Ergebnisse für die modelltheoretische Behandlung des Brennstabverhaltens und damit für die Brennstabauslegung von besonderer Bedeutung sind. In dieser Hinsicht haben die bisher mit SATURN 1 durchgeführten Rechnungen folgendes ergeben:

- a) Das In-pile-Kriechen des Brennstoffes hat praktische Bedeutung nur bis zu der Temperatur, bei der die exponentielle Zunahme des Kriechens bestimmend einsetzt.

- b) Das Schwellen des Brennstoffes unter hydrostatischem Druck für Temperaturen, die höher als die unter a) definierten sind, sollte genauer untersucht werden.
- c) Für das detaillierte Studium des Rißverhaltens, das für das Brennstabverhalten von besonderer Bedeutung ist, liegen praktisch keine experimentellen Daten vor.
- d) Die Kinetik der Zentralkanalbildung in Abhängigkeit einschlägiger Parameter sollte genau studiert werden.  
In den Fällen c) und d) könnten Out-of-pile-Versuche etwa mit Hilfe eines direkt elektrisch beheizten Brennstabes (Elektropin) weiterführen.

SATURN 1 wird weiterhin ausgetestet, insbesondere im Hinblick auf die Verkürzung der Rechenzeiten bei höheren Brennstoff-Kriechgeschwindigkeiten, auf die Beherrschung von eventuell auftretenden Divergenzen und die Behandlung des Wechsels von der Phase des freistehenden Brennstoffes und der freistehenden Hülle in die des Kontaktes.

#### Veröffentlichungen zu 1120

- (1) K. Kummerer, F. Depisch, H. Elbel, H. Kämpf  
"The SATURN Codes and Material Data Evaluation"  
Conference on Fast Fuel Element Technology, New Orleans, April 1971
- (2) F. Depisch, H. Elbel, H. Kämpf  
"Die Behandlung des mechanischen und thermischen Verhaltens von Brennstäben in SATURN 1"  
First International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Berlin, Sept. 1971

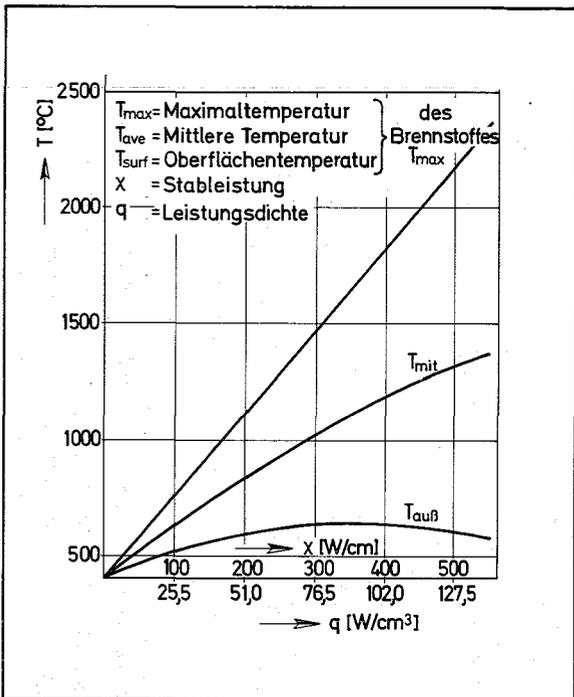


Abb. 1 Maximal-, Mittlere-, und Oberflächentemperatur des Brennstoffes in Abhängigkeit der Stableistung für einen SEFOR-Brennstab

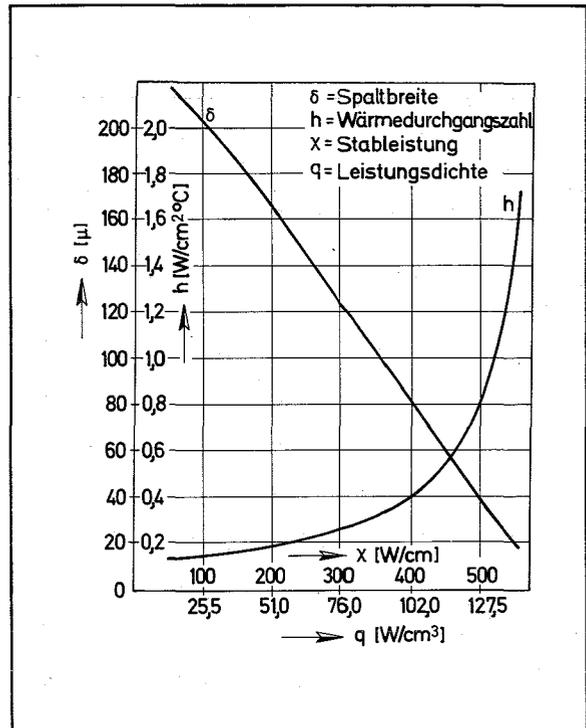


Abb. 2 Wärmedurchgangszahl und Spaltbreite in Abhängigkeit der Stableistung für einen SEFOR - Brennstab

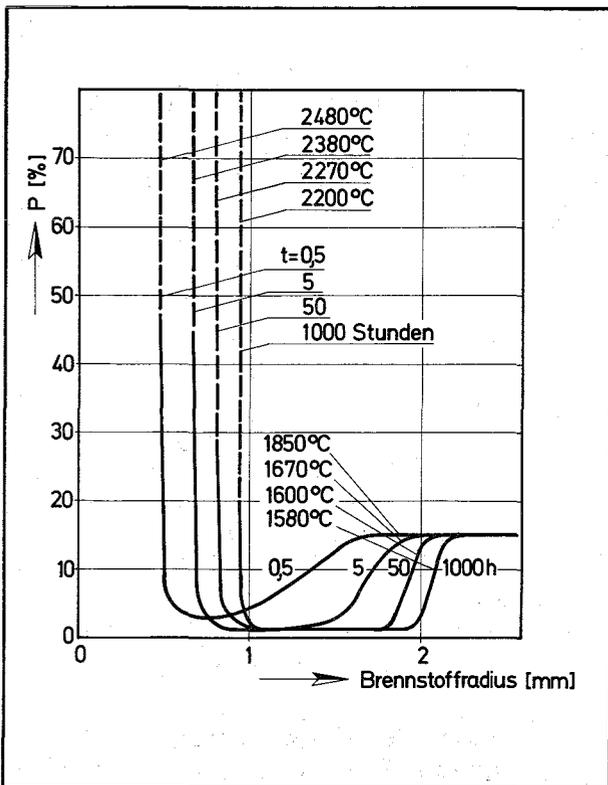


Abb. 3 Radiale Porositätsverteilung auf Grund der Porenwanderung mit der Betriebszeit als Parameter

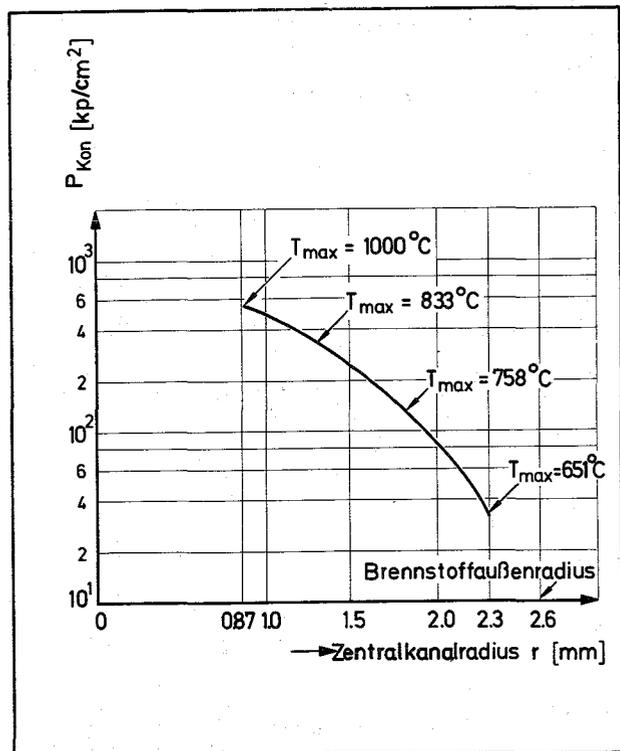


Abb. 4 Schwellender und kriechender Brennstoff in Kontakt mit einer nicht kriechfähig. Hülle  $K=0$ . Abhängigk. des Sättigungskont.druckes v. Zentralkanalrad.

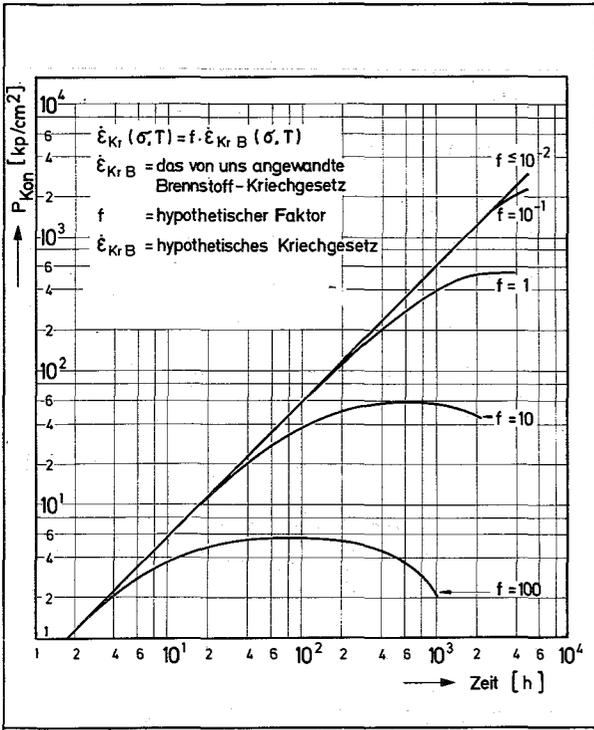
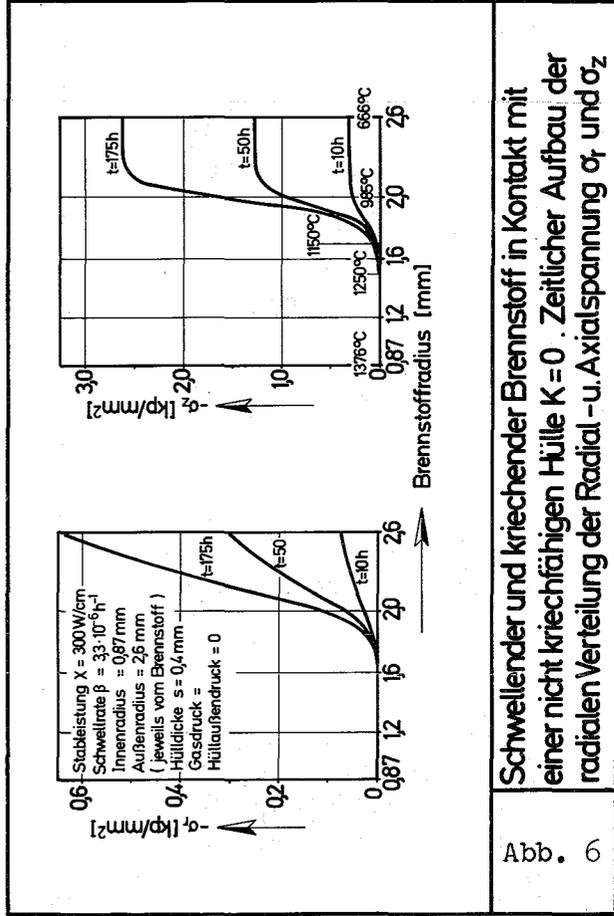


Abb. 5 Schwellender und kriechender Brennstoff in Kontakt mit einer nicht kriechfähigen Hülle  $K=0$ . Zeitlicher Verlauf des Kontaktdruckes in Abhängigkeit des Brennstoff-Kriechgesetzes



Schwellender und kriechender Brennstoff in Kontakt mit einer nicht kriechfähigen Hülle  $K=0$ . Zeitlicher Aufbau der radialen Verteilung der Radial- u. Axialspannung  $\sigma_r$  und  $\sigma_z$

Abb. 6

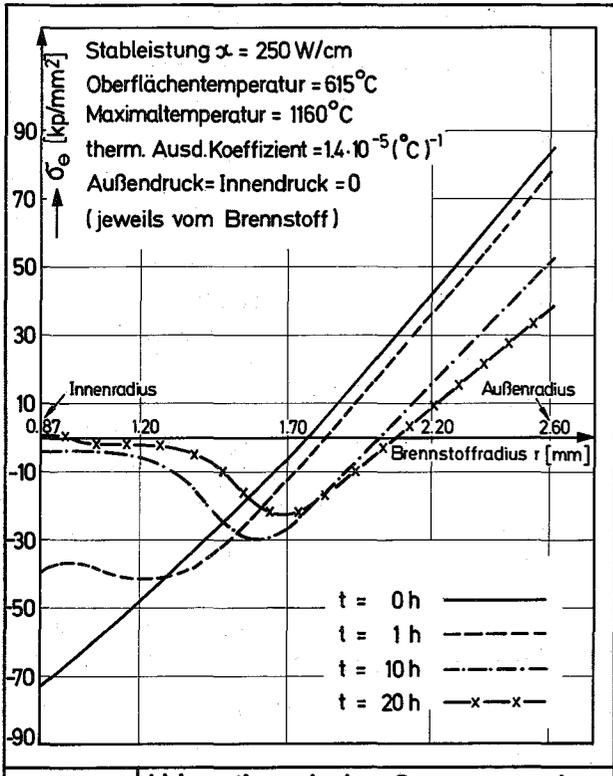


Abb. 7 Abbau thermischer Spannungen im unrestrained Brennstoff. Zeitliche Ver\u00e4nderung der radialen Verteilung der Tangentialspannungen  $\sigma_\theta$ .

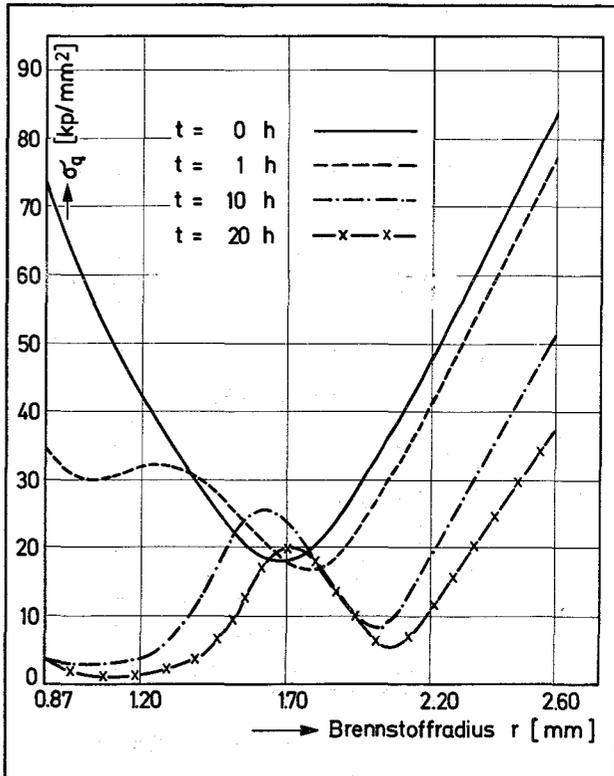


Abb. 8 Abbau therm. Spannungen im unrestrained Brennstoff. Zeitliche Ver\u00e4nderung der rad. Verteil. der Vergleichsspann.  $\sigma_q$ .

1121 Oxidischer Brennstoff - Laboruntersuchungen1121.1 Technologische Eigenschaften von MischoxidKriechverhalten von  $UO_2$ - $PuO_2$ -Kernbrennstoffen

(W. Laub, D. Vollath, IMF)

Wertet man die Kriechversuche nach einem Potenzgesetz aus und benützt zur Beschreibung der Temperaturabhängigkeit die Boltzmann-Beziehung und extrapoliert die Werte der Spannungsexponenten bzw. Aktivierungsenergien gegen sehr kleine und sehr große Spannungen, so findet man als Randwerte im Mittel die Spannungsexponenten  $1 \pm 0,15$  und  $4,5 \pm 0,15$  sowie die Aktivierungsenergie  $113 \pm 6$  und  $175 \pm 8$  kcal/mol. Eine Beschreibung der Spannungsabhängigkeit des Kriechens von  $UO_2$  und  $UO_2$ - $PuO_2$  ist durch Kombination zweier Kriechmechanismen mit den Spannungsexponenten 1 und 4,5 bekannt.

Eine Aktivierungsenergie von 175 kcal/mol erscheint sehr hoch. Sie wird aber verständlich, wenn man sich die Theorie der Kationendiffusion in  $UO_2$  ansieht [1,2]. Der wahrscheinlichste Wert für die Aktivierungsenergie der Selbstdiffusion von stöchiometrischem  $UO_2$  ist  $110 \pm 7$  kcal/mol [1,3]. Im unterstöchiometrischen Uranoxid sollte diese Aktivierungsenergie um die Bildungsenergie eines Sauerstoff-Frenkeldefektes, das sind etwa  $70 \pm 5$  kcal/mol größer sein [1,3]. Für unterstöchiometrisches  $UO_2$  wäre demnach eine Aktivierungsenergie für die Selbstdiffusion des Urans von etwa  $180 \pm 12$  kcal/mol zu erwarten. Die Aktivierungsenergie der Diffusion von Pu in stöchiometrischem  $UO_2$  ist  $97 \pm 4$  kcal/mol [4]. Demnach wäre für die Pu-Diffusion im unterstöchiometrischem  $UO_2$  ein Wert von etwa  $167 \pm 9$  kcal/mol zu erwarten. Schwieriger ist es, eine physikalische Erklärung für die Aktivierungsenergie des Kriechterms mit der linearen Spannungsabhängigkeit zu finden. Bohaboy et al. [5] deuten diesen Wert als Aktivierungsenergie für die Korngrenzendiffusion. Die wenigen Messungen, die für die Korngrenzendiffusion in  $UO_2$  vorliegen, geben Aktivierungsenergien von 40 - 60 kcal/mol [6,7]. Die gefundene Aktivierungsenergie ließe sich dann erklären, wenn man für die Korngrenzendiffusion die gleichen Gesetzmäßigkeiten wie für die Selbstdiffusion annehmen darf.

Der Spannungsexponent von 1 deutet in Verbindung mit der niederen Aktivierungsenergie und den aufgerissenen Korngrenzen in den verformten Proben auf einen Korngrenzen-Diffusionsmechanismus hin. Verformung über Korngrenzenversetzungen können hier nicht vorliegen, da bei einem solchen Mechanismus die Aktivierungsenergie der Selbstdiffusion und auch ein höherer Spannungsexponent zu erwarten wären.

Der Spannungsexponent 4,5 weist auf einen Verformungsmechanismus hin, an dem Versetzungen beteiligt sind. Aufgrund der Aktivierungsenergie muß man annehmen, daß es sich um Versetzungsklettern handelt. Der gefundene Spannungsexponent von 4,5 stimmt mit dem von Weertmann [8] theoretisch ermittelten Spannungsexponenten für das Kriechen durch Versetzungsklettern überein, wobei Weertmann die Bildung immobiliser Versetzungen ausgeschlossen hat.

#### Literatur

- [1] H. Matzke, J. Nucl. Mat. 30 (1969) 26
- [2] T.G. Langdon, J. Nucl. Mat. 38 (1971) 88
- [3] H. Matzke, AECL 2585 (1966)
- [4] R. Lindner, F. Schmitz, Radiochem. Acta 1 (1963) 218
- [5] P. E. Bohaboy, R.R. Asamoto, A.E. Conti, GEAP 10054 (1969)
- [6] S. Yajima, H. Furuya, T. Hirai, J. Nucl. Mat. 20 (1966) 162
- [7] J.F. Marin, priv. Mitteilung an H. Matzke (1969)
- [8] J. Weertmann, J. Appl. Phys. 28 (1957) 362

## 1121.2 Untersuchung der thermodynamischen und chemischen Eigenschaften

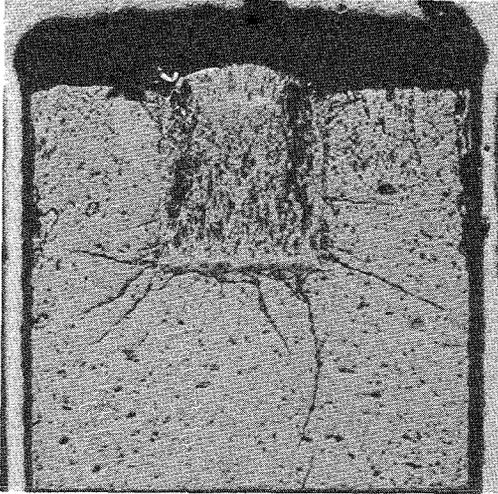
Entmischung von Uran und Plutonium bei Verdampfungsvorgängen in oxidischem Brennstoff (M. Bober, G. Schumacher, INR; C. Sari, Inst. f. Transurane, EURATOM Karlsruhe)

In Reaktorbrennelementen mit Uran-Plutonium-Mischoxiden tritt auf Grund des im Brennstoff herrschenden Temperaturgradienten eine Entmischung von Uran und Plutonium auf [1 - 8]. Dieser Effekt wurde in Laborexperimenten untersucht, wobei drei Entmischungsprozesse gefunden wurden [9, 10]. Die Prozesse sind (a) die Thermodiffusion, (b) die ungleichmäßige Verdampfung und Kondensation im Zentralkanal und (c) die Entmischung bei der Verdampfung und Kondensation im Inneren von wandernden Hohlräumen.

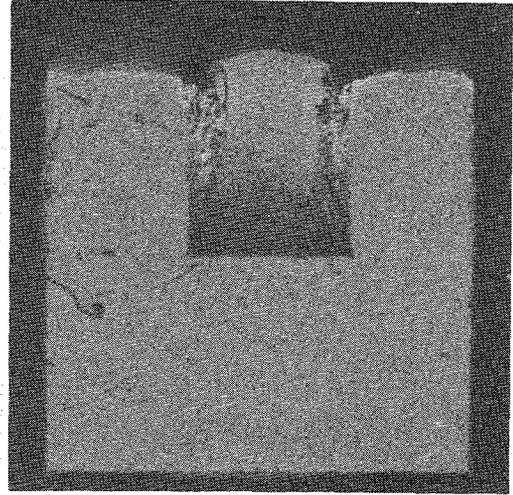
Die Entmischungsprozesse (b) und (c), die auf Verdampfungsphänomenen beruhen, hängen stark vom Verhältnis O/M der Sauerstoffatome zu den Metallatomen im Brennstoff ab. Thermodynamische Rechnungen von Rand und Markin [11] zeigen, daß bei einem O/M-Verhältnis von 1,978 und einer Temperatur von 1730 °C Uran und Plutonium aus einem oxidischen Brennstoff mit 15 Mol% Plutonium gleichmäßig verdampfen. Bei niedrigerem O/M-Verhältnis verdampft bevorzugt Plutonium, bei höherem O/M-Verhältnis bevorzugt Uran.

Es wurden Laborexperimente bei Temperaturen, die den höchsten Temperaturen in Brennelementen entsprechen, durchgeführt und die Entmischung auf Grund ungleichmäßiger Verdampfung und Kondensation untersucht. Die zylindrischen Proben bestanden aus (U, Pu)-Mischoxiden mit 15 Mol% Plutoniumoxid, die verschiedene O/M-Verhältnisse hatten. Sie wurden in dicht abgeschlossenen Wolframkapseln eine Stunde lang einem axialen Temperaturgradienten von 2000 °C/cm ausgesetzt, wobei die höchste Proben temperatur 2400 °C betrug. An der heißen Stirnseite waren die Proben mit einer axialen Bohrung versehen, die einen geschlossenen Dampfraum darstellte, in dem Entmischungsprozesse durch Verdampfung an heißeren und Kondensation an kälteren Stellen ablaufen konnten. Die Bohrung hatte einen Durchmesser von 2,2 mm und eine Tiefe von 3 bis 4 mm. Der Außendurchmesser der Proben betrug 6 mm, die Länge 6 bis 7 mm. Nach den Glühungen wurden die Proben in axialer Richtung durchgeschnitten und keramographische Schliche angefertigt. Die Konzentrationsverschiebung von Uran und Plutonium in den Bohrungen wurden nach der Glühung mit Hilfe von Autoradiografien und Alpha-Aktivitätsmessungen untersucht.

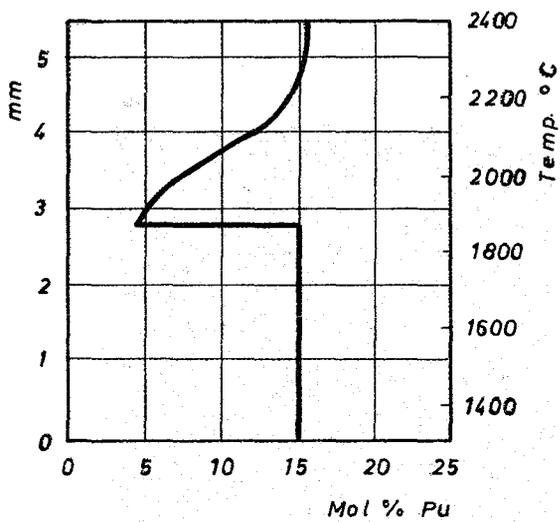
In den Abbildungen 9a und 9b sind das Strukturbild und die Autoradiographie einer stöchiometrischen Probe ( $O/M = 2,00$ ) wiedergegeben. Das Konzentrationsprofil des Plutoniums in axialer Richtung, das aus der Alpha-Aktivitätsmessung entlang der Oberfläche des keramografischen Schliffes bestimmt wurde, ist in den Abbildungen 9c und 9d dargestellt. Abbildung 9c zeigt das Profil innerhalb der Bohrung, Abbildung 9d dasjenige außerhalb der Bohrung. Aus dem Strukturbild geht hervor, daß die zentrale Bohrung vom kälteren Boden her mit dem am heißen Probenende verdampften Material aufgefüllt wurde. Das kondensierte Material enthält Wolframeinschlüsse, die offensichtlich als Oxid von der Behälterwand über die Gasphase in die Bohrung transportiert worden sind. An der heißen Stirnseite war das thermische Gleichgewicht erreicht, so daß sich die Form der Oberfläche nach der dort herrschenden Isothermen einstellte. Das kondensierte Material ragt über die Stirnfläche der Probe hinaus, weil es eine höhere Wärmeleitfähigkeit als das ursprüngliche Probenmaterial in der Umgebung besitzt. Die Autoradiografie zeigt, daß zu Beginn des Verdampfungsvorganges in starkem Maße bevorzugt Uranoxid verdampfte und am Boden der Bohrung kondensierte. Diese Stelle erscheint im Bild auf Grund der niedrigeren Alpha-Aktivität des Urans wesentlich dunkler als das Ausgangsmaterial in der Umgebung der Bohrung. Wie die Abbildung 9c zeigt, beträgt die Plutoniumoxid-Konzentration hier nur 4,5 Mol%. Das Material, das später kondensierte, enthielt in zunehmendem Maße mehr Plutoniumoxid, was auf die Verarmung der verdampfenden Stirnfläche an Uranoxid zurückzuführen ist. Dadurch stellte sich schließlich ein diffusionskontrollierter stationärer Zustand ein, bei dem die Uranoxidkonzentration der Stirnfläche so niedrig war, daß das Verhältnis von Uran und Plutonium im Dampf mit dem im Ausgangsmaterial übereinstimmte. Wie die Autoradiografie und die Konzentrationsmessung (Abb. 9c) zeigen, wurde die Zusammensetzung, die dem stationären Zustand entspricht, in der oberen Hälfte des kondensierten Materials erreicht. Der helle Streifen am oberen Rand der Autoradiografie (Abb. 9b) außerhalb der Bohrung, sowie der steile Anstieg der Konzentrationskurve des Plutoniums (Abb. 9d), entsprechen der an Uranoxid verarmten Zone an der heißen Stirnseite der Probe.



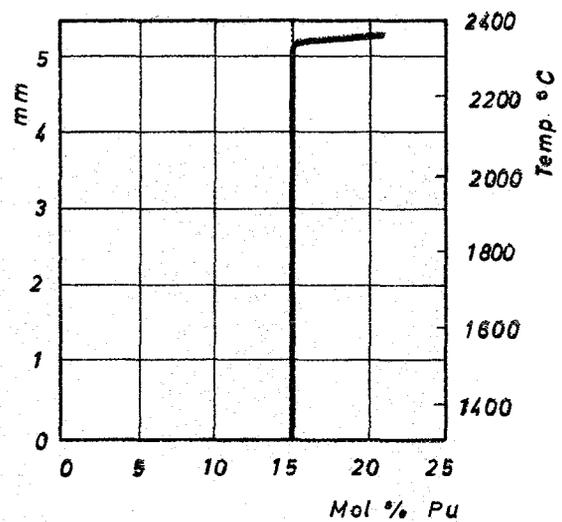
a.)



b.)



c.)



d.)

Abb. 9: Probe 1,  $O/M = 2,00$ , a) Strukturbild des axialen Schnittes, b) Autoradiografie, c) axiales Konzentrationsprofil des Plutoniumoxids innerhalb der Bohrung, d) axiales Konzentrationsprofil des Plutoniumoxids außerhalb der Bohrung.

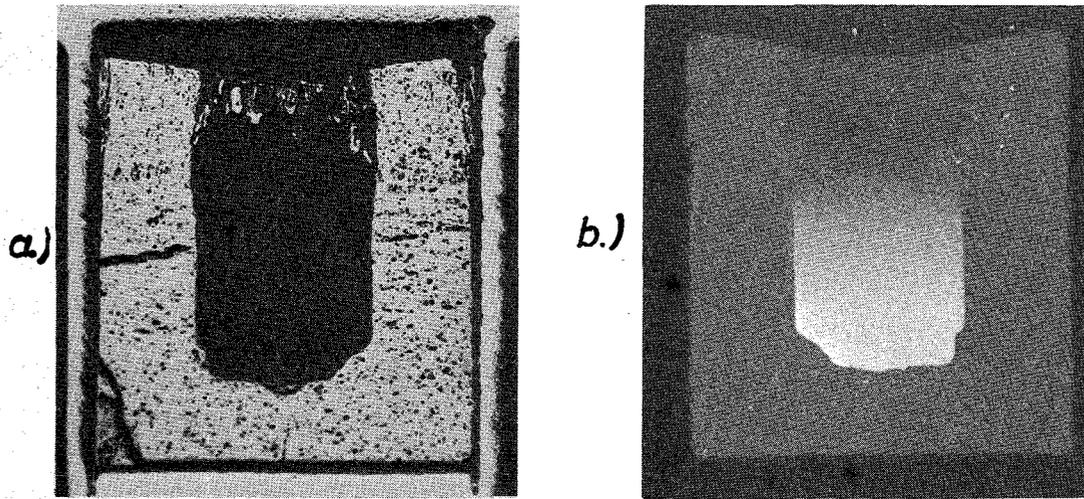


Abb. 10: Probe 2,  $O/M = 1,96$ , a) Strukturbild des axialen Schnittes, b) Autoradiografie

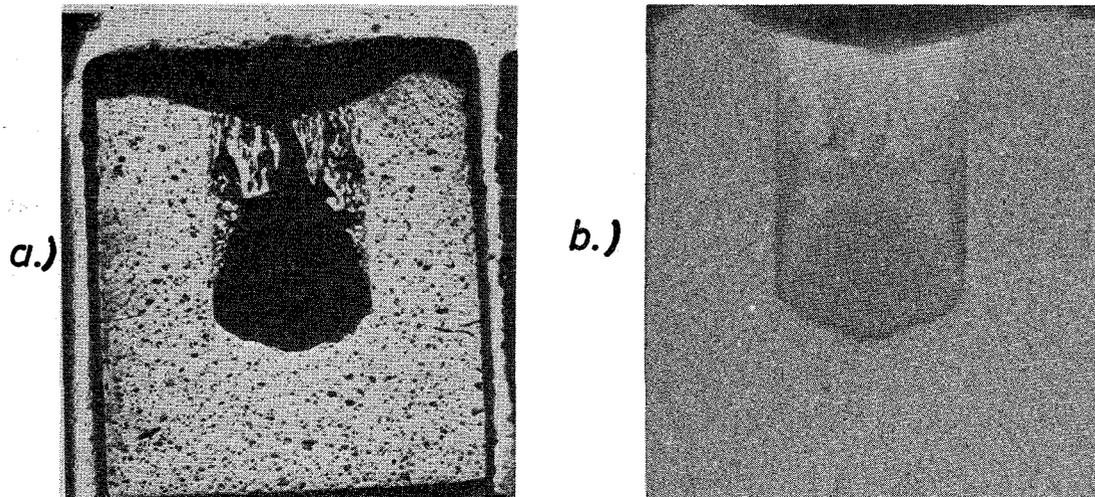


Abb. 11: Probe 3,  $O/M = 1,97$ , a) Strukturbild des axialen Schnittes, b) Autoradiografie

Unter den gleichen Bedingungen wie bei der stöchiometrischen Probe wurden zwei weitere Experimente mit unterstöchiometrischen Proben durchgeführt. Die Strukturbilder (Abb. 10a und 11a) zeigen, daß in diesen Experimenten nur eine relativ geringe Substanzmenge verdampfte. Die Autoradiografie der Probe 2 (Abb. 10b) mit  $O/M = 1,96$  zeigt, daß zunächst bevorzugt Plutoniumoxide verdampften und auf der Oberfläche der unteren Hälfte der Bohrung kondensierten. Die Probe 11 mit einem nur wenig höheren  $O/M$ -Verhältnis von 1,97 zeigt schon eine bevorzugte Verdampfung von Uranoxiden (Abb. 11a). Daraus geht hervor, daß das  $O/M$ -Verhältnis des Mischoxids, bei dem Uran und Plutonium gleichmäßig verdampfen, für  $2400^\circ\text{C}$  zwischen 1,96 und 1,97 liegt. Die Abweichung von dem durch thermodynamische Rechnungen bestimmten Wert von Rand und Markin [11] und einem von Ohse und Olson [12] experimentell bestimmten Wert ist gering. Rand und Markin errechneten für  $1730^\circ\text{C}$ , daß eine gleichmäßige Verdampfung von Uran und Plutonium bei einem  $O/M$ -Verhältnis von 1,978 zu erwarten ist, Ohse und Olson fanden bei  $1830^\circ\text{C}$  1,968. Der Vergleich mit unserem Ergebnis zeigt, daß dieses  $O/M$ -Verhältnis sich mit steigender Temperatur nur wenig verschiebt.

Eine Betrachtung der bei den Experimenten verdampften Substanzmenge ergibt wie erwartet, daß der totale Dampfdruck bei  $O/M = 2$  hoch ist (Probe 1) und zu niedrigen  $O/M$ -Verhältnissen hin stark abfällt (Proben 2 und 3). Zwischen  $O/M = 1,97$  und  $O/M = 1,96$  ändert sich der Dampfdruck nur noch wenig. Das bedeutet, daß sich der Dampfdruck über den unterstöchiometrischen Proben 2 und 3 in der Nähe des Dampfdruckminimums befand.

Die geringe Temperaturabhängigkeit des  $O/M$ -Verhältnisses, bei dem eine gleichmäßige Verdampfung von Uran- und Plutoniumoxiden auftritt, zeigt, daß das von Rand und Markin [11] angegebene Modell der Verdampfungsphänomene bei den Uran-Plutonium-Mischoxiden auch für die hohen Temperaturen im Zentrum eines Brennelementes gültig ist.

In Laborexperimenten wurde früher gezeigt [9, 10], daß in Uran-Plutonium-Mischoxiden durch bevorzugte Verdampfung und Kondensation im Temperaturgradienten erhebliche Entmischungseffekte auftreten, die auch in bestrahlten Brennelementen gefunden wurden [3-6]. Solche Entmischungen finden bei der Wanderung von Hohlräumen zum Zentrum des Brennelementes und auch bei der Verdampfung an der Oberfläche des Zentralkanals statt. Die in dieser

Arbeit durchgeführten Verdampfungsexperimente an oxidischen Brennstoffen mit 15 Mol% Plutoniumoxid zeigen, daß bei den Temperaturen, die im Zentrum von Reaktorbrennelementen herrschen, eine gleichmäßige Verdampfung von Uran- und Plutoniumoxiden bei einem O/M-Verhältnis auftritt, das zwischen 1,96 und 1,97 liegt. Ist das O/M-Verhältnis größer als 1,97, reichert sich durch bevorzugte Verdampfung von Uranoxiden in der Umgebung des Zentralkanals Plutonium an. Die Entmischung durch Thermodiffusion geht in die gleiche Richtung. Ist das O/M-Verhältnis kleiner als 1,96, findet umgekehrt durch bevorzugte Verdampfung von Plutoniumoxiden eine Anreicherung von Uran im Zentrum statt. Keine Entmischung tritt auf, wenn das O/M-Verhältnis im Brennstoff dem der gleichmäßigen Verdampfung entspricht, das zwischen 1,96 und 1,97 liegt. Gegenüber der Thermodiffusion, die ein ausgesprochener Langzeiteffekt ist, läuft die Entmischung durch Verdampfung und Kondensation im wesentlichen schon in wenigen Stunden ab [9, 10]. Sie liefert den Hauptbeitrag zur Entmischung in der Anfangsphase bei der Entstehung der Säulenkristalle. In einem Reaktorbrennelement ist deshalb von Anfang an mit einem Entmischungseffekt zu rechnen. Bei einem stöchiometrischen Brennstoff ist die Plutoniumanreicherung im Zentrum des Brennelements schon nach kurzer Bestrahlungszeit so hoch (bis ca. 30% über der Ausgangskonzentration), daß eine Erhöhung der Zentraltemperatur um bis zu ca. 100 °C auftritt. Diese Temperaturerhöhung ist bei der Reaktorauslegung zu berücksichtigen, zumal infolge der fortschreitenden Entmischung durch Thermodiffusion mit einer weiteren Erhöhung der Zentraltemperatur zu rechnen ist.

Literatur zu 1121.2:

- [1] J.L. Bates, J.A. Christensen und W.E. Roake,  
Nucleonics 20 (1962) 88
- [2] C.P. Ruiz, J.M. Gerhard, H.W. Alter und L.F. Epstein,  
Trans.Am.Nucl.Soc. 6 (1963) 82
- [3] P.E. Novak, T.A. Lauritzen, R. Protsik, J.H. Davies  
und E.L. Zebrowski, ANL-7550 (1965) 392
- [4] D.R. O'Boyle, F.L. Brown und J.E. Sanecki,  
J.Nucl.Mat. 29 (1969) 27
- [5] B. Kegel, Isotopentechnik und Chemie 11 (1969) 631
- [6] J.K. Bahl und M.D. Freshley,  
Trans.Am.Nucl.Soc. 13 (1970) 599
- [7] R. Natesh, D.R. O'Boyle und E.M. Butler,  
Proc.4th Nat.Conf.on Electron Microprobe Analysis,  
Pasadena (USA) (1969) 47
- [8] H. Beisswenger, M. Bober und G. Schumacher,  
Proc.IAEA Symp.Plutonium as a Reactor Fuel, Wien (1967) 273
- [9] M. Bober, C. Sari und G. Schumacher,  
Trans.Am.Nucl.Soc. 12 (1969) 603
- [10] M. Bober, C. Sari und G. Schumacher,  
J. Nucl. Mat., eingereicht am 30.12.1970
- [11] M.H. Rand und T.L. Markin,  
Proc.IAEA Symp.Thermodynamics of Nucl.Materials, Wien (1967) 637
- [12] R.W. Ohse und W.M. Olson,  
Proc. 4th Int.Conf. Plutonium and other Actinides,  
Santa Fe, New Mexico (USA) 2 (1970) 743.

## 1121.6 Spezielle Auswertungsmethoden bestrahlter Proben

### Strukturanalyse des bestrahlten Brennstoffes

(H. Hoffmann, W. Hellriegel, K. Spieler, IMF)

Im Rahmen der Bestrahlungsnachuntersuchungen wurde ein neues Arbeitsgebiet "Strukturanalyse des bestrahlten Brennstoffes" geschaffen. Die Strukturanalyse soll Aussagen über die Art und die Ausdehnung der Strukturzonen (ursprüngliches Gefüge, Kornwachstumzone, Stengelkornzone), die radiale Porenverteilung und die Gestalt, Verteilung und Orientierung der Poren sowie über das Rißvolumen und die Ausdehnung des Zentralkanals liefern. Das zur Verfügung stehende Porenvolumen ist für das Brennstoffschwellen entscheidend, und die stereometrischen Faktoren beeinflussen die thermische Leitfähigkeit. Die Porenverteilung soll Aussagen über die Materialwanderungsprozesse liefern.

Das erste Ziel war es, eine Methode zu entwickeln zur Ermittlung des Porenvolumens (bzw. der Dichte) in radialer Richtung. Da die herkömmlichen Verfahren der Dichtebestimmung wegen der kleinen Dimensionen und der präparativen Schwierigkeiten nicht anwendbar sind, wurde die Auswertung über keramographische Schliffbilder vorgenommen. Das Verfahren wurde angewandt bei der FR 2-Kapselversuchsgruppe 3 (KVE 29, Prüfling CG und AG) und der BR 2-Kapselversuchsgruppe Mol-7A (Stab Nr. 6 und 9).

Die Brennstoffproben wurden mit SiC-Papier geschliffen und mit verschiedenen Poliermitteln bearbeitet. Die optimale Oberflächenbearbeitung wurde durch Vergleich mit der vor der Bestrahlung gemessenen Schmierdichte gewonnen. Am bestrahlten Brennstoff muß das gesamte Poren- und Rißvolumen ermittelt werden. Ersteres erfolgte durch Auswertung von keramographischen Panoramaaufnahmen (200 x), die einen Brennstoffausschnitt vom Rand bis zum Zentralkanal ohne Risse zeigen, letzteres durch Ausmessen der Schnittlängen der Risse mit aquidistanten konzentrischen Kreisungen in den Übersichtsaufnahmen (15 x). Abb. 12 zeigt eine typische Porenverteilung des Prüflings AG, Abb. 13 gibt das Riß- und Porenvolumen des gleichen Prüflings wieder (ca. 2,5% Abbrand). Man sieht deutlich eine nach innen zunehmende Verdichtung, die ihr Maximum im Bereich des gerichteten Kornwachstums (Stengelkornzone) hat; zum Zentralkanal hin nimmt das Porenvolumen wieder zu. Eine Deutung dieses Kurvenverlaufes wird weiteren Arbeiten vorbehalten sein.

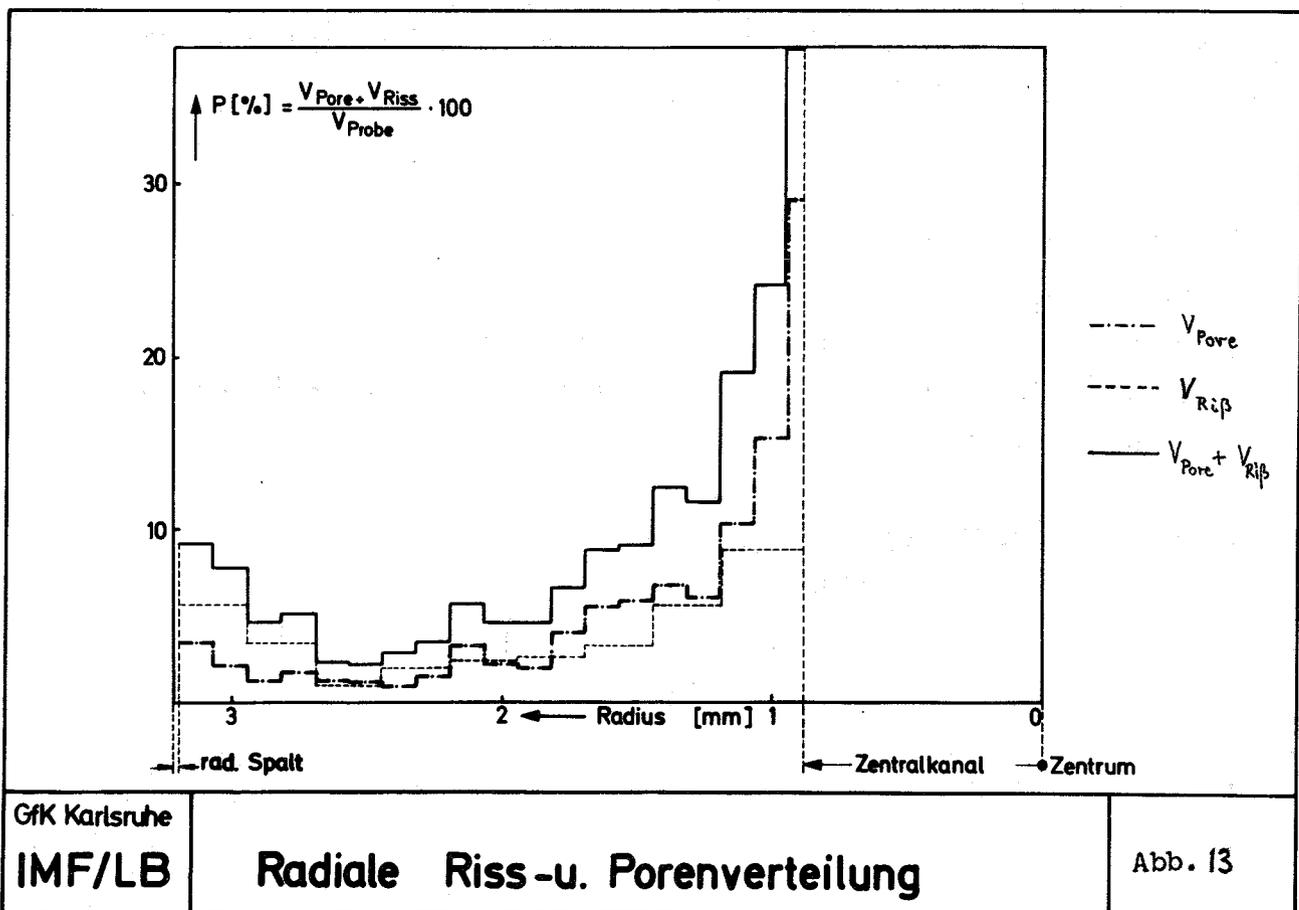
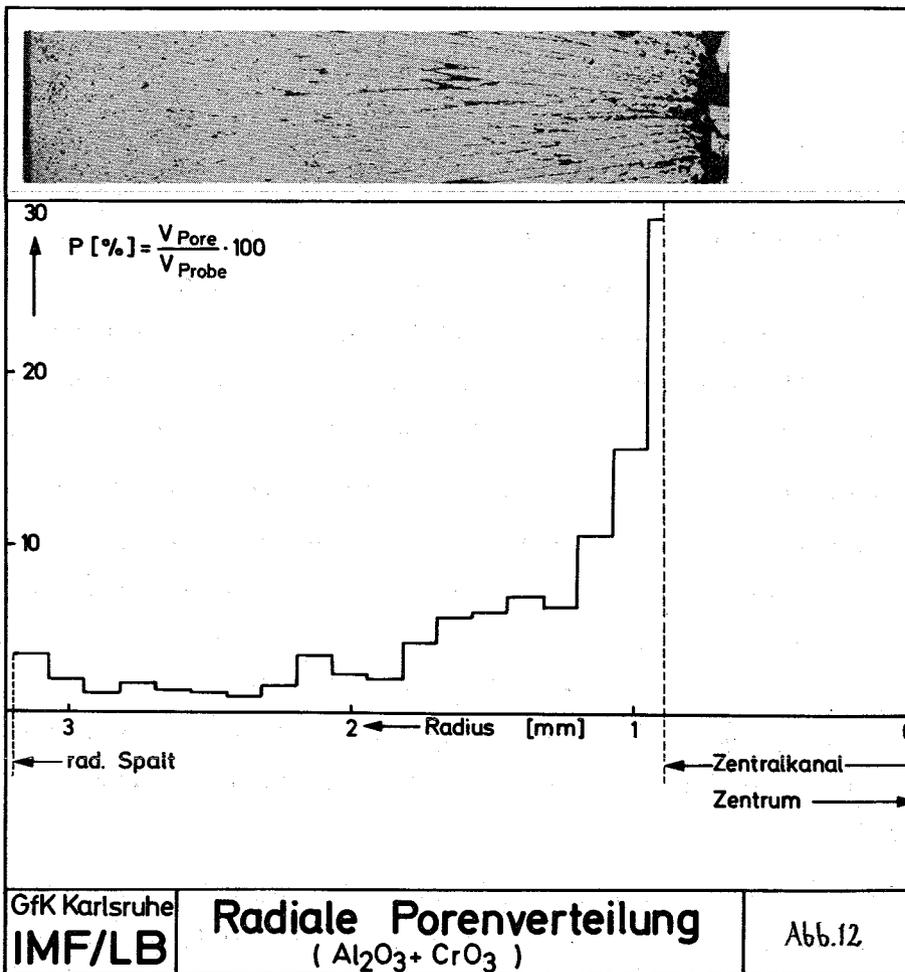
Bei höheren Abbränden müssen sowohl die oxidischen als auch die metallischen Spaltproduktausscheidungen quantitativ erfaßt werden, damit man von der Porenverteilung auf die Dichteverteilung schließen kann. Diese Arbeiten sind im Gange, auch wird zur Zeit eine wasserfreie Schliffpräparation erprobt. Parameterstudien, die die Porenverteilung als Funktion des Abbrandes, der Ausgangsdichte, der Stableistung, der mittleren Brennstofftemperatur, der Zusammensetzung und der Dimensionen liefern sollen, sind geplant.

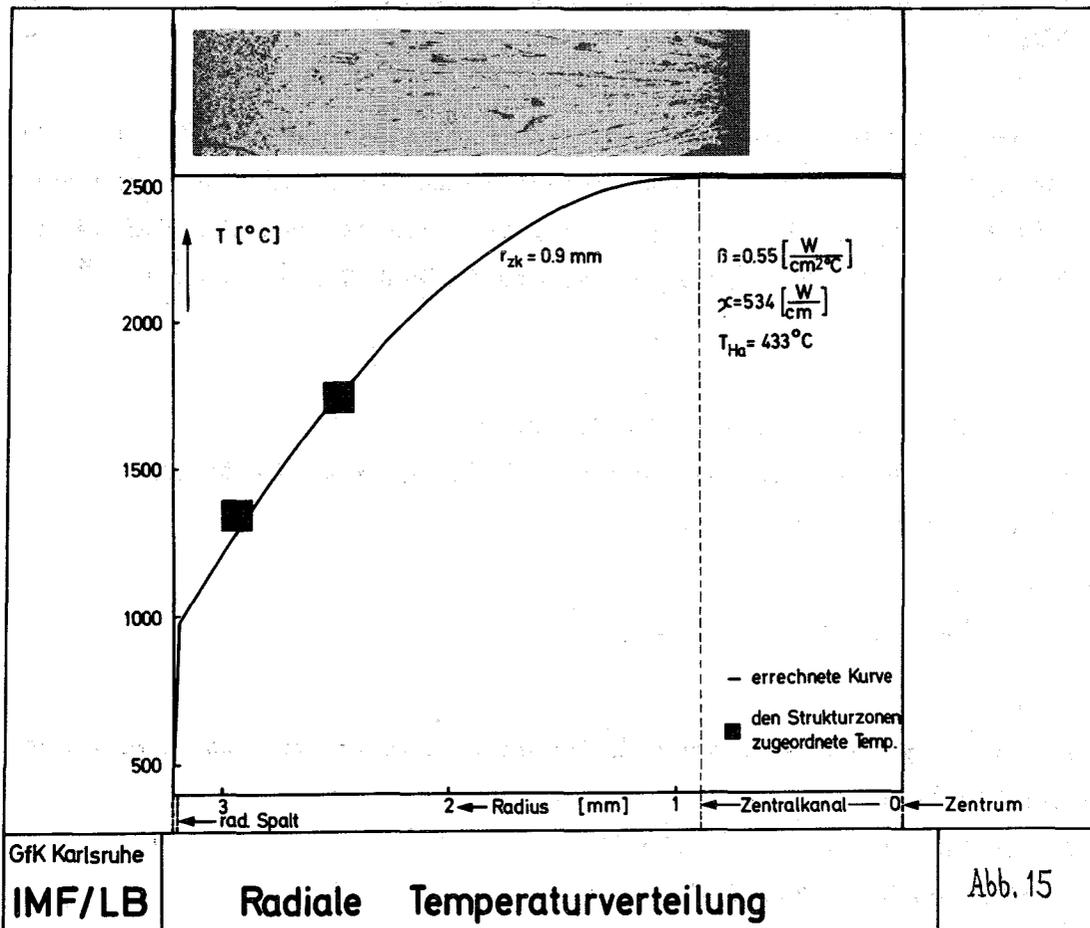
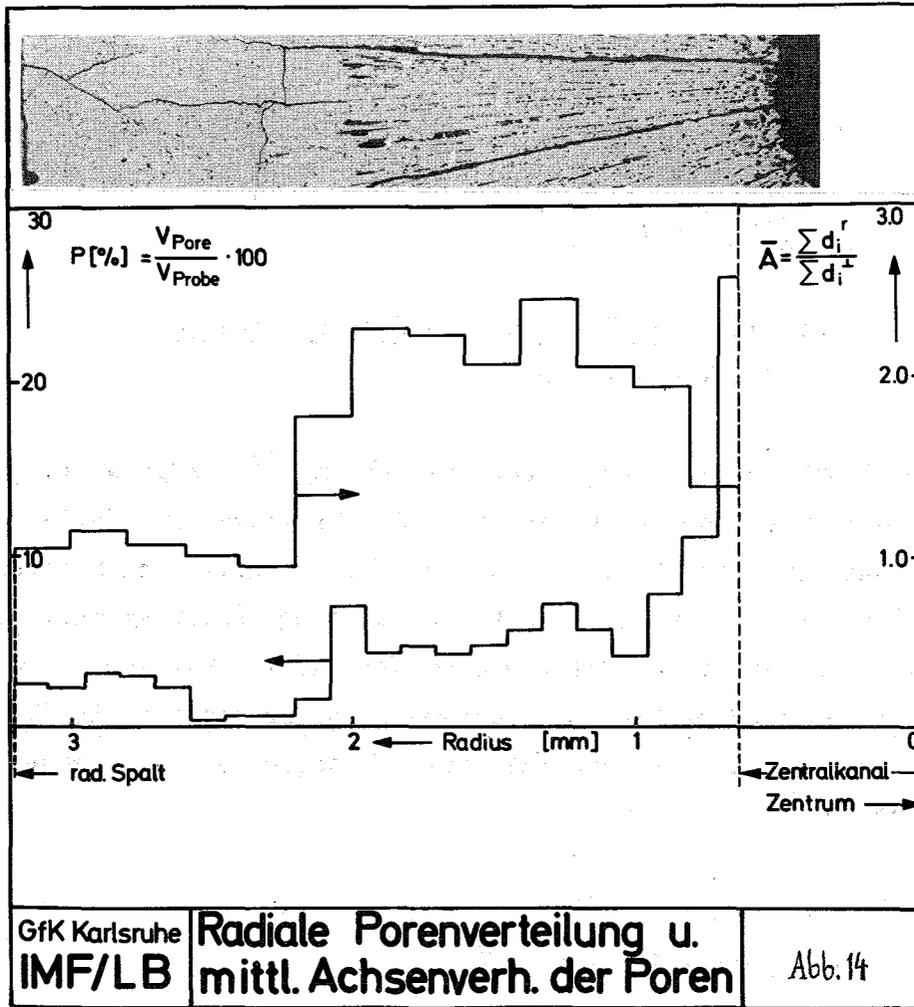
Abb. 14 zeigt neben der Porenverteilung das Achsenverhältnis der Poren (Prüfling CG). Die Poren in der Stengelkornzone zeigen eine Orientierung in radialer Richtung, d.h. sie liegen als Rotationsellipsoide der Achsenverhältnisse  $1:n:1$  ( $n>1$ ) vor. Formfaktoren, die sich aus diesen Achsenverhältnissen errechnen lassen, und die Orientierung der Poren parallel zur Richtung des Wärmefflusses ergeben zusammen eine Erhöhung der thermischen Leitfähigkeit, und zwar gegenüber Poren mit statistischer Verteilung und Poren kugeligter Gestalt.

Abb. 15 zeigt ein errechnetes Temperaturprofil in Übereinstimmung mit den den Strukturzonen zugeordneten Temperaturen und mit dem Zentralkanalradius. Die äußeren Radien der Strukturzonen wurden dem geätzten Schliff entnommen und diesen Radien out-of-pile-Temperaturen bzw. Literaturwerte zugeordnet. Diese Art der Auswertung schließt den Kreis zwischen Modelltheorie und Bestrahlungsnachuntersuchungen.

#### Veröffentlichungen zu 1121.6

- (1) H. Hoffmann, W. Hellriegel, K. Spieler  
Radiale Porenverteilung im bestrahlten Brennstoff  
Tagungsbericht der Reaktortagung 1971 des Deutschen Atomforums in  
Bonn (im Druck)
  
- (2) H. Hoffmann, W. Hellriegel, K. Spieler  
Ext. Bericht (im Druck)





1122 Bestrahlungsexperimente - Oxid (Parameter-tests)1122.1 Einzelparameter-tests1122.11 Kriechen von  $UO_2$  unter Neutronenbestrahlung  
(D. Brucklacher, IMF)

Die Kriechversuche an  $UO_2$  unter Bestrahlung <sup>+)</sup> wurden weitergeführt. Dabei konnte die lineare Abhängigkeit der Kriechgeschwindigkeit von der Uran-Spaltungsrate unter Einstellung der sehr verschiedenen Spaltungsraten  $8 \cdot 10^{-10}$  f/U-atom·s und  $3 \cdot 10^{-9}$  f/U-atom·s nachgewiesen werden. Das Ergebnis eines ersten ähnlichen Bestrahlungs-Kriechversuches an  $UO_2$  im BR 2(Mol), über den noch näher berichtet werden wird, bestätigte die Gültigkeit dieser linearen Abhängigkeit innerhalb der Fehlergrenze bis zu einer Spaltungsrate von  $7 \cdot 10^{-9}$  f/U-atom·s.

1122.2 Integrale Parameter-testsVersuchseinsätze des Na/PbBi-Doppelkapseltyps im FR 2

(H. Häfner, IMF)

Im März 1971 wurde in der Abteilung FR2-Reaktorbetrieb der 90. FR2-Kapselversuchseinsatz montiert. Er enthält sechs UN-Proben zur halbquantitativen Ermittlung der Kriechrate dieses Brennstoffs. Der 90. KVE gehört, wie die meisten seiner Vorgänger, zu dem Na/PbBi-Doppelkapseltyp <sup>x)</sup>.

+) D. Brucklacher, W. Dienst, F. Thümmeler

Proc. Int. Meeting on Fast Reactor Fuels and Fuel Elements

KFZ Karlsruhe, 1970, S. 343

x) H. Häfner

KFK-Bericht 1270/2, S. 112-21

H. Häfner

Bestrahlung von Brennstäben in instrumentierten Natrium-Bleiwismut-Doppelkapseln,

Kerntechnik 12, Heft 5/6 (1970)

KFK-Bericht Nr. 1259 (1970)

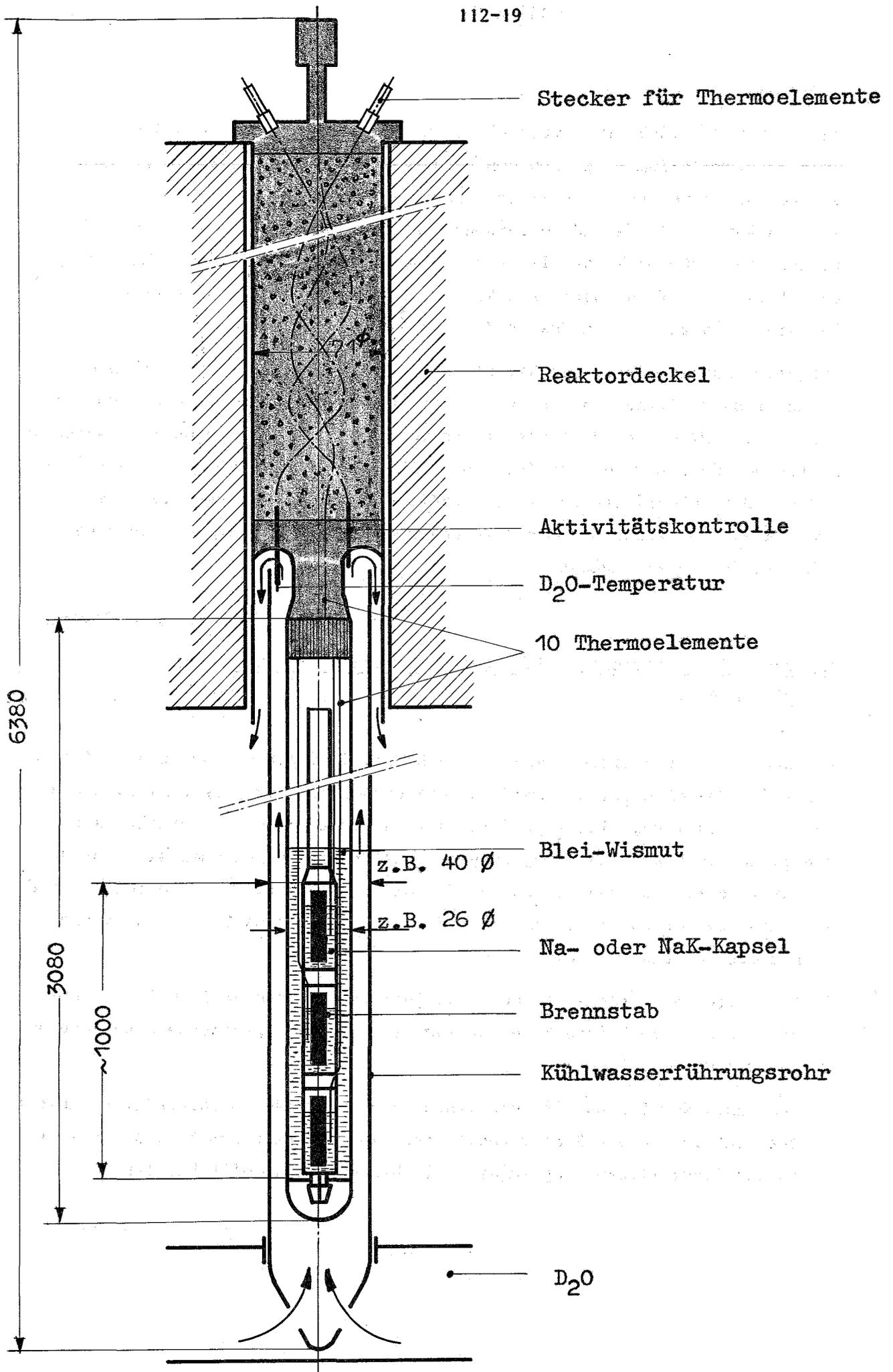


Abb.16: FR2-Kapselversuchseinsatz mit Na/PbBi-Doppelkapsel

Bei diesem Typ (Abb. 16) sitzt die Brennstabprobe, umgeben von Natrium oder Natrium-Kalium - je nach den Erfordernissen hinsichtlich Leistungsdichte und Temperatur - in einer inneren Kapsel, die von einer zweiten, äußeren Kapsel als second containment umhüllt ist. Der Ringspalt zwischen innerer und äußerer Kapsel ist von der eutektischen Blei-Wismut-Legierung ausgefüllt. Der Versuchseinsatz kann mehrere kurze Proben oder eine Langprobe bis zu ca. 1 m Gesamtlänge aufnehmen.

Insgesamt wurden mit diesem Kapseltyp bei verschiedenen Modifikationen bisher rund 210 Brennstabproben eingesetzt. Bei maximalen Stableistungen von ca. 700 W/cm und Hülltemperaturen von max. ca. 800 °C sind Bestrahlungszeiten von über 600 Vollast-Tagen bzw. Abbrände von 90 000 MWd/tM erreicht worden. Die integrierte Bestrahlungszeit aller Kapseln dieses Typs beträgt knapp 50 Jahre. Ein abschließender Erfahrungsbericht wird zu einem späteren Zeitpunkt gegeben.

#### Integrale Parametertests - Bestrahlungsnachuntersuchungen

(D. Geithoff, IMF)

Im Zuge der Nachuntersuchungen an den Brennstäben der Versuchsgruppe Mol-7A wurde das Phänomen der Cäsium-Wanderung verfolgt. Ausgeprägte Aktivitätsmaxima in den integralen  $\gamma$ -Profilen der Stäbe hatten darauf hingewiesen, daß es zu einer starken Umlagerung der Spaltprodukte gekommen war. Bei der  $\gamma$ -spektrometrischen Analyse wurden die Aktivitätsspitzen ausschließlich als Ansammlungen von Spalt-Cäsium identifiziert. Für die Cs-Verteilungen ergibt sich damit folgendes Bild:

1. Im Bereich der Brennstoffsäule ist Spaltcäsium besonders am oberen Abschluß, d.h. am heißen Ende angesammelt. Eine entsprechende Anhäufung am unteren Ende fehlt.
2. Außerhalb der Brennstoffsäule findet sich Spaltcäsium vornehmlich jenseits der Brutzone in den Sinterstahlfiltern zum Spaltgasraum bzw. auf dem Weg zu den Stahlfiltern, abgelagert zwischen den Brutstofftabletten.

Beide Bereiche wurden im Hinblick auf die Cs-Wanderung keramografisch und radiochemisch untersucht.

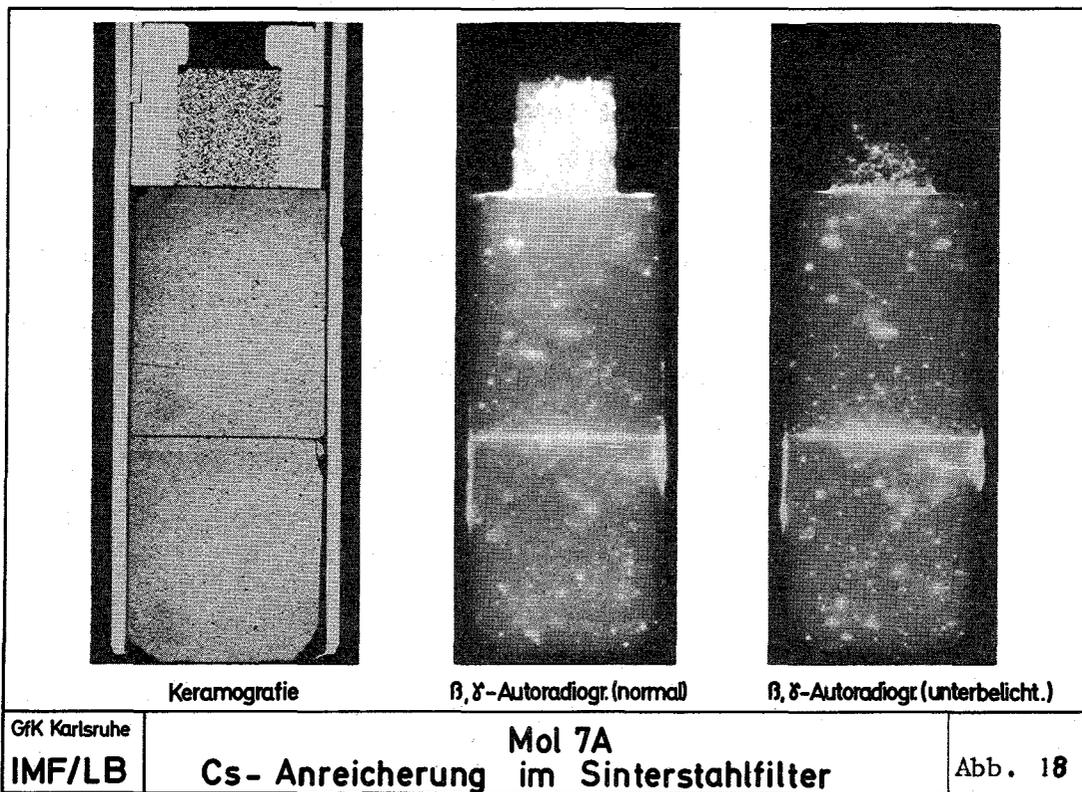
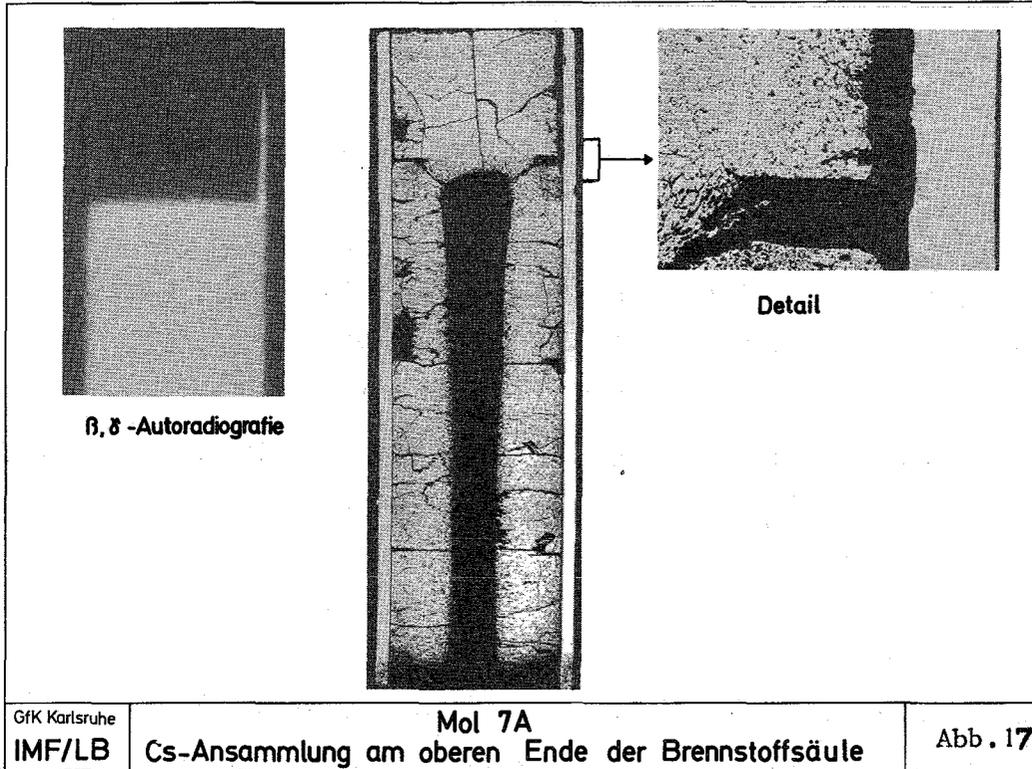
Abb. 17 zeigt das obere Ende einer Brennstoffsäule mit dem Übergang zum Brutstoff. Die  $\beta$ - $\gamma$ -Autoradiographie läßt deutlich erkennen, daß die Cs-Aktivität vornehmlich im Spalt zwischen der Hülle und der ersten Brutstofftablette lokalisiert ist. Hier ist sogar in Höhe der Tablettenstirnflächen ein ca. 50  $\mu$ m tiefes Loch in der Hülle zu erkennen, das vermutlich auf eine Cs-Wechselwirkung zurückzuführen ist. Die Korrosion läßt sich auch noch nach oben weiterverfolgen. Auf der gegenüberliegenden Seite, wo nur wenig Cs abgelagert ist, fehlt sie dagegen ganz.

Eine grobe Abschätzung der Cs-Menge aus der  $\gamma$ -Aktivität ergab, daß nur wenige Milligramm Cs<sup>137</sup> hier angesammelt sind. Nimmt man an, daß die inaktiven Cs-Isotope das gleiche Wanderungsverhalten zeigen, so sind von den ca. 400 mg Spaltcäsium im Stab nur wenige Prozent am Brennstoffsäulende abgelagert.

Cs-Ansammlungen außerhalb der Brennstoffzone sind in Abb. 18 zu sehen. Hier ist das Cs in dem bereits erwähnten Sinterstahlfilter jenseits der Brutzone zu finden. Allerdings handelt es sich hier um beinahe reines Cs<sup>134</sup>, das vermutlich als Xe<sup>133</sup> gewandert ist und erst später durch  $\beta$ -Zerfall in Cäsium übergegangen ist. Im unterbelichteten Detailbild ist die Cäsiumverteilung innerhalb des Filters erkennbar. Die meiste Aktivität enthält die dem Brennstoff zugewandte Seite des Filters und begünstigt damit eine Cs-Verstopfung.

Weitere Cs-Ansammlungen finden sich im Bereich der Tablettenstirnflächen, und zwar sowohl zwischen den Tabletten als auch an Ausbrüchen am Außenrand. Sie stellen, da es sich hier um die heiße Seite des Stabes handelt, in der Kombination Cs und hohe Temperatur eine lokale Gefährdung der Hülle dar.

In einigen Filtern wurde das Cäsium quantitativ bestimmt, wobei die Filter mit der hohen  $\gamma$ -Aktivität erwartungsgemäß mehr Cäsium enthielten als niedrig aktive. Allerdings konnte darüber hinaus kein einfacher Zusammenhang zwischen den Aktivitäten von Cs<sup>134</sup> und Cs<sup>137</sup> und der analysierten Cs-Menge gefunden werden. Eine Abschätzung der Cs-Menge aus den  $\gamma$ -Spektroskopie-Daten ist somit nicht möglich.



Die in den Filtern gefundenen Cs-Mengen lagen bei etwa 1 mg mit Maximalwerten von 1,2 mg und Minimalwerten von ca. 300 µg.

Eine kurze Betrachtung zur Verstopfung des Filters mit 1 mg Cs oder Cs-Oxid zeigt folgende Situation:

1 mg Cs-Oxid mit einer Dichte von  $4 \text{ g/cm}^3$  nimmt ein Viertel  $\text{mm}^3$  Raum ein. Verschmiert man dieses Volumen über die Stirnfläche des Filters, wo ja das Cs auch tatsächlich gefunden wurde, so ergibt sich eine Schichtdicke von ca. 50 µ, die noch auf das Vierfache anwächst, wenn man die Schicht in das mit 25 % Porosität ausgestattete Filter hineindrückt. Damit sind die Voraussetzungen für eine Behinderung des Gasdurchgangs durchaus gegeben.

Bei den Mol-7A-Stäben war dies allerdings unwesentlich, denn das Spaltgas muß nicht den Zwangsweg durch das Filter nehmen. Es kann auch durch 100 µm weite Spalte außen am Filter vorbeiströmen. Jedoch dürfte die hier beobachtete Verstopfung des Filters für einen anderen Stabaufbau, z.B. für ein "vented fuel"-Konzept, wichtig sein.

#### Untersuchung von Spaltprodukt-Effekten in $\text{UO}_2$ -Brennstoffstäben durch Röntgenfeinstruktur- und Mikrohärt-Messungen (W. Dienst, IMF)

##### Untersuchungsverfahren

Im Rahmen der Bestrahlungsnachuntersuchungen an  $\text{UO}_2$ -Brennstabproben aus FR 2-Kapselversuchseinsätzen wurde eine Reihe von Röntgenfeinstrukturuntersuchungen an Probenquerschnitten durchgeführt. Sie begann im Sommer 1967 und wurde im Sommer 1970 abgeschlossen. Diese Untersuchungsreihe beruhte nicht auf einem eigenen Bestrahlungsprogramm, sondern stellte nur eine begleitende Aktivität zu den systematischen keramographischen Untersuchungen an den Brennstabproben dar. Die Röntgenaufnahme erfolgten daher gelegentlich und in größeren zeitlichen Abständen.

Die Auswertung der Röntgenbeugungs-Diagramme sollte u.a. die Aussagekraft dieses Untersuchungsverfahrens für Oxidbrennstoff klarstellen. Sie erwies sich als eng beschränkt, so daß auf eine Ausdehnung der Röntgenfeinstrukturuntersuchungen auf Pu-haltige Mischoxid-Brennstoffproben verzichtet wurde, die aus Sicherheitsgründen erhebliche Umbauten an der

verwendeten Röntgenanlage erfordern würden. Zur Verwendung kamen Querschleifproben aus  $UO_2$ -Stäben mit Abbränden von 0,1 bis 7% der Uranatome; besonders häufig waren Abbrände zwischen 0,5 und 2%. Zur Differenzierung und Deutung der am ganzen Stabquerschnitt (mit entsprechend großen Bestrahlungstemperaturdifferenzen) gemessenen Änderungen der  $UO_2$ -Kristallgitterdaten erwiesen sich begleitende Mikrohärtmessungen als sehr nützlich. Sie wurden zur Untersuchung der Proben aus dem besonders interessanten Abbrandbereich von 0,1 bis 3% herangezogen.

Über den Aufbau der Röntgenapparatur und das angewendete Mess- und Auswertungsverfahren wurde bereits früher berichtet [1, 2]. Auch Ergebnisse der Untersuchung von Proben mit Uran-Abbränden bis zu 0,9% wurden bereits in einem Tagungsbeitrag dargestellt und diskutiert [3]. Hier soll nun eine abschliessende Zusammenfassung der wesentlichen Ergebnisse aus dieser Untersuchungsreihe und eine Erläuterung ihrer Tendenz erfolgen.

#### Änderung der Gitterkonstanten

Abb. 19 zeigt den Verlauf der relativen Gitterkonstanten-Änderung  $\Delta a/a$  und der scheinbaren Gitterverzerrung  $\eta$  in den  $UO_2$ -Proben in Abhängigkeit vom Uran-Abbrand. Die Messungen erfolgten an 15 verschiedenen Brennstabproben. Die Ergebnisse wiesen starke Streuungen auf; daher wurden zur Verdeutlichung ihrer grundsätzlichen Tendenz nur die Ergebnis-Streubänder wiedergegeben. Bei der Deutung ihres Verlaufes ist zu berücksichtigen, daß mit dem verwendeten Röntgen-Zählrohrgoniometer nur das Beugungsdiagramm eines durchgehenden diametralen Steifens vom Brennstab-Querschleif aufgenommen werden konnte. Die in Abb. 19 dargestellte Änderung der Gitterkonstanten  $\Delta a/a$  beruht also auf einer Mittelung der Effekte in verschiedenen Brennstofftemperaturzonen zwischen der Oberflächentemperatur ( $\approx 700$  °C) und der Zentraltemperatur (2000 - 2300 °C) unter Bestrahlung. Das bedeutet gleichzeitig, daß die scheinbare Gitterverzerrung  $\eta = \beta / \tan \vartheta$  ( $\beta$  = korrigierte Röntgenreflex-Halbwertsbreite,  $\vartheta$  = Glanzwinkel) nicht nur durch Mikrospannungen mit tatsächlichen lokalen Gitterverzerrungen bedingt sein kann, sondern auch durch einen radialen Gradienten von  $\Delta a/a$ , der dem Gradienten der Bestrahlungstemperatur entspricht.

Trotzdem ist der Schluss zulässig, daß im  $\text{UO}_2$ -Brennstoff bei Bestrahlungsbeginn eine allgemeine Abnahme der Gitterkonstanten mit steigendem Abbrand erfolgt, die sich nach etwa 1,7% Uran-Abbrand sättigt; unsicher sind nur ihr absoluter Wert und ihre radiale Verteilung. Diese ist jedoch mit Sicherheit so groß, daß sie nicht auf einen zunehmenden überstöchiometrischen Sauerstoffgehalt des  $\text{UO}_2$  zurückgeführt werden kann, und muß daher durch die Lösung von Spaltproduktatomen im  $\text{UO}_2$ -Gitter bedingt sein. Das nach etwa 1,4% Abbrand erkennbare  $\eta$ -Maximum kann nach den obigen Ausführungen entweder durch besonders große Differenzen der  $\Delta a/a$ -Werte längs des Probenradius oder durch ein Maximum der im  $\text{UO}_2$ -Gitter auftretenden Mikrospannungen gedeutet werden. Beide Deutungen lassen auf den Beginn einer Spaltprodukt-Ausscheidung schließen, durch den auch die Sättigung der Gitterkonstanten-Abnahme erklärt werden kann. Der entsprechende Entmischungsprozess führt zu Mikrospannungen. Falls er in den verschiedenen Bestrahlungstemperaturzonen des  $\text{UO}_2$ -Brennstabquerschnittes bei verschiedenen Spaltproduktkonzentrationen beginnt, ergibt er auch eine Auffächerung der  $\Delta a/a$ -Werte.

#### Bestrahlungshärtung

Die Ergebnisse der Mikrohärtemessungen an den  $\text{UO}_2$ -Brennstabquerschnitten, die bei Raumtemperatur unter einer Eindruck-Last von 50 p durchgeführt wurden, gestatten einige zusätzliche Aussagen über die Spaltproduktausscheidung und über die durch die Spaltfragmente verursachten Gitterschäden im  $\text{UO}_2$ . Sie sind in Abb. 20 - ebenfalls nur durch die Ergebnis-Streubänder charakterisiert - in Abhängigkeit vom Uran-Abbrand dargestellt. Die den wiedergegebenen Ergebnis-Bändern zugrundeliegenden Meßwerte wurden aus zwei verschiedenen Bestrahlungstemperaturbereichen im  $\text{UO}_2$  entnommen:

1.  $T < 1200^\circ\text{C}$ ; in diesem Bereich sind Diffusionsvorgänge im  $\text{UO}_2$  praktisch nur durch Bestrahlungseffekte bedingt.
2.  $T \approx 1500^\circ\text{C}$ ; in der Umgebung dieser Temperatur beginnt die schnelle Ausheilung aller  $\text{UO}_2$ -Gitterdefekte durch Volumenselbstdiffusion.

Die Lage der entsprechenden Temperaturgrenzen wurde aus Gefügebeobachtungen und Wärmeableitungsrechnungen abgeschätzt.

Abb. 20 zeigt für Bestrahlungstemperaturen unterhalb  $1200^{\circ}\text{C}$  ein ausgeprägtes Härtemaximum mit Werten bis zu  $\text{HV } 0,05 \approx 1150 \text{ kp/mm}^2$ , das mit dem steilsten  $\eta$ -Anstieg in Abb. 19 zusammenfällt. Demnach ist das  $\eta$ -Maximum zu einem großen Teil durch die Mikrospannungen im  $\text{UO}_2$ -Gitter verursacht, die auch zu der beobachteten Härtesteigerung führen, und es liegen damit die wesentlichen Indizien für eine Ausscheidungshärtung durch Spaltprodukt-Ausscheidungen vor. Sie unterliegen nach Abb. 20 bei weiter steigendem Abbrand einer schnellen "Überalterung", d.h. einer Vergrößerung unter Härteabnahme, die sowohl durch eine starke Übersättigung des  $\text{UO}_2$  mit Spaltprodukten als auch durch den Zustrom von bestrahlungsbedingten Gitterleerstellen zu den Ausscheidungskeimen bedingt sein dürfte.

Oberhalb von etwa 1,4% Abbrand stellt sich eine Gleichgewichtshärte mit relativ breitem Streubereich ein. Sie liegt noch erheblich höher als die Härte des unbestrahlten  $\text{UO}_2$ , die  $\text{HV } 0,05 \approx 700 \text{ kp/mm}^2$  beträgt, und beruht wahrscheinlich z.T. auf der Härtungswirkung bestrahlungsbedingter Punktdefekt-Cluster im  $\text{UO}_2$ -Gitter. Das gilt ohne Einschränkung auch für die Gleichgewichtshärte unterhalb von etwa 0,5% Abbrand (s.a. [3]); dort ergibt sich eine wesentlich stärkere Bestrahlungshärtung durch Punktdefekt-Cluster, weil deren Ausheilung vor Beginn der Spaltprodukt-Ausscheidung schwieriger ist als nachher.

Bei Bestrahlungstemperaturen in der Umgebung von  $1500^{\circ}\text{C}$  liegt die Bestrahlungshärtung nach niedrigem Abbrand ( $\lesssim 0,3\%$ ) durch partielle Ausheilung der Punktdefekt-Cluster niedriger als für  $T < 1200^{\circ}\text{C}$ . Ein Härtemaximum ist früher, bei etwa 0,7% Abbrand, und weniger ausgeprägt zu beobachten, und die Gleichgewichtshärte nach höherem Abbrand scheint etwas größer zu sein. Das deutet auf eine gröbere Spaltprodukt-Ausscheidung bei geringerer Übersättigung hin, deren Härtungseffekt entsprechend weniger anfällig gegen eine Überalterung ist.

Bei relativ sehr hohen Bestrahlungstemperaturen von etwa  $1900 - 2100^{\circ}\text{C}$  war keine sicher erkennbare Bestrahlungshärtung mehr nachweisbar.

Zusammenfassend kann gefolgert werden, daß in  $\text{UO}_2$ -Brennstäben mit einer Hülltemperatur von etwa  $500^\circ\text{C}$  und einer Stableistung von etwa  $500\text{ W/cm}$  im Abbrandbereich von  $0,4 - 0,6\%$  ein Spaltprodukt-Ausscheidungsprozess einsetzt, der mit einer Ausscheidungshärtung des  $\text{UO}_2$ -Brennstoffes verbunden ist. Er erscheint nach  $1,5 - 2\%$  Abbrand für alle Spaltprodukte insofern voll ausgebildet, als dann ein Gleichgewicht zwischen Spaltprodukt-Erzeugung und -Ausscheidung besteht. Der Beginn der Spaltprodukt-Ausscheidung erfolgt - im Rahmen der angegebenen Abbrandgrenzen - im Tieftemperaturbereich ( $T < 1200^\circ\text{C}$ ) später und mit stärkerem Härtungseffekt als bei höheren Bestrahlungstemperaturen. Diese Spaltprodukt-Ausscheidungshärtung erfolgt jedoch schnell vorübergehend (bezügl. des Abbrandes) und ist daher für das Brennstabverhalten nur von geringer Bedeutung. Nach höheren Abbränden ( $> 3\%$ ) ist im  $\text{UO}_2$ -Brennstoff nur mit einer Härte von  $\text{HV } 0,05 \approx 900\text{ kp/mm}^2$  zu rechnen, die möglicherweise in der Brennstoffzone regulären Kornwachstums ( $T \approx 1350 - 1750^\circ\text{C}$ ) noch überwiegend durch Spaltprodukt-Ausscheidungen bedingt ist.

### Literatur

- [1] W. Dienst, H.L. Krautwedel  
Zählrohr-Goniometer für Röntgenfeinstruktur-Untersuchungen  
an neutronenbestrahlten Werkstoffen  
Kerntechnik 10, 1968, S. 46
- [2] W. Dienst  
Erzeugung, Nachweis und Ausheilung von Kristallgitter-Punktdefekten durch Neutronenbestrahlung von keramischen Werkstoffen.  
KFK-Bericht 1215, 1970
- [3] W. Dienst, D. Brucklacher  
Lattice defects by neutron irradiation in  $\text{UO}_2$ , UN and UC  
Proc. Int. Symp. Ceramic Nuclear Fuels, American Ceramic Soc.,  
Columbus 1969, S. 82

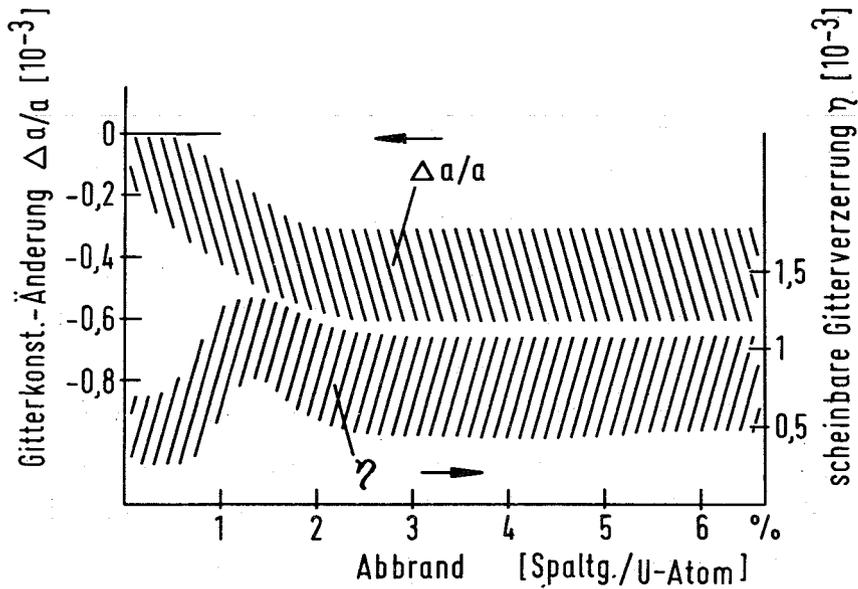


Abb. 19: Gitterkonstanten-Änderung und scheinbare Gitterverzerrung von  $\text{UO}_2$ , gemessen an Brennstab-Querschnitten, in Abhängigkeit vom Abbrand

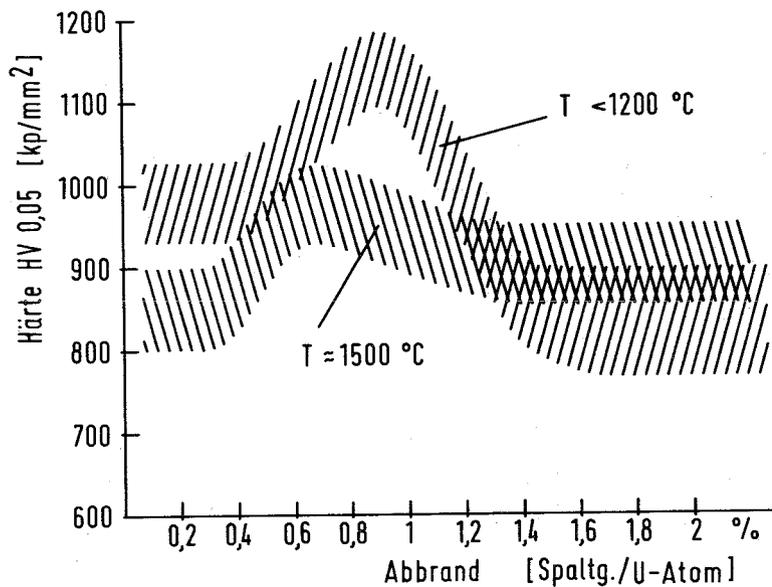


Abb. 20: Härte des Brennstoffes in bestrahlten  $\text{UO}_2$ - Brennstäben bei Raumtemperatur in Abhängigkeit vom Abbrand mit der Bestrahlungstemperatur als Parameter (Härte von unbestrahltem  $\text{UO}_2$  ca.  $700 \text{ kp/mm}^2$ )

1123 Bestrahlungen zur Erprobung des SNR-Brennstabkonzeptes im schnellen Neutronenfluß (Performance Tests) (G. Karsten, PSB-PL)

Im Februar sind in RAPSODIE zwei 34-Stab-Bündel mit SNR-Spezifikationen zur Bestrahlung eingesetzt worden. Zur Anwendung kommen die Hüllmaterialien Werkstoff Nr. 4988 und 4970. Der Zielabbrand beträgt 80 000 MWd/t.

Ebenfalls im Februar wurden im DFR drei "Treffoils" mit Stäben aus dem Experiment DFR 350 zur Weiterbestrahlung eingesetzt. Von diesen 9 Stäben stammten 6 von GfK und 3 von BelgoNucléaire. Sie sollten über den bereits erreichten Abbrand von 50 000 MWd/t hinaus bis zu 80 000 MWd/t bestrahlt werden. (Eines der GfK-Treffoils mußte im April aus dem DFR wieder entfernt werden, da bei einem der Stäbe ein noch nicht näher identifizierter Schaden aufgetreten war).

1124 Brennstäbe mit karbidischem bzw. nitridischem Brennstoff

1124.1 Verfahrens- und Geräteentwicklung

1124.11 Herstellung im Labormaßstab

Herstellung von UN-Pellets (H. Wedemeyer, IMF)

In Abhängigkeit von der Reaktionszeit und der Temperatur werden bei der Fa. Nukem durch carbothermische Reduktion von  $UO_2$  unter strömendem Stickstoff UN-Pulver gewonnen, die mehr oder weniger mit  $UO_2$  und Kohlenstoff verunreinigt sind, sogenannte vorreagierte Pulver:

1. 1800 °C/30 min: N = 3,2%, C = 4,6%, O = 2,8%
2. 1800 °C/180 min: N = 3,9%, C = 1,2%, O = 1,2%.

Die durchgeführten Versuche zur Verdichtung dieser Pulver durch Reaktions-sintern erbrachten keine befriedigenden Ergebnisse.

### 1. Vorreagiertes Pulver: 1800 °C/30 min

Nach Sinterzeiten bis zu 48 Stunden bei 1800 - 1900 °C in strömendem Stickstoff beträgt die erzielte Enddichte der Pellets 75 - 80% TD. Die Dichteverteilung im Pellet ist inhomogen; neben Bereichen geringer Dichte entstehen Inseln hoher Verdichtung, die wahrscheinlich auf eine Mischkristallbildung (UN-UO<sub>2</sub>) mit bevorzugten Sintereigenschaften zurückzuführen sind. Während des Aufheizens setzt bei 1300 - 1350 °C im Vakuum die weitere Reduktion des UO<sub>2</sub> zu UN und CO ein. Das entstehende CO verhindert offensichtlich die weitergehende Verdichtung der Pellets. Ein nennenswerter Teil des Kohlenstoffs reagiert während des Sinterns nicht, so daß im fertiggesinterten Pellet neben UO<sub>2</sub> auch freier Kohlenstoff als Verunreinigung vorliegt. Eine Variation der Vorsinterzeit im Vakuum bei 1350 °C mit dem CO-Druck bis zum völligen Druckabbau (10<sup>-5</sup> Torr) ergibt nach dem Fertigsintern bei 1800 - 1900 °C im strömenden Stickstoff Pelletdichten von 80 - 85% TD. Auch hier werden Inseln hoher Dichte und neben UO<sub>2</sub> freier Kohlenstoff als Verunreinigung beobachtet.

### 2. Vorreagiertes Pulver: 1800 °C/180 min

Diese Pulver sind gut pressbar und lassen sich bei einer Sinterzeit von etwa 12 h bei 1750 °C unter 80 Torr Stickstoff auf >90% TD (bezogen auf UN) verdichten. Die Dichteverteilung im Pellet ist homogen (keine Inselbildung); es liegen jedoch nennenswerte Verunreinigungen an UO<sub>2</sub> (15 - 20% UO<sub>2</sub>) in zweiter Phase vor. Die hohe Verdichtung läßt sich wahrscheinlich wieder auf eine UN-UO<sub>2</sub>-Mischkristallbildung in der Sinterhitze zurückführen.

Gegenüber dem Reaktionssintern lassen sich offenbar wesentlich bessere Ergebnisse durch das Verdichten nachbehandelter, vorreagierter Pulver aus der carbothermischen Reduktion erzielen. Wird das vorreagierte Pulver (1800 °C/180 min) mit einem Zusatz von 0,2-0,6% Kohlenstoff einige Stunden bei 1350 °C unter Stickstoff stationär geglüht, so erhält man ein UN-Pulver, bei dem röntgenographisch (Guinier-Aufnahmen) kein UO<sub>2</sub> nachweisbar ist. Beim Sintern unter strömendem Stickstoff (1750 °C/12 h) werden Pelletdichten von 80 - 85% TD erzielt. Die Pellets sind homogen verdichtet und einphasig; röntgenographisch läßt sich kein UO<sub>2</sub> nachweisen. Wird das vorreagierte Pulver (1800 °C/180min) mit einem Zusatz von Kohlenstoff

einige Stunden bei 1000 - 1200 °C unter strömendem Stickstoff geglüht, so erhält man zunächst  $U_2N_3$ , das anschliessend im Vakuum bei 1100 °C zu UN umgewandelt werden kann. Dieses Pulver hat pyrophore Eigenschaften, kann aber nach dem Erkalten dem Ofen unter Dekalin entnommen werden. Das Pulver ist gut pressbar und kann bei 1700 - 1750 °C unter einem stationären Druck von 80 Torr Stickstoff oder im dynamischen Vakuum von etwa  $10^{-2}$  Torr zu > 90% TD verdichtet werden. Die gesinterten UN-Pellets sind metallographisch einphasig, röntgenographisch wird kein  $UO_2$  nachgewiesen, die mittlere Korngröße beträgt 50 - 100  $\mu$ . Diese Ergebnisse sind nach ersten Versuchen erhalten worden und als unvollständig anzusehen. Ihre Reproduzierbarkeit muß noch durch entsprechende Versuchsreihen und größere Chargen bestätigt werden.

Herstellungsmethoden von Mischkarbiden und -nitriden (H. Blank, R. Lesser, Eur. Transurane-Institut)

Die Methoden zur Herstellung von (U,Pu)C wurden weiterentwickelt und gestatten die Einhaltung der für verschiedene Bestrahlungsexperimente geforderten Brennstoffspezifikationen. Besondere Schwerpunkte waren die Untersuchung des Einflusses

- der Qualität des für die Karboreduktion verwendeten Kohlenstoffs,
- der Reaktions- und Sinterzeiten,
- der Reaktions- und Sintertemperaturen,
- der Mahldauer und der sich ergebenden Korngrößenverteilung nach der Reaktionsstufe,
- der Plutoniumverluste

auf die Qualität, d.h. den Verunreinigungsgrad (O,N, andere Phasen), die Homogenität, die Dichte, usw.

Als Einzelergebnis sei erwähnt, daß sehr saubere, stickstoffarme Karbide durchaus in Handschuhkästen mit Stickstoffatmosphäre hergestellt und verarbeitet werden können, vorausgesetzt der Feuchtigkeitsgehalt ist gering, d.h. etwa 60 ppm oder weniger.

Die labormäßige Karbid-, bzw. Nitridherstellung (aus Pu und U-Metall) läuft. Alle vorgesehenen Geräte und Apparaturen sind in Betrieb.

Sauerstoff-modifizierte Mischkarbide wurden im Rahmen der Produktion von Material für die FR2-Kapsel-Versuchsgruppe 6 hergestellt. Zur Verbesserung der verwendeten Methoden sind weitere Untersuchungen erforderlich. Insgesamt wurden für die Versuchsgruppen 6a, c und d etwa 5 kg (U,Pu)C-Tabletten und für die Loop-Versuchsgruppe 4 etwa 1 kg entsprechende (U,Pu)C-Tabletten den Spezifikationen gemäß bereitgestellt.

Für zwei Stäbe der Versuche BR2-Mol 11 A-N1 und N2 wurden (U,Pu)N-Pellets gemäß den Spezifikationen hergestellt und in die Hüllrohre eingefüllt. Nach Elektronenstrahlschweißen der Kappe und den abschließenden Tests wurden die Stäbe ausgeliefert.

#### 1124.12 Herstellung von Brennstoffen und Brennstäben im Industrieverfahren

Probeproduktion von Urankarbid-Brennstofftabletten unter Pu-Bedingungen  
(P. Funke, W. Knobloch, G. Mühlring, ALKEM)

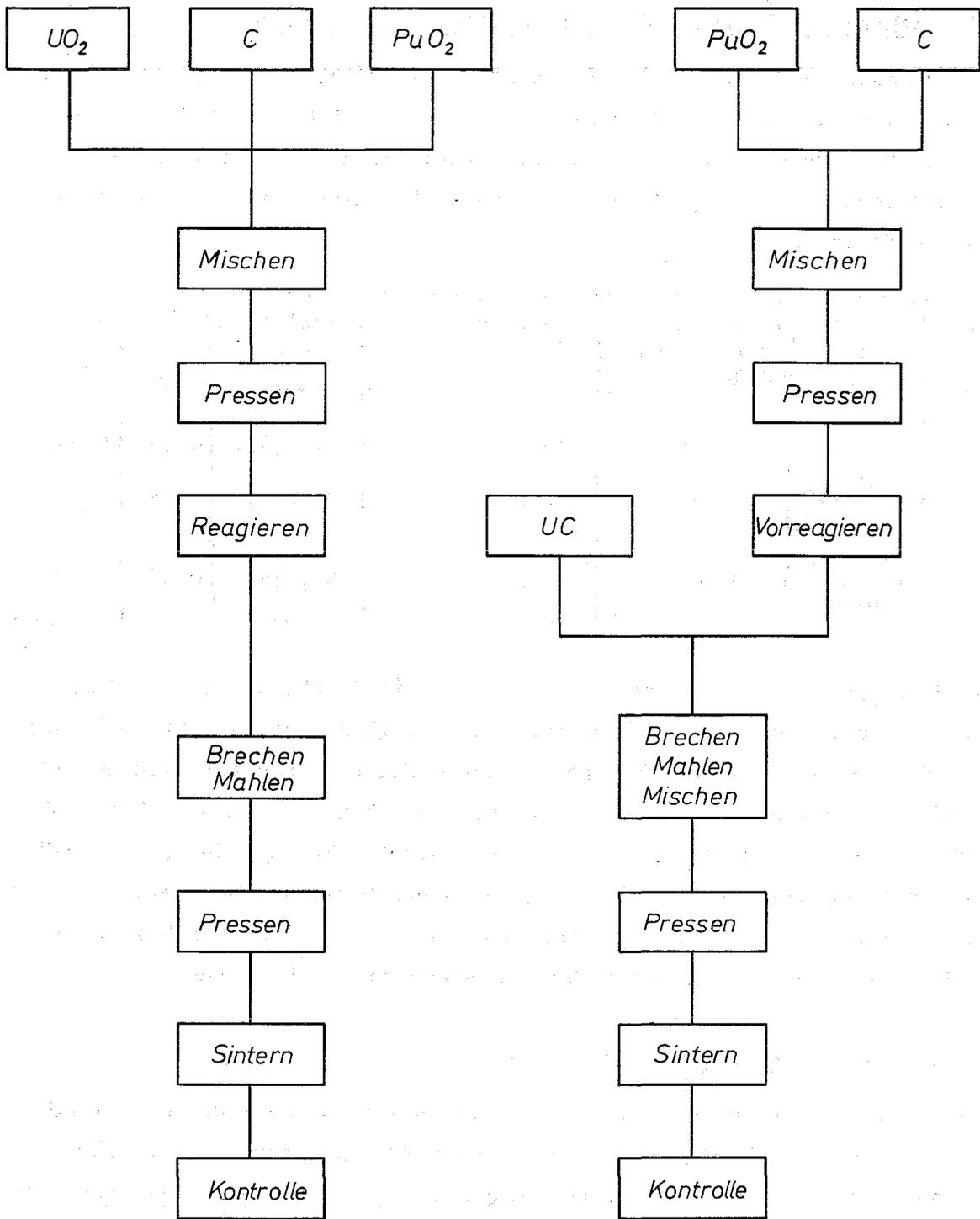
Nach dem Aufbau einer neuen Fertigungslinie zur Herstellung von karbidischen Brennstoffen in Wolfgang bei Hanau wurde zunächst eine Probenproduktion mit Urankarbid aufgenommen. Die Probeproduktion hatte die Erprobung der Fertigungslinie unter echten Pu-Bedingungen<sup>+)</sup> sowie eine erste Verfahrensentwicklung zum Ziel. Es war während der Probeproduktion möglich, Versuche zu zwei Verfahrensvarianten durchzuführen, die im folgenden näher beschrieben werden.

##### 1. Karboreduktion des Oxids

Bei der Karboreduktion müssen im wesentlichen zwei Stufen unterschieden werden: die Synthese des Karbids mit anschließender Pulverherstellung sowie die Weiterverarbeitung des Pulvers zu gesinterten Tabletten (Abb. 21).

---

+) Inertgasversorgung der Boxen, Kontrolle der Inertgasatmosphäre, Unterdruckregelung, Erprobung der Sicherheitsvorkehrungen, Funktionstest aller Geräte.



(a)

(b)



Fließschema  
 Karboreduktion, Reaktionsinterverfahren

Abb.21

### 1.1 Synthese von Urkarbid und Herstellung von UC-Pulvern

Zur Synthese wurden  $UO_2$ -C-Preßlinge mit einer Dichte von  $\sim 4,5 \text{ g/cm}^3$  hergestellt und in einem Hochtemperaturofen bei  $1500 \text{ }^\circ\text{C} - 1550 \text{ }^\circ\text{C}$  reagiert. Die Synthese wurde sowohl im Vakuum als auch unter strömendem Argon durchgeführt. Tab. 1 zeigt die Versuchsbedingungen und die analytischen Ergebnisse:

Ver- suchs Nr.	Vakuum oder Argon	max. Druck- anstieg bzw. CO-Konz.	Reaktions- dauer	Analysergebnisse			
				% U	% C	% O	% N
1	$10^{-4}$ Torr	1 Torr	13 h	94,6	4,9	0,33	0,17
2	$10^{-4}$ Torr	8 Torr	8 h	94,6	4,9	0,45	0,03
3	770 Torr (Argon 7 Nl/h)	1,3%CO	13 h	94,3	5,4	0,53	0,07

Der Vergleich der Analysenwerte zeigt, daß die Synthese unter strömendem Argon hinsichtlich des Reaktionsgrades ungünstiger ist. Die bei gleichen Einwaagen erhaltenen höheren C- und O-Werte weisen auf noch unvollständige Umsetzung bei der Reaktion unter Ar hin. Die beim 2. Versuch verkürzte Reaktionszeit erbrachte keine Verschlechterung des erhaltenen Reaktionsproduktes gegenüber der 13-stündigen Umsetzung bei Versuch 1, ist aber wirtschaftlich gesehen wesentlich günstiger, so daß wir bei den folgenden Umsetzungen nach dieser Verfahrensvariante arbeiteten.

### 1.2 Herstellung gesinterter Tabletten

Das Pressen von UC-Grünlingen ohne jeden Zusatz von Schmier- oder Bindemitteln erwies sich als unmöglich. Deshalb wurden Untersuchungen über geeignete Binde- und Schmiermittel durchgeführt. Zur Plastifizierung wurden bisher Carbowax 4000 und Zinkstearat verwendet. Carbowax wurde in Tetrachlorkohlenstoff gelöst, während mit Zinkstearat trockene Mischungen hergestellt wurden. Tab. 2 zeigt die angewandten Platifizierungsverhältnisse mit den entsprechenden Grünlingsdaten:

Tab. 2

Bindemittel- zugabe [Gew. %]	Preß- kraft [t]	Höhe [mm]	Grünlings- dichte [g/cm <sup>3</sup> ]	Hantierbarkeit
1,50 w/o	4,0	12,93 <sup>+0,43</sup> -0,63	8,78 <sup>+0,09</sup> -0,12	gut
1,25 w/o	4,0	13,13 <sup>+0,25</sup> -0,43	8,84 <sup>+0,01</sup> -0,02	gut
1,00 w/o	4,0	13,21 <sup>+0,66</sup> -0,31	8,78 <sup>+0,30</sup> -0,40	gut
0,75 w/o	4,0	13,74 <sup>+0,33</sup> -0,99	8,88 <sup>+0,10</sup> -0,08	gut
	Carbowax			
1,25 w/o	3,0	12,10 <sup>+0,26</sup> -0,60	9,44 <sup>+0,03</sup> -0,05	gut
1,00 w/o	3,0	10,89 <sup>+0,28</sup> -0,21	9,47 <sup>+0,03</sup> -0,03	gut
0,75 w/o	3,0	12,33 <sup>+0,57</sup> -0,70	9,48 <sup>+0,09</sup> -0,06	schlecht
	Zinkstearat			

Die plastifizierten Grünlinge wurden in einem speziellen Entwachsungs-  
ofen unter strömendem Gas (untersucht wurden Argon reinst, Helium reinst)  
vom Bindemittel befreit. Die Versuche fielen alle negativ aus, die Ta-  
bletten waren nach dem Entwachsungsvorgang oxidiert. Sehr wahrscheinlich  
war der Sauerstoffgehalt in den Spülgasen noch zu hoch, so daß eine Nach-  
reinigung der Gase notwendig ist.

Weitere Versuche wurden aber zu diesem Zeitpunkt nicht durchgeführt, da  
es inzwischen gelungen war, durch bloßes Schmieren der Matrize hantierbare  
Tabletten herzustellen. Als Schmiermittel wurde bei den Versuchen Paraffin-  
öl und Stearinsäure, gelöst in CCl<sub>4</sub>, verwendet. Die Stearinsäure-Lösung  
erwies sich dabei als geeignetes Schmiermittel. Die damit hergestellten  
Tabletten hatten sowohl als Grünlinge wie auch als Sinterlinge eine bessere  
Oberfläche.

Tab. 3 zeigt die Grünlingsdaten bei verschiedenen Preßkräften:

Preßkraft [ t ]	Durchmesser [ mm ]	Höhe [ mm ]	Grünlingsdichte [ g/cm <sup>3</sup> ]
1,5	10,05 +0,02 -0,01	12,90 +0,6 -0,5	8,90 +0,05 -0,02
2,0	10,06 +0,01 -0,01	12,65 +0,19 -0,30	9,07 +0,04 -0,10
2,5	10,07 +0,01 -0,01	12,47 +0,15 -0,15	9,20 +0,05 -0,05
3,0	10,07 +0,01 -0,01	12,36 +0,27 -0,18	9,24 +0,04 -0,02
4,0	10,08 +0,02 -0,01	12,08 +0,5 -0,6	9,38 +0,04 -0,12

Im gleichen Ofen, in dem auch die Synthese durchgeführt wird, wurden die Grünlinge im Vakuum von  $<10^{-4}$  Torr gesintert. In Abb. 22a ist die bei den Versuchen erreichte Sinterdichte als Funktion der Sintertemperatur mit unterschiedlichen Grünlingsdichten als Parameter aufgetragen.

Bei diesen Versuchen wurde gefunden, daß es eine sehr starke Abhängigkeit der Sinterdichte über die Länge des Ofens gibt. In einem gezielten Versuch wurde diese Abhängigkeit näher untersucht. Das Ergebnis zeigt Abb. 22b.

Von den vorhandenen sieben Chargieretagen sind nur die obersten 4 für ein einheitliches Sintern verwendbar.

## 2. Reaktionssinterverfahren

Als Verfahrensvariante, die sich nach den bisherigen Ergebnissen vor allem zur Herstellung niedrig dichter Tabletten eignet, wurde das Reaktionssinterverfahren, das bei Nukem entwickelt wurde, untersucht. (Abb. 21b)

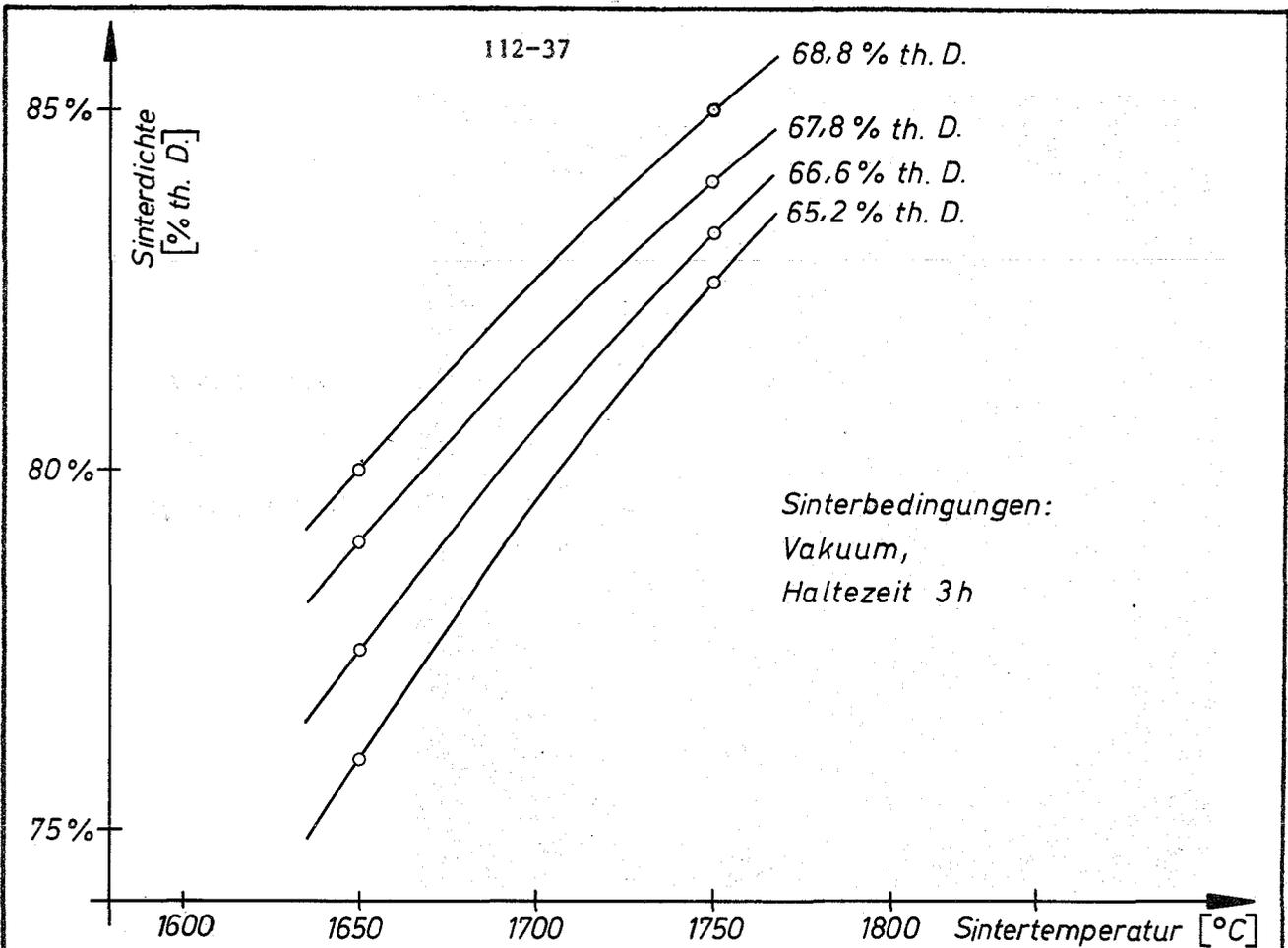


Abb. 22a

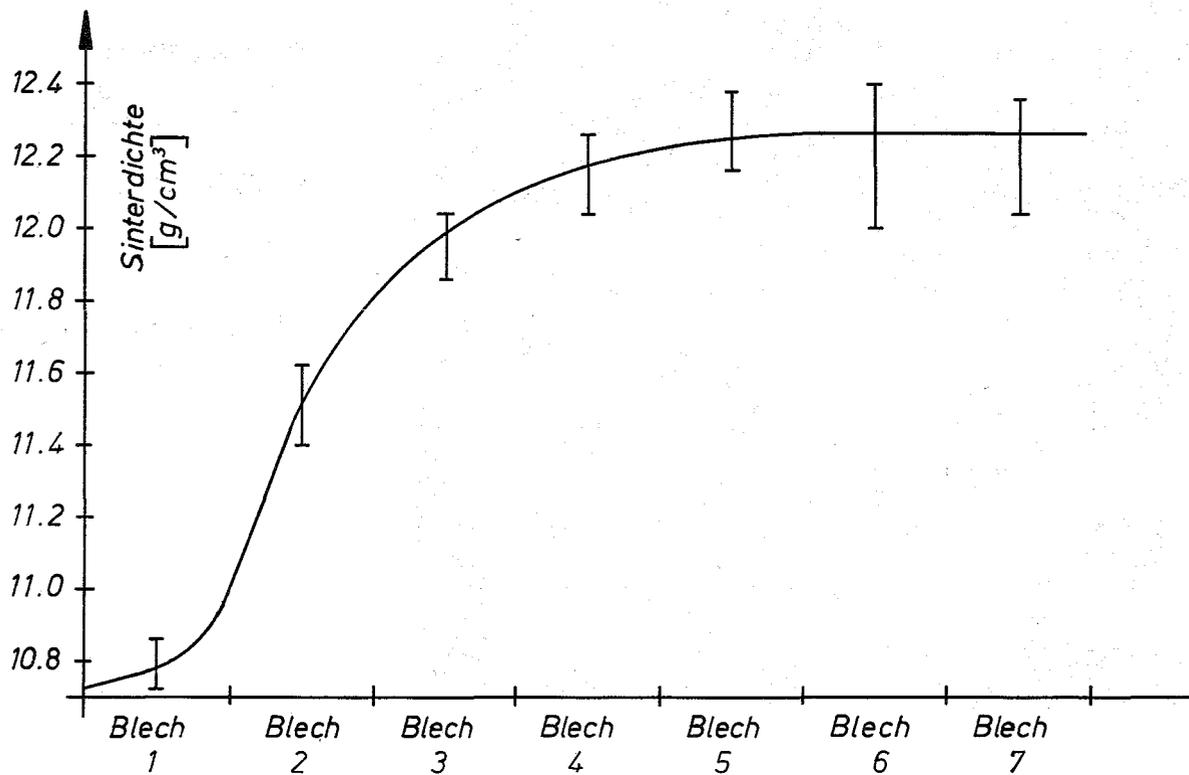
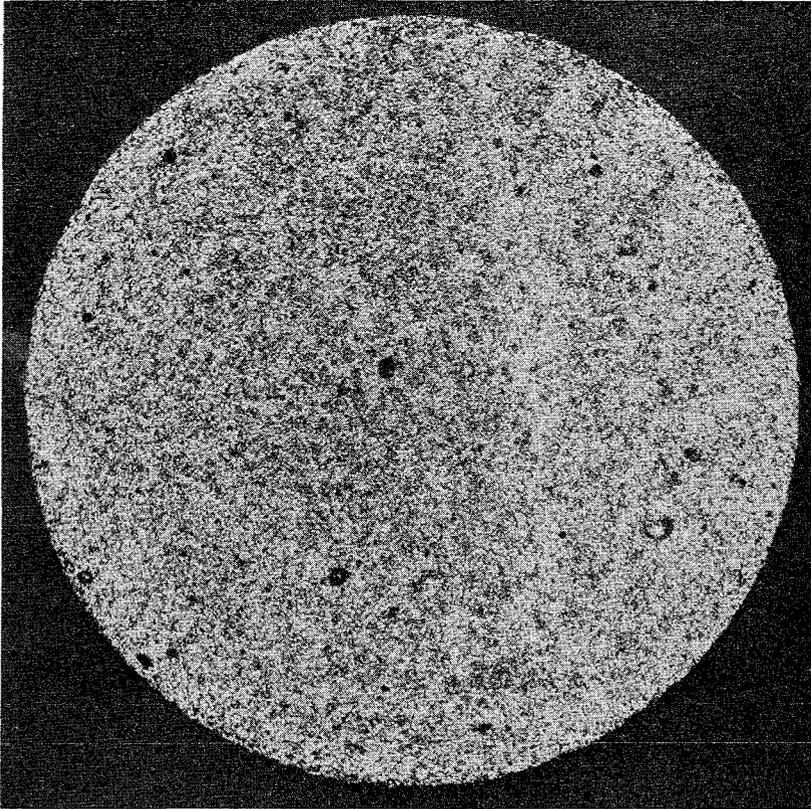


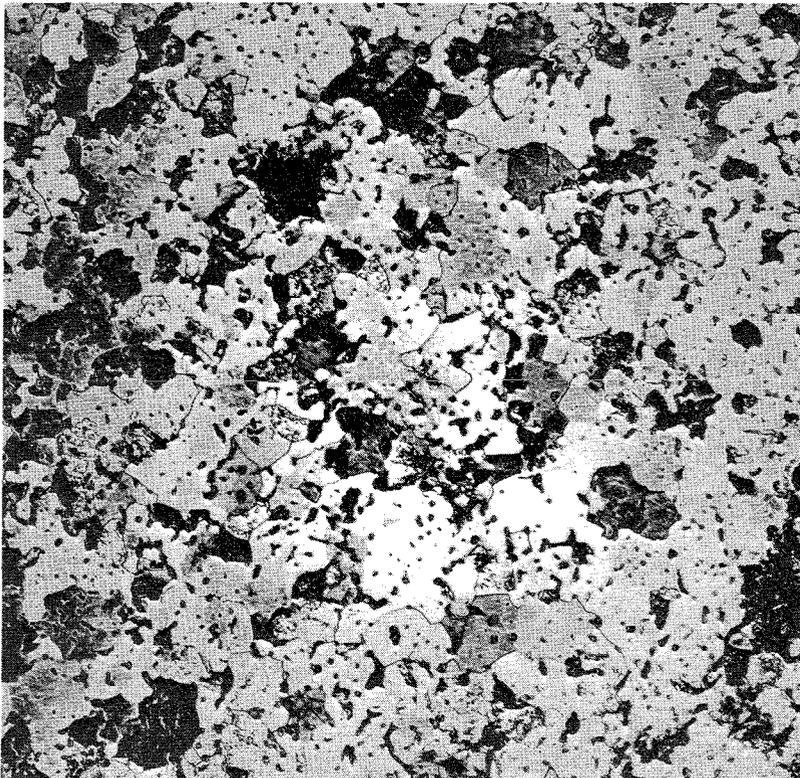
Abb. 22b



a. Sinterdichte als Funktion der Sintertemp.  
b. Sinterdichte in verschiedenen Ofenetagen



Vergrößerung  
10 x ,Dichte  
= 90 % th. D.



Vergrößerung  
300 x ,Dichte  
= 90 % th. D.  
geätzt  
 $HNO_3 : H_2O : CH_3COOH$   
1 : 1 : 1



Keramographische Schliffe von UC-Pellets  
nach Carboreduktion gesintert

Abb. 23

### 2.1 Herstellung des vorreagierten UC

Das vorreagierte PuC wurde bei der Probeproduktion durch entsprechend vorreagiertes UC simuliert. Die Herstellung des vorreagierten UC erfolgte durch Synthese bei 1300 °C und einer Haltezeit von zwei Stunden. Ein typisches Analysenergebnis des vorreagierten UC ist in Tab. 4 wiedergegeben:

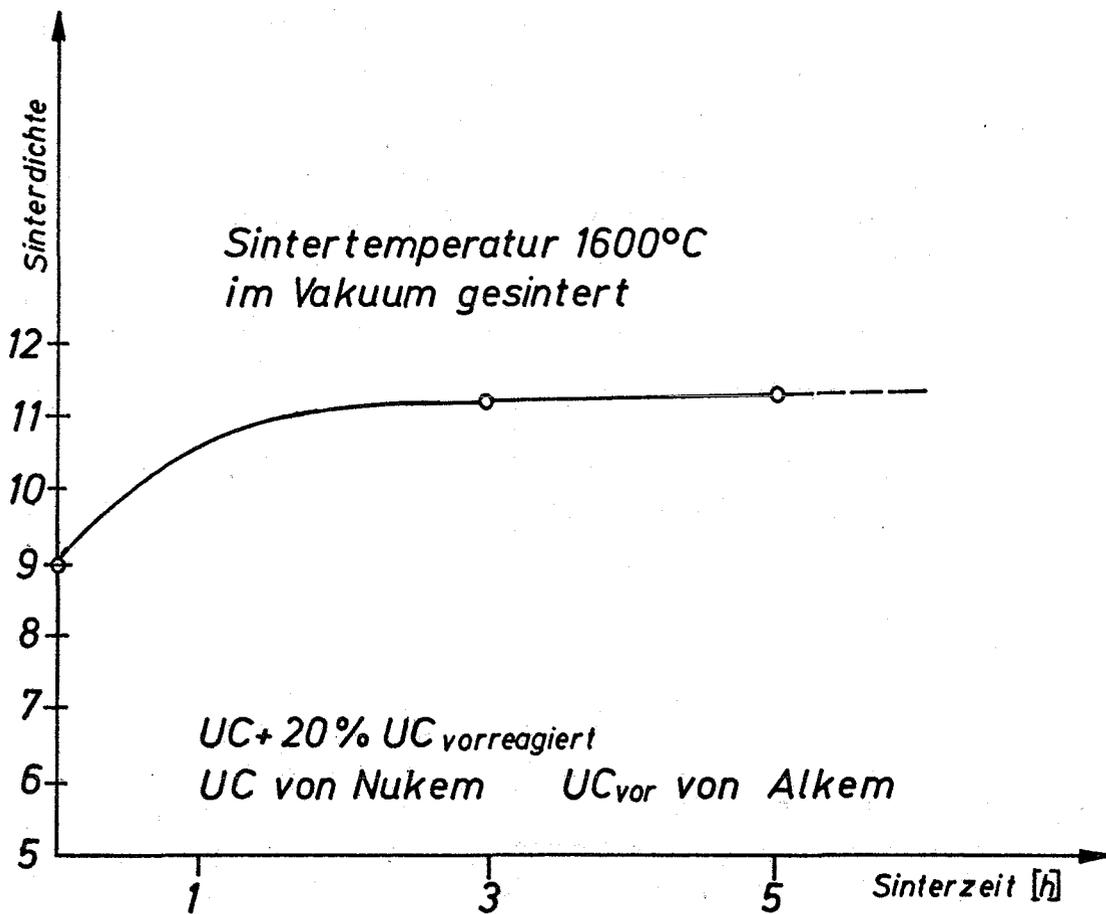
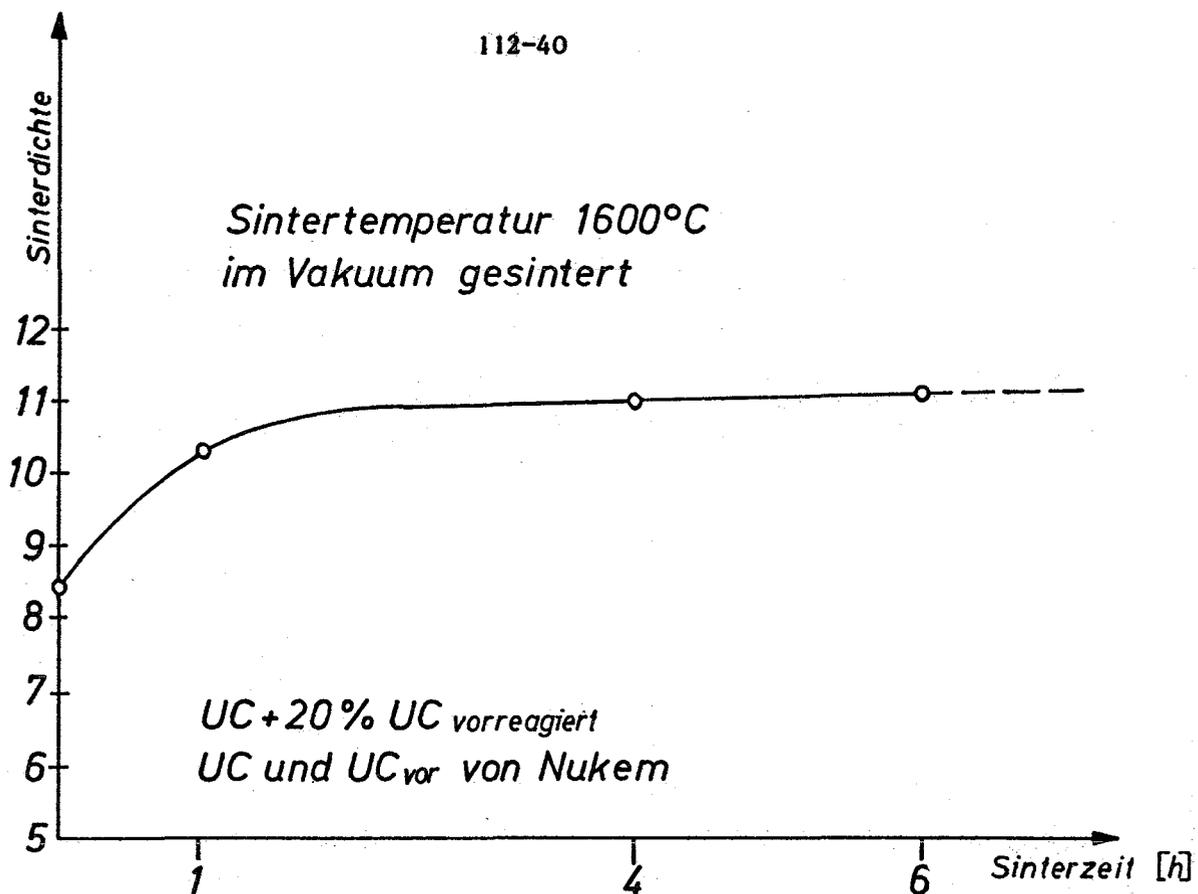
U	C	O	N
[ % ]	[ % ]	[ % ]	[ % ]
91,19	5,40	2,87	0,05

### 2.2 Herstellung reaktionsgesinterter Tabletten

Für einen Vergleich der Versuchsbedingungen zwischen Nukem und Alkem wurde in der Plutonium-Linie UC einmal mit vorreagiertem UC von Nukem und einmal mit vorreagiertem UC von Alkem gemischt, gepreßt und gesintert. Die Versuchsbedingungen wie Synthesereaktion, Mahldauer, Mahlart (vorreagiertes UC wurde im Mörser zerrieben) und Sinter Temperatur waren in beiden Fällen die gleichen.

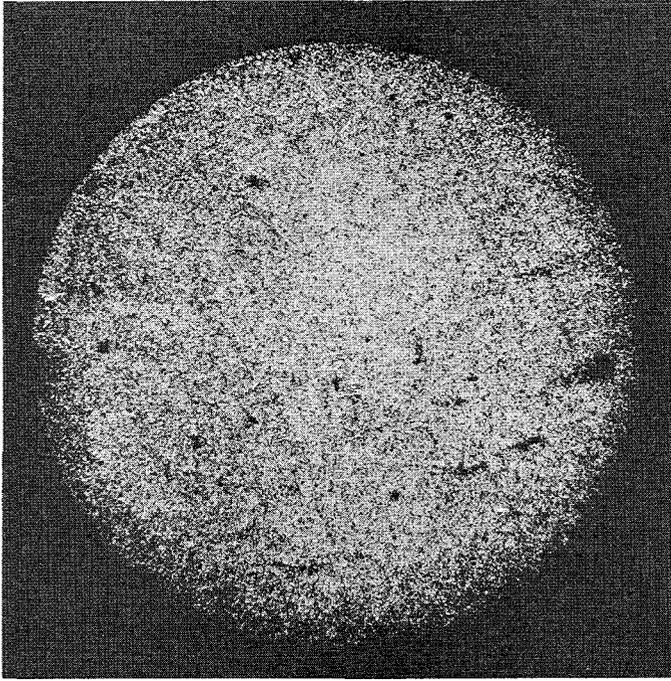
Tab. 5 zeigt die Grünlings- und Sinterlingsdaten der beiden Mischungen:

Sintertemperatur 1600 °C Haltezeit 5 h	UC +20% UC vorreag. (Nukem)	UC + 20% UC vorreag. (Alkem)
Grünl. Dichte [ g/cm <sup>3</sup> ]	8,45 +0,09 -0,21	9,02 +0,06 -0,05
% + U.D.	62,1 +0,7 -1,5	66,3 +0,3 -0,3
Sinterl. Dichte [ g/cm <sup>3</sup> ]	11,12 +0,18 -0,22	11,30 +0,15 -0,14
% th. D.	81,6 +1,4 -1,6	83,6 +1,0 -1,0



Sinterdichte in Abhängigkeit von  
Sinterzeit

Abb. 24

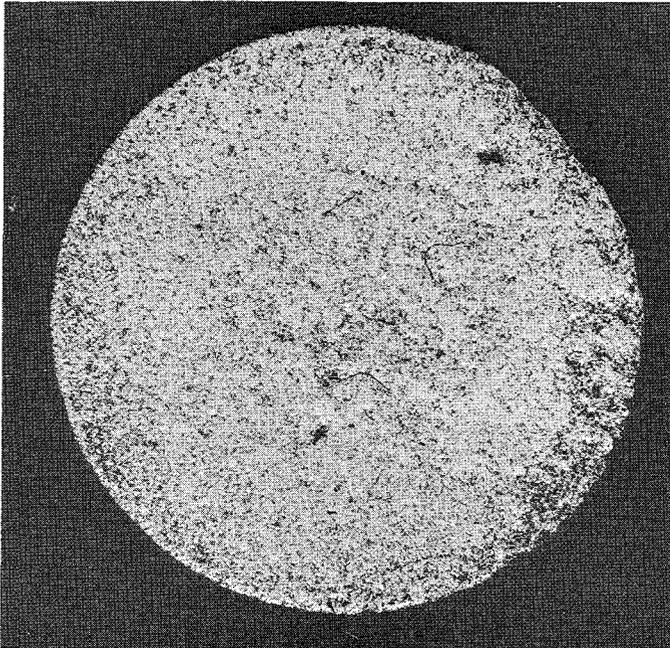


Vergrößerung 10x

UC + 20% UC  
vorreagiert

beide Materialien  
von Nukem

Dichte: 82% th. D.



Vergrößerung 10x

UC + 20% UC  
vorreagiert

UC von Nukem

UC<sub>vor.</sub> von Alkem

Dichte: 84% th. D.



Keramographische Schliffe von UC-Pellets  
nach dem Reaktionssinterverfahren

Abb. 25

Die eingetragenen Sinterdichten wurden erst durch Nachsintern erreicht. Die Abhängigkeit der Sinterdichte von der Sinterzeit ist in Abb. 24 graphisch dargestellt. Die Ergebnisse beider Versuchsreihen stimmen fast überein, das Reaktionssinterverfahren ist danach also vor allem zur Herstellung von Tabletten mit Dichten zwischen 82 und 85% th. D. geeignet. Eine noch nicht geklärte Frage ist die der Pu-Verteilung und der U-Pu-Mischkristallbildung, die möglicherweise gegenüber der gemeinsamen Karboreduktion ungünstiger sein wird.

#### Entwicklung einer Spezifikation für den Karbid/Nitridbrüterstab

(H. Fiedler, AEG)

Eine Auswertung von Bestrahlungsexperimenten mit (UPu)-Karbiden und -Nitriden während des Zeitraumes ab etwa 1968 bis 1970 zeigte folgende wichtige Ergebnisse:

#### Mischkarbid

Schwellraten:

Beim Na-Bindungskonzept wurden Schwellraten von 2,7 bis 3 v/o pro  $10^4$  MWd/tM (LASL) und 4,9 v/o (Cr-mod.) jeweils pro  $10^4$  MWd/tM Abbrand gemessen (Westinghouse). Dabei betragen die Zentraltemperaturen 1000 - 1150 °C, die Hüllrohrwandstärke betrug 0,25 mm (LASL) bzw. 0,3 mm (Westinghouse).

Bei Westinghouse-Experimenten zeigte sich, daß die Pellets zerbrochen waren und einzelne Bruchstücke während der Bestrahlung mit der Hülle in Kontakt kamen und so die Na-Bindung überbrückten. Außerdem hatten sich diese Brennstoffstücke untereinander verkeilt und beim Schwellen Hüllaufweitungen hervorgerufen.

Dagegen geht aus ersten Untersuchungen der UNC-Bestrahlungen hervor, daß nur 2/3 des 760  $\mu$  diametralen Spaltes durch Schwellen verbraucht waren (Abbrand 50 000 MWd/tM, Stableistung 820 W/cm).

Bei den Experimenten mit He-Bindung wurde der Brennstoff stets mehr oder weniger durch die Rückstellkraft der Hüllen (Wandstärke meist  $\geq 0,5$  mm) am Schwellen gehindert. Dabei hat sich gezeigt, daß Incoloy-800 etwas duktiler ist als SS 316. Weiter hat sich bei UNC-Experimenten herausgestellt, daß homogen verteilte Poren (Sinterdichte 84% T.D.) das Schwellvolumen des Brennstoffes nicht aufnehmen können.

#### Spaltgasfreisetzung:

Es hat sich gezeigt (Westinghouse), daß aus Fe-modifiziertem und hypostöchiometrischem Brennstoff doppelt soviel Spaltgas freigesetzt wird wie aus Cr-modifiziertem (UPu)C.

#### Abbrand:

Die höchsten erreichten Abbrände lagen mit Na-Bindung bei 45 000 MWd/TM (LASL) im schnellen Fluß und bei 53 000 MWd/tM (Westinghouse) im thermischen Fluß. Mit He-Bindung wurden ca. 80 000 M.d/tM mit Pulver und Pellets erreicht, wobei - im Gegensatz zur Na-Bindung - die Ausfallrate bei vergleichbaren Abbränden deutlich höher lag.

#### Mischnitrid

##### Schwellraten:

Die gemessenen Schwellraten lagen erheblich unter denen des Karbids: max. 2 v/o pro  $10^4$  MWd/tM bei 1000 - 1300 °C Zentraltemperatur. Bei den Experimenten mit Na-gebundenen Stäben traten keinerlei Hüllbeanspruchungen auf. Bei den He-gebundenen Stäben traten meist Hüllrohrschäden auf (der He-Spalt war kleiner als 25  $\mu$  diametral).

Die ermittelten Schwelldaten zeigen keinen erkennbaren Einfluß von Schmier- bzw. Sinterdichte, Hüllrohr-Rückstellkraft und Bindungsart.

##### Spaltgasfreisetzung:

Bei allen Proben waren die Freisetzungsraten sehr niedrig (bei Temperaturen von 1000 - 1300 °C sicherlich kleiner als bei Karbid).

Abbrand:

Im ETR wurden Spitzenabbrände nahe 150 000 MWd/tM erreicht, im EBR-II sind Abbrände bis 100 000 MWd/tM geplant.

Nach den bisherigen Bestrahlungserfahrungen scheint Mischnitrid gegenüber dem Mischkarbid einige wesentliche Vorteile aufzuweisen, wie niedrige Schwellrate, Stabilität selbst bei Temperaturen  $>2000\text{ }^{\circ}\text{C}$ , keine strukturellen Veränderungen.

#### 1124.13 Entwicklung von Brennelementkomponenten

##### Na-Einfülltechnik (N. Henzel, AEG)

Es wurde ein improvisiertes Verfahren zur Herstellung natriumgebundener Brennstäbe entwickelt und unter Verwendung von Nickel-Pellets zur Brennstoffsimulation erprobt.

Hüllrohre aus dem Werkstoff Nr. 4988 in den für Verträglichkeitsproben vorgesehenen Abmessungen (Länge 138 mm, lichter Durchmesser 7,1 mm, Wandstärke 0,45 mm) wurden zunächst mit einem unteren Endstopfen aus dem gleichen Material verschweißt, dann entfettet, mit einer Netzmittellösung behandelt, anschließend innen reduzierend gebeizt, mit heliumgesättigtem Wasser klargespült, getrocknet, mit Helium geflutet und provisorisch verschlossen. Die so vorbereiteten Rohre wiesen keinen über das beim Beizen übliche Maß hinausgehende Lochfraß auf. Sie wurden in eine Glovebox eingeschleust, deren Schutzgasatmosphäre (Helium)  $<5\text{ ppm O}_2$ ,  $<3\text{ ppm H}_2\text{O}$  und  $<10\text{ ppm N}_2$  enthielt.

Dort wurde in jedes Rohr zunächst ein kurz zuvor aus geschmolzenem Natrium in einer Form aus Degussit AL 23 gegossenes zylindrisches Pellet von etwa 6,5 mm Durchmesser und etwa 28 mm Höhe in fester Form eingebracht.

Das jeweils kontrollierte Gewicht dieses Pellets war so bemessen, daß das Natriumvolumen ausreichen sollte, um den vorgesehenen radialen Spalt von 0,4 mm Breite 80mm hoch zu füllen und zusätzlich einen Überstand von etwa 6 mm oberhalb der Pelletsäule zu ergeben. Auf dieses Natrium-Pellet wurden in jedes Rohr je 10 Nickel-Pellets mit ca. 6,3 mm Durchmesser und ca. 8 mm Höhe geschichtet. Nach sorgfältiger Reinigung der oberen Schweißzone wurden die Rohre mit den auf Preßsitz eingeschlagenen oberen Endstopfen und dann mit gummigedichteten Verschlüssen aus Plexiglas versehen, auf diese Weise geschützt, zur Schweißmaschine transportiert und dort unter Argon verschweißt.

Die verschlossenen Rohre wurden einer Abmessungskontrolle, einer Röntgenprüfung der Schweißnähte und einem Helium-Lecktest unterworfen. Sie erwiesen sich als spezifikationsgerecht. Eine abschließende durch Vibration unterstützte Wärmebehandlung - zonenweises Aufheizen auf 600 °C und langsames Abkühlen auf Zimmertemperatur unter Schutzgas - diente zur Herstellung der Natriumbindung. Eine anschließende Röntgenprüfung der "eingefrorenen Pelletsäule" ließ keine Bindungsfehler erkennen. Eine Blasenprüfung nach dem Wirbelstromverfahren zeigte keine Gaseinschlüsse im Natrium > 1 mm<sup>2</sup>.

Die massenspektrometrische Analyse des Füllgases im Plenum eines Testrohrs lieferte die Zusammensetzung: 99,6 Gew. % He, 0,3 Gew. % Ar, 0,1 Gew. % N<sub>2</sub>. Zwei weitere Rohre wurden erneut in die Glovebox eingeschleust und dort geöffnet.

Das beigelegte Bild läßt einen ausgezeichneten Kontakt des Natriums mit Nickel-Pellets und Hüllrohrwand erkennen.

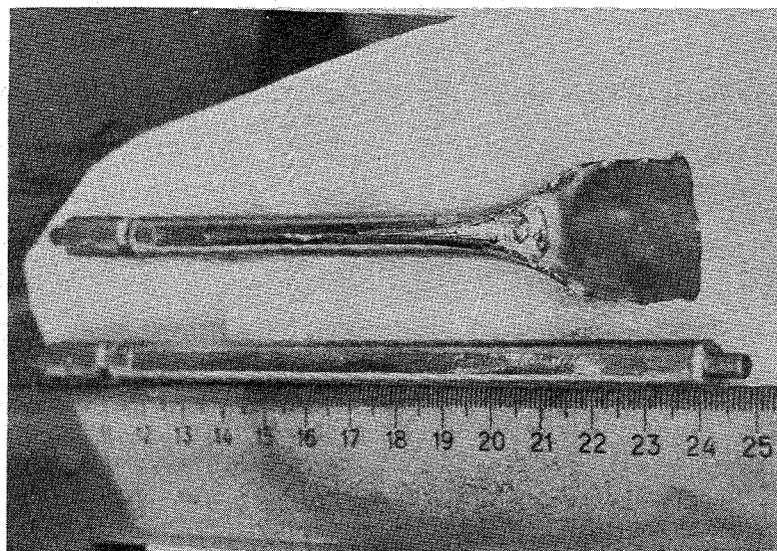


Abb. 26

Die erreichte Bindung war so gut, daß sich das Natrium nicht mechanisch entfernen ließ. Die Analyse auf Sauerstoff mußte daher am Verbund Hüllrohr + Natrium + Nickel-Pellets durchgeführt werden. Sie lieferte im Mittel 136 ppm O<sub>2</sub>; die Natrium-Pellets enthielten vor der Füllung im Mittel 42 ppm O<sub>2</sub>.

Abgesehen von der etwas unsicheren Blasengröße liegen somit die Verfahrensergebnisse innerhalb der spezifizierten Grenzen.

### Thermodynamik und Thermohydraulik der Na-Bindung

(R. Schöneberg, AEG)

#### Sicherheitsaspekte der Spaltgasfreisetzung in den natriumgebundenen, (U, Pu)C-gefüllten Brennstäben eines Schnellen Brütters.

Spaltgas- oder auch Fertigungsblasen in der Bindung können zu ernsthaften Störungen in der Wärmeabfuhr aus dem Brennstab führen. Im vorliegenden Berichtszeitraum wurden die in der Literatur existierenden Modellvorstellungen zur Spaltgasfreisetzung untersucht und die unter diesem Aspekt erfolgten Bestrahlungsexperimente von Hochleistungsbrennstoffen zusammengestellt. Danach ist die Spaltgasfreisetzung aus Hochleistungsbrennstoffen (Karbide, Nitride) bei gemässigten Abbränden zunächst sehr viel geringer als bei oxydischen Brennstoffen. Mit Abbränden von mehr als 100 000 MWd/tM steigen die Freisetzungsraten aber sehr stark an, so daß vor allem hier die oben erwähnten Störungen nicht ausgeschlossen werden können.

Für die Untersuchung der Auswirkung einer stagnierenden Spaltgasblase auf die Thermodynamik und Thermohydraulik der Natriumbindung wurden zwei Rechenprogramme (BONDSI und BIVEL) aufgestellt, die den zeitlichen Ablauf der Brennstoff-, Bindungs- und Hüllrohrtemperaturen in der Umgebung der Spaltgasblase zu berechnen gestatten und die zur Definition einer kritischen Blasengröße führten, bei der die Bindung nicht mehr stabil ist. Die Expansion einer Blase durch Bindungssieden bei externen Störungen wie Leistungsanhebungen und partielle Kühlkanalblockagen wurden mit dem BIVEL-Programm untersucht. Die Bindung ging bei Kühlmitteldurchsatzreduktionen auf 40% sehr schnell - in 0,4 Sec. - verloren. Ein abgewandeltes Konzept

der Stabdruckentlastung mit unten offenem Stab verzögerte diesen Verlustvorgang zeitlich so stark, daß das Kühlmittel vor der Bindung siedete. Ein sicherer Nachweis der Störung ohne Schadenspropagation durch Brennstoff- und Hüllrohrschmelzen scheint dann allein schon mit Thermoelementen am Bündelaustritt möglich zu sein.

Das durch die Druckentlastung der Brennstäbe in das Kühlmittel eingespeiste Spaltgas führt infolge der geringen Löslichkeit der Edelgase (Xe, Kr) im Natrium und dem niedrigen, durch die Gasreinigungssysteme aufrechterhaltenen Partialdruck dieser Gase im Schutzgasplenum zu keiner nennenswerten Anreicherung im Kühlmittel. Hier dominiert sicher das In-Lösung -Gehen des Schutzgases selbst. Aber auch die Anreicherung von Argon ist - wie ein einfaches Modell gezeigt hat - nur gering (11 l unter den Bedingungen der kalten Rohrleitung), so daß die Gefahr von größeren Reaktivitätszufuhren durch Gasblasen im Kern nicht gegeben ist.

Experimentelle Untersuchungen zum Problem des druckentlasteten, natriumbundenen Brennstabes müßten vor allem an zwei Punkten einsetzen: Das ist einmal eine exaktere und nicht integrale Bestimmung der Freisetzungsraten aus Hochleistungsbrennstoffen auch unter zyklischen Belastungen, und zum anderen wäre eine Simulation der Bindung unter anisothermen Bedingungen und unter Einspeisung eines Edelgases in einen elektrisch beheizten Versuchsstand wünschenswert.

### Prüftechnik

#### Vergleichsmessungen zwischen dem Profilometer und der Meßmaschine in den "Heißen Zellen". (W. Glöckner, AEG)

Nach Beendigung der Justierarbeiten wurden zum Vergleich der Meßwerte und der Meßgenauigkeit des Profilometers und der Meßmaschine in den "Heißen Zellen" Messungen an gleichen Meßobjekten durchgeführt. Es sollte damit auch gleichzeitig eine Kontrolle der HZ-Meßmaschine vorgenommen werden, da hier das Justieren und Eichen nur unter erheblichen Schwierigkeiten möglich ist.

Zu diesem Zweck wurde ein Hüllrohr mit den Abmessungen 7,0 mm x 0,4 mm in zwei Ebenen, mit einer zur ersten Meßebene um  $90^\circ$  gedrehten Ebene, auf dem Profilometer vermessen. Es erfolgte die Bestimmung des Außendurchmessers der Durchbiegung und der Länge. Die mögliche Vermessung des Innendurchmessers unterblieb, da diese Meßoperation mit der HZ-Meßmaschine nicht durchführbar ist, weil die Innendurchmesserprüfung von bestrahlten Stäben nicht gebraucht wird. Die auf dem Profilometer durchgeführte Längenmessung über die Endstopfen des Rohres konnte auf der HZ-Meßmaschine nicht **nachvollzogen** werden, weil an beiden Enden des Rohres eine Strecke durch die Außeneinspannung für die Messung verloren ging. Überdies ist ein Vergleich der Längenmessungen wenig sinnvoll, da einer Meßgenauigkeit von 0,01 mm beim Profilometer eine Meßgenauigkeit von 0,2 mm bei der HZ-Meßmaschine gegenübersteht, sodaß hier in jedem Fall die Profilometermessung den Ansprüchen der HZ-Meßmaschine genügt.

Obwohl die Schreibstreifen beider Meßmaschinen unterschiedliche Formate haben, ist ein direkter Vergleich bei Annäherung der Vergrößerungsverhältnisse möglich. Ein Ausschnitt aus den Schreibstreifen vom Profilometer oben in Abb. 27 und HZ-Meßmaschine im unteren Teil des Bildes, gibt die Übereinstimmung der Messungen wieder, sodaß eine genaue Zordnung von Meßwerten vor und nach der Bestrahlung gewährleistet ist.

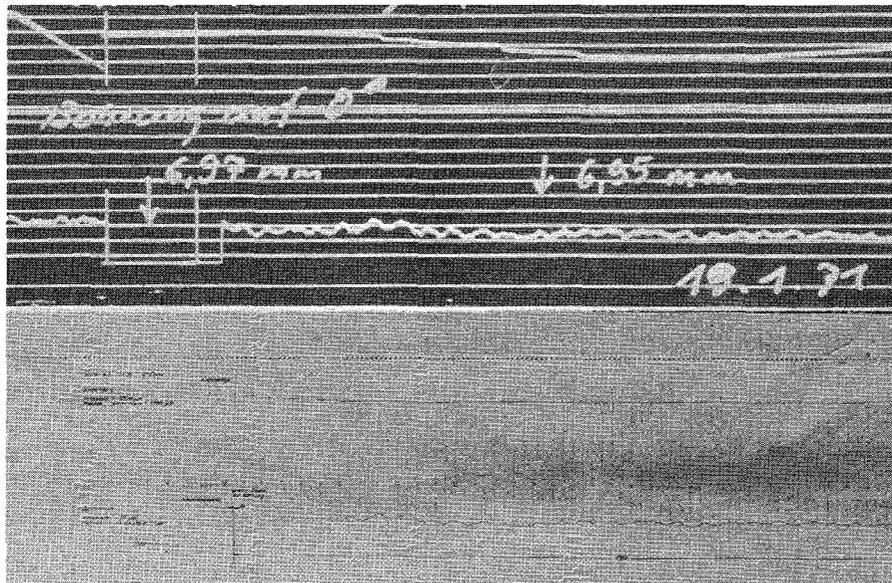


Abb. 27 : Fotomontage der Schreibstreifen des Profilometers und der HZ-Meßmaschine.

Die Charakteristik stimmt sowohl in den Durchmesserabweichungen als auch in den absoluten Werten überein. Die Schreibspur der HZ-Meßmaschine erscheint gegenüber dem Profilometerschreibstreifen wesentlich mehr geglättet, was durch die breiteren, robusteren Meßschneiden der HZ-Meßmaschine hervorgerufen wird. Dagegen registrieren die schlanken Meßschneiden des Profilometers noch Abweichungen, die in den Bereich der Oberflächenwelligkeit und Rauheit hineingehen. Die Messungen der Durchbiegung können nur mit Vorbehalt verglichen werden. Durch das Spannen der Hüllrohre im Dreibackenfutter der HZ-Meßmaschine werden diese in eine gewisse Zwangslage gebracht, hinzu kommt noch der freie Durchhang der Rohre. Beim Profilometer können sich die Rohre entsprechend ihrer natürlichen Krümmung frei auf leicht verschiebbaren Auflageböckchen ausrichten. Die Messungen wurden entlang von genau auflinierten Metalllinien durchgeführt. Die Bewegungsrichtung der Meßschlitten war in beiden Fällen gleich.

#### 1124.2 Laborexperimente zur Brennstabauslegung

##### 1124.22 Thermodynamik und Kinetik an der Phasengrenze Brennstoff-Hülle

##### Zum Einfluss des Temperaturgradienten auf die Stöchiometrieverschiebung in einem karbidischen Brennstoff (H. Holleck, H. Kleykamp, IMF)

Rechnungen auf der Basis untersuchter und als wahrscheinlich angenommener Reaktionen der Spaltprodukte in einem karbidischen Brennstoff ergeben, daß bei stöchiometrischer Ausgangszusammensetzung und isothermen Bedingungen während des Abbrands weder freies Uran oder Plutonium noch höheres Karbid auftreten sollte <sup>+)</sup> .

---

<sup>+)</sup>  H. Holleck, KFK-Bericht 1111 (1969)

Der Temperaturgradient hat jedoch auf die Stöchiometrieverschiebung im karbidischen Brennelement einen Einfluss. Aufgrund von Sauerstoffspuren wird ein Boudouard-Gleichgewicht  $(\text{CO}_2) + \overline{C} \rightleftharpoons (\text{U, Pu})\text{C} = 2(\text{CO})$  gebildet, für das einige ppm Sauerstoff ausreichen. Mit der freien Reaktionsenthalpie

$$r_{\Delta G^0} = -RT \ln K_p = -RT \ln \frac{p_{\text{CO}}^2}{a_{\text{C}} p_{\text{CO}_2}} \quad \text{ergibt sich für die partielle}$$

molare freie Enthalpie

$$\Delta \bar{G}_c = r_{\Delta G^0} + RT \ln \frac{p_{\text{CO}}^2}{p_{\text{CO}_2}}$$

Das Partialdruck-Verhältnis  $p_{\text{CO}}/p_{\text{CO}_2}$  kann als konstant und vom Brennelementradius unabhängig angenommen werden. Qualitativ ergibt sich hierdurch im Temperaturgradienten eine Zunahme der Kohlenstoff-Aktivität  $a_{\text{C}}$  an der Brennstoffoberfläche gegenüber dem isothermen Fall. Folgendes Beispiel soll diesen Sachverhalt für reines UC verdeutlichen: Die Änderung der Kohlenstoffaktivität kann wegen des sehr geringen Homogenitätsbereiches des UC nur im Gleichgewicht mit einer zweiten Phase gesehen werden. Für UC mit Spuren U bzw.  $\text{U}_2\text{C}_3$  gilt für das  $p_{\text{CO}}^2/p_{\text{CO}_2}$ -Verhältnis:

	T	1300°K	1500°K	1700°K
UC+U	$p_{\text{CO}}^2/p_{\text{CO}_2}$	$1 \cdot 10^{-2}$	$3 \cdot 10^{-1}$	$3 \cdot 10^0$
UC+ $\text{U}_2\text{C}_3$	$p_{\text{CO}}^2/p_{\text{CO}_2}$	$1 \cdot 10^2$	$1 \cdot 10^3$	$4 \cdot 10^3$

Rechnet man mit einem mittleren  $p_{\text{CO}}^2/p_{\text{CO}_2}$  von 1 für UC+U bzw.  $10^3$  für UC+ $\text{U}_2\text{C}_3$ , so läßt sich die Kohlenstoffaktivität in der Gasphase an der Brennstoffoberfläche (ca. 1300°K) und im Zentrum (ca. 1700°K) des Brennelements berechnen.

	$\frac{P_{CO}^2}{P_{CO_2}}$	T	1300°K	1500°K	1700°K
UC+U	1	$\Delta\bar{G}_C = RT \ln a_C$ (cal/mol)	-13400	-21700	-30000
UC+U <sub>2</sub> C <sub>3</sub>	10 <sup>3</sup>	$\Delta\bar{G}_C = RT \ln a_C$ (cal/mol)	+ 4400	- 1100	- 6600

Für UC mit Spuren U ergibt sich, daß die Aktivität des über die Gasphase transportierten Kohlenstoffs bei den betrachteten Temperaturen unter den gemachten Annahmen nicht ausreicht, UC an der Brennstoffoberfläche aufzucarburieren, da die freie Bildungsenthalpie  ${}^f\Delta G^0 < UC > = -25000$  cal/mol beträgt und für die Reaktion  $2 UC + C = U_2C_3$  gilt:  ${}^r\Delta G^0 \approx -1000$  cal/mol. In der Mitte des Brennelements kann man mit einer Reduktion rechnen. Für UC mit Spuren U<sub>2</sub>C<sub>3</sub> ergibt sich ein anderes Bild: Bei den niedrigen Temperaturen an der Hülle wird durch das festgelegte CO/CO<sub>2</sub>-Verhältnis ein Ungleichgewichtszustand erzeugt, der zu einer Sesquicarbidgebildung in dem Bereich führt, in dem die freie Reaktionsenthalpie von UC zu U<sub>2</sub>C<sub>3</sub> unter dem berechneten Wert  $\Delta\bar{G}_C$  der Kohlenstoffaktivität  $a_C$  in der Gasphase liegt.

Veröffentlichungen zu 1124.22:

(1) H. Holleck, H. Kleykamp, F. Thümmeler

Hochtemperaturgleichgewichte in keramischen Uran-, Plutonium- und Thorium-Brennstoffen

Reaktortagung, Bonn, 1971

(2) H. Holleck

Zum Aufbau des Systeme U-Pd-C, U-Pt-C und Th-Pd-C

Monatshefte für Chemie, im Druck

Brennstoffgrundlagenforschung (H. Blank, R. Lesser, Europ. Transurane-Institut)

### 1. Physikalische Eigenschaften von Mischkarbiden

Die Wärmeleitfähigkeit wurde an einer Reihe von Pellets gemessen, die für Bestrahlungsversuche des PSB bestimmt sind. Dabei wurde der Temperaturbereich von 800 ° bis 1600 °C überdeckt.

Das Gerät zur Messung thermischer Ausdehnung bei sehr hohen Temperaturen ist in Entwicklung.

### 2. Physikalisch-chemische Eigenschaften von Mischkarbiden

Phasendiagramme der Brennstoffe:

Im System U-Pu-C wurden Knopfproben von sauerstofffreiem Mischkarbid mit 15 und 30% Plutonium hergestellt. Weitere Untersuchungen wurden zunächst eingestellt, da es vorläufig keine Möglichkeit gibt, die Proben analysieren zu lassen.

Gleichgewicht in Systemen Spaltprodukte - Spaltstoff:

Es wurden 3 Mischungen Karbid - Spaltprodukte hergestellt:

- a. eine Mischung von UC und sieben der wichtigsten Spaltprodukte auf 8.5% Abbrand
- b. eine Mischung von Uran-Plutoniumkarbid mit 19 Spaltprodukten auf 8.5% Abbrand
- c. eine Wiederholung der Mischung b.

An diesen drei Mischungen wurden verschiedene Sinterbedingungen und verschiedene Wärmebehandlungsbedingungen erprobt; die erste Mischung wurde metallographisch und röntgenographisch untersucht. Alle drei Mischungen enthalten einige tausend ppm Sauerstoff.

Bestimmung von Diffusionskoeffizienten:

Die Installation des Labors ist beendet, die Messungen werden im Laufe des Februars begonnen werden. Mischkarbide werden untersucht, sobald definierte Proben zur Verfügung stehen.

Schmelzpunkt und Dampf:

Erste Messungen des Pu-Partialdruckes an sauerstofffreien Mischkarbiden im Bereich MC - M<sub>2</sub>C<sub>3</sub> mittels Quadrupol und Targetbedampfung sind im Temperaturbereich 1300 °C bis 2100 °C im Gange.

Stöchiometrie im Temperaturgefälle:

Mischkarbide mit ca. 3000 ppm Sauerstoff wurden in einen Temperaturgradienten gesetzt. Es wurde je nach der Atmosphäre, in dem der Versuch stattfand, eine verschiedene Verteilung der Phasen über dem Temperaturgradienten gefunden. Der Fortgang der Messung wird dadurch stark beeinträchtigt, daß keine Analysenmöglichkeiten bestehen.

Untersuchungen an modifizierten Karbiden:

Oxikarbide, die Plutonium enthalten, wurden in ihrer Struktur durch Wärmebehandlung bei 1500 °C und durch Oxidation verändert und anschließend metallographisch untersucht.

Oxikarbide mit 3 - 5000 ppm O<sub>2</sub> zeigen bei hohen Temperaturen (1600 °C bis 2000 °C) im Hochvakuum starke CO-Entwicklung und damit zunächst einen starken Abfall des Verhältnisses  $\frac{C+O}{M}$ . Dieses Verhältnis durchläuft mit der Zeit schließlich ein sehr flaches Minimum und steigt dann wieder sehr langsam an, wenn nach dem Verlust von allem Sauerstoff über die CO-Bildung das Metall (Pu) aus dem Karbid abdampft.

Auch hier fehlen die Analysenmöglichkeiten.

Chem.-Analytische Untersuchungen:

Zur Sauerstoffbestimmung in Karbiden und Nitriden wurde eine LECO-Apparatur aufgebaut, die neben der Heiextraktionsanlage laufen soll. Mit dieser konnten bisher nur rund 10 Analysen pro Woche gemacht werden, was bei dem augenblicklichen Stand der Karbid- und Nitridentwicklung ungengend ist. Die Bestimmung groer Stickstoffgehalte erfolgt nach dem Kjeldahl-Verfahren, die kleiner Gehalte in der Heiextraktionsanlage.

Das TUI nahm mit anderen Stellen an einer vergleichenden Kohlenstoffbestimmung von UC teil. Da die Ergebnisse zwischen den einzelnen Teilnehmern in manchen Fllen merklich differierten, wurde zur besseren Standardisierung der Methoden die Fortfhrung dieser Gemeinschaftsaktion beschlossen.

1124.23 Chemische Eigenschaften und AnalytikZum Reaktionsverhalten der Spaltprodukte Ru, Rh und Pd in einem Oxid-, Carbid- und Nitrid-Brennstoff (H. Holleck, H. Kleykamp, IMF)

Die Platinmetalle machen bei der Plutoniumspaltung etwa 25% der festen Spaltprodukte aus. Demzufolge trägt die Kenntnis des Verhaltens dieser Spaltprodukte zum Verständnis des Abbrandverhaltens bei. Die Untersuchungen zur Konstitution in verschiedenen Teilsystemen Brennstoff-Spaltprodukte ließen als mögliche Reaktionsprodukte folgende Phasen erkennen:

$(U, Pu) (Ru, Rh, Pd)_3$  im Oxid, Carbid und Nitrid

$(U, Pu)_2 (Ru, Rh, Pd)C_2$  im Carbid.

Die metallische Ordnungsphase  $(U, Pu)Me_3$  ( $Me=Ru, Rh, Pd$ ) konnte neuerdings sowohl in einem Oxid<sup>+</sup>) als auch in einem Carbid-Brennstoff<sup>++</sup>) hohen Abbrandes nachgewiesen werden. Bemerkenswert ist, daß in diesen Phasen eine Anreicherung an Plutonium und Palladium beobachtet wird.

Die Messung der freien Bildungsenthalpien solcher Spaltstoff-Spaltprodukt-Phasen führt zu umfassenderen Aussagen hinsichtlich der Temperaturabhängigkeit der verschiedenen Reaktionen. In Abb. 28 sind neben den von uns gemessenen freien Bildungsenthalpien von  $URu_3$ ,  $URu_3C_{0,7}$  (1),  $URh_3$ ,  $URh_3C_{0,1}$  (2) die Werte für  $PuRu_2$ ,  $PuC_{0,9}$ ,  $UC$ ,  $UN$ ,  $PuN$  sowie die Differenzen  $\Delta G^0 - \Delta \bar{G}_{O_2}$  für zwei Stöchiometrien des Mischoxids in der Weise aufgetragen, daß sich das Reaktionsverhalten des Oxids, Carbids und Nitrids mit den Platinmetallen unter Bildung der Ordnungsphasen  $(U, Pu)Me_3$  unmittelbar ablesen läßt.

---

+) J.I. Bramman, R.M. Sharpe, D. Thorn, G. Yates  
J. Nucl. Mat. 25 (1968) 201

++) J.I. Bramman, R. M. Sharpe, R. Dixon  
J. Nucl. Mat. 38 (1971) 226

Man erkennt z.B., daß die Carbide von Uran und Plutonium bei jeder Temperatur mit Ruthenium oder Rhodium reagieren, daß hingegen eine Reaktion der Nitride mit Ruthenium erst bei höheren Temperaturen zu erwarten ist und daß eine Reaktion des Oxids nur bei einer bestimmten Unterstöchiometrie möglich ist.

Die Stabilitäten wurden teilweise nur an Hand der Daten von Uranverbindungen verglichen. Zum Einfluss des Plutoniums ist folgendes zu bemerken: Es ist zu erwarten, daß ein Pu-Einbau die Stabilität der Ru-haltigen Uranphase vermindert, die der Rh-haltigen wenig beeinflusst und eine Pd-haltige Ordnungsphase stabilisiert. Dies steht in Einklang mit der beobachteten Pu- und Pd-Anreicherung in Ordnungsphasen hochabgebrannter Brennstoffe.

#### Veröffentlichungen zu 1124.23

- (1) H. Holleck, H. Kleykamp,  
Zur Konstitution und Thermodynamik im System U-Ru-C  
J. Nucl. Mat. 35 (1970) 158
- (2) H. Holleck, H. Kleykamp,  
Zur Konstitution und Thermodynamik im System U-Rh-C  
in Vorbereitung.

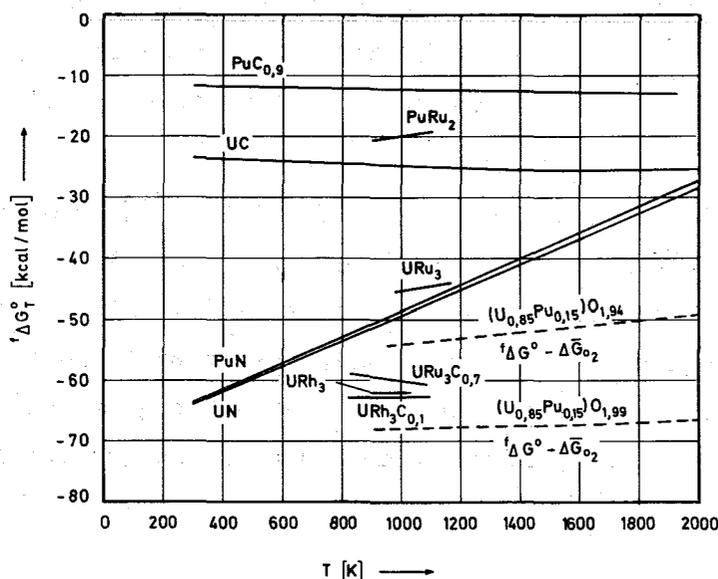


Abb. 28 : Freie Bildungsenthalpien von Uran- und Plutonium-Spaltprodukt-Phasen und -Brennstoffverbindungen

### Verträglichkeitsuntersuchungen an UC mit verschiedenen Hüllmaterialien

(O. Götzmann, P. Hofmann, IMF)

Verträglichkeitsuntersuchungen mit UC und Umhüllungen aus verschiedenen Typen austenitischer Stähle, Nickellegierungen und Vanadinbasislegierungen wurden fortgesetzt. Die Mikrosondenanalyse der Stahlproben, die bei 800 °C über 1000 h mit leicht überstöchiometrischem UC geblüht wurden, ergab eine Diffusion von Eisen und Chrom aus der Hülle in den Brennstoff bis etwa 25  $\mu$ . In der Keramik entstand eine neue Phase, die von uns als  $U(Fe,Cr)C_2$  aufgrund der Mikrosondenintensität identifiziert wurde. In der Hülle war unmittelbar an der Phasengrenze meist eine Porenzone von 3 - 5  $\mu$  Tiefe zu erkennen.

Die Reaktionszonen, die zwischen den Hüllen aus Vanadinwerkstoffen (s. KFK 1270/4) und UC sich bildeten, bestanden aus zwei Schichten. Die erste Schicht zeigte hohe Vanadinintensität, die zweite hohe Titanintensität. Wahrscheinlich handelt es sich um die Karbide dieser beiden Elemente. Die Vanadinzone war noch Bestandteil der Hülle, während sich die Titanzone im Brennstoff bildete. Die Diffusion des Titans aus der Hülle in den Brennstoff wurde ebenfalls durch einen Titankonzentrationsgradienten in der Hülle veranschaulicht.

Die erste vorläufige Untersuchung von Proben, die bei  $900^{\circ}\text{C}$  über 5000 h in Kontakt mit UC geblüht wurden, ergab bei den Stählen vom Typ 4981 und 4988 keine größeren Reaktionen als bei den kürzeren Zeiten bzw. bei  $800^{\circ}\text{C}$ . Die Reaktionen mit dem Stahl 12R72HV dagegen waren größer. Bei den Vanadinlegierungen konnte die aus den Versuchen mit kürzeren Zeiten erwartete Zunahme des Reaktionsumfanges beobachtet werden.

In Untersuchungen bei  $900^{\circ}\text{C}$  über 1000 h mit Wolfram-modifiziertem UC (UC + 1% W) zeigten die Stähle kein besseres Verträglichkeitsverhalten. Beim Stahl vom Typ 4981 erwies sich die Verträglichkeit sogar als schlechter. Bei der Vanadinlegierung VTi2Cr15 war der Reaktionsumfang mit dem modifizierten Brennstoff jedoch geringer als mit dem leicht überstöchiometrischen UC. Glühungen mit UC ergaben sowohl bei den Stählen wie auch bei den Vanadinlegierungen gute Verträglichkeit bei  $900^{\circ}\text{C}$  für 1000 h.

#### Chemisch-analytische Arbeiten

(H. Schneider, IMF)

Für das Gebiet der Brennstoffentwicklung wurden wieder zahlreiche UC- und U(C,N)-Proben auf Kohlenstoff, Sauerstoff und Stickstoff analysiert. Es erwies sich als erforderlich, in verschiedenen U(C,N)-Proben auch den freien Kohlenstoff zu bestimmen. Die Erfahrungen über die Bestimmung von Sauerstoff und Stickstoff in Uranverbindungen mit Hilfe des Exhalographen wurden in einem internen Bericht zusammengefasst, wobei auch auf die Sauerstoffaufnahme von UC-Proben verschiedener Korngrößen in verschiedenen Zeitabschnitten eingegangen wurde.

Für Verträglichkeitsuntersuchungen wurden die für die Spaltproduktsimulierung erforderlichen Oxide auf ihren Sauerstoffgehalt bzw. auch Wasserstoff- und Kohlenstoffgehalt analysiert. In verschiedenen  $\text{UO}_2$ -Proben, die für diese Untersuchungen eingesetzt werden sollen, wurde das genaue Uran-Sauerstoff-Verhältnis bestimmt.

### Brennstoff-Analysenverfahren Analyse karbidischer Brennstoffe

(D. Würtz, AEG)

Die chemische Zusammensetzung und die Struktur der karbidischen Brennstoffe sind entscheidend für deren Verhalten gegenüber Hüllmaterialien und Bindungsmedium während des Reaktoreinsatzes. Zur Spezifikationsentwicklung eines zukünftigen Brennstabes sind in erster Linie quantitative Aussagen über Gesamtkohlenstoffgehalt, Gehalt an freiem Kohlenstoff, Sauerstoff- und Stickstoffgehalt notwendig.

Als erstes Kriterium für die Phasenzusammensetzung sollte der Gesamt-C-Gehalt mit einer Genauigkeit von  $\pm 0,02\%$  C absolut ermittelt werden können. Vergleichsuntersuchungen zeigen, daß die Übereinstimmung verschiedener Laboratorien bisher bei  $\pm 0,05\%$  lag.

Bei der Handhabung von Materialien mit Korngrößen  $200\ \mu\text{m}$  wurden mit abnehmender Korngröße Fehlbeträge an Kohlenstoff auch unter Schutzgas festgestellt.

Die Analyse des freien Kohlenstoffanteils erfolgte durch Lösen des Brennstoffes in heißer  $2n - \text{HNO}_3$ , Abfiltrieren des Kohlenstoffs und Bestimmung als  $\text{CO}_2$ . Die Menge an freiem Kohlenstoff betrug bei UC-Proben der Firma Nukem im allgemeinen  $0,01\ \text{Gew.}\ \% \text{ C}$ , bei einigen früheren Chargen ca.  $1,5\%$ . Die Spezifizierung einer oberen Grenze für freien Kohlenstoff von  $0,01\%$  absolut kann als realistisch angesehen werden.

Der Sauerstoff karbidischer Brennstoffe wird im allgemeinen durch die Vakuum-Heißextraktionsmethode ermittelt. Üblich sind Extraktionstemperaturen von  $1800\ ^\circ\text{C} - 2000\ ^\circ\text{C}$ , die Verwendung von Graphittiegeln und Ni- oder Pt-Bädern.

Die Übereinstimmung der verschieden modifizierten Methoden verschiedener Laboratorien ist relativ gut bei Material mit einem Sauerstoffgehalt über 1000 ppm. Die Abweichungen lagen hier bei ca. + 20% rel.

Sehr große Unterschiede, bis zu 100 %, wurden jedoch bei Karbiden mit niedrigem Sauerstoffgehalt um 100 ppm festgestellt. Der Grund hierfür liegt wahrscheinlich in der unterschiedlichen Schutzgasreinheit vor und während der Analyse.

Die Bestimmung des Stickstoffgehaltes durch Heißextraktion erfolgt bei 200 °C noch nicht quantitativ. Hierzu sind Temperaturen um 2500 °C erforderlich. Wenn diese nicht erreicht werden können, ist eine Methode nach Dumas oder Kjeldahl vorzuziehen. Zumindest sollten die durch Heißextraktion gewonnenen Ergebnisse auf derart erhaltene Werte bezogen werden.

Die Übereinstimmung der Ergebnisse verschiedener Untersuchungsstellen ist bisher noch mangelhaft und für eine Spezifikationsentwicklung unzureichend.

Der Gehalt der Brennstoffe an Methan, Wasserstoff und Kohlenoxiden kann ebenfalls Auskunft über den Zustand der Brennstoffe geben. Methan und Wasserstoff können mit den übrigen Extraktionsgasen gaschromatographisch oder massenspektrometrisch analysiert werden.

### 1124.3 Bestrahlungsexperimente (Karbid, Nitrid)

#### 1124.31 Parametertests im FR 2

##### Kriechversuch mit UN (D. Brucklacher, IMF)

Die erste Bestrahlungskapsel vom Typ FR 2/73d (Brennstoffkriechkapsel mit pneumatischer Lastaufbringung und kontinuierlicher Längenmessung) mit UN-Beladung wurde im FR 2 eingesetzt. Der Kriechversuch wird an einer Wechselstapel-Probe aus ringförmigen UN- und Molybdän (TZM)-Tabletten unter folgenden Bestrahlungsbedingungen durchgeführt:

Probenmaterial:	UN (8% $U^{235}$ ) mit 6 Vol.-% $UO_2$ , relative Dichte $89 + 1\%$ TD, mittlere Korngröße 6-10 $\mu m$
axiale Druckspannung:	4 $kp/mm^2$
Uran-Spaltungsrate:	$(1,3 \pm 0,2) 10^{-9}/s$
Probenoberflächentemperatur:	770 - 720 $^{\circ}C$
max. Brennstofftemperatur:	790 - 740 $^{\circ}C$
bisherige Bestrahlungsdauer:	1500 h

Bei der vorläufigen Auswertung der angefallenen Ergebnisse bis ca. 1% Abbrand konnte keine Längenänderung der Probe mit der Zeit festgestellt werden. Das würde bedeuten, daß die Kriechgeschwindigkeit der linearen Schwellgeschwindigkeit von UN durch Einlagerung von Spaltprodukten entspricht. Die Spaltproduktschwellung für UN wird bei den vorliegenden Bestrahlungsbedingungen zu 1 - 1,3 Vol.-%/Abbrand erwartet. Daraus ergibt sich für die Kriechgeschwindigkeit

$$\dot{\epsilon} = (1,5 \text{ bis } 2) \cdot 10^{-6} \text{ h}^{-1}$$

#### Untersuchungen möglicher NaK/Wasser-Reaktionen im FR2 als Folge von Lecks an Kapselversuchseinsätzen (H. Häfner, IMF)

Für die Bestrahlung von Hochleistungsbrennstäben im FR2 war 1970 im IMF eine Kapsel entwickelt worden, bei der das Wärmeübertragungsmedium NaK nur durch eine Wand vom Kühlwasser getrennt ist. <sup>+)</sup>

Die Sicherheitsbetrachtungen haben wegen der möglichen Gefahren durch NaK/Wasser-Reaktionen im Falle eines Kapsellecks bei einer einwandigen NaK-Kapsel eine besondere Bedeutung. Durch Druckstöße als Folge der Wasserstoffproduktion sind u.U. sowohl die Bestrahlungseinsätze selbst als auch benachbarte Brennelemente, Abschaltstäbe und der Aluminiumtank des FR2 gefährdet.

<sup>+)</sup>  H. Häfner KFK-Ber. 1270/4 und 1270/4

H. Häfner  
Sicherheitsbericht für FR2-Kapselversuchseinsätze mit einwandigen NaK-Kapseln zur Bestrahlung von Hochleistungsbrennstäben.  
KFK-Bericht 1143

Zur Klärung dieser Fragen wurde zusammen mit der Firma Interatom Versuche durchgeführt, bei denen die Teststrecke genau den geometrischen und kühltechnischen Verhältnissen eines FR2-Kapselversuchseinsatzes entsprach.

In 10 Versuchen wurden Kapseln mit verschiedenen großen Lecks und NaK-Mengen (max.  $400 \text{ cm}^3$ ) eingesetzt. Mittels eines pneumatischen Kolbens konnten die vorbereiteten Kapsellecks schlagartig geöffnet werden. Entlang des Kühlkanals waren sechs Druckmeßstellen (piezoelektrische Aufnehmer) und vier Dehnungsmeßstreifen angeordnet.

Alle Versuche sind im Prinzip wie folgt verlaufen (Abb. 29):

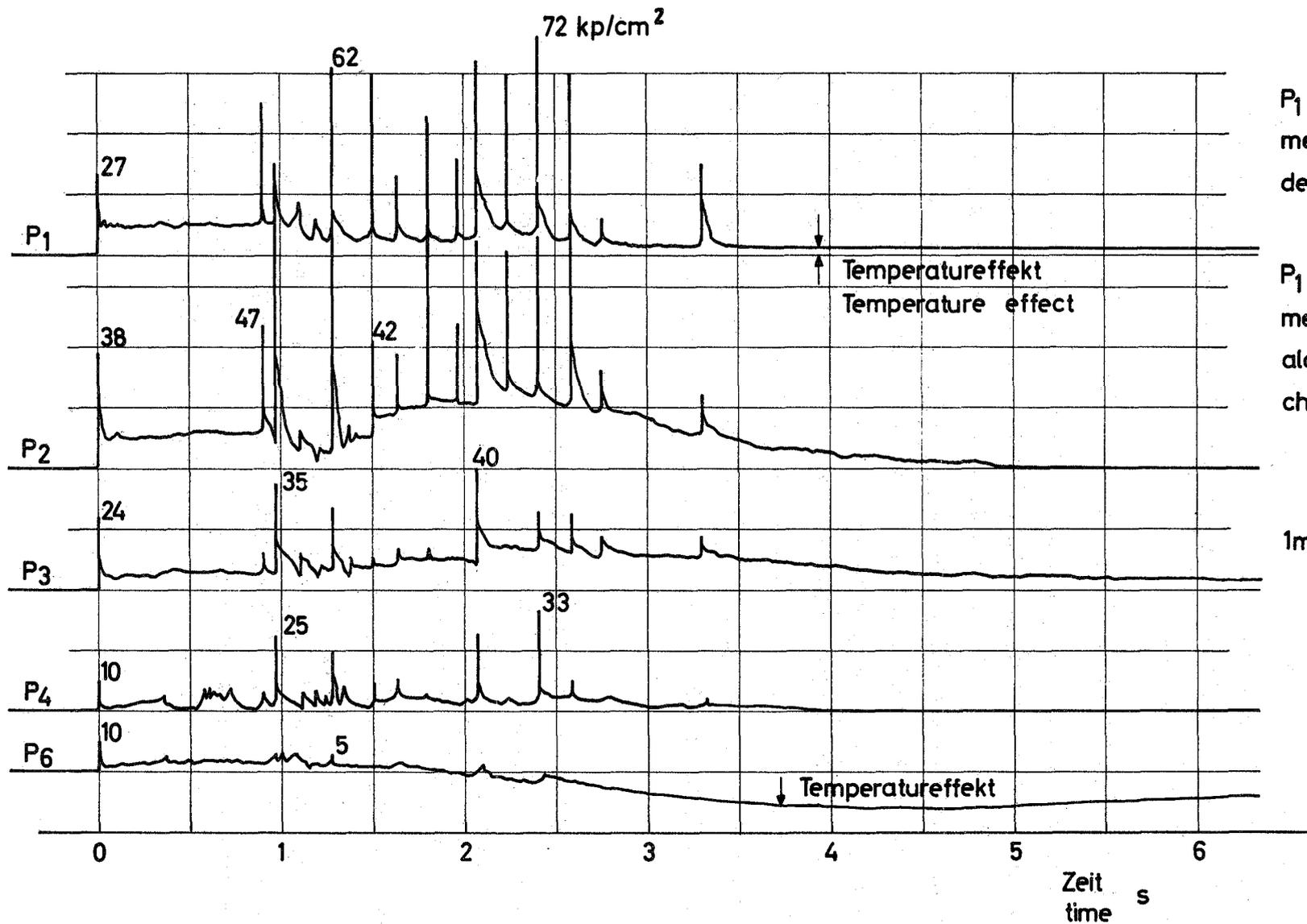
Sofort mit dem Öffnen des Lecks setzt eine schlagartige Reaktion ein, verbunden mit einer ersten Druckspitze. Darauf folgt ein Druckanstieg im ganzen Wasserführungsrohr, unterbrochen durch weitere Druckspitzen in kurzen Abständen. Die Anstiegszeit der Druckimpulse beträgt wenige Millisekunden bei 10 bis 20 ms Impulsdauer. Die gesamte Reaktionsdauer betrug bei den Versuchen mit dem Leck am unteren Kapselende je nach Leckgröße und Kapselinnendruck 1,7 bis 6,5 sec; bei den Lecks über dem NaK-Spiegel lief die Reaktion wesentlich langsamer ab (50 bis 200 sec).

Direkt an der Leckstelle traten Druckspitzen von max.  $70$  bis  $100 \text{ kp/cm}^2$  auf ( $P_2$ ); mit zunehmender Entfernung ( $P_3$  bis  $P_6$ ) wird der Druck abgebaut.

### Ergebnis

Mit den Versuchen konnte zwar der Verlauf der Druckstöße, nicht aber die Art und Weise der Ausbreitung im Moderator-Raum des FR2 ermittelt werden. Da auch eine theoretische Erfassung dieser Vorgänge äußerst schwierig und unsicher ist, wird folgende Maßnahme getroffen:

Um zu vermeiden, daß unzulässige Druckstöße auf benachbarte Elemente und den Al-Tank des Reaktors auftreffen, wird der Kapselversuchseinsatz mit einem doppelwandigen Wasserführungsrohr umgeben. Die Gasschicht zwischen beiden Rohren ist in der Lage, die Verformung des inneren Rohres aufzunehmen, so daß eine Übertragung von Druckwellen nach außen weitgehend vermieden wird.



P<sub>1</sub> bis P<sub>6</sub> sind Druck-  
meßstellen. entlang  
des Kühlkanals.

P<sub>1</sub> to P<sub>6</sub> are pressure  
measuring points  
along the coolant  
channel.

1mm ≅ 2 kp/cm<sup>2</sup>

112-62

Abb.29

Typischer Druckverlauf bei NaK / Wasser - Reaktionen

Typical Pressure Recordings For NaK / Water - Reactions

Anfahrverhalten von Karbidbrennstäben (R. von Jan, AEG)

Über die Kurzzeitbestrahlungen im Rahmen der Loop-Versuchsgruppe 4a im FR2 liegen die ersten Ergebnisse vor. Das Programm umfaßt die Bestrahlung von insgesamt 8 Brennstäben mit  $(U_{0,85}Pu_{0,15})C$  über 3 Tage bzw. über 15 Tage mit und ohne zyklischen Lastwechsel, variiert werden Spaltweite (15 - 125  $\mu$ ) und Bindung (He, Ar).

Die Bestrahlung von 6 Proben bei Stableistungen zwischen 800 und 1000 W/cm ist inzwischen erfolgreich abgeschlossen. Da während der gesamten Einsatzzeit in Abständen von maximal 2 Stunden Stableistung und Zentraltemperatur gemessen wurden, kann man schon vor der Nachuntersuchung wichtige Erkenntnisse über das thermische Anfahrverhalten gewinnen.

Trotz einiger Streuung im Detail läßt sich aus den Meßdaten ein typisches Verhalten herauschälen: Nach Erreichen der Vollast wird zunächst ein über mehrere Stunden anhaltender Anstieg der Zentraltemperatur um ca. 100 - 200 °C beobachtet. Ist der Spalt zu diesem Zeitpunkt noch nicht geschlossen, dann folgt eine ausgeprägte Abkühlphase, in der die Zentraltemperatur kontinuierlich zurückgeht und sich im allgemeinen auf einen annähernd konstanten Wert einpendelt. Da in diesem stationären Zustand die Wärmeübergangszahl von Brennstoff zu Hülle in allen Fällen mehr als  $1,0 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$  beträgt, nehmen wir an, daß hier der Kontakt zwischen Hülle und Brennstoff eingetreten ist.

Ein überzeugendes Beispiel gibt der zeitliche Verlauf von Zentraltemperatur und Stableistung bei der Probe L2 - 2 (Abb. 30) mit He-Bindung und 125  $\mu$  Spalt. Der stationäre Zustand, der sich hier nach 12 Stunden einstellt, ist dadurch gekennzeichnet, daß sich der Meßpunkt auf einer Kurve konstanter Wärmeübergangszahl bewegt (hier etwa  $1,2 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$ ).

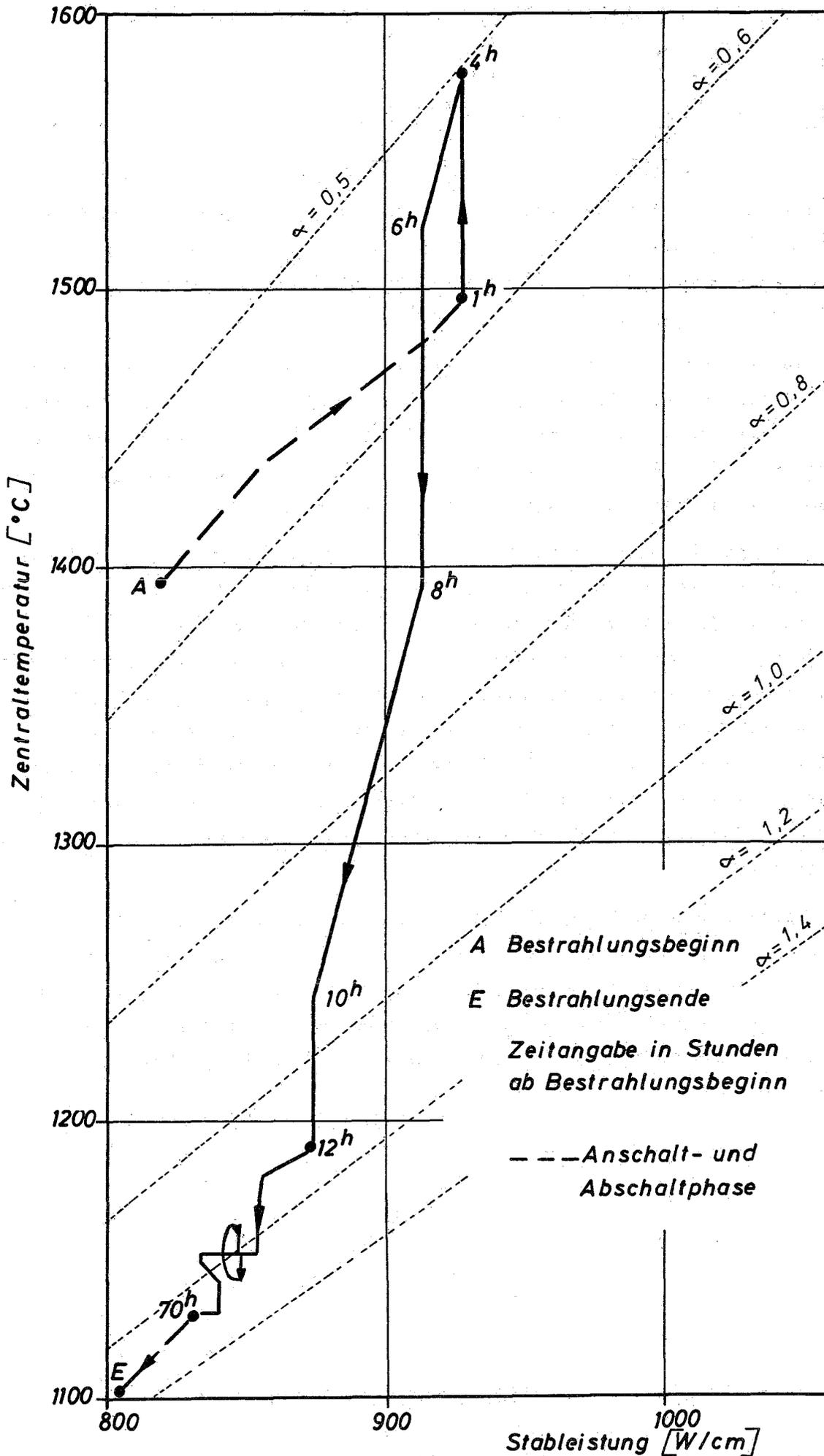


Abb. 30: FR 2 L4-2: Zentraltemperatur und Stableistung als Funktion der Bestrahlungszeit

Über weitere Einzelheiten und eine Deutung der beobachteten Anfahrphasen wird ein ausführlicher Bericht erscheinen. Die vorläufigen Ergebnisse lauten:

- a. Die Maximalwerte der Zentraltemperatur für He-Bindung stimmen recht ordentlich mit den theoretischen errechneten Werten überein; sie entsprechen einer Wärmeübergangszahl von  $0,9 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$  bei "heißem Nullspalt" und ca.  $0,5 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$  bei  $125 \text{ } \mu$  Ausgangsspalt.
- b. Unabhängig von Füllgas und Spaltbreite scheint nach relativ kurzer Zeit (einige Stunden bis mehrere Tage) der Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle hergestellt zu sein - mit Wärmeübergangszahlen um  $1 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$ .
- c. Bei Bestrahlung über mehrere Tage kann sich bereits ein gewisser Kontaktdruck mit Wärmeübergangszahlen über  $2 \text{ W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$  und mehr aufbauen.
- d. Ein gravierender Unterschied zwischen kontinuierlich und zyklisch belasteten Brennstäben ist bisher nicht zu erkennen.

1126 Brennelemententwicklung für Dampfbrüter  
(G. Karsten, PSB-PL)

Aus dem DFR mußte ein Trefoäl mit 3 Dampfbrüter-Brennstäben (Hüllmaterial Incoloy 800) im Januar nach einem Abbrand von 35 000 MWd/t entfernt werden. Erste Untersuchungen lassen Defekte an den Innenseiten der drei Stäbe erkennen. Als Ursache des Ausfalls werden "hot spots" oder ein zu hoher Ansatz der maximalen Nominaltemperatur vermutet.



113 MATERIALUNTERSUCHUNG UND -ENTWICKLUNG1131 Materialuntersuchungen an technischen Legierungen1131.1 Hüllmaterial1131.11 Mechanische EigenschaftenSchweißuntersuchungen (W. Scheibe, IMF)

Wegen der Schwierigkeiten beim Schweißen des Werkstoffes Nr. 1.4970 (Sandvikstahl) wurden die umfangreichen Untersuchungen nunmehr auf Rohrproben in Hüllrohrabmessung ausgedehnt und Härtemessungen sowie erste Rohrinnendruckversuche vorgenommen. Dabei zeichnet sich ab, daß je nach Energiezufuhr und Wärmeabführung wie an Flachproben ganz erhebliche Unterschiede in den Schweißzonen auftreten. So kann durch entsprechende Schweißparameter erreicht werden, daß in den Schweißzonen ein Härteanstieg oder -abfall oder aber keine nennenswerten Härteunterschiede zu beobachten sind. Erhebliche Unterschiede sind zwischen Schweißungen mit der Hochspannungs- und Niederspannungsanlage zu verzeichnen. Entsprechende Ergebnisse stellen sich bei der Rohrinnendruckprüfung ein. Die Proben reißen in den meisten Fällen nach sehr kurzen Zeiten (ähnlich wie bei WIG-Schweißungen) in der Schweißnaht. Bei bestimmten Parametern konnte allerdings die Standzeit der ungeschweißten, geschraubten Verbindung erreicht werden.

1131.12 Bestrahlungsversuche1. Zeitstand- und Kriechverhalten

(H. Böhm, K.D. Cloß, W. Scheibe, C. Wassilew, IMF)

Im Hinblick auf die Auswahl geeigneter Hüllwerkstoffe für den Na-gekühlten schnellen Brutreaktor wurden vergleichende Zeitstand- und Kriechuntersuchungen bei 650 °C an bestrahlten Proben aus den Werkstoffen 1.4961, 1.4981 und 1.4988 durchgeführt (1). Die Proben stammten aus den Bestrahlungsprojekten Mol 3B/1 ( $0,85 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup> (>0,1 MeV), T = 620-690 °C) und DIDO M4 ( $3,3 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> (>0,1 MeV), T = 650 ± 10 °C).

Die Untersuchungen zeigten bei allen Werkstoffen eine deutliche Abnahme der Zeitstandfestigkeit nach Bestrahlung. Die geringste Abnahme trat beim Werkstoff Nr. 1.4981 auf, die stärkste Reduktion der ohnehin geringen Zeitstandfestigkeit war beim 1.4961 zu verzeichnen.

Die Abnahme der Duktilität ist bei allen Werkstoffen beträchtlich. So liegt die Bruchdehnung bei allen drei Stählen aus dem Bestrahlungsprojekt Mol 3B/1 unter 1%. Für den Werkstoff 1.4981 wurden Bruchdehnungen zwischen 0,15 und 0,3% gegenüber 5 bis 11% für die unbestrahlten Vergleichsproben gemessen.

Im Bestrahlungsprojekt DIDO M4 wurde zusätzlich der Werkstoffzustand des Stahls 1.4981 als Parameter untersucht. Folgende Zustände wurden bestrahlt:

I = lösungsgeglüht

II = lösungsgeglüht + 10% kaltverformt

III = lösungsgeglüht + 10% kaltverformt + 800 °C/lh.

Diese Untersuchungen zeigten erneut den starken Einfluß des Werkstoffzustandes auf die Änderung der mechanischen Eigenschaften durch Neutronenbestrahlung. So traten für den 10% kaltverformten bzw. 10% kaltverformten und ausgelagerten Zustand Bruchdehnungen im Zeitstandversuch unter 0,5% auf, während im lösungsgeglühten Zustand Bruchdehnungen nach Bestrahlung zwischen 1,5 und 3% gemessen wurden.

Die Streckgrenzen betragen bei 650 °C 40,5; 32,5 bzw. 23 kp/mm<sup>2</sup>.

## 2. Metallphysikalische Grundlagenuntersuchungen

(K. Ehrlich, E. Starke, IMF)

Im Rahmen der Brennstabuntersuchungen wurden aus dem Programm Mol 7A die Dichteänderungen der Werkstoffe 4988 und AISI 316 nach Bestrahlung ( $4-7 \cdot 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> (E > 0,1 MeV) im Temperaturbereich von 350-580 °C) bestimmt. Es ergaben sich dabei in Abhängigkeit von Fluenzen und Temperaturen maximale Dichteabnahmen von 0,15% für den Stahl AISI 316 und von 0,3% für den Stahl 4988. Zur Zeit wird durch Transmissions-Elektronenmikroskopie (TEM) untersucht, welcher Anteil der Dichteänderung auf Poren zurückzuführen ist.

### 3. Simulation von Strahlenschäden (K. Ehrlich, D. Kaletta, IMF)

Am Variable Energy Cyclotron in Harwell (VEC) wurden die ersten Bestrahlungen mit Kohlenstoffionen bis zu Dosen von  $3 \times 10^{17} \text{ C}^{++}/\text{cm}^2$  bei Temperaturen von 500, 575 und 650 °C an den Materialien 4988 (Rohrzustand) und 4970 (Rohrzustand) durchgeführt. Erste elektronenmikroskopische Untersuchungen (TEM) geben einen Eindruck von den entstehenden Porengrößen und -verteilungen.

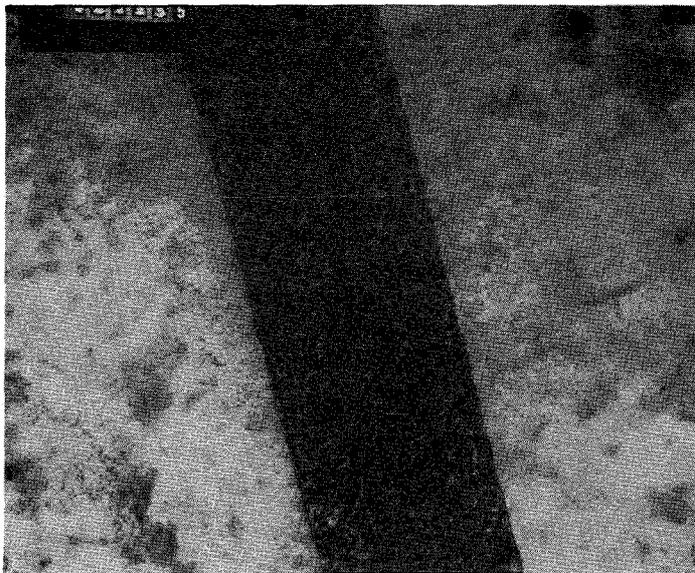


Abb. 1 Porenbildung in 1.4988 nach He-Implantation ( $10^{-5}$  He-Atome/Gitteratom) und  $3 \cdot 10^{17} \text{ C}^{++}$  Ionen/ $\text{cm}^2$  ( $\times$  ca. 80000)

Am Schwerionenbeschleuniger wurden bei Raumtemperatur Helium-Implantationen an Reinstnickel durchgeführt. Es wurden bei nachfolgenden Wärmebehandlungen ( $\sim 700$  °C) Bläschendurchmesser  $\leq 250$  Å bei Konzentrationen von  $\leq 2 \cdot 10^{15}/\text{cm}^3$  beobachtet.

#### 4. Theoretische Arbeiten (K. Ehrlich, D. Kaletta, W. Schneider, IMF)

Die Berechnungen zur Wechselwirkung von Strahlung und Festkörpern wurden durch Berücksichtigung inelastischer Prozesse sowie effektiver Ladungen verfeinert.

Zum eigentlichen Problem der Porenbildung wurde eine iterativ numerische Lösung von vier simultanen Differentialgleichungen entwickelt. Mit deren Hilfe ist es möglich, die Konzentration von Leerstellen und Interstitiellen zwischen den als Senken wirkenden Versetzungsnetzwerken zu bestimmen. Dies ist ein erster Schritt zu einer Porenkinetik.

#### 1132 Entwicklung neuer Legierungen

##### 1132.1 Vanadinlegierungen (H. Böhm, W. Scheibe, IMF)

Bei VTi3Si1-Hüllrohren, die aus Korrosionsgründen zusätzlich mit Armco-Eisen umhüllt sind, können bei Temperaturen von 650-700 °C spröde Diffusionsschichten zwischen beiden Werkstoffen auftreten. Während zunächst eine erste Untersuchung bei relativ hoher Temperatur (850 °C) und kürzerer Zeit (100 h) durchgeführt wurde, sind nunmehr drei Versuchsproben unter Vakuum bei 700 °C mit Glühzeiten von 3000, 5000 und 10 000 h im Einsatz.

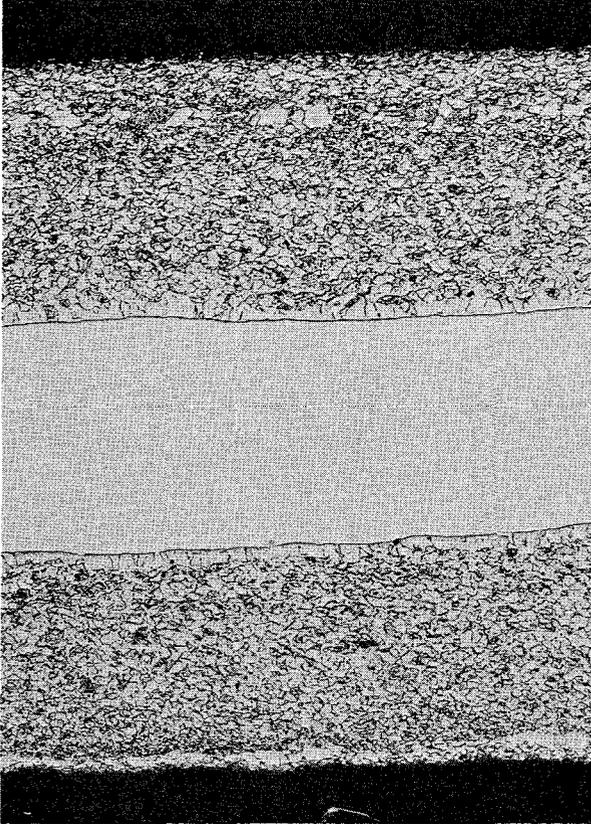


Abb. 2 Ausgangsmaterial (x100)

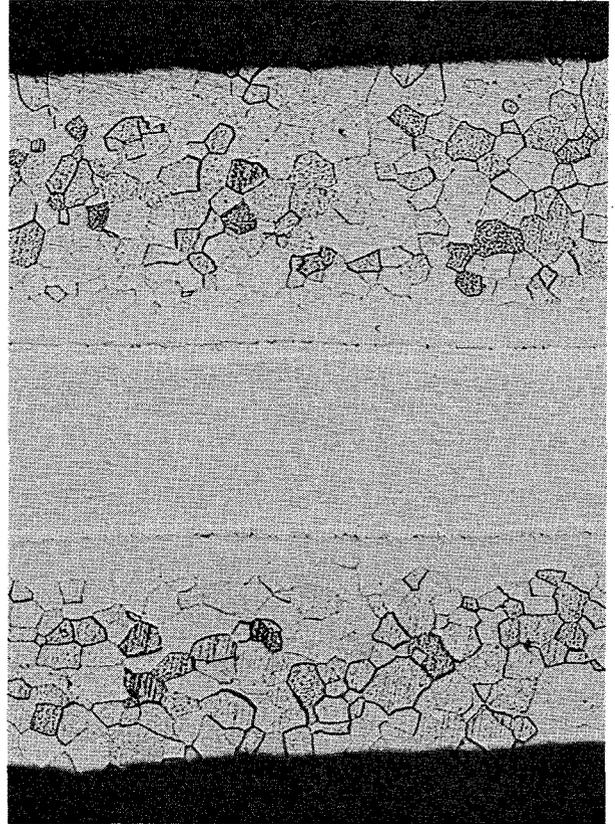


Abb. 3 Versuchsmaterial  
nach 3000 h (x100)

Die Abb. 2 zeigt das Ausgangsmaterial im Querschliff, Abb. 3 die Probe nach einer Glühzeit von 3000 h. Die Diffusionsschicht beträgt nach dieser Zeit 10  $\mu\text{m}$ . In der Schicht sind Risse zu beobachten. Außerdem beginnt sich das Armco-Eisen bereits von der Vanadinlegierung zu lösen.

#### Veröffentlichungen

(1) C. Wassilew, H. Böhm, W. Scheibe

Einfluß von Neutronenbestrahlung bei hohen Temperaturen auf das Zeitstand- und Kriechverhalten austenitischer Stähle.

Reaktortagung des Deutschen Atomforums 1971, Vortrag Nr. 231

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

2. The second part of the document outlines the various methods and tools used to collect and analyze data. It highlights the need for consistent and reliable data collection processes to support effective decision-making.

3. The third part of the document focuses on the role of technology in data management and analysis. It discusses how modern software solutions can streamline data collection, storage, and reporting, thereby improving efficiency and accuracy.

4. The fourth part of the document addresses the challenges associated with data management, such as data quality, security, and integration. It provides strategies to overcome these challenges and ensure that the data is reliable and secure.

5. The fifth part of the document discusses the importance of data governance and the role of leadership in ensuring that data is used ethically and responsibly. It emphasizes the need for clear policies and procedures to guide data management practices.

6. The sixth part of the document concludes by summarizing the key points discussed and reiterating the importance of a data-driven approach in achieving organizational success. It encourages continuous improvement and innovation in data management practices.

7. The seventh part of the document provides a detailed overview of the data collection process, including the identification of data sources, the design of data collection instruments, and the implementation of data collection procedures.

8. The eighth part of the document discusses the various methods used for data analysis, such as descriptive statistics, inferential statistics, and regression analysis. It explains how these methods can be used to interpret the data and draw meaningful conclusions.

9. The ninth part of the document focuses on the role of data visualization in presenting the results of data analysis. It discusses various visualization techniques, such as bar charts, line graphs, and pie charts, and their effectiveness in communicating complex data.

10. The tenth part of the document addresses the importance of data security and the measures that should be taken to protect sensitive information. It discusses various security protocols and the role of IT departments in ensuring data security.

11. The eleventh part of the document discusses the role of data in strategic planning and decision-making. It emphasizes how data can provide valuable insights into the organization's performance and help identify areas for improvement.

12. The twelfth part of the document concludes by summarizing the key points discussed and reiterating the importance of a data-driven approach in achieving organizational success. It encourages continuous improvement and innovation in data management practices.

### 3. Data Collection Methods

#### 3.1. Primary Data Collection

##### 3.1.1. Surveys

##### 3.1.2. Interviews

##### 3.1.3. Focus Groups

##### 3.1.4. Observations

##### 3.1.5. Experiments

#### 3.2. Secondary Data Collection

##### 3.2.1. Public Sources

##### 3.2.2. Internal Sources

##### 3.2.3. External Sources

##### 3.2.4. Archived Data

##### 3.2.5. Industry Reports

##### 3.2.6. Academic Journals

##### 3.2.7. Government Publications

##### 3.2.8. News Articles

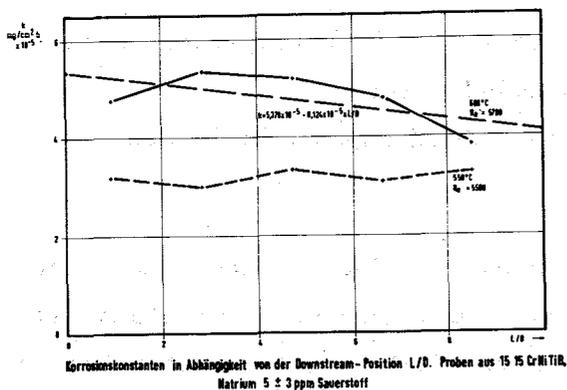
##### 3.2.9. Social Media

##### 3.2.10. Web Analytics

114 KORROSIONSVERSUCHE UND KÜHLMITTELANALYSEN1141 Natriumkühlung1141.11 Natriumkorrosion von austenitischen Stählen

(H.U. Borgstedt, A. Marin Garcia, IMF; G. Drechsler, G. Frees, IRB)

Ein Korrosionsversuch an Proben aus dem austenitischen Stahl 15 15 CrNiTiB bei 550 und 600 °C und einer Natriumströmung von 0,5 m/s erreichte die Versuchszeit von 3000 Stunden. Der Sauerstoffgehalt betrug  $5 \pm 3$  ppm. Die bei der Unterbrechung festgestellten Korrosionsraten entsprechen den an ähnlichen Stählen wie Werkstoff-Nr. 4981 gemessenen.



In Abb. 1 ist dargestellt, daß die Korrosionsraten in der 600 °C-Teststrecke positionsabhängig sind (Downstream-Effekt). Der Zusammenhang zwischen der Korrosionskonstante  $k$  [mg/cm²h] und der dimensionslosen Positionsgröße L/D (Abstand vom Eintritt der Teststrecke durch hydraulischen Durchmesser) ist gegeben durch

$$k = 5,378 \times 10^{-5} - 0,124 \times 10^{-5} \times (L/D) \quad [\text{mg/cm}^2\text{h}]$$

In der 550 °C-Teststrecke ist der Effekt nicht meßbar.

1141.12 Rohrinnendruckversuche

(N. Schwarz, SGAE, Inst.f.Reaktortechnik, Abt. Na-Technologie)

Seit Beginn dieses Jahres wird in der Natrium-Hochtemperaturanlage im Reaktorzentrum Seibersdorf im Auftrage der GfK ein Korrosionsversuch von unter Innendruck stehenden Hüllrohren durchgeführt. Der Versuchseinsatz, der von der Firma Interatom beigelegt wurde, umfaßt 12 druckbeaufschlagte Korrosionsproben und zwei drucklose Vergleichsproben. Nach Einbau des Testeinsatzes wurden die Versuchsbedingungen am 4.2.1971 erreicht und werden seither mit folgenden Toleranzen eingehalten:

## 1. Druck an den Proben

Werkst.-Nr. 1.4970	Proben-Nr. 1, 2, 3, 4	$p = 156 \text{ atü} \pm 2\%$
1.4981	5, 6, 7, 8	$p = 97 \text{ atü} \pm 3\%$
1.4988	9, 10, 11, 12	$p = 91 \text{ atü} \pm 3\%$
1.4988	$K_1, K_2$	Korrosionsproben ohne Innendruck

Wahrscheinlich infolge schadhafter Druckkapillaren fielen die Proben Nr. 5 und 10 kurz nach Versuchsbeginn aus und konnten nicht repariert werden. Die Drücke der einzelnen Probenstränge werden kontinuierlich aufgezeichnet.

2. Temperatur: Meß- incl. Regelgenauigkeit  $701 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ , Minimaltemperatur  $t_\tau > 690 \text{ }^\circ\text{C}$ .

3. Durchfluß: 20 l/min, dies entspricht incl. der Fertigungstoleranzen der Teststrecke einer Geschwindigkeit  $w = 5 \text{ m/sec} \pm 5\%$   $Re = 1 \cdot 10^5$ ; Minimalgeschwindigkeit  $w_\tau > 4,7 \text{ m/sec}$

4. Natriumeinheit: Natriumanalysen werden nach je 500 Versuchsstunden durchgeführt. Die ersten Analysen brachten jedoch noch kein zufriedenstellendes Ergebnis und werden wiederholt. Die Kühlfalltemperatur beträgt  $150 \pm 3 \text{ }^\circ\text{C}$ . Die Pluggingmessungen ergeben eine mit der Kühlfalltemperatur übereinstimmende Verstopfungstemperatur.

5. Die bis 31.3.1971 gefahrene Versuchszeit mit den unter Punkt 1 bis 3 genannten Minimalbedingungen (Index  $\tau$ ) betrug 1300 Stunden.

### 1141.3 Chemisch-analytische Untersuchungen

#### 1. Laborverfahren zur Bestimmung des Sauerstoffs in Natrium

(H.U. Borgstedt, Helga Schneider, IMF; G. Drechsler, G. Frees, IRB)

Eine fortgeschrittene Konstruktion der Vorrichtung zum Ziehen von Na-Proben aus dem Natriumkreislauf für Korrosionsversuche ist mit zufriedenstellendem Resultat geprüft worden. Damit sind die Eichung von Monitoren mit dem Destillationsverfahren, das in genügender Empfindlichkeit und Spezifität eingearbeitet worden ist, und die Messung von Kohlenstoff und einigen Spurenmitteln im Natrium des Kreislaufs möglich geworden.

## 2. Monitorverfahren zur Bestimmung des Sauerstoffes im Natrium

(H.U. Borgstedt, F. Martinez Doménech, H. Schneider, IMF; G. Drechsler, IRB)

Im analytischen Nebenkreislauf des Natriumkorrosionsprüfstandes sind Meßverfahren mit drei Festelektrolytsonden der United Nuclear Corp. gemacht worden (1).

Von den drei Sonden ist eine nach längerem Gebrauch (s. Tab. 1) nach einem Kurzschluß ausgefallen und beim Ausbau zerbrochen. Zwei andere sind weiterhin in Betrieb, eine weitere ist zum Einbau vorbereitet. Die über 13000 Std. eingesetzte Sonde zeigt keine Unterschiede in bezug auf die Sauerstoffanzeige und die Empfindlichkeit gegen Gammastrahlen gegenüber einer frisch eingesetzten Sonde.

Tabelle 1: Langzeiterprobung von Festelektrolyt-Sauerstoffsonden der UNC im Natriumkreislauf

Sonde Nr.	Einsatzdauer	Einsatz-temp.	Temp.-Schocks, maximal	E x p e r i m e n t e		
				Abschal-tungen	Sauerstoff-Variationen	EMK-Verschiebung d. 500 mCi-Strahlen
	h	°C	°C/min		ppm	mV
223	1300 (läuft weiter)	320	50	16	0,1-25	0
224	2964 (ausgefallen)	300	2,5	5	0,5-15	-10
341	750	310	2,5	2	0,5-5	0

Die Sonden haben sich als unempfindlich gegen Temperaturschwankungen zwischen 160 und 360 °C erwiesen. Die thermische Trägheit des Nebenkreises verhindert, daß normalerweise größere Änderungen als 2,5 °C/min vorkommen. Lediglich die Sonde 223 hat einmal einen Schock von 50 °C/min erhalten. Sie ist bisher 15-mal in Natrium eingefroren und außer Betrieb gesetzt worden.

Die Ursache des Ausfalls der Sonde 224 wurde erkannt. Wegen der schlecht funktionierenden Kühlung am Schaft der Sonde bildete sich dort kein fester Natriumstopfen. Der Flüssigkeitsspiegel stieg allmählich an, und schließlich drang Natrium in den Keramikkörper ein und verursachte Kurzschluß. Die Keramik zeigte äußerlich eine schwache, auf Wechselwirkung mit dem Natrium deutende Verfärbung, jedoch keine Korngrenzeneffekte.

Gegen die Gammastrahlung einer 500 mCi-Cs-Quelle waren die Sonden 223 und 341 unempfindlich, Sonde 224 zeigte eine reversible Verschiebung der EMK um -10 mV. Die Prüfung bei höherer Strahlendosis ist vorbereitet.

Die Kalibrierungskurven der geprüften Sonden liegen im Streubereich der Literatur.

### 3. Bestimmung von metallischen Verunreinigungen in Natrium-Metall.

(H. Schneider, IMF)

Für die Bestimmung von Calcium und Barium in Natrium-Metall wurde eine Bestimmungsmethode entwickelt, die auch nach Umsetzung des Metalles zu NaCl die Bestimmung von Ca- und Ba-Gehalten <1 ppm gestattet. Die Nachweisgrenze der Methode liegt bei einer Einwaage von 4 g Na-Metall bei 0,15 ppm Ca und 0,075 ppm Ba.

Bestimmung von Ca und Ba nach Umsetzung des Natriums zu NaCl und nach erfolgter Destillation im Destillationsrückstand brachten übereinstimmende Ergebnisse. Das beweist, daß in Gegenwart einer für die Bildung von CaO bzw. BaO ausreichenden Menge Sauerstoff diese beiden Elemente quantitativ im Destillationsrückstand zurückbleiben.

Auch die Arbeiten zur Bestimmung der Elemente Fe, Cr, Ni, Co, Cu und Mn wurden weitergeführt. Es wurden für die von uns entwickelte Bestimmungsmethode für diese Elemente die Nachweisgrenzen nach Umsetzung des Natriummetalles zu  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  bestimmt. Sie liegen bei einer Einwaage von 4 g Natriummetall für Fe und Cu bei <0,3 ppm und für Cr, Mn, Co und Ni bei <0,1 ppm.

Verschiedene Na-Metallproben wurden auf ihren Gehalt an Fe, Cr, Ni, Co, Cn und Mn analysiert. Aus dem Kreislauf konnten noch keine Proben für die Bestimmung dieser Elemente entnommen werden, da das bei der Probenahme verwendete Tiegelmaterial die zu bestimmenden Elemente in störenden Konzentrationen enthält.

Veröffentlichungen:

- (1) H.U. Borgstedt, G. Drechsler, G. Frees, H. Schneider, G. Wittig  
Die Bestimmung der Sauerstoffkonzentration in Natriumkreisläufen  
Reaktortagung des Deutschen Atomforums 1971, Vortrag Nr. 220

1141.4 Verschleiß, Reibkorrosion

(Beiträge hierzu erscheinen fortan unter 1262,3)

1142 Korrosionsverhalten bei Dampf- und Gaskühlung

1142.2 HKW-Kreislauf

(F. Erbacher, K. Marten, J. Vasarhelyi, IRB; S. Leistikow, IMF)

Der HKW-Kreislauf ist ein großtechnischer Prüfstand zur Untersuchung der Heißdampf-Korrosion unter Wärmeübergang.

Die Arbeiten zur Inbetriebnahme des Kreislaufes wurden abgeschlossen und der kurzzeitige Probetrieb des gesamten Kreislaufes aufgenommen.

In drei der insgesamt sechs parallelen Teststrecken wurden elektrisch beheizte Probestäbe mit einer beheizten Länge von max. 100 cm und einem Durchmesser von etwa 6,5 mm eingesetzt. Bei einer max. Hüllrohrtemperatur von 600 °C wurde eine Stabileistung von 310 W/cm (150 W/cm<sup>2</sup>) erreicht. In den folgenden Probeläufen ist eine stufenweise Steigerung dieser Werte auf die für die erste Versuchsreihe vorgesehene max. Stabileistung von 410 W/cm (200 W/cm<sup>2</sup>) und max. Hüllrohrtemperatur von 700 °C vorgesehen.

**Der elektrische Überhitzer für die isothermen Teststrecken wurde mit gutem Erfolg erprobt.**

1. The first part of the document discusses the importance of maintaining accurate records of all transactions.

2. It is essential to ensure that all entries are supported by appropriate documentation and receipts.

3. Regular audits should be conducted to verify the accuracy of the records and identify any discrepancies.

4. The second part of the document outlines the procedures for handling disputes and resolving conflicts.

5. It is important to establish clear communication channels and protocols for addressing any issues that arise.

6. The third part of the document provides a detailed overview of the financial reporting requirements.

7. All reports must be prepared in accordance with the relevant accounting standards and regulations.

8. The fourth part of the document discusses the role of the board of directors in overseeing the organization's financial performance.

9. The board should regularly review the financial statements and provide guidance on strategic financial decisions.

10. The fifth part of the document outlines the procedures for managing risk and ensuring the organization's long-term sustainability.

11. It is crucial to identify potential risks and implement effective risk management strategies.

12. The sixth part of the document provides a summary of the key findings and recommendations.

13. The final part of the document includes a list of references and a glossary of terms.

115 ARBEITEN ZUM BRENNSTOFFZYKLUS1151 Naßchemische Extraktionsverfahren1151.2 Purex-Fliebschemata (W. Ochsenfeld, IHCh)

Der zweite Extraktionszyklus der MILLI wurde mit Mn-56 hochaktiv getestet. Aus dem Behälter für Speiselösungen des 1. Zyklus wurde die Lösung über eine für diesen Versuch installierte Leitung in den 1 A Extraktor des 2. Zyklus dosiert.

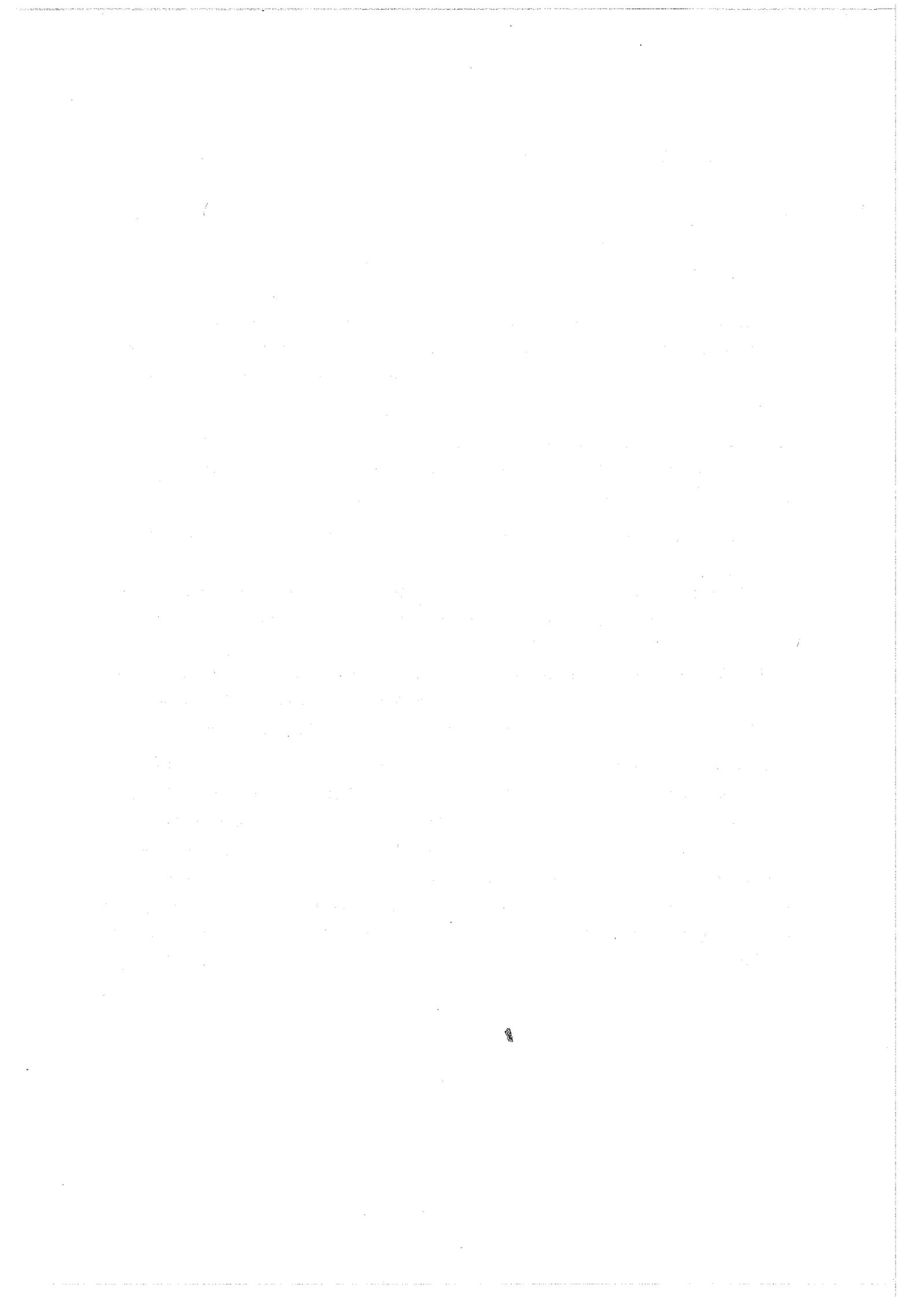
Die Verweilzeit des Extraktionsmittels im Extraktionsteil, in dem es mit der hochaktiven Lösung in Berührung stand, war insgesamt 15 Minuten in den Misch- und 22 Minuten in den Absetzkammern.

Die Speiselösung enthielt 1500-3000 ( $\beta$ ,  $\gamma$ ) Ci/l, 1 M  $UO_2(NO_3)_2$ , 0,005 M  $Zr(NO_3)_4$  und 3 M  $HNO_3$ .

Die Aktivität der Lösung entsprach etwa dem 1-1,5-Fachen der zu erwartenden Aktivität bei einer gemeinsamen Aufarbeitung von Core und Blanket eines Schnellen Brutreaktors.

Die Zirkon-Konzentration entsprach einem mittleren Abbrand des Cores von 80 000 MWd/t. Als Waschlösung diente 3 M  $HNO_3$ . Die Rückextraktion geschah mit 0,01 M  $HNO_3$ . Als Extraktionsmittel wurde 20% TBP/Alkan verwendet.

Das Extraktionsmittel enthält nach Einstellung des Gleichgewichts in den verschiedenen Kammern der Extraktion, der Wäsche und Rückextraktion 10-20 mg DBP/l, wie bei dem früheren Test im 1. Zyklus. Diese Menge ist 5-10mal kleiner, als aus der errechneten Strahlendosis und den experimentellen statischen Versuchen vorher geschätzt war. Die Frage der Auswirkungen der Radiolyse des Extraktionsmittels in Anwesenheit von Zirkon wurde nicht eindeutig beantwortet. An den Phasengrenzen zeigte sich eine geringfügige Bildung von Niederschlägen, die sich nach einigen Tagen teilweise auflösten.



121 PHYSIKALISCHE EXPERIMENTE1211 Experimentelle Reaktor- und Neutronenphysik1211.1 Meßmethoden für NulleistungsreaktorenDigitale Auswertung von Spaltspurdetektoren

(B. Goel, INR; G. Günther, E. Korthaus, IAR)

1. Auswertung mit dem "Classimat"

Der "Classimat" wurde auf seine Verwendbarkeit bei höheren Spurendichten untersucht. Das Gerät ist in begrenztem Maße in der Lage, überlappende

Spuren richtig zu zählen. Für 60 $\mu$ -Lexan-Detektoren, 80 min lang bei 50 °C in 6n KOH geätzt, wurde die in Abb. 1 gezeigten Zählverluste in Abhängigkeit von der Spurendichte ermittelt. Bei 10<sup>3</sup> Spuren/mm<sup>2</sup> betragen die Zählverluste bereits etwa 10%. Durch die sogenannte Konvergenzschaltung läßt sich eine gewisse Verbesserung erreichen. Mit ihrer Hilfe kann man eine Korrektur für einige Spurenkonfigurationen, die von dem Gerät nicht richtig gezählt werden (z.B.  $\wedge$ -förmige Spuren) bestimmen.

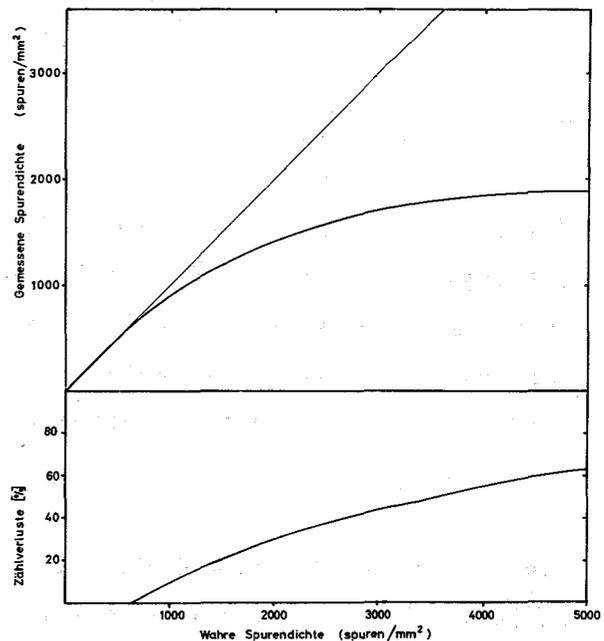


Abb. 1

Abb. 2 zeigt die Ergebnisse derartiger Messungen. Die gestrichelten bzw. durchgezogenen Kurven entstammen zwei verschiedenen Ätzserien, deren Ätzparameter identisch gewählt waren. Die großen Abweichungen deuten darauf hin, daß der Ätzvorgang nicht unbedingt gut reproduzierbar ist.

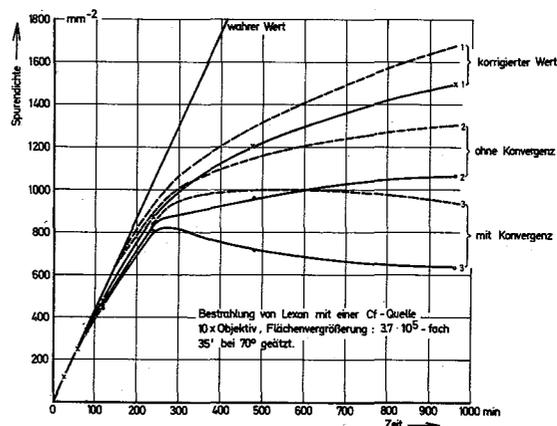


Abb. 2

Falls hier keine entscheidende Verbesserung möglich sein sollte, müßte die mittlere Spurengröße, die ebenfalls vom "Classimat" bestimmt werden kann, als weiterer Parameter in die Korrektur der Zählverluste eingeführt oder gegebenenfalls eine zusätzliche Eichmessung für jede Ätzserie durchgeführt werden.

Bisher wurden die Spaltspuren nach dem Ätzvorgang mit Hilfe eines Filzschreibers angeschwärzt, um einen besseren Kontrast zu erreichen. Neuere Untersuchungen deuten darauf hin, daß man auf diese Maßnahme, die vermutlich auch nicht sehr gut reproduzierbar ist, verzichten kann. Dies würde auch eine beträchtliche Ersparnis an Arbeitsaufwand bedeuten.

## 2. Computer-Auswertung

Der für die Computer-Auswertung der Spaltspurdetektoren erforderliche Anschluß des "Classimat" an die Honeywell-Rechenanlage wurde vorbereitet. Es muß hierzu u.a. ein zweites Exemplar der im "Classimat" verwendeten TV-Kamera durch geeignete Modifikationen an die bereits vorhandene Interface-Elektronik angepaßt werden.

Das FORTRAN IV-Programm COUNT für die Auszählung der Spaltspuraufnahmen wurde weiterentwickelt. Es ist nun in der Lage, Untergrundspuren, die sich in Form und Größe merklich von Spaltspuren unterscheiden, zu eliminieren.

1213 SNEAK

Versuche mit der Anordnung SNEAK-7A

(R. Böhme, E.A. Fischer, E. Korthaus, P. Mc Grath, IAR)

Das Experimentierprogramm an der Anordnung 7A wurde abgeschlossen.  
Für einige Experimente liegt die Auswertung vor.

1. Experimente zur Bestimmung von  $\beta_{\text{eff}}$  und des Normierungsintegrals

Um die Unsicherheiten in der Reaktivitätsskala, die in schnellen Pu-U<sup>238</sup>-Anordnungen auftreten [1], näher zu untersuchen, wurden in SNEAK-7A drei voneinander unabhängige Experimente zur getrennten Bestimmung von  $\beta_{\text{eff}}$  und des Normierungsintegrals durchgeführt. Die drei Experimente waren

- a) Reaktivitätswert einer Cf-252-Quelle bekannter Quellstärke und absolute Spaltratenbestimmung im Corezentrum. Der Wert der Cf-Quelle ist gegeben durch

$$\rho_{\text{Cf}} = \frac{S_{\text{Cf}}}{\beta_{\text{eff}} v(\Sigma_f \Phi) F}$$

Hierbei ist F das Normierungsintegral, wobei die Spaltneutronenquelle und die adjungierte Quelle im Zentrum auf Eins normiert sind. Aus beiden Messungen erhält man  $v\beta_{\text{eff}}F$ , und da  $v$  relativ gut bekannt ist,  $\beta_{\text{eff}}F$ .

- b) Axiale und radiale Traversen mit Spaltkammern und einer Cf-252-Quelle. Dieses Experiment liefert nach Integration über das Reaktorvolumen das Normierungsintegral F.
- c) Axiale und radiale Traversen des Reaktivitätswertes von Pu<sup>239</sup>.  
Nach Korrektur für das inzwischen auf etwa 10% bekannte  $\alpha^{49}$  und

für die Spaltungen im  $U^{238}$  kann durch Integration  $1/\beta_{\text{eff}}$  erhalten werden.

Die Ergebnisse einer ersten Auswertung dieser Experimente liegen vor und sind in **Tab. 1 zusammengestellt:**

	Experiment	Rechnung	Rechn./Exp.
$\beta_{\text{eff}}^{VF} = \frac{S_{Cf}}{\rho_{Cf}(\Sigma_f \Phi)}$	491 cm <sup>3</sup>	394 cm <sup>3</sup>	0.80
F	39800 cm <sup>3</sup>	38500 cm <sup>3</sup>	0.97
$\beta_{\text{eff}}$ (aus Integration von $\rho_g$ )	0.00412	0.00347	0.84
v	--	2.95	

Die Ergebnisse zeigen, daß  $\beta_{\text{eff}}$  von der Rechnung erheblich unterschätzt wird, während das Normierungsintegral nur um wenige Prozent falsch berechnet wird.

## 2. Materialwert-Messungen im Core-Zentrum

In SNEAK-7A wurden zentrale Materialwerte von Brennstoffisotopen und Absorbern gemessen. Die Messungen wurden mit dem pneumatischen Pile-Oszillator durchgeführt, wobei das Oszillator-Element in der Umgebung der Probe mit Core-Material beladen war. Alle Brennstoffisotope und  $B^{10}$  wurden mindestens zweimal gemessen. Die angegebenen Daten sind teilweise Mittelwerte über mehrere Messungen. Die Auswertung erfolgte meist mit dem Programm KINEMAT, das die inversen kinetischen Gleichungen löst.

Die berechneten Werte wurden aus einer radialen Diffusionsrechnung und anschließender Störungsrechnung erster Ordnung erhalten. Der Einfluß der Heterogenität wurde abgeschätzt und für praktisch alle Fälle sehr klein gefunden. Die Rechnungen wurden mit dem MOXTOT-Satz durchgeführt. Der Wert für  $\beta_{\text{eff}} = 0.00348$  wurde einer DIXY-Rechnung in R-Z-Geometrie entnommen. Tabelle 2 zeigt die Ergebnisse.

Die Spaltstoffisotope  $U^{235}$  und  $Pu^{239}$  werden um etwa 20% zu hoch berechnet. Diese Abweichung ist nach I. im wesentlichen auf die Unsicherheit in  $\beta_{\text{eff}}$  zurückzuführen.  $U^{238}$  wird, auch im Verhältnis zu  $Pu^{239}$ , noch um ca. 25% überschätzt; dieses Ergebnis hängt vermutlich mit der Unterschätzung des Spektralindex  $\sigma_{f8}/\sigma_{f9}$  zusammen. Die Überschätzung der Absorber-Werte (mit Ausnahme von  $Eu_2O_3$ ) im Verhältnis zu  $Pu^{239}$  deutet darauf hin, daß das Spektrum zu weich berechnet ist. Bei Ta ist jedoch die Diskrepanz so stark, daß man einen Fehler in der Messung vermutet.

### Literatur:

- [1] W.W. Little und R.W. Hardie:  
Nucl. Sci. Eng. 36, 115 (1969)

Tabelle 2                      Materialwerte in SNEAK-7A

	Gewicht der Probe, g	Meßergebnis m\$/g	Rechnung / Exp. MOXTOT
U-235	3.3	2.18±0.04	1.25
U-238	123	-0.106±0.003	1.50
Pu-239	3	2.85±0.05	1.22
Pu-240	2.7	0.67±0.04	0.89
$B^{10}$	0.4	-53.0±0.5	1.38
	0.8	-51.5±0.5	1.42
$B_4C$	6.3	-7.35±0.07	1.42
Ta	36	-0.82±0.05	2.0
$Eu_2O_3$	4	-3.28±0.1	1.29
SS	27	-0.055±0.005	2.0

Veröffentlichungen zu 1213:

F. Helm, G. Jourdan, F. Plum

Physikalische Untersuchungen an natriumgekühlten schnellen Cores  
in Plättchen- und Stäbchengeometrie

Reaktortagung Bonn März 1971, Tagungsbericht

W. Bickel, G. Wittek

Betriebserfahrungen an der Schnellen Null-Energie-Anordnung Karlsruhe (SNEAK)

Reaktortagung Bonn März 1971, Tagungsbericht

E. Korthaus, B. Goel, G. Günther, W. Schołtyssek

Zur Messung von Spalt- und Einfangraten mit Spaltspurdetektoren und  
Ge(Li)-Detektoren

Reaktortagung Bonn März 1971, Tagungsbericht

D. Wintzer, H.G. Bogensberger

Analyse von SEFOR-Experimenten

Reaktortagung Bonn März 1971, Tagungsbericht

R. Böhme, E.A. Fischer, E. Korthaus

Zur Bestimmung von  $\beta_{\text{eff}}$  in schnellen Reaktoren

Reaktortagung Bonn März 1971, Tagungsbericht

1215 Wirkungsquerschnittsmessungen

1215.1 Van-de-Graaff-Beschleuniger

1215.11 Spaltquerschnittsmessungen (F. Käppler, F.H. Fröhner, IAK)

Die Messungen des Spaltquerschnitts von  $^{235}\text{U}$  mit Gasszintillationszähler zum Nachweis der Spaltungen und Protonenrückstoßzähler zur Flußmessung wurden weitergeführt. Zusätzlich zu den bereits gemessenen Werten (1,2) wurden 9 weitere Werte zwischen 0,5 und 1,2 MeV mit monoenergetischen Neutronen gemessen. Die endgültige Auswertung kann erst erfolgen, wenn

die Massen und stöchiometrischen Zusammensetzungen der von BCMN Geel gelieferten Radiatorfolien für den Protonenrückstoßzähler genauer bestimmt sind.

1215.12 Verhältnis von Einfang- zu Spaltquerschnitt bei  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$   
(R. Bandl, F.H. Fröhner, IAK)

Die Auswertung der Messungen zwischen 8 und 60 keV wurde abgeschlossen. Die endgültigen  $\alpha$ -Werte sind in Tab. 3 zusammengestellt, ihre statistischen und systematischen (Normierungs- u.a.) Unsicherheiten in Tab. 4. Diese Ergebnisse wurden auf der Kerndatenkonferenz in Knoxville (März 1971) vorgetragen (3).

Tab. 3 Verhältnis Einfang- zu Spaltquerschnitt

Energiebereich		Mittlerer $\alpha$ -Wert <sup>†)</sup>	
$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)	$\alpha(^{235}\text{U})$	$\alpha(^{239}\text{Pu})$
8	9	0,402	0,687
9	10	0,337	0,689
10	11	0,374	0,617
11	12	0,406	0,604
12	13	0,353	0,505
13	14	0,335	0,539
14	15	0,437	0,566
15	16	0,453	0,450
16	17	0,415	0,381
17	18	0,371	0,386
18	19	0,343	0,389
19	20	0,362	0,388
20	22,5	0,349	0,354
22,5	25	0,279	0,304
25	27,5	0,269	0,287
27,5	30	0,278	0,284
30	35	0,324	0,291
35	40	0,346	0,280
40	45	0,333	0,244

†) Unsicherheiten s. Tab. 4

Energiebereich		Mittlerer $\alpha$ -Wert $\alpha(^{235}\text{U})$	(Forts.) $\alpha(^{239}\text{Pu})$
$E_1$ (keV)	$E_2$ (keV)		
45	50	0,371	0,236
50	60	0,364	0,218

Tab. 4 Repräsentative Unsicherheiten der  $\alpha$ -Werte

Nuklid	Fehlertyp	Relativfehler bei		
		10 keV	20 keV	50 keV
$^{235}\text{U}$	systematisch	+ 13%	+ 10%	+ 10%
	statistisch	+ 11%	+ 8%	+ 4%
	insgesamt	+ 17%	+ 13%	+ 11%
$^{239}\text{Pu}$	systematisch	+ 12%	+ 10%	+ 11%
	statistisch	+ 10%	+ 8%	+ 5%
	insgesamt	+ 16%	+ 13%	+ 12%

Veröffentlichungen zu 1215.1:

(1) F. Käppler,

A Measurement of the Fission Cross Section of  $^{235}\text{U}$  at 440 and  
530 keV Neutron Energy

KFK-Bericht 1313 (Nov. 1970)

(2) PSB-Vierteljahresbericht 1970, KFK 1270/3 (Nov. 1970)

(3) R.E. Bandl, H. Mießner, F.H. Fröhner

Third Conf. on Neutron Cross Sections and Technology,

Knoxville 1971 (to be published)

1215.2 Zyklotron1215.21 Ausbau und Betrieb des Spektrometers

(G. Schmalz, A. Schmidt, S. Cierjacks, D. Kopsch, L. Kropp,  
J. Nebe, F. Voß, IAK)

Die weiterentwickelte Version des 200 kHz-Ablenkensystems wurde Juli/August 1970 erstmals für eine längere Meßperiode eingesetzt. Zur Untersuchung des Langzeitverhaltens bei gleichzeitig hohen Targetströmen wurde der mittlere Targetstrom bei einer Folgefrequenz von 200 kHz auf 6  $\mu$ A erhöht. Dabei war es möglich, die Ablenkspannung von 5 kV an 100  $\Omega$  bei einer Halbwertsbreite des Ablenkimpulses von 30 ns wie vorgesehen zu erreichen (1).

Im Februar/März 1971 wurde ein neuer Generator für den Innendeflektor eingesetzt. Damit konnte erstmals eine kontinuierliche Variation der Ablenkfrequenz zwischen 0 und 200 kHz erreicht werden. Dies wurde während einer 5 wöchigen Meßperiode in einem Dauertest erprobt. Während dieser Meßperiode wurde bei einer experimentell bedingten Ablenkfrequenz von 100 kHz ein mittlerer Targetstrom von 5  $\mu$ A gewählt.

1215.22 Totale Neutronenwirkungsquerschnitte

(S. Cierjacks, G.J. Kirouac, D. Kopsch, L. Kropp, J. Nebe, F. Voß, IAK)

Die Auswertung der totalen Wirkungsquerschnittsdaten für die Kerne  $^{12}\text{C}$  und  $^{40}\text{Ca}$  wurde abgeschlossen [1,2,3], (2). Die beim totalen Wirkungsquerschnitt im MeV-Bereich bei Spin- und Paritätszuordnungen auftretenden Mehrdeutigkeiten konnten mit Hilfe zusätzlicher Informationen aus differentiellen elastischen Wirkungsquerschnittsmessungen beseitigt werden (3). Für  $^{23}\text{Na}$  [1] und das separierte Isotop  $^{15}\text{N}$  (4) wurden die Resonanzparameteranalysen des totalen Wirkungsquerschnittes ebenfalls zum Abschluß gebracht. Aufgrund der früher durchgeführten Untersuchungen über das Totzeitverhalten des Datenannahmesystems für die Wirkungsquerschnittsmessungen wurde eine

Tabelle erstellt, mit deren Hilfe die bereits in graphischer Form veröffentlichten Daten für die Elemente C, Na, Al, S, Ca, Fe, Tl und Bi, bei denen die Totzeiteffekte ursprünglich überbewertet worden waren, korrigiert werden [4].

Die numerischen Werte aller bisher gemessenen Wirkungsquerschnitte einschließlich der korrigierten Daten für die erwähnten 8 Elemente sind beim CCDN, Saclay erhältlich.

### 1215.23 Inelastische Neutronenwirkungsquerschnitte

(F. Voß, S. Cierjacks, L. Kropp, IAK)

In einem 2-Parameter-Experiment wurde die neuerstellte Apparatur zur Messung der inelastischen Neutronenstreuung erstmals im Juli 1970 eingesetzt. An den Kernen  $^{27}\text{Al}$  und  $^{56}\text{Fe}$  gelang dabei die eindeutige Zuordnung einer großen Zahl von  $\gamma$ -Übergängen zu individuellen Reaktionskanälen der inelastischen Neutronenstreuung, so u.a. bei  $^{27}\text{Al}$  die Übergänge von 792, 843, 1013, 1719, 2209 sowie 2980/3001 keV und bei  $^{56}\text{Fe}$  die von 846, 1038, 1238, 1808, 2093/2111, 2273, 2522 sowie 2604 keV.

In Abb. 3 sind die über alle Neutronenenergien (von der Schwelle bis ca. 13 MeV) integrierten  $\gamma$ -Energiespektren der aus Neutronenreaktionen stammenden  $\gamma$ -Quanten für die beiden Kerne gezeigt. Für die genannten Übergänge in  $^{27}\text{Al}$  mit Ausnahme des Überganges von 792 keV und die für  $^{56}\text{Fe}$  aufgeführten Übergänge von 846, 1038 und 1238 keV sind in der Zwischenzeit relativ zum sehr genau bekannten (n,p)-Querschnitt die  $\gamma$ -Produktionswirkungsquerschnitte berechnet worden (5, 6). Als Beispiel sind in Abb. 2 die Produktionswirkungsquerschnitte für die Übergänge von 1013 keV in  $^{27}\text{Al}$  und von 846 keV in  $^{56}\text{Fe}$  im Energiebereich von 0.9 bis 4.5 MeV gezeigt. Es handelt sich hierbei um vorläufige Ergebnisse. Zum Vergleich sind in dieser Abbildung Ergebnisse anderer Autoren eingetragen.

Zusätzlich wurden in der Zwischenzeit aus diesen Daten und den aus anderen Arbeiten bekannten Verzweigungsverhältnissen die inelastischen Neutronenwirkungsquerschnitte berechnet, und zwar im Falle des  $^{27}\text{Al}$  für die ersten 4 angeregten Niveaus sowie für das 5te und 6te zusammen sowie im Falle des  $^{56}\text{Fe}$  für die ersten beiden angeregten Niveaus. Diese Ergebnisse haben ebenfalls noch vorläufigen Charakter, da die endgültigen Korrekturen für Vielfachstreuung noch nicht enthalten sind. Diese Rechnungen werden zur Zeit durchgeführt.

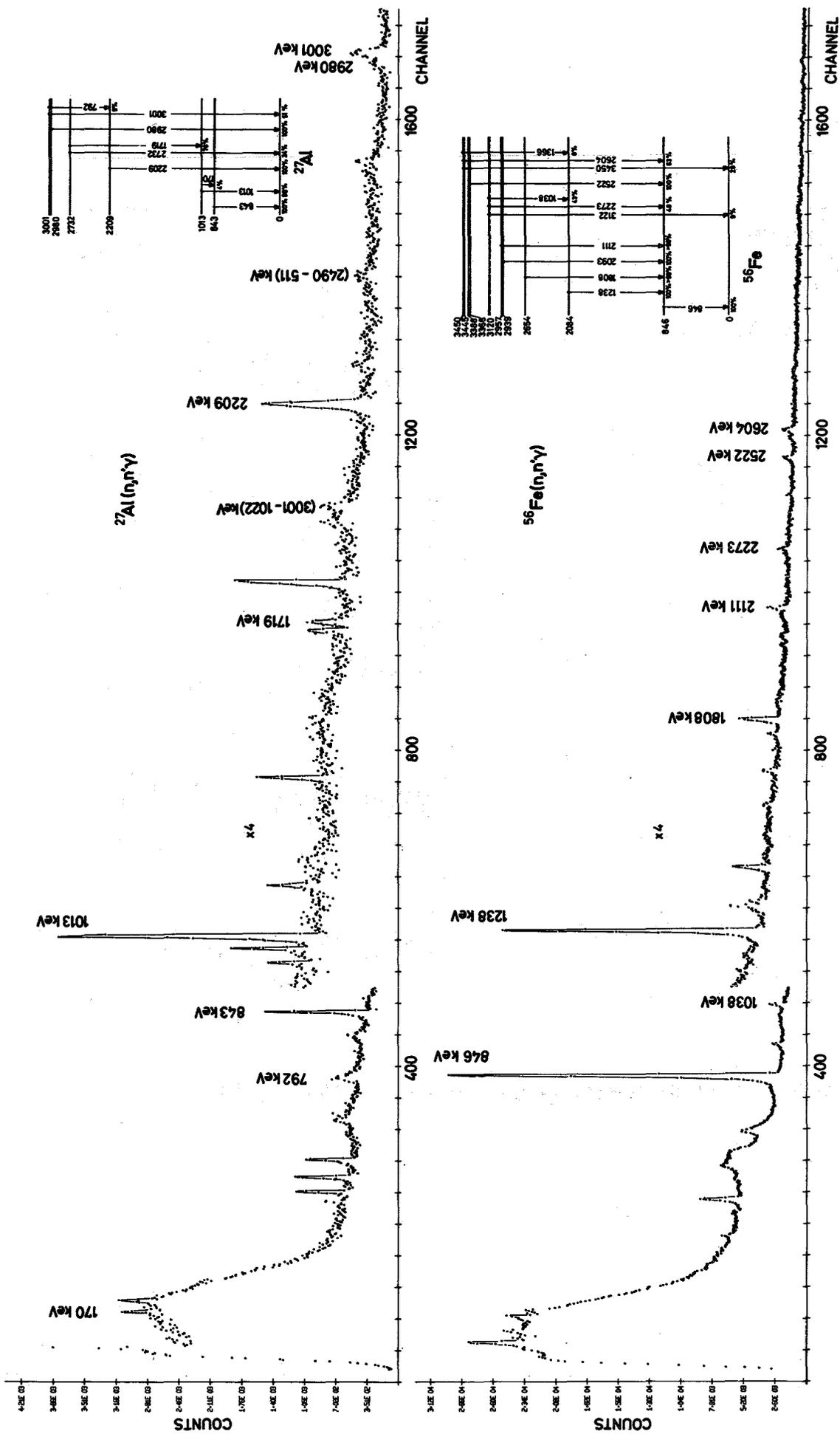


Abb.3 Über alle Neutroneneinfallsenergien integrierte  $\gamma$ -Energiespektren für  $^{27}\text{Al}$  und  $^{56}\text{Fe}$

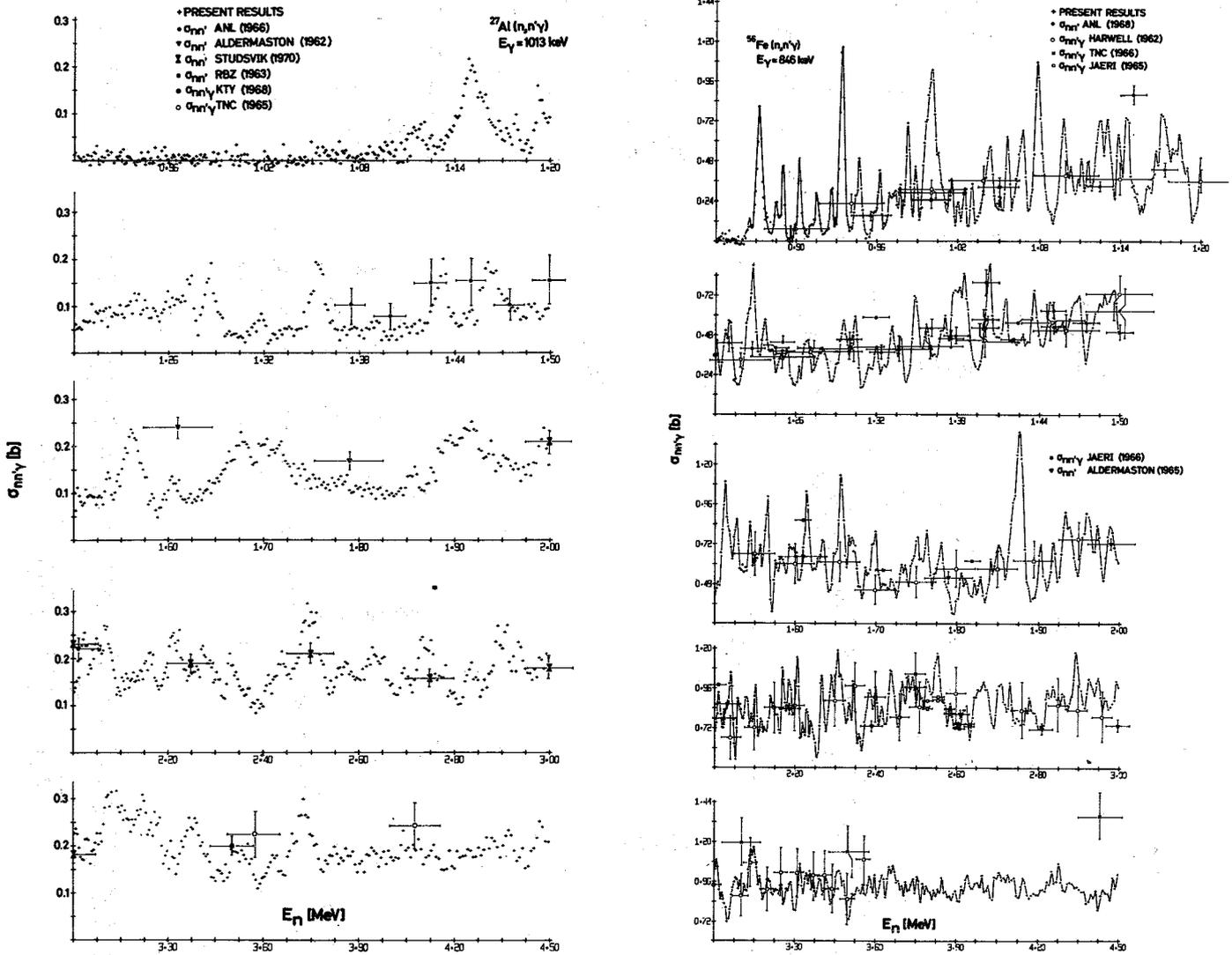


Abb. 4.  $\gamma$ -Produktionswirkungsquerschnitte für  $^{27}\text{Al}$  und  $^{56}\text{Fe}$

In weiteren Auswertungen soll mit Hilfe statistischer Analysen geklärt werden, ob die in den Gesamtquerschnitten beobachteten intermediären Strukturen [ 5 ] auch in den einzelnen Streukanälen auftreten und zueinander korreliert sind. Derartige Informationen gestatten eindeutige Aussagen über die Natur solcher Wirkungsquerschnittsschwankungen.

#### 1215.24 Spaltquerschnittsmessungen

( S. Cierjacks, D. Kopsch, J. Nebe,  
G. Schmalz, F. Voß, IAK )

In der Zeit Oktober-Dezember 1970 wurde die Entwicklung einer verbesserten Flugzeitanordnung zur Messung von Spaltquerschnittsverhältnissen und absoluten Spaltquerschnitten im Energiebereich  $0.5 \leq E_n \leq 32$  MeV abgeschlossen. Mit dieser Anordnung, die im wesentlichen aus 9 hintereinandergeschalteten Gasszintillationskammern besteht, konnte in Verbindung mit dem großen Flugzeitspektrometer am Karlsruher Isochronzyklotron im Februar/März 1971 eine erste Messung des Spaltquerschnitts von  $^{238}\text{U}$  durchgeführt werden. Bei einer Ablenkfrequenz von 100 kHz und einem mittleren Targetstrom von  $5 \mu\text{A}$  konnte hierbei in einer Meßperiode von ca. 100 h Dauer der Spaltquerschnitt mit ausreichender Statistik bestimmt werden. Die Zeitauflösung der einzelnen Spaltkammern wurde zuvor mit Hilfe der bei der Spaltung von  $^{252}\text{Cf}$  auftretenden prompten  $\gamma$ -Strahlung, die über einen Plastik-Szintillationszähler nachgewiesen wurde, und der entsprechenden Spaltprodukte zu 4 ns bestimmt. Gleichzeitig mit den Spaltereignissen von 7  $^{238}\text{U}$ -Folien wurden die Ereignisse von einer  $^{235}\text{U}$  Folie gemessen, um die Bestimmung des Spaltquerschnittsverhältnisses zu ermöglichen. Zusätzlich wurde bei diesem Experiment der zur Absolutbestimmung des Spaltquerschnitts notwendige Neutronenfluß ermittelt. Dies erfolgte über ein Neutronen-Doppel-Flugzeitexperiment, bei dem die unter einem bestimmten Winkel elastisch gestreuten Neutronen nachgewiesen wurden. Erste Ergebnisse in Form von Flugzeitspektren für die Spaltereignisse liegen bereits vor (7). Die Ermittlung des Spaltquerschnittsverhältnisses  $\frac{\sigma_{35}}{\sigma_{38}}$  sowie die Berechnung der Spaltquerschnitte sind in Vorbereitung.

Literaturverzeichnis:

- [1] J. Nebe, G.J. Kirouac,  
High Resolution Neutron Scattering Measurements and the  
Analysis of Resonance  
Vortrag auf der Frühjahrstagung der DPG, Verhandl. DPG (6, K-17,  
526/1970), auch als KFK-Bericht 1189, 1970
- [2] J. Nebe, G.J. Kirouac,  
Multilevel Resonance Analysis of the Total Neutron Cross Section  
of  $^{23}\text{Na}$  and Ca below 1 MeV  
Proc. of the 2<sup>nd</sup> Int. Conf. on Nuclear Data for Reactors,  
Helsinki, Vol. II, 745 (1970), auch als KFK-Bericht 1195, 1970
- [3] J. Nebe  
Untersuchung der Niveaustuktur von  $\text{Ca}^{41}$  oberhalb der Neutronen-  
bindungsenergie  
Dissertation, Universität Karlsruhe, Nov. 1970
- [4] S. Cierjacks, P. Forti, D. Kopsch, L. Kropp, J. Nebe, H. Unseld,  
Erratum zu KFK 1000, EUR 3963e, EANDC [E]-111 "U", Dez. 1970
- [5] D. Kopsch  
Bestimmung mittlerer Niveaudichten und -breiten aus Fluktuations-  
analysen des totalen Neutronenwirkungsquerschnittes einiger Kerne  
im Massenbereich  $A < 60$  zwischen 0.8 und 14 MeV.  
Dissertation Universität Karlsruhe, Nov. 1970

Veröffentlichungen zu 1215.2:

- (1) G. Schmalz, S. Cierjacks,  
Fast Deflection Bunching System for Use with the Isochronous Cyclotron  
Veröffentlichung in Vorbereitung
- (2) S. Cierjacks,  
Measurement and Analysis of the Total Neutron Cross Section of  
Carbon from 0.5 to 30 MeV.  
Proc. of the EANDC Symposium on Neutron Standards and Flux Norma-  
lization, ANL, 21. -23. 10. 1970

- (3) G.J. Kirouac, J. Nebe  
Neutron Resonance Assignment for  $^{40}\text{Ca}$  (n,n) by High Resolution  
Differential Scattering Measurements  
Nucl. Phys. A 154, 36 (1970)
- (4) B. Zeitnitz, H. Dubenkropp, P. Putzki, G.J. Kirouac, S. Cierjacks,  
J. Nebe, C.B. Dover  
Neutron Scattering from  $^{15}\text{N}$  (part I and II)  
Nucl. Phys. 166/3
- (5) F. Voß, S. Cierjacks, L. Kropp,  
Measurement of High Resolution  $\gamma$ -Ray Production Cross Section in  
Inelastic Neutron Scattering on Al and Fe between 0.8 and 13 MeV  
Proc. of the 3<sup>rd</sup> Conf. on Neutron Cross Sections and Technology,  
15. - 17.- März, 1971, Knoxville
- (6) F. Voß, S. Cierjacks, L. Kropp  
Messung hochaufgelöster  $\gamma$ -Produktionsquerschnitte bei der inelasti-  
schen Streuung von Neutronen an Al und Fe  
Vortrag auf der Frühjahrstagung der DPG in Würzburg, März 1971
- (7) S. Cierjacks, D. Kopsch, J. Nebe, G. Schmalz, F. Voß  
A Facility for the Measurement of Fast Neutron Fission Cross Sections  
Using an Isochronous Cyclotron  
Proc. of the 3<sup>rd</sup> Conf. on Neutron Cross Sections and Technology,  
15. - 17. März, 1971, Knoxville, Tennessee

1216 SEFOR

Analyse der statischen Leistungsmessungen und der konventionellen

Oszillatorexperimente (H. Bogensberger, L. Caldarola, D. Wintzer, IAR;  
F. Mitzel, INR)

Gegenüber einer ersten Analyse, die im 4. Vierteljahresbericht 1970 beschrieben wurde, wurde das Modell zur Beschreibung des Zusammenhangs zwischen Doppleraktivität  $\Delta k_D$  und Reaktorleistung  $P$  verfeinert, um die Leistungsabhängigkeit des effektiven Wärmewiderstandes  $R_f$  der Brennstäbe bzw. der effektiven Brennstofftemperatur  $T_{\text{eff}} = \bar{\Theta} + R_f P$  zu berücksichtigen.

Kernpunkte des Modells sind zwei empirische Gesetzmäßigkeiten, die eine analytische Darstellung des Zusammenhangs zwischen  $T_{\text{eff}}$  und  $P$  erlauben:

- a) Die Differenz zwischen zentraler Brennstofftemperatur  $T_Z$  und umgebender Natriumtemperatur  $T_{\text{Na}}$  ist bei SEFOR eine lineare Funktion der Leistungsdichte  $q$ :

$$T_Z - T_{\text{Na}} = Lq \quad (1)$$

(Es ist zu beachten, daß ein derart einfacher Zusammenhang nicht für die mittlere Brennstofftemperatur besteht). Die Beziehung (1) wurde sowohl durch Temperaturmessungen in SEFOR als auch durch Temperaturrechnungen mit dem SATURN-Code (siehe Abb. 5) bestätigt. Darüberhinaus wurde sie bei der Analyse der Oszillatorexperimente (Brennstab-Zeitkonstante als Funktion der Leistung) bestätigt.

- b) Die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  im Brennstoff läßt sich im Temperaturbereich zwischen  $530^\circ\text{K}$  und  $3000^\circ\text{K}$  in guter Näherung durch

$$\lambda = \frac{1}{C} \frac{1}{T(T_1 - T)} \quad (2)$$

beschreiben.

Mit (1) und (2) ergibt sich

$$T_{\text{eff}} = -\frac{T_1}{a_1 P} \ln \left[ 1 - \frac{\bar{\theta} + a_2 P}{T_1} (1 - e^{-a_1 P}) \right] \quad (3)$$

Bedeutung der Symbole:

$\bar{\theta}$  = mittlere Na-Temperatur

$a_1 = \alpha C T_1 R^2 / 4$

$R$  = Radius der Brennstofftabletten

$\alpha$  = Konstante, die durch das Brennstoffvolumen und die Leistungsverteilung im Reaktor bestimmt ist

$a_2 = \alpha L$

Der unsicherste Parameter in Gl. (3) ist  $a_2$  bzw.  $L$ . Die Größe  $L$  wird durch die temperaturabhängige Wärmeleitfähigkeit im Brennstoff und durch den temperaturabhängigen Wärmewiderstand zwischen Brennstoff und Hüllrohr bestimmt. Letzterer ist schwierig zu berechnen. SATURN-Rechnungen ergaben  $L = 15.0^\circ\text{C}/(\text{W}/\text{cm}^3)$  (vergl. Abb. 5). Direkte Messungen von  $T_Z - T_{\text{Na}}$  in SEFOR ergaben  $L = (14.7 \pm 1.7)^\circ\text{C}/(\text{W}/\text{cm}^3)$  für Meßpositionen in der Nähe des radialen Corezentrums und  $L = (19.8 \pm 1.7)^\circ\text{C}/(\text{W}/\text{cm}^3)$  für Meßpositionen in der Nähe des radialen Corerandes. Die Ursache für die unterschiedlichen Ergebnisse ist nicht geklärt. Es bestehen Zweifel an der Funktionstüchtigkeit der Thermoelemente, von denen einige im Verlaufe der Messungen ausfielen. Eine weitere Informationsquelle für  $L$  sind die Oszillatorexperimente, aus denen sich die Zeitkonstante  $\tau$  für Temperaturänderungen im Brennstoff bestimmen läßt, welche eng mit  $L$  zusammenhängt. Die Analyse der konventionellen Oszillatorexperimente ergab  $L = (15.6 \pm 2)^\circ\text{C}/(\text{W}/\text{cm}^3)$ . Eine Abwägung der möglichen systematischen Fehlerquellen der drei Informationsquellen führt zu  $L = (14.5 \pm 1.9)^\circ\text{C}/(\text{W}/\text{cm}^3) = (26 \pm 3.3)^\circ\text{F}/(\text{W}/\text{cm}^3)$ .

Trägt man die bei den statischen Leistungsexperimenten bestimmte Dopplerreaktivität<sup>+)</sup> nicht als Funktion der Leistung  $P$ , sondern als

<sup>+) Reaktivitätsverlust durch Leistungserhöhung bei konstanter Na-Temperatur, nach Anbringung einer kleinen theoretischen Korrektur für Brennstoff-Ausdehnungseffekte.</sup>

Funktion von  $\ln \frac{T_{\text{eff}}}{\theta}$  auf, so ergibt sich der in Abb. 6 dargestellte Zusammenhang, der innerhalb der experimentellen Unsicherheiten linear ist. Die Neigung der eingezeichneten Geraden ist als Dopplerkonstante  $D$  (in cent) zu interpretieren.

Es muß jedoch darauf hingewiesen werden, daß sich die mittlere quadratische Abweichung der Meßpunkte von der Modellgeraden nur unwesentlich ändert, wenn man  $L$  bei der Berechnung von  $T_{\text{eff}}$  innerhalb der angegebenen Unsicherheitsgrenzen variiert und dabei zu anderen Neigungen der Modellgeraden kommt.

Eine ähnliche Problematik besteht bei der Interpretation der Ergebnisse der konventionellen Oszillatorexperimente, aus denen man zunächst  $dk/dP$  als Funktion der Reaktorleistung bei konstanter mittlerer Na-Temperatur bestimmt. Auch hier erfordert der Schluß auf die Dopplerkonstante die Umrechnung der Leistung in eine effektive Brennstofftemperatur, d.h. die Kenntnis von  $L$  und  $\lambda$ . Wie bei den statischen Experimenten beschreibt das Modell

$$\frac{dk}{dP} = D T_{\text{eff}} \frac{dT_{\text{eff}}}{dP}$$

die experimentellen Ergebnisse mit verschiedenen Parameterkombinationen  $D$  und  $L$  praktisch gleich gut. Die Kurven in Abb. 7 ordnen verschiedenen Werten von  $L$  jeweils solche Werte von  $D$  zu, die zu der besten Anpassung des Modells an die experimentellen Daten führen. Man erkennt, daß sich die Doppler-Aussagen der statischen und konventionellen Oszillator-Experimente nur geringfügig unterscheiden. Für  $L = 14.5^{\circ}\text{C}/(\text{W}/\text{cm}^3)$  bzw.  $26^{\circ}\text{F}/(\text{W}/\text{cm}^3)$  ergibt sich als Mittelwert der beiden Experimenttypen

$$D = -253 \beta_{\text{eff}}$$

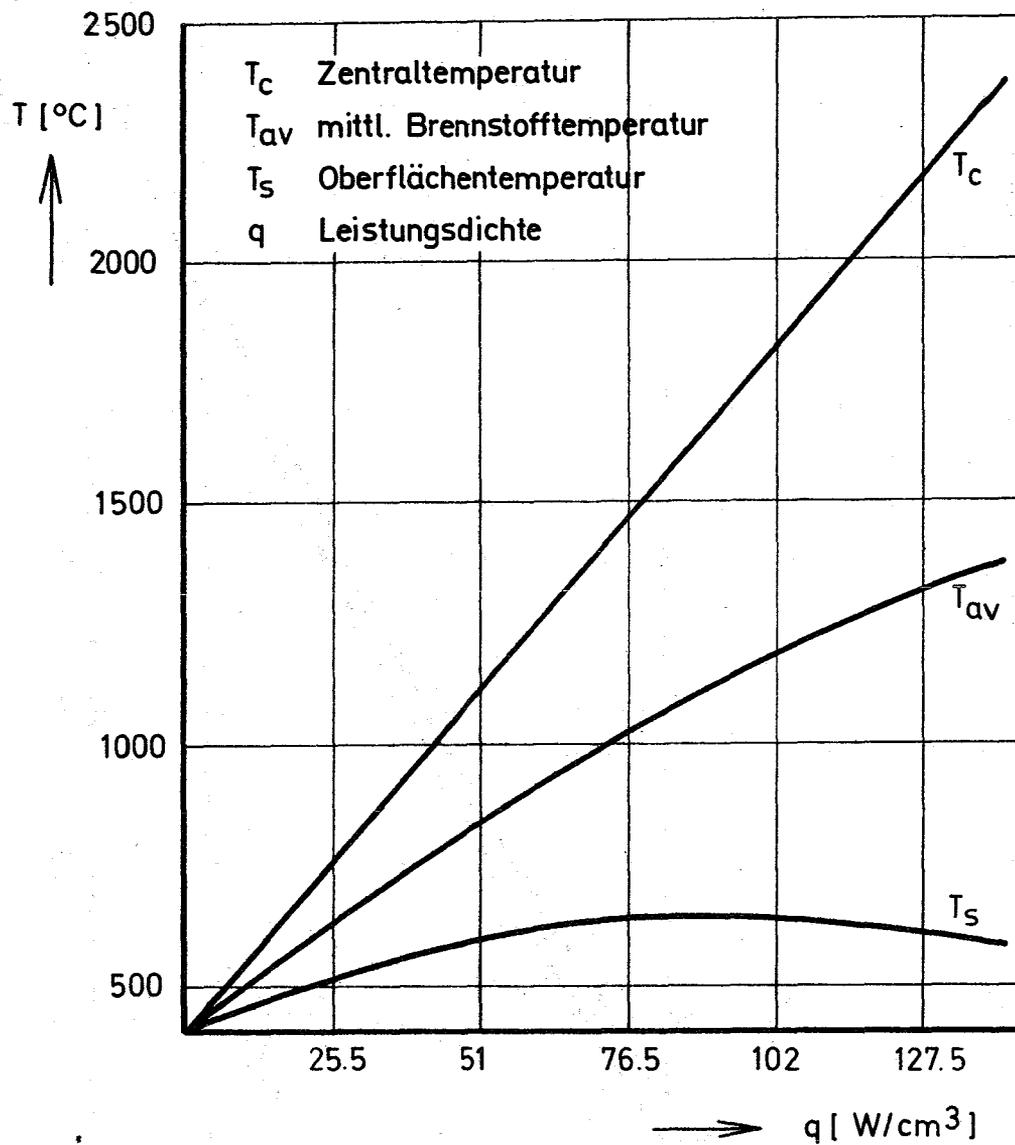
Aufgrund der Unsicherheit in  $L$  und in  $\lambda$  muß diesem Wert eine Unsicherheit von 14% zugeordnet werden. Mit  $\beta_{\text{eff}} = 0.00327$  ergibt sich  $D = -0.0083$ .

**Veröffentlichung zu 1216:**

**D. Wintzer et al.:**

**The SEFOR Minimum Critical Core**

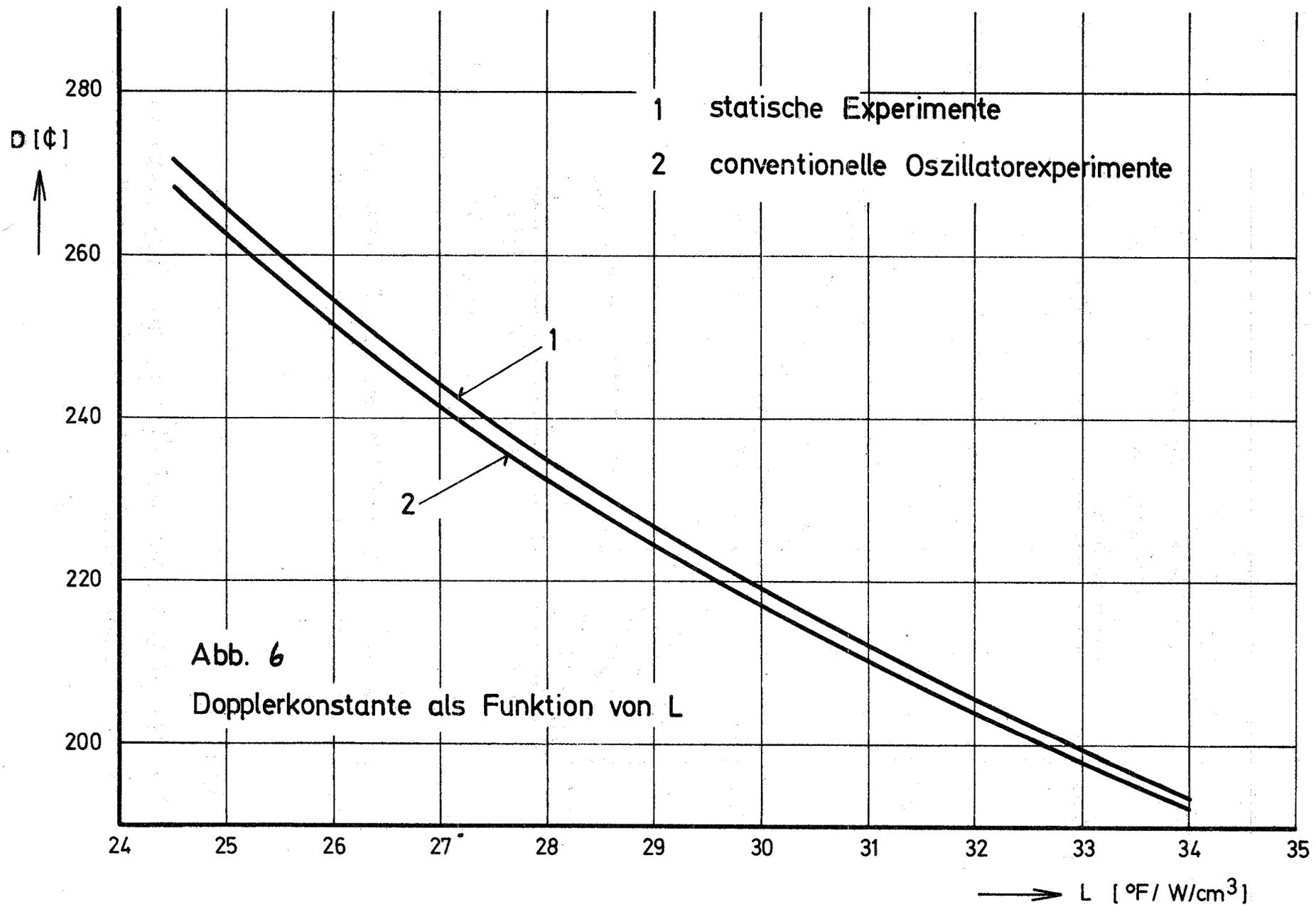
**Nuclear Technology, Vol. 10, January 1971, p. 5-10**

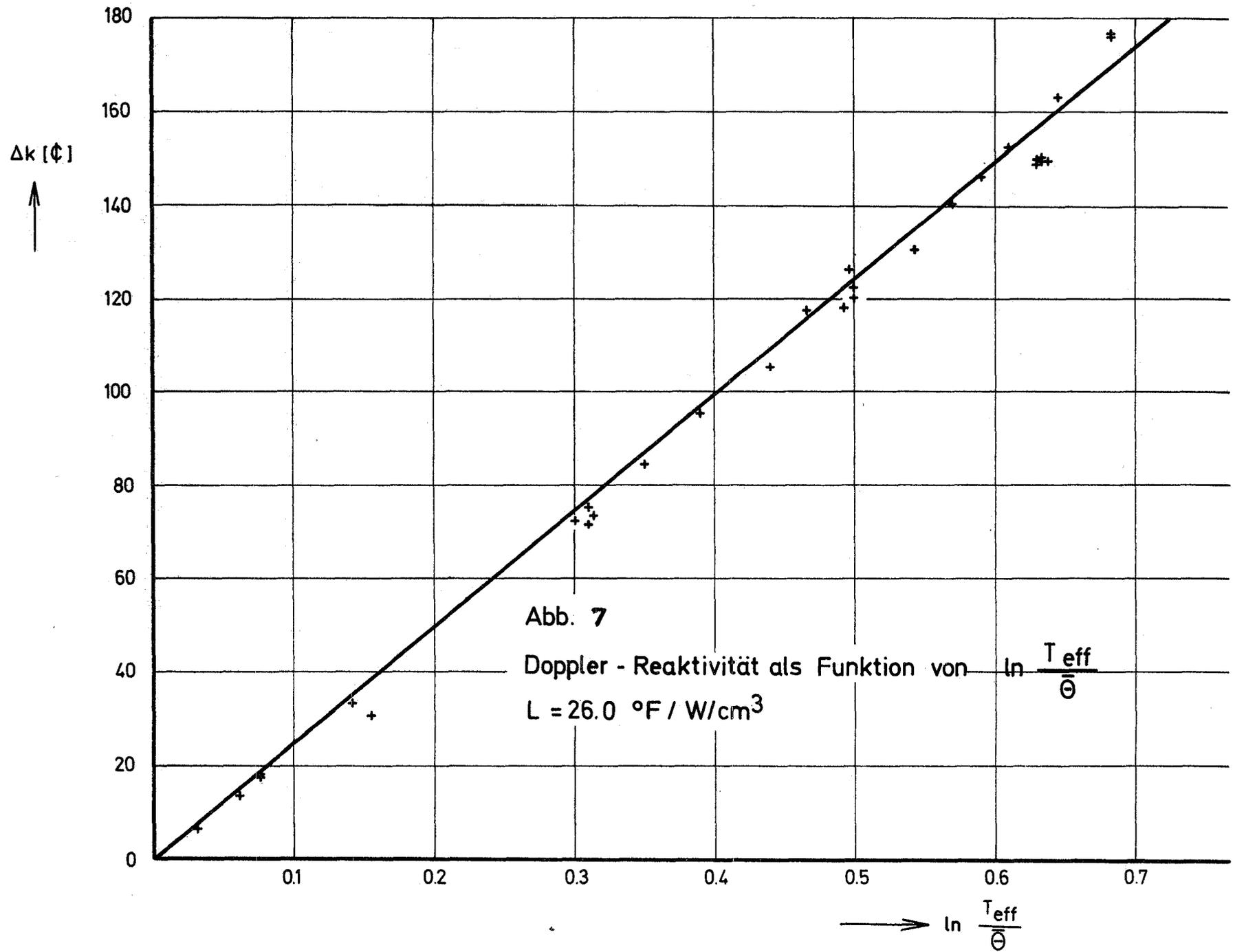


$$L_c = \frac{T_c - \bar{\theta}}{q} = 14.45^\circ\text{C} / \text{W/cm}^3 = 26^\circ\text{F/W/cm}^3$$

Abb. 5

Ergebnisse von Brennstoff-Temperatur-Berechnungen  
mit dem Saturn-Code





Handwritten text, likely bleed-through from the reverse side of the page. The text is extremely faint and illegible due to the quality of the scan and the nature of the bleed-through. It appears to be several lines of text, possibly a list or a series of notes, but no specific words or numbers can be discerned.

122. REAKTORTHEORIE1221. Wirkungsquerschnitte und GruppenkonstantenNeu-Auswertung von  $\sigma_f$  und  $\bar{\nu}$  für U-235

(B. Hinkelmann, INR)

Für U-235 wurden der Spaltquerschnitt und die mittlere Anzahl der pro Spaltung freiwerdenden Neutronen bis herauf zu 15 MeV neu ausgewertet, da seit 1966 (dem Jahr, in dem J.J. Schmidt die Kerndaten für dieses Isotop ausgewertet hatte [1]), zahlreiche sehr genaue Messungen für diese Datentypen durchgeführt worden sind. Die genaue Kenntnis des Spaltquerschnittes für U-235 ist aber Voraussetzung für seine Benutzung als Standard und wichtig für die Berechnung schneller Reaktoren. Hinsichtlich der mittleren Anzahl der Spaltneutronen für U-235 haben neuere Messungen beträchtliche Abweichungen von der bislang als linear angenommenen Energieabhängigkeit von  $\bar{\nu}$  im niederen Energiebereich aufgezeigt. Ältere Messungen hatten im allgemeinen keine genügend hohe Auflösung und waren auch nicht in genügend kleinen Energieintervallen vorgenommen worden, um diesen Effekt zu zeigen. Die Auswertung von  $\bar{\nu}$  berücksichtigt die neuesten Empfehlungen der IAEA [2] für den  $\bar{\nu}$ -Wert der Spontanspaltung von Cf-252, der in allen neueren  $\bar{\nu}$ -Messungen als Referenz-Wert benutzt wird:

$$\bar{\nu}_t(\text{Cf-252}) = 3.765 \pm 0.012$$

wobei  $\bar{\nu}_t = \bar{\nu}_p + \bar{\nu}_d$ ;

$\bar{\nu}_p$  = mittlere Zahl der prompten Neutronen pro Spaltung

und  $\bar{\nu}_d$  = mittlere Anzahl der verzögerten Neutronen pro Spaltung.

Für den thermischen  $\bar{\nu}$ -Wert von U-235 wurde keine Auswertung vorgenommen. Wir haben uns hier auf die umfassenden Studien von Hanna, Westcott et al.

[2] über die 2200 m/sec Konstanten thermisch spaltbarer Isotope verlassen und folgenden Wert übernommen:

$$\bar{v}_t^{\text{th}}(\text{U-235}) = 2.4229 \pm 0.0066$$

wobei wieder  $\bar{v}_t = \bar{v}_p + \bar{v}_d$  und  $\bar{v}_p$  die eigentliche Meßgröße ist. Zur Ermittlung der Gesamtzahl der Spaltneutronen  $\bar{v}_t(E)$  aus den gemessenen  $\bar{v}_p(E)$  haben wir für die Zahl der verzögerten Neutronen die experimentellen Ergebnisse von Masters, Thorpe, Smith [3] benutzt. Sie sind in Übereinstimmung mit theoretischen Erwartungen, jedoch im Widerspruch zu älteren Messungen. Bei der Auswertung von  $\bar{v}(E)$  ( $= \bar{v}_t$ ) wurden im besonderen die folgenden Messungen berücksichtigt:

Blyumkina et al.;	1964	[4]
Butler et al.;	1961	[5]
Colvin, Sowerby;	1965	[6]
Condé	1966	[7]
Hopkins, Diven;	1963	[8]
Kuznetsov, Smirenkin;	1966	[9]
Mather et al.;	1964	[10]
Meadows, Whalen;	1962, 1967	[11,12]
Nesterov et al.;	1970	[13]
Prokhorova, Smirenkin;	1968	[14]
Savin et al.;	1970	[15]
Soleilhac et al.;	1969, 1970	[16,17]

Die experimentellen  $\bar{v}_p(\text{U-235})$ -Werte dieser Messungen wurden mit dem kürzlich empfohlenen  $\bar{v}_p(\text{Cf-252})$ -Wert unnormiert. Nach Berücksichtigung des Anteils der verzögerten Neutronen wurden sie durch eine glatte Kurve gefittet, die bei der thermischen Energie durch den von der IAEA empfohlenen  $\bar{v}$ -Wert geht.

Abb. 1 zeigt die experimentellen Daten für  $\bar{v}(\text{U-235})$  zusammen mit den Fehlern der Meßpunkte sowie die empfohlene Kurve für  $\bar{v}(E)$  im Energiebereich von 0 bis 15 MeV, Abb. 2 dasselbe im Energiebereich 1,4 MeV bis 15 MeV.

Unterhalb 1.5 MeV ist  $\bar{\nu}_{25}(E)$  durch eine glatte Kurve gegeben, die maximale Abweichungen von der linearen Energieabhängigkeit bei 0.4 MeV von ungefähr 1.05% und bei 1.05 MeV von ungefähr 1% aufweist. Oberhalb 1.5 MeV kann  $\bar{\nu}_{25}(E)$  durch Geraden verschiedener Steigung angenähert werden. Die lineare Energieabhängigkeit wird hier modifiziert durch das Einsetzen der (n,n'f) Reaktion bei ungefähr 6 MeV und das Einsetzen des (n,2n'f) Prozesses bei ungefähr 11 MeV. Die Abweichungen der gegenwärtig empfohlenen  $\bar{\nu}_{25}$ -Werte von den früheren KEDAK-Werten betragen im Energiebereich unterhalb 2 MeV maximal 0.7%, im Energiebereich oberhalb 2 MeV maximal 2%. Bei einer Genauigkeit der gemessenen  $\bar{\nu}(E)$  von <1% sind diese Abweichungen als beträchtlich anzusehen.

Für den Spaltquerschnitt wurde im aufgelösten und unaufgelösten Resonanzbereich, d.h. unterhalb 1 keV, keine Neuauswertung vorgenommen, da die auf KEDAK vorhandenen  $\sigma_f$ -Werte den Michaudon-Daten [21, 22] entsprechen und diese von den oberhalb 1 keV jetzt empfohlenen Blons-Werten [19] im Mittel um nicht mehr als 4% abweichen. Im Energiebereich 1 keV - 30 keV jedoch betragen die Abweichungen zwischen diesen beiden Meßserien maximal 15% und machten daher eine Überprüfung unerlässlich. Von den in diesem Energiebereich existierenden hochaufgelösten Meßserien von

Patrick et al.	[18]
Blons et al.	[19]
de Saussure et al.	[20]
Michaudon et al.	[21, 22]
Vang-Shi-di et al.	[23]
W.K. Brown et al.	[24]
Cao et al.	[25]
Bowman et al.	[26]
Cramer	[35]

wurden die Meßergebnisse von Blons et al. für eine Übernahme auf KEDAK ausgewählt, da diese Messungen mit der besten Energieauflösung unter den oben aufgeführten durchgeführt wurden. Sie zeigen wie auch die anderen Meßserien eine ausgeprägte Struktur im Spaltquerschnitt bis herauf zu 30 keV. Zum Vergleich dieser Messungen sind in Abb. 3 Mittelwerte der

Meßergebnisse der wichtigsten Serien über 1 keV-Intervalle unterhalb 10 keV und über 10-keV-Intervalle oberhalb 10 keV bis 30 keV gegeben.

Oberhalb 30 keV wurden die experimentellen Datenpunkte der schon ausgewählten Meßserien durch eine glatte Kurve gefittet. Berücksichtigt wurden die Ergebnisse folgender Autoren:

Melkonian et al.	[ <sup>-</sup> 27 <sub>7</sub> ]
Diven	[ <sup>-</sup> 28 <sub>7</sub> ]
Dorofeev, Dobrynin	[ <sup>-</sup> 29 <sub>7</sub> ]
Kalinin, Pankratov	[ <sup>-</sup> 30 <sub>7</sub> ]
Adams et al.	[ <sup>-</sup> 31 <sub>7</sub> ]
White	[ <sup>-</sup> 32 <sub>7</sub> ]
Knoll, Pönitz	[ <sup>-</sup> 33 <sub>7</sub> ]
Hansen, McGuire, Smith	[ <sup>-</sup> 34 <sub>7</sub> ]
Cramer	[ <sup>-</sup> 35 <sub>7</sub> ]
Szabo et al.	[ <sup>-</sup> 36 <sub>7</sub> ]
Käppeler	[ <sup>-</sup> 37 <sub>7</sub> ]

Die experimentellen Ergebnisse von Diven, von Dorofeev, Dobrynin, von Kalinin, Pankratov, von Adams et al. und von Cramer wurden mit Einschränkung benutzt.

In Abb. 4, 5, 6 sind die experimentellen  $\sigma_f$ -Werte der ausgewählten Messungen sowie die empfohlene  $\sigma_f(E)$ -Kurve dargestellt. Der Energiebereich von 30 keV bis 270 keV wird in Abb. 4 betrachtet, der Energiebereich von 200 keV bis 1.5 MeV in Abb. 5 und von 1 MeV bis 15 MeV in Abb. 6. Die größten Abweichungen der zur Zeit empfohlenen  $\sigma_f$ -Werte von den früher auf KEDAK empfohlenen sind im Energiebereich oberhalb 2 MeV anzutreffen und sind dort von der Größenordnung von 10%. Diese großen Abweichungen gehen auf die Unterschiede zwischen den von Hansen, McGuire, Smith korrigierten alten LA-Messungen von Smith, Henkel, Nobles [<sup>-</sup>38<sub>7</sub>] und den ursprünglichen Ergebnissen dieser Messungen zurück. In dem übrigen Energiebereich betragen die Abweichungen maximal 3%.

Die ausgewerteten  $\sigma_f(E)$ - und die  $\bar{\nu}(E)$ -Werte werden nach Überprüfung und evtl. Verbesserung von  $\sigma_T$  und  $\alpha$  für U-235 auf das KEDAK-File gebracht.

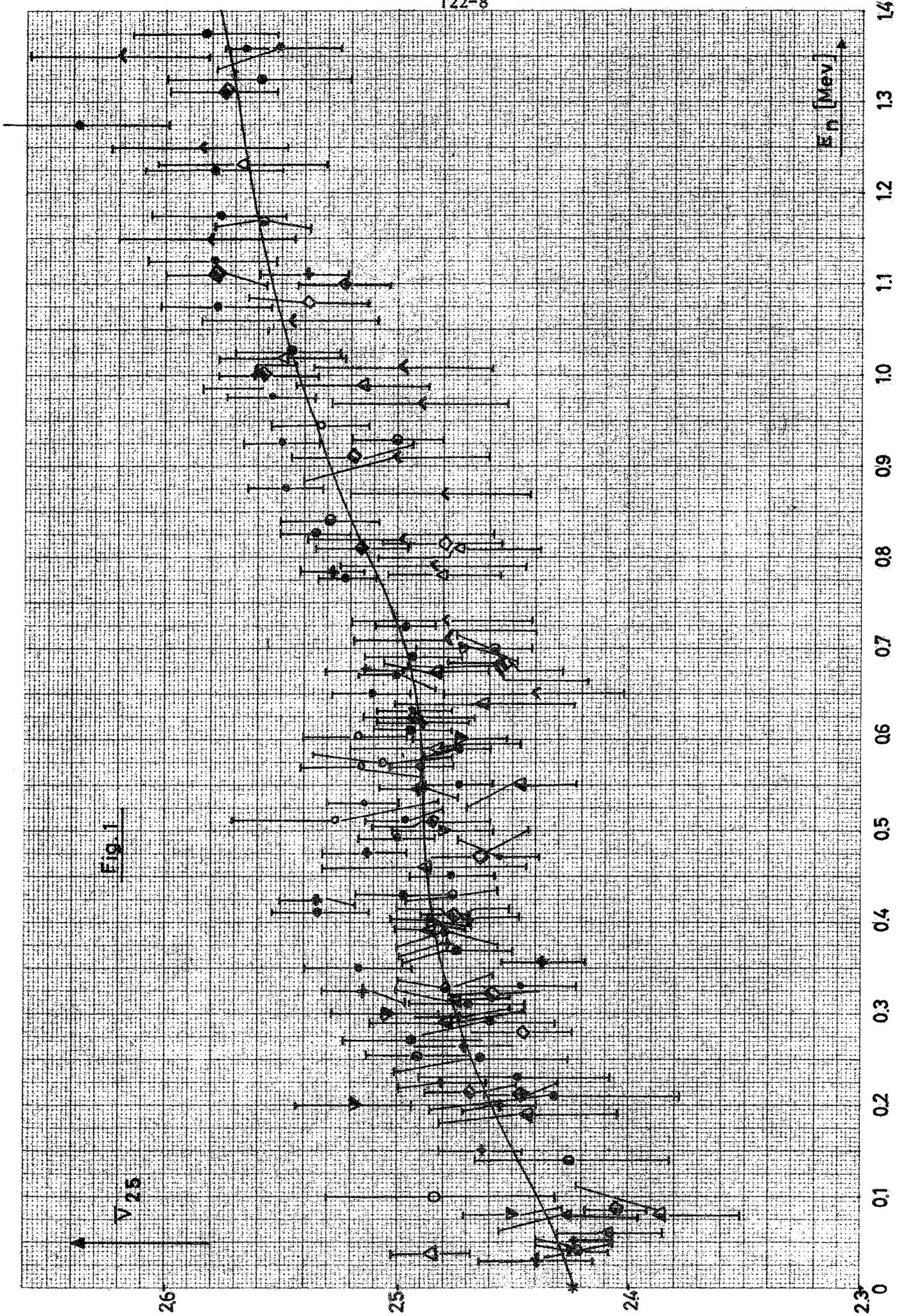
Literatur

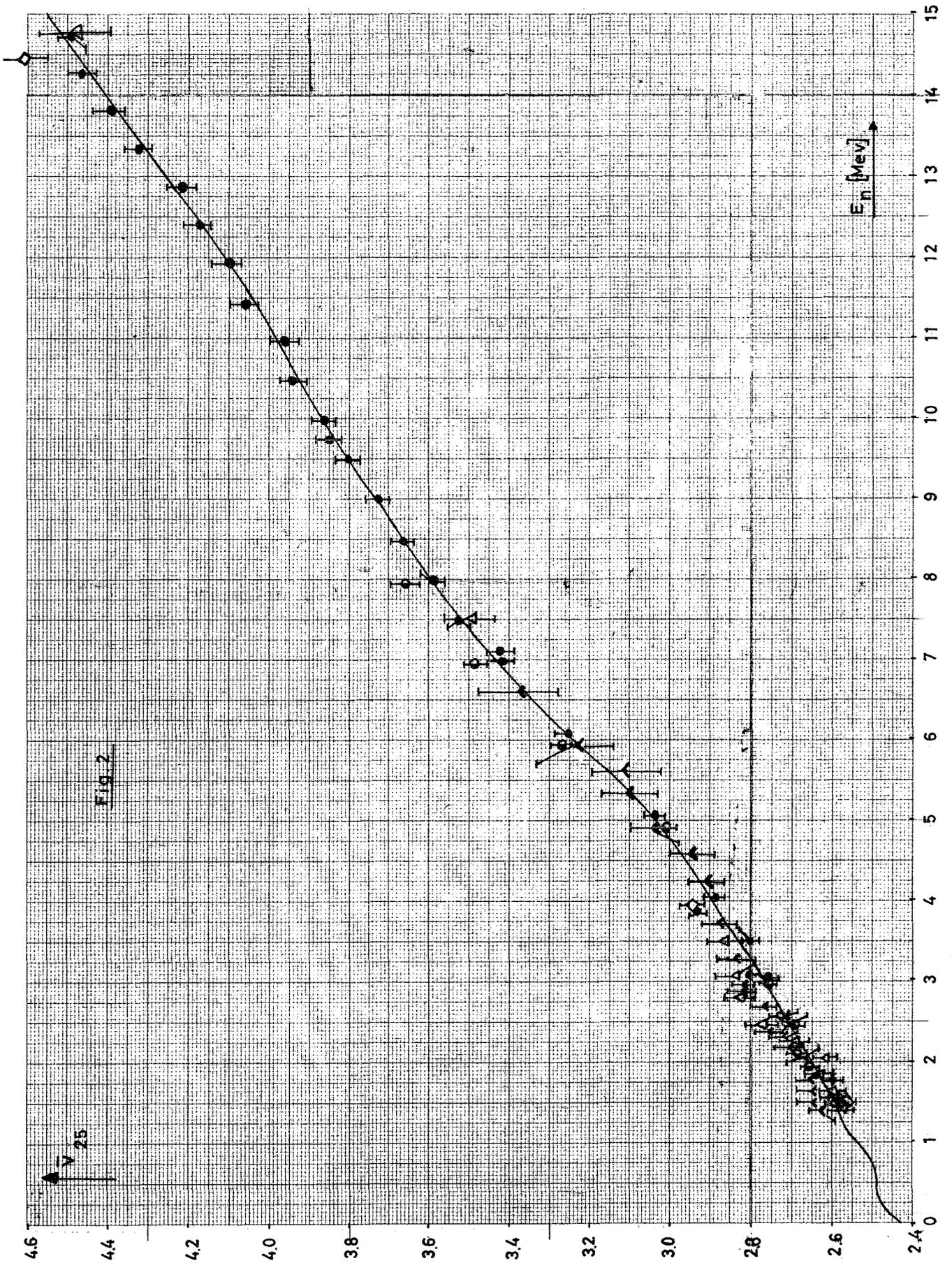
- [1] J.J. Schmidt, KFK 120 (EANDC(E)-35"U"), 1966, pp.H1
- [2] G.C. Hanna, C.H. Westcott, H.D. Lemmel, B.R. Leonard, Jr., J.S. Story, P.M. Attree, Atomic Energy Review, Vol. VII, No. 4, IAEA, Vienna 1969
- [3] C.F. Masters, M.M. Thorpe, D.B. Smith, Nucl.Sc.Engng. 36, (1969), 202
- [4] Yu.A. Blyumkina, et al., Nucl.Phys. 52 (1964) 648
- [5] D. Butler, S. Cox, J. Meadows, et al., Proc. Seminar Physics of Fast and Intermediate Reactors, Vienna, Aug. 1961, Vol. I, pp. 125
- [6] D.W. Colvin, M.G. Sowerby, Proc. Symp. Phys. Chem. of Fission, Salzburg, March 1965, Vol. II, pp. 25
- [7] H. Condé, Arkiv för Fysik 29 (1965) 293
- [8] J.C. Hopkins, B.C. Diven, Nucl.Phys. 48 (1963) 433
- [9] W.F. Kuznetsov, G.N. Smirenkin, Proc.Nucl. Data for Reactors, Paris, Oct. 1966, Vol. II, pp. 75
- [10] D.S. Mather, P. Fieldhouse, A. Moat, Phys. Rev. 133B (1964) 1403
- [11] J.W. Meadows, J.F. Whalen, Phys.Rev. 126 (1962) 197
- [12] J.W. Meadows, J.F. Whalen, J.Nucl.En. 21 (1967) 157
- [13] V.G. Nesterov et al., 2nd Int. Conf. Nucl. Data for Reactors, Helsinki 1970, p. CN-26/74
- [14] L.I. Prokhorova, G.N. Smirenkin, Sov.J.Nucl.Phys. 7 (1968) 579
- [15] M.V. Savin et al., 2nd Int.Conf.Nucl.Data for Reactors, Helsinki 1970, p. CN-26/40
- [16] M. Soleilhac et al., J.Nucl.En. 23 (1969) 23
- [17] M. Soleilhac, et al., 2nd Int. Conf.Nucl.Data for Reactors, Helsinki 1970, p. CN-26/67
- [18] B.H. Patrick et al., AERE-R-6350 (1970)
- [19] J. Blons et al., Proc. 2nd Int.Conf. Nucl. Data for Reactors, Helsinki 1970, p. CN-26/60

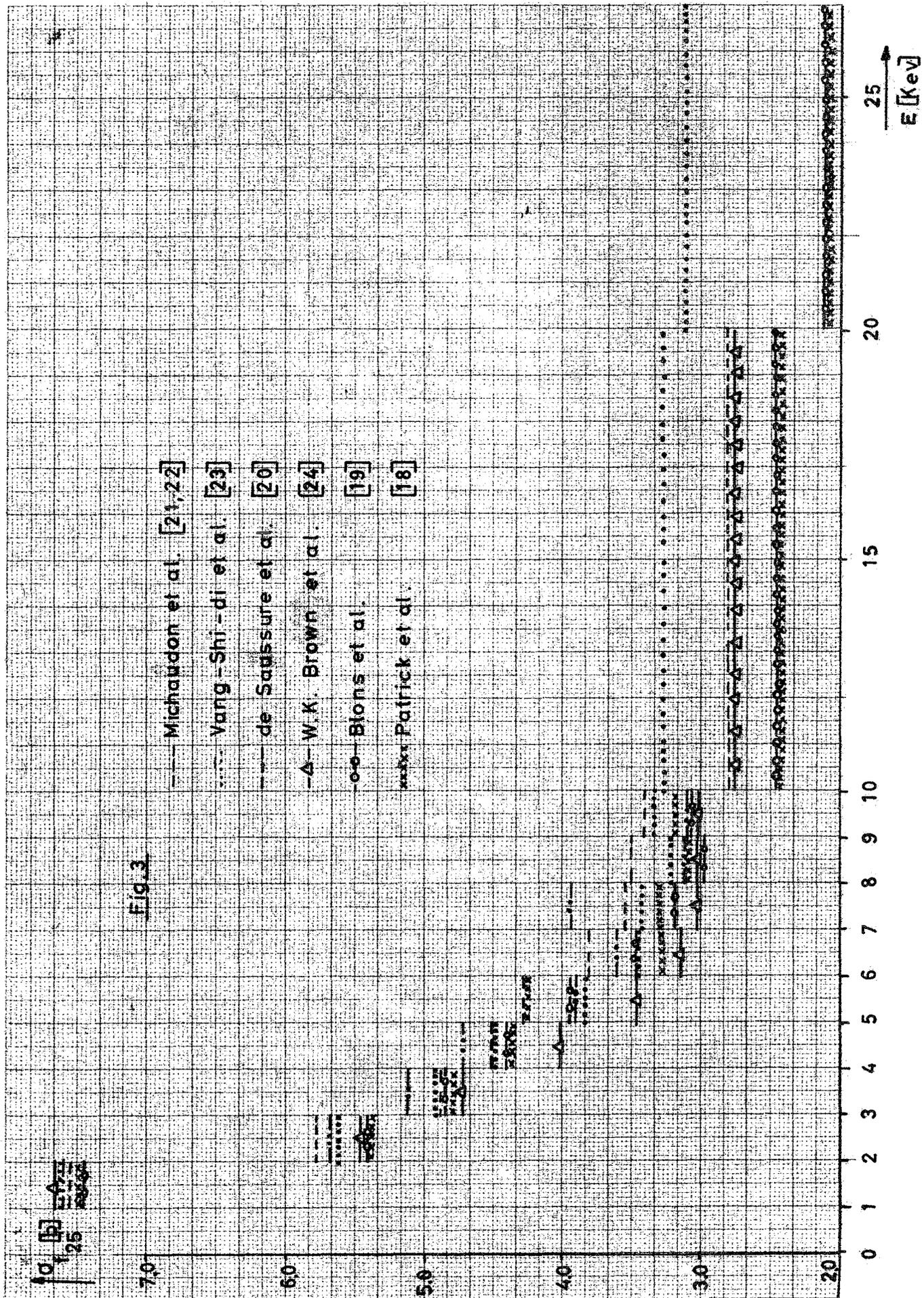
- [20] G. de Saussure et al., ORNL-TM-1804 (1967)
- [21] A. Michaudon et al., Nucl.Phys. 69 (1965) 545
- [22] A. Michaudon, CEA-R-2552 (1964)
- [23] Vang-Shi-di et al., Proc. Symp. Phys. Chem. Fission, Salzburg, 1965, Vol. I, pp. 287
- [24] Wilbur K. Brown et al., Proc. Conf. on Neutron Cross Section Techn. Washington, March 1966 (Conf-660303), Vol. 2, pp. 971
- [25] M.G. Cao et al., Proc.Conf.Neutron Cross Section Techn., Washington, 1968, Vol. I, pp. 481
- [26] C.D. Bowman et al., Proc. 2nd Int.Conf.Nucl. Data for Reactors, Helsinki 1970, p. CN-26/41
- [27] E. Melkonian et al., Nucl.Sci.Engng. 3 (1958) 435
- [28] B.C. Diven, Phys. Rev. 105 (1957) 1350; LA-1336 (1953)
- [29] G.A. Dorofeev, Y.P. Dobrynin, Sov.J.At.En. 2 (1957) 9
- [30] S.P. Kalinin, V.M. Pankratov, Proc. Conf. PUAE, Geneva, 1958, Vol. 16, pp. 136
- [31] B. Adams et al., J.Nucl.En. 14 (1961) 85
- [32] P.H. White, J.Nucl.En. 19 (1965) 325
- [33] G.F. Knoll, W.P. Pönitz, J.Nucl.En. 21 (1967) 643
- [34] G. Hansen, S. McGuire, R.K. Smith; private communication 1970
- [35] J.D. Cramer, published in "Fission Cross Sections from by P.A. Seeger, LA-4420 (1970)
- [36] I. Szabo et al., Proc. 2nd Int.Conf.Nucl. Data for Reactors, Helsinki 1970, p. CN-26/69
- [37] F. Käppeler, KFK 1313, 1970
- [38] R.K. Smith, R.L. Henkel, R.A. Nobles, Bull.Am.Phys.Soc. 2 (1957) 196
- [39] J.L. Perkin, P.H. White, et al., J.Nucl.En. 19 (1965) 423

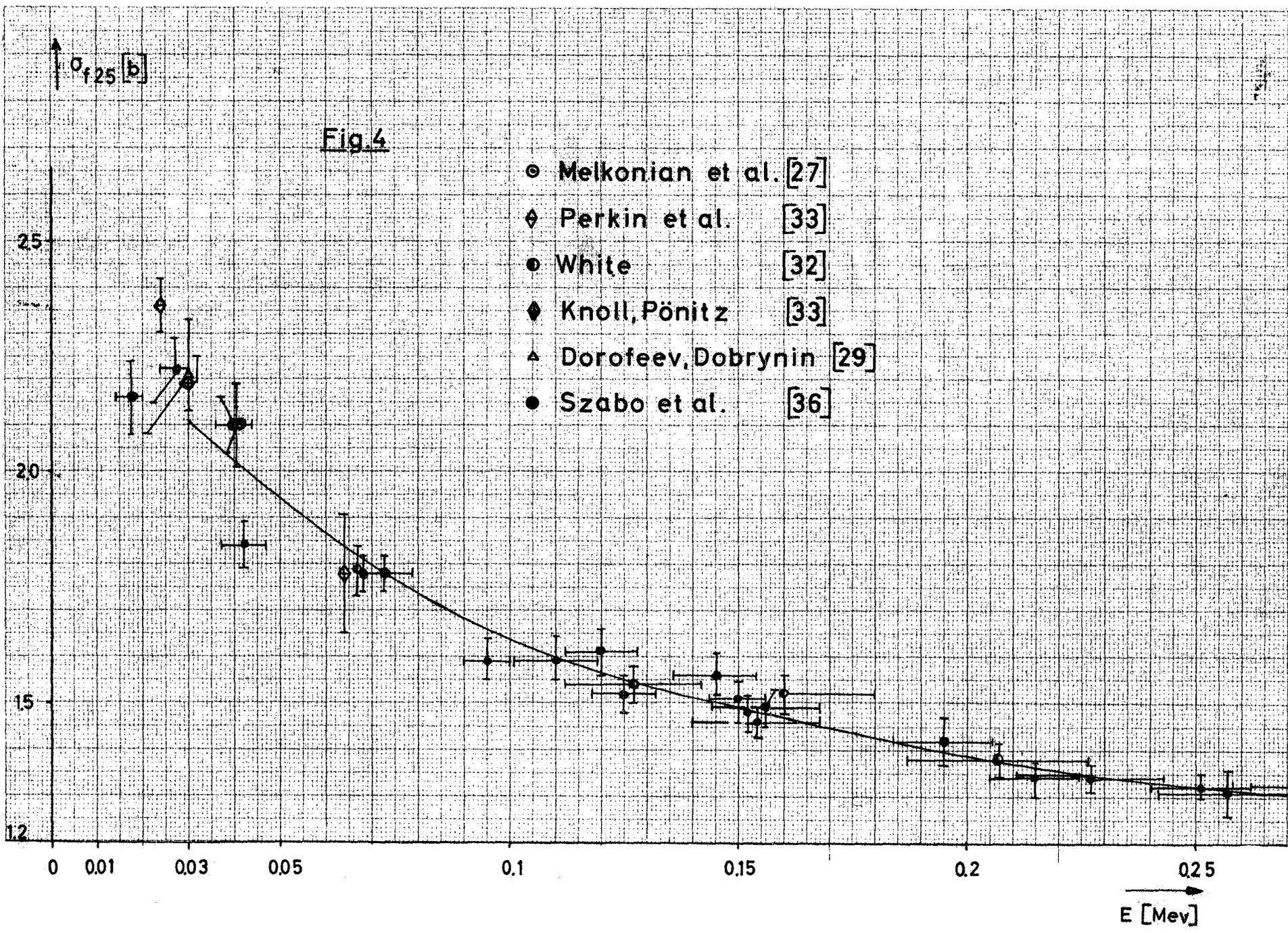
In Abb. 1 und Abb. 2 gebrauchte Symbole

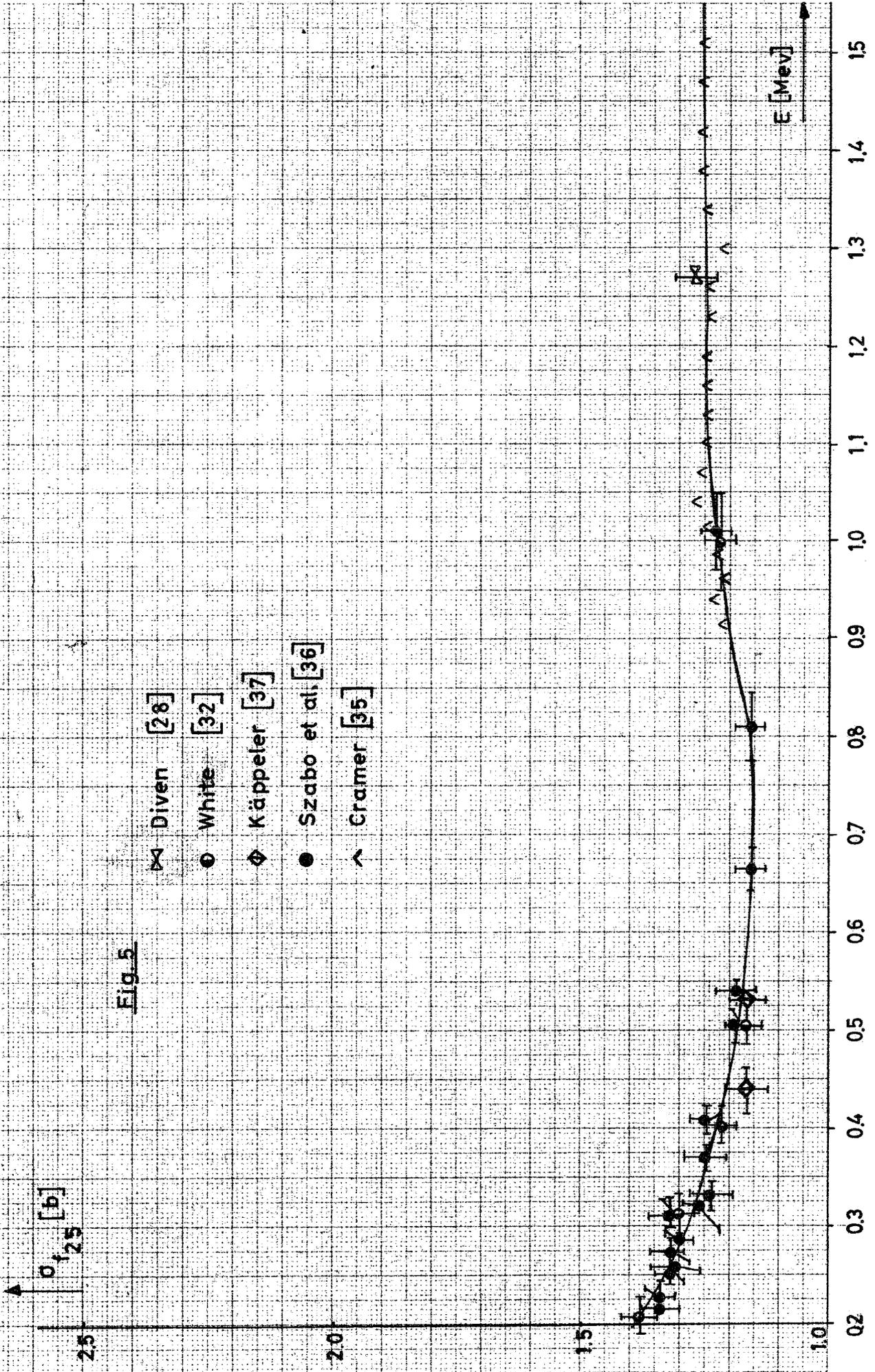
▲ Blyumkina et al.;	1964	[ <u>4</u> ] <sub>7</sub>
◆ Butler et al.;	1961	[ <u>5</u> ] <sub>7</sub>
○ Colvin, Sowerby;	1965	[ <u>6</u> ] <sub>7</sub>
▲ Condé;	1965	[ <u>7</u> ] <sub>7</sub>
◇ Hopkins, Diven;	1963	[ <u>8</u> ] <sub>7</sub>
▼ Kuznetsov, Smirenkin;	1966	[ <u>9</u> ] <sub>7</sub>
● Mather et al.;	1964	[ <u>10</u> ] <sub>7</sub>
+ Meadows, Whalen;	1962, 1967	[ <u>11, 12</u> ] <sub>7</sub>
◆ Nesterov et al.	1970	[ <u>13</u> ] <sub>7</sub>
△ Prokhorova, Smirenkin;	1968	[ <u>14</u> ] <sub>7</sub>
^ Savin et al.;	1970	[ <u>15</u> ] <sub>7</sub>
● Soleilhac et al.;	1969, 1970	[ <u>16, 17</u> ] <sub>7</sub>
— empfohlene $\bar{v}(E)$ -Kurve		

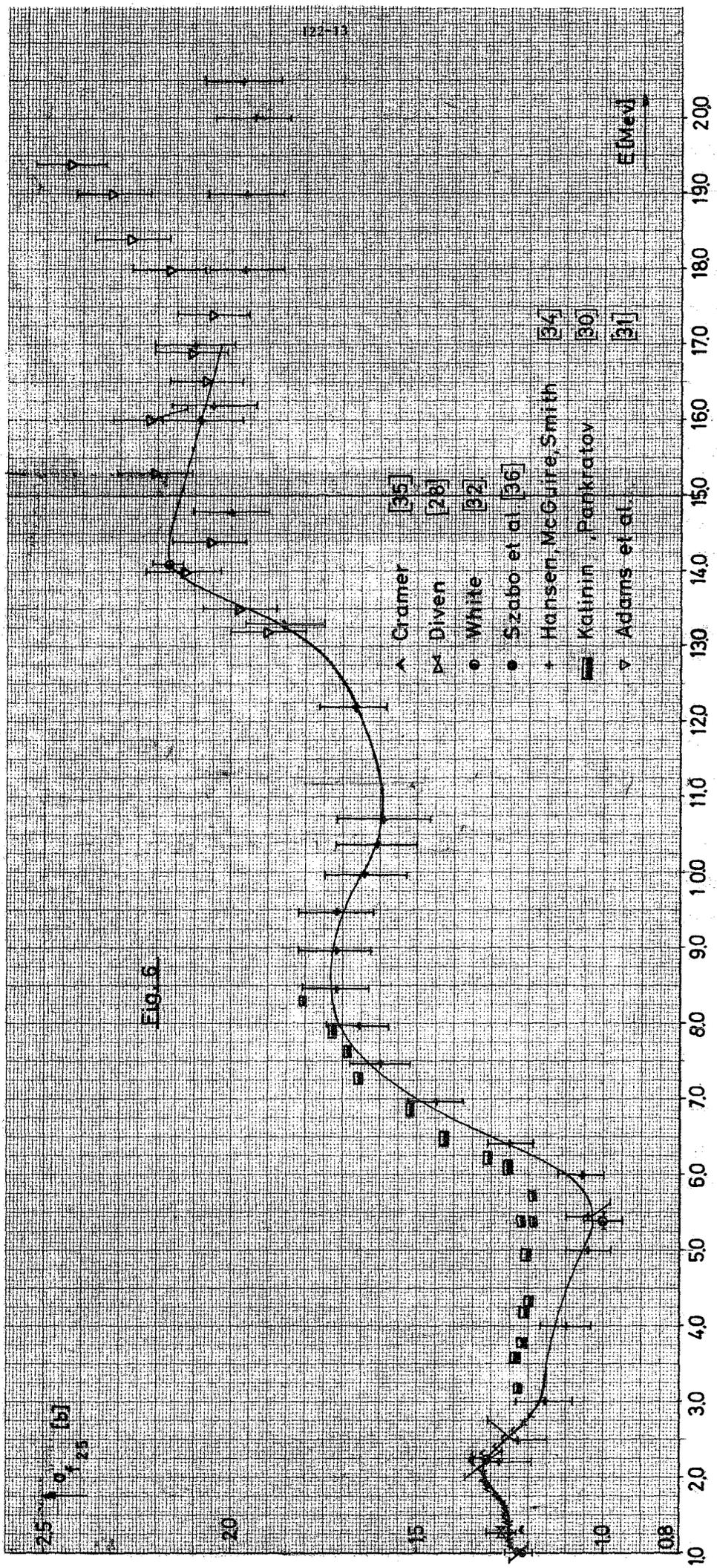












Fortschritte bei der Verbesserung der Gruppenkonstanten im Vergleich mit Ergebnissen integraler Experimente (E. Kiefhaber, INR)

Die Erstellung des MOXTOT-Satzes <sup>+</sup>) war ein erster Teilerfolg bei der Verbesserung der Gruppenkonstanten. Dieser Gruppenkonstanten-Satz ermöglichte es, die Kritikalität aller damit untersuchten Anordnungen auf + 2% genau vorherzusagen, wobei in den meisten Fällen eine klare Trennung der Anordnungen je nach Hauptspaltstoff auftrat: bei U 235 wurde Überschätzung, bei Pu 239 Unterschätzung der Kritikalität festgestellt. Weitere, über den MOXTOT-Satz hinausgehende Verbesserungen waren jedoch notwendig, um z.B. den Unsicherheitsbereich für die Kritikalitätsvorhersage zu verkleinern. Außerdem gab es einige Anordnungen, die in charakteristischer Weise aus dem Rahmen der sonst festgestellten Systematik fielen. Die Ursache dieser Abweichungen sollte ermittelt und nach Möglichkeit beseitigt werden.

Bei der Verbesserung der Gruppenkonstanten, die über den MOXTOT-Satz hinausgeht, wurden zunächst die gleichen Anordnungen untersucht, die bereits bei den zum MOXTOT-Satz führenden Studien verwendet wurden. Sie unterscheiden sich stark in ihrem geometrischen Aufbau und ihrer Materialzusammensetzung und damit auch in der Energieabhängigkeit des Neutronenflusses, wie aus Tabelle 1 hervorgeht.

---

<sup>+</sup>) E. Kiefhaber, J.J. Schmidt (comp.)  
KFK-Bericht 969 (1970)

Tabelle 1: Charakteristische Größen einiger schneller Anordnungen  
(Ergebnisse nulldimensionaler homogener Rechnungen  
mit dem SNEAK-Satz)

Anordnung	Core- Volumen [l]	mittlere Spalt energie [keV]	Neutronen- lebens- dauer, [10 <sup>-7</sup> sec]	$\frac{\sigma_f^{U238}}{\sigma_c^{U238}}$	Reaktionsraten bezogen auf ein Spaltneutron		
					Leckage	Spaltung	Einfang
SUAK U1B	37	611	0.286	0.59	0.645	0.386	0.187
SUAK UH1B	35	53	1.788	0.36	0.468	0.394	0.276
ZPR III-10	71	376	0.515	0.40	0.396	0.389	0.244
ZPR III-25	435	366	0.728	0.25	0.205	0.388	0.422
ZPR III-48	415	225	2.776	0.21	0.415	0.340	0.294
ZEBRA-6A	247	186	2.681	0.25	0.462	0.339	0.238
SNEAK 3A1	663	100	2.942	0.21	0.295	0.398	0.321
SNEAK 3A2	505	56	3.725	0.21	0.293	0.399	0.329
SNEAK 5C	-	1.2	16.483	0.07	-	0.348	0.720
ZPR III-55	-	143	4.187	0.12	-	0.344	0.727

Die bisherigen Verbesserungen in den Gruppenkonstanten gegenüber dem MOXTOT-Satz betrafen die wichtigsten Brennstoffisotope U235, U238, Pu239 sowie geringfügigere Änderungen bei Pu240. Neuere Information über differentielle Wirkungsquerschnittsdaten, z.B. die Proceedings der Helsinki-Konferenz 1970, wurde weitgehend berücksichtigt. Einige wichtige Änderungen sollen explizit angegeben werden:

1. Bisher haben wir für U235 und Pu239 das gleiche sog. Standard-Spalt-spektrum wie im ABN-Satz benutzt. Es hat sich gezeigt, daß wir auf diese Bequemlichkeit verzichten müssen, da die hierdurch verursachte Unsicherheit der Kritikalitätsvorhersage in der gleichen Größenordnung liegt wie die üblicherweise berechneten Kritikalitätskorrekturen, z.B. Heterogenitätskorrektur,  $S_N$ -Korrektur, REMO-Korrektur, deren Berechnung meist erheblich aufwendiger ist als die Berücksichtigung eines anderen Spaltspektrums.

2. Die Werte der inelastischen Streuquerschnitte von U238 und Pu239 wurden erheblich verändert
3. Die Werte für den Einfangquerschnitt von U235 unterhalb von 1 keV wurden teilweise drastisch reduziert.

Daneben wurden zahlreiche kleinere Veränderungen der Gruppenkonstanten vorgenommen, die hier nicht alle einzeln erwähnt werden können.

Mit dem jetzt verfügbaren, vorläufigen Gruppenkonstanten-Satz (Arbeitsbezeichnung: KFK INR-Set) konnte die Kritikalität aller untersuchten Anordnungen auf  $\pm 1\%$  vorhergesagt werden, mit einer einzigen Ausnahme: hier betrug die Abweichung 1,1% (siehe Tabelle 2 und Abb. 7). In Tab. 2 und Abb. 7 ist außerdem die mittlere Abweichung  $\overline{\Delta k}$  und die mittlere quadratische Abweichung

$$\sqrt{(\Delta k)^2} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (k_{\text{eff,calc},i} - k_{\text{eff,meas},i})^2}$$

zwischen berechneten und gemessenen Kritikalitätswerten angegeben. Man erkennt insbesondere aus der letzten Größe eine stetige Verbesserung der Gruppensätze bei der Entwicklung vom SNEAK-Set über den MOXTOT-Set zu dem bisher noch vorläufigen KFK INR-Set.

Außer den für unsere Untersuchungen üblichen 12-14 Anordnungen wurden bisher zusätzlich noch zwei weitere, neuere Anordnungen mit dem verbesserten Gruppenkonstantensatz nachgerechnet. Die Änderungen in  $k_{\text{eff}}$  gegenüber dem MOXTOT-Satz waren für SNEAK-6A +0.2%, für SEFOR-1C +0.3%, woraus sich die geänderten  $k_{\text{eff}}$ -Werte von 0.997 bzw. 0.994 ergeben.

Auch bei mehr differentiellen Größen konnten z.T. beachtliche Verbesserungen erreicht werden: Die berechnete Abhängigkeit der Reaktivität von der Dampfdichte für die SNEAK-3A-Serie ist, wie Abb. 8 zeigt, erstmals in sehr guter Übereinstimmung mit den experimentellen Resultaten. Dies ist größtenteils auf den Einfluß der neuen  $\alpha$ -Werte von U235 unterhalb von 1 keV zurückzuführen.

Außer der Kritikalität wurden bisher mit dem neuen Gruppenkonstanten-Satz hauptsächlich noch Reaktionsratenverhältnisse untersucht. Für drei wichtige Reaktionsratenverhältnisse  $R_f(\text{U238})/R_f(\text{U235})$ ,  $R_c(\text{U238})/R_f(\text{U235})$  und  $R_f(\text{Pu239})/R_f(\text{U235})$  ist das Verhältnis zwischen berechnetem und experi-

mentellem Resultat in Tabelle 3 und Abbildung 9 angegeben. Die dabei angegebenen Fehler beziehen sich auf die in den als verlässlich angesehenen Experimenten angegebenen Fehler. Für  $R_f^8/R_f^5$  und  $R_c^8/R_f^5$  ist im allgemeinen eine recht gute Übereinstimmung festzustellen mit Ausnahme des vermutlich fehlerhaften experimentellen Resultats für  $R_f^8/R_f^5$  in SNEAK-3A2. Für  $R_f^9/R_f^5$  ergibt sich eine Unterschätzung, die mit weicher werdendem Neutronenspektrum immer stärker zu werden scheint. Dieses letzte Resultat sollte jedoch recht vorsichtig beurteilt werden, da die in den Experimenten benutzten Meßverfahren teilweise erstmals angewendet wurden. Hinzu kommt, daß die Interpretation der experimentell gewonnenen Resultate nicht ganz einfach ist und eventuell die bisher dafür benutzten Rechen-Modelle und -Verfahren die experimentellen Gegebenheiten nicht hinreichend genau erfassen.

Zum Schluß soll nochmals darauf hingewiesen werden, daß der jetzt verfügbare, verbesserte Gruppenkonstantensatz (KFK INR-Set) noch als vorläufig zu betrachten ist. Er soll noch weiter ausgetestet, an weiteren experimentellen Resultaten und anderen kritischen Anordnungen überprüft und, falls notwendig, weiter verbessert werden. Dabei ist zu erwarten, daß die bisher erreichte, bereits recht zufriedenstellende Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment zumindest nicht verschlechtert wird.

Tabelle 2: Vergleich der experimentellen Kritikalitätswerte mit den unter Verwendung der jeweils besten Daten und Methoden berechneten Kritikalitätswerten

	ANORDNUNG												$\overline{\Delta k}^{(*)}$	$\sqrt{(\Delta k)^2}^{(**)}$
	SUAK U1B	SUAK UH1B	ZPR III-10	ZPR III-25	ZPR III-48	ZPR III-48B	ZEBRA 6A	SNEAK 3A1	SNEAK 3A2	SNEAK 3B2	SNEAK 5C	ZPR III-55		
EXPERIMENT	0.86 ±0.01	0.945 ±0.01	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.031 ±0.005	1.000		
SNEAK-Satz	0.855	0.918	0.999	0.980	0.977	0.975	0.974	0.994	0.989	0.984	1.026	0.958	-0.0173	0.0270
MOXTOT-Satz	0.856	0.930	1.011	0.998	0.989	0.987	0.985	1.019	1.012	0.998	1.042	0.984	-0.0022	0.0125
KFK INR-Satz	0.859	0.940	1.002	0.989	0.995	0.997	0.991	1.007	1.006	0.997	1.028	0.991	-0.0033	0.0062

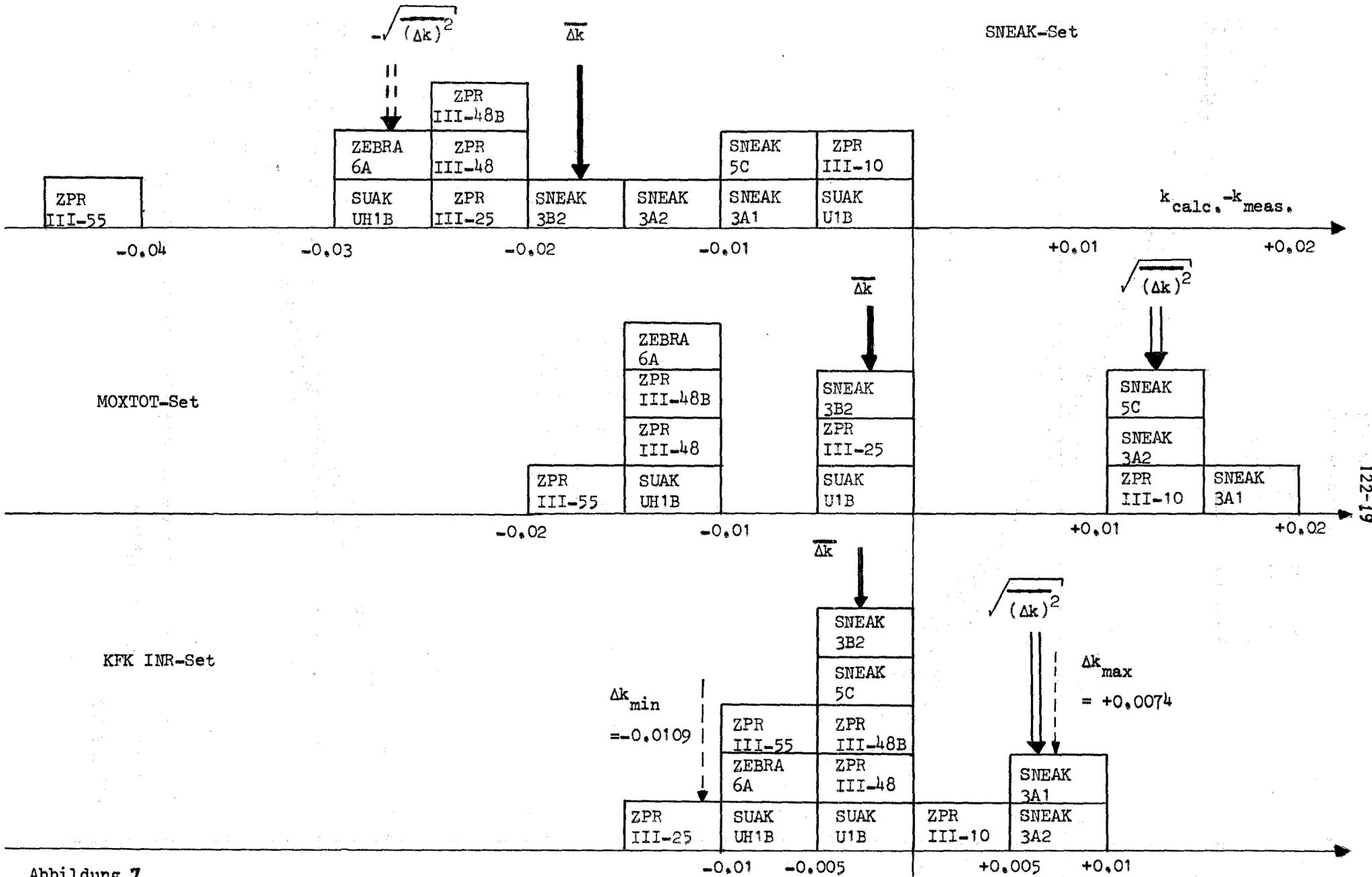
122-18

$$(*) \quad \overline{\Delta k} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (k_{\text{eff,calc},i} - k_{\text{eff,meas},i})$$

$$(**) \quad \sqrt{(\Delta k)^2} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (k_{\text{eff,calc},i} - k_{\text{eff,meas},i})^2}$$

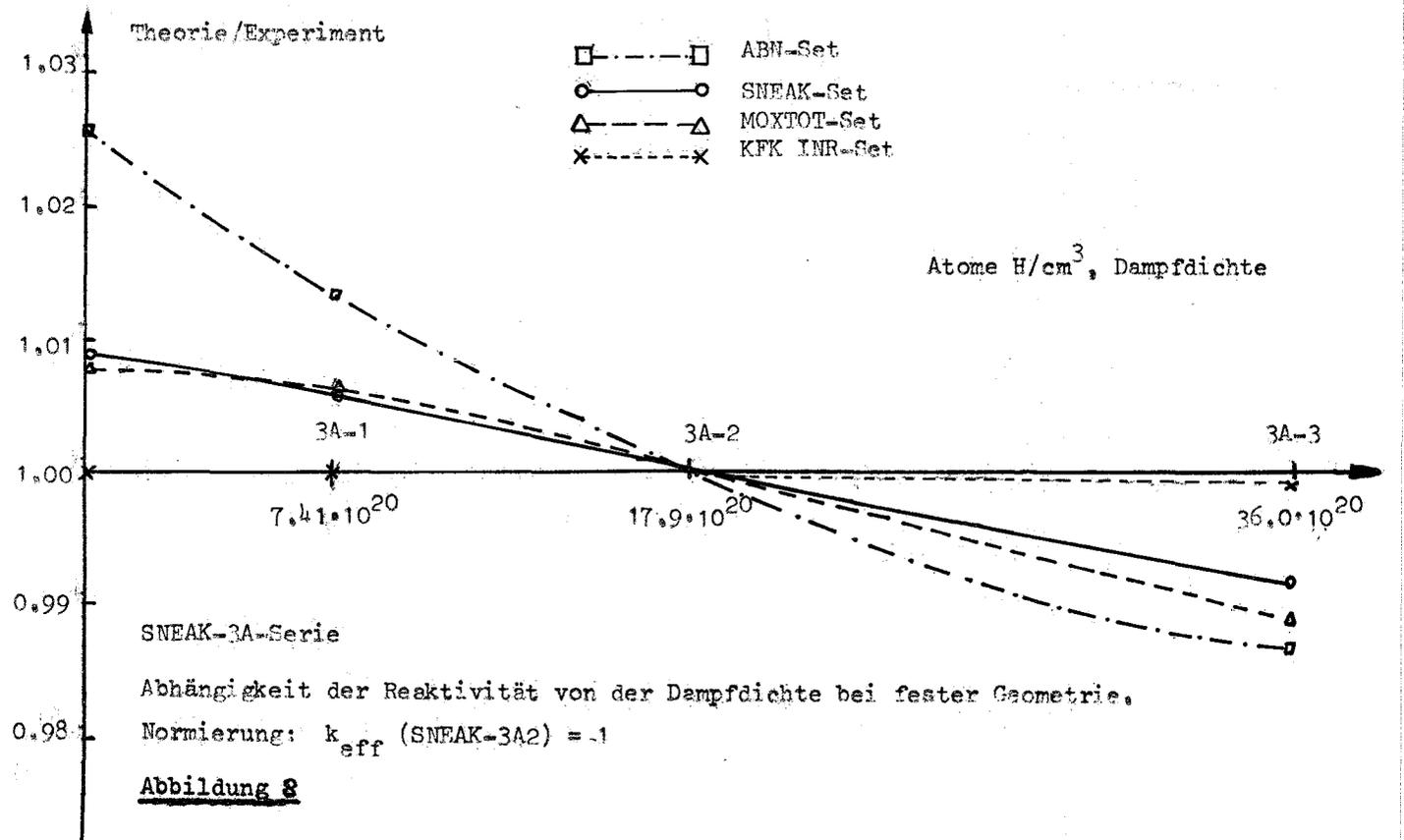
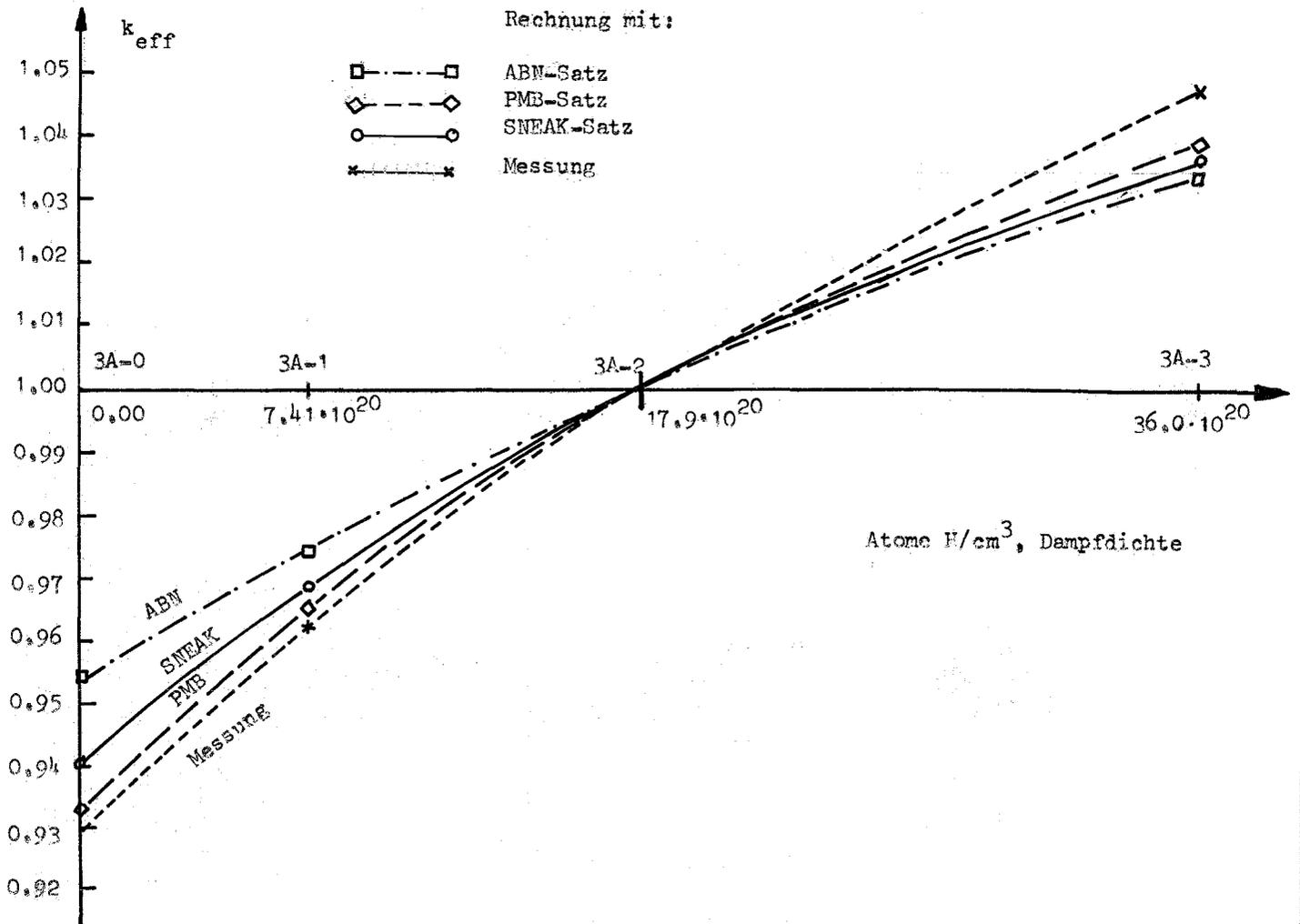
Tabelle 3: Verhältnis zwischen berechnetem und gemessenem Resultat für drei Reaktionsratenverhältnisse RATENVERHÄLTNIS

Anordnung	Mittlere Spaltenergie [keV]	$R_f^8/R_f^5$	$R_c^8/R_c^5$	$R_f^9/R_f^5$
ZPR III-48	193.	1.003±1%	0.993±5%	0.958±1%
ZEBRA 6A	180.	0.970±2%		0.966±1.5%
SNEAK 3A2	50.	0.793±3%	0.969±3%	
ZPR III-55	125.			0.884±1%
SNEAK 5C	1.04	0.974±5%	0.942±4%	0.736±5%



122-19

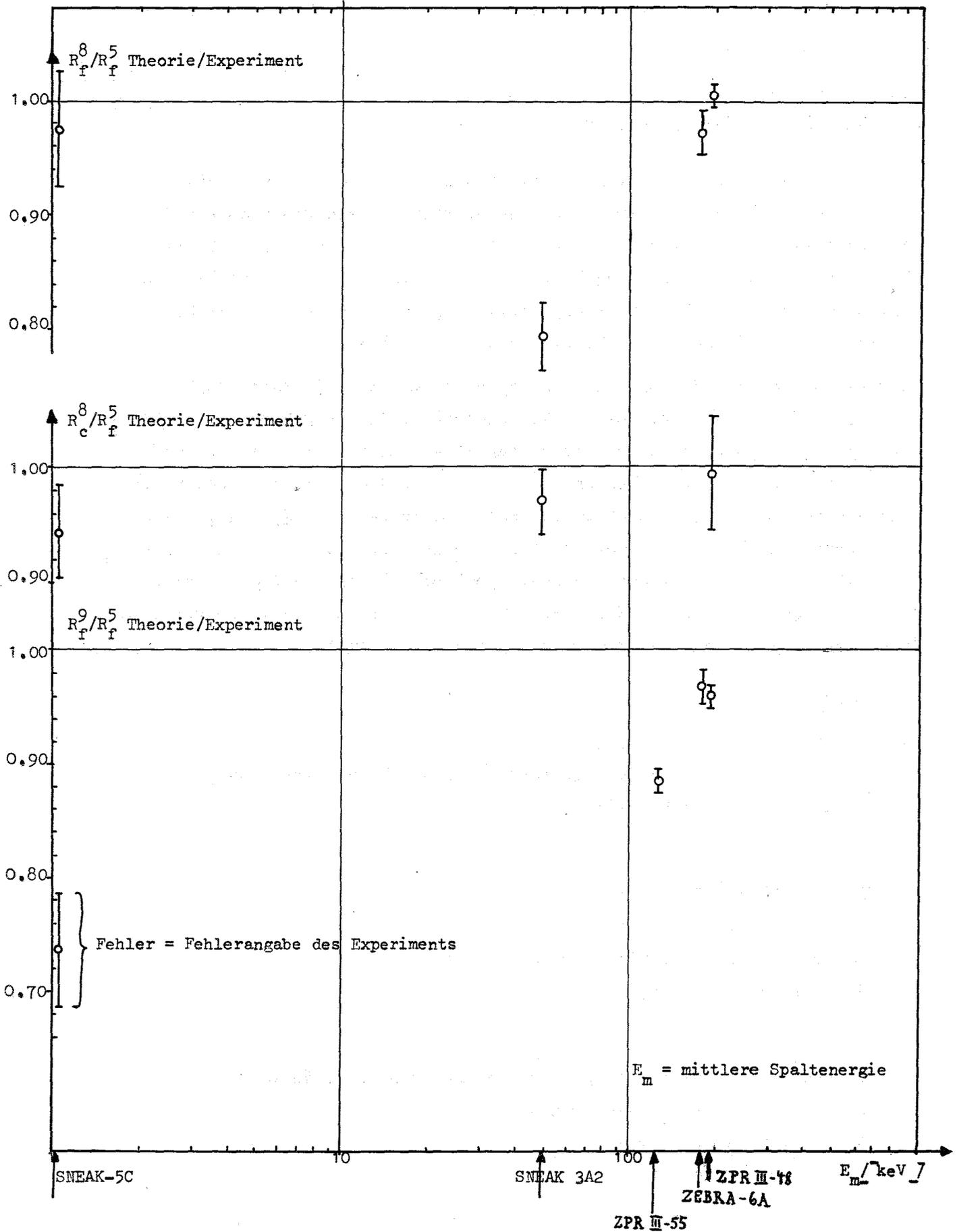
Abbildung 7



Verhältnis von berechneten zu gemessenen Reaktionsratenverhältnissen

Abbildung 9

für verschiedene Anordnungen



1222 RechenverfahrenErstellung von  $S_N$ -Programmen

(C. Günther, W. Kinnebrock, INR)

Zur Lösung der Neutronen-Transportgleichung liegen nunmehr ein- und zweidimensionale  $S_N$ -Programme vor. Das eindimensionale Programm DTK (1) ist eine Weiterentwicklung des in Los Alamos erstellten Codes DTF IV. Unter anderem wurden die Eingabe vereinfacht, weitere Konvergenzbeschleunigungen eingebaut und eine Flußweitergabe ermöglicht. Die Quellschätzung sowie die Behandlung von Bucklings wurden verbessert.

Von den beiden zweidimensionalen Programmen DØT und SNØW wurde SNØW in Karlsruhe entwickelt (2). Es ist bei Ausnutzung der in KFK-Bericht 1361 beschriebenen Grobgittermethode etwa doppelt so schnell wie DØT. Die verwendeten Differenzgleichungen sind die "diamond difference schemes" von Carlson und Lathrop, Richtungen und Gewichte wurden nach der in [1] beschriebenen Methode berechnet. Seit Fertigstellung des Programmes wurden etwa 20 bis 30 verschiedene Transportprobleme gerechnet und mit Programmen wie DTK, MØCA, DØT, etc. verglichen. Die Übereinstimmungen waren zufriedenstellend. Weitere Verbesserungen des Codes sind geplant.

Literatur

[1] B.G. Carlson, K.D. Lathrop

Discrete ordinates angular quadrature of the neutron transport equation, LA 3186 (1965)

Veröffentlichungen zu 1222:

(1) C. Günther, W. Kinnebrock

Das eindimensionale Transportprogramm DTK,  
KFK-Bericht 1381 (1971)

(2) W. Kinnebrock

Strategien zur Beschleunigung zweidimensionaler  $S_N$ -Verfahren  
mit Hilfe der Grobgittertechnik,  
KFK-Bericht 1361 (1971)

KAPER, ein Programm zur Berechnung von heterogenen Flüssen, Reaktionsraten und Reaktivitätswerten (P. Mc Grath, IAR)

Das Programm KAPER wurde geschrieben, um Flüsse, Reaktionsraten und Reaktivitätswerte in der Plättchengemetrie des SNEAK-Cores zu berechnen. Wie aus [1] hervorgeht, sind bei sehr starker Heterogenität die Näherungen im ZERA Programm [2] nicht mehr gültig. Auch das REAC Programm von Oosterkamp [3] zur Berechnung von heterogenen Reaktivitätswerten gibt nicht immer realistische Ergebnisse [4]. Das Programm KAPER ist im Prinzip ähnlich wie die Programme ZERA und REAC aufgebaut, bringt aber in allen Fällen realistischere Ergebnisse.

Die effektiven heterogenen Wirkungsquerschnitte für das Isotop  $\nu$  und die Zone  $j$  sind durch

$$\hat{\sigma}_{\alpha\nu j} = \frac{\sum_i \left\langle \frac{\sigma_{\alpha\nu}}{\sigma_{t\nu} + \sigma_{oj}} P_{ij} \right\rangle S_i}{\sum_i \left\langle \frac{1}{\sigma_{t\nu} + \sigma_{oj}} P_{ij} \right\rangle S_i} \quad (1)$$

definiert, wobei

- $\sigma_{t\nu}$  = totaler WQ. des Isotops  $\nu$
- $\sigma_o$  = Summe der totalen WQ. aller anderen Elemente (außer  $\nu$ ), die zum Medium gehören (bezogen auf ein Atom von  $\nu$ )
- $i, j$  = Zonenindizes
- $\alpha$  = Reaktionsart
- $P_{ij}$  = Stoßwahrscheinlichkeit
- $S_i$  = Quelle.

Die Flüsse (Neutronen und Adjungierte) werden innerhalb der Zelle mit Hilfe der integralen Transportgleichung berechnet. Die Gleichung für die Flüsse ist

$$V_j \sum_t \phi_j^g = \sum_i \sum_k V_i \sum_i^{k \rightarrow g} \phi_i^k P_{ij}^g \quad (2)$$

wobei

$$\Sigma_i^{k \rightarrow g} = \Sigma_{S_i}^{k \rightarrow g} + \lambda \nu \Sigma_{f_i}^{k \rightarrow g} \chi^g$$

und  $\lambda =$  Eigenwert sind.

Wenn die Leckage vom Core berücksichtigt wird, werden die Stoßwahrscheinlichkeiten ( $P_{ij}$ ) mit einem "non-leckage" Wahrscheinlichkeitsfaktor multipliziert, der durch

$$L^g = \frac{\tilde{\Sigma}_t^g}{\tilde{\Sigma}_t^g + \tilde{D}^g B^{2g}} \quad (3)$$

definiert ist. Die Größen  $\tilde{\Sigma}_t^g$  und  $\tilde{D}^g$  sind die zellflußgewichteten Totalquerschnitte und die zellflußgewichtete Diffusionskonstante, und  $B^{2g}$  ist das gruppenabhängige totale Buckling.

In den Fällen, in denen die Normalzelle gestört ist, wie es manchmal notwendig ist für die Messung der Reaktivitätswerte oder bei der Einsetzung eines Kanals zur Messung der Reaktionsraten, werden die Flüsse innerhalb der gestörten Zelle, mit Hilfe von Gleichung (2) als vorgegebene Quellgleichung (siehe unten) berechnet.

$$V_j \Sigma_{tj}^g \phi_j^g = \sum_i \sum_k V_i \Sigma_i^{k \rightarrow g} \phi_i^k P_{ij}^g + S_j^g \quad (4)$$

Die vorgegebene Quelle wird in (4) von der Leckage der Normalzelle des Cores berechnet, d.h. der Leckage von einer Zelle, die mit (2) berechnet wurde.

Um Reaktivitätswerte zu berechnen, wird die Störungstheorie mit der integralen Transportgleichung gebraucht. Die Störungsgleichung hat folgende Form:

$$\delta k/k = \frac{1}{D} \left\{ - \sum_{gj} \sum_{aj} V_j \phi_j^g \delta \Sigma_{aj}^g \psi_j^{+g} + \sum_{gj} \sum_{kj} V_j \phi_j^g \sum_k \delta \Sigma_{sj}^{g \rightarrow k} (\psi_j^{+k} - \psi_j^{+g}) \right\}$$

$$\begin{aligned}
& + \sum_j \sum_j V_j \phi_j^g \delta(v \Sigma_{fj}^g) \sum_k \chi^k \psi_j^{+k} + \sum_j \sum_j V_j \phi_j^g \delta \Sigma_{tj}^g (\psi_j^{+g} - \phi_j^{+g}) \quad (4) \\
& + \left. \sum_j \sum_j V_j \phi_j^g \sum_k \Sigma_j^{g-k} \sum_i \delta P_{ji}^k \phi_i^{+k} \right\}
\end{aligned}$$

wobei

$$\begin{aligned}
\psi_j^{+k} &= \sum_i P_{ji}^k \phi_i^{+k} \\
\phi_i^{+k} &= \text{integrale Transporttheorie Adjungierte} \\
\delta \Sigma_x^g &= \Sigma_x^{g'} - \Sigma_x^g \quad (\text{gestört} - \text{ungestört}) \\
D &= \text{Normierungsintegral}
\end{aligned}$$

In Cores, die eine bedeutende Flußkrümmung innerhalb einiger freier Weglängen in der Nähe der gestörten Zelle haben, wird eine gruppenabhängige Kosinuskurve über die Neutronen und Adjungiertenflußverteilung gelegt.

Die Reaktivitätswertmessungen, die in SNEAK-5C [5] und SNEAK-6 [6] gemessen wurden, wurden mit dem KAPER Programm unter Verwendung des MOXTOT Querschnittssatzes analysiert. Die Ergebnisse sind für SNEAK-5C in Tabelle 3 und für SNEAK-6 in Tabelle 4 und 5 gegeben.

Die Ergebnisse für SNEAK-5C in Tabelle 3 sind die Verhältnisse der Werte in der Position 1 zu Position 2 der Einheitszelle des SNEAK-5C Cores, wie aus Abb. 10 hervorgeht. Diese Verhältnisse eliminieren die Unsicherheit von  $\beta_{\text{eff}}$  und des Normierungsintegrals. Man kann sehen, daß das KAPER Programm die experimentellen Ergebnisse ganz befriedigend reproduziert und insgesamt gesehen, bessere Werte liefert als das REAC Programm.

Tabelle 3

## Verhältnisse der Materialwerte in SNEAK-5C

	Gewicht der Probe, [g]	Meßergebnis	Rechnung	
			KAPER	REAC <sup>+</sup>
Pu-239	5	1.135	1.159	1.072
U-238	5	3.440	3.325	2.252
U-238	60	1.545	1.650	1.334
Pu-240	3	1.635	1.503	1.481
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3	.440	.439	.465

<sup>+</sup> von Oosterkamp /3/

Tabelle 4

## Materialwert in SNEAK-6A

	Gewicht der Probe, [g]	Meßergebnis [µ\$/g]	Rechnung / Exp.		
			Störprogr. <sup>+</sup>	KAPER	REAC <sup>+</sup>
U-235	3.3	512±10	1.22	1.19	1.16
U-238	62.	-33.2±0.5	1.25	1.21	1.07
Pu-239	4.	740±7	1.05	1.02	1.02
Pu-240	2.7	107±10	.99	.98	.99
SS	17.	-27.2±2	.89	.95	.98
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.	-10.±10	3.1	3.47	3.3
B <sub>4</sub> C	6.	-1720±5	1.11	1.01	.96
Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.	-705±8	.91	.83	
Ta	220.	-143±0.2	1.90	1.20	1.04
Na	30.	-31.3	1.14	1.03	

<sup>+</sup> von E.A. Fischer

Die SNEAK-6 Ergebnisse wurden auf das statische Gewicht einer DIXY-Rechnung normiert. Der Wert für  $\beta_{\text{eff}} = 0.00421$  wurde ebenfalls einer DIXY-Rechnung entnommen. Wie aus Tabelle 4 hervorgeht, ergibt das REAC-Programm

im allgemeinen einen größeren Heterogenitätseffekt in den Proben als das KAPER Programm. Aber die KAPER Ergebnisse erscheinen realistischer insbesondere für U-235, U-238 und B<sub>4</sub>C. Die Ergebnisse der Na-void Experimente, die in SNEAK-6B durchgeführt wurden, in Brennstoff- und Strukturmaterialumgebung, sind in Tabelle 5 gegeben. Die Zelle dieses Experiments ist im 2. Vierteljahresbericht 1970 (KFK 1270/2) auf Seite 121-33 zu finden. Zusammenfassend kann man sagen, daß das KAPER Programm die experimentellen Ergebnisse ganz befriedigend reproduziert.

Tabelle 5                      Na-void in SNEAK-6B (µ\$/g)

	Meßergebnis	KAPER	REAC <sup>+</sup>
Na im Brennstoff	-25.5	-30.72	-30.3
Na im Strukturmaterial	-19.0	-22.36	-29.4
Verhältnis (Brennstoff/Strukturmaterial)	1.342	1.374	1.031

<sup>+</sup> von E.A. Fischer

Literatur:

- [1] E.A. Fischer und P. Mc Grath  
"Modifikation des Zellprogramms ZERA"  
1. Vierteljahresbericht 1970, KFK 1270/1 (1970)
- [2] D. Wintzer  
"Zur Berechnung von Heterogenitätseffekten in periodischen Zellstrukturen thermischer und schneller Kernreaktoren"  
KFK 743 (1969)
- [3] W.J. Oosterkamp  
"The Measurement and Calculation of the Reactivity Worth of Samples in a Fast Heterogeneous Zero Power Reactor"  
KFK 1036 (1969)
- [4] E.A. Fischer (Persönliche Mitteilung)
- [5] K. Böhnel and H. Meister  
"A Fast Reactor Lattice Experiment for Investigation of  $k_{\infty}$  and Reaction Rates Ratios in SNEAK, Assembly 5"  
KFK 1176 (1970)
- [6] W. Bickel et al.:  
"Versuche mit den Anordnungen SNEAK-6A und SNEAK-6B"  
2. Vierteljahresbericht 1970, KFK 1270/2 (1970)

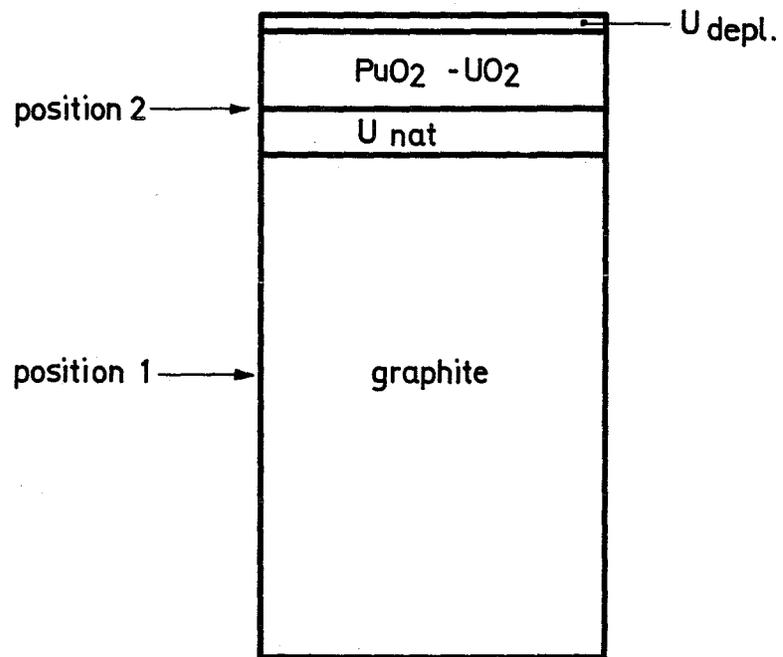


Abb. 10: Principal cell structure of SNEAK-5C

THE UNIVERSITY OF CHICAGO  
DEPARTMENT OF CHEMISTRY  
5800 S. UNIVERSITY AVENUE  
CHICAGO, ILLINOIS 60637

RECEIVED  
JAN 10 1999  
10 10 AM

1000 1000 1000 1000 1000 1000 1000 1000

123. SICHERHEIT SCHNELLER REAKTOREN1231 Theoretische Untersuchungen zur ReaktordynamikZustandsgleichungen der Kernbrennstoffe UC und PuC

(H. Hoffmann, IMF; K. Thurnay, INR)

Zur Berechnung der Folgen schwerer Exkursionen bei schnellen karbidbestückten Reaktoren benötigt man die "kalorische" und "thermische" Zustandsgleichung der Brennstoffe UC und PuC; diese wurden für Temperaturen von 0 °K bis ca. 20000 °K (16000 °K) berechnet. Vereinfachend wurde angenommen, daß PuC bei 2173 °K (peritektischer Umwandlungspunkt) einen definierten Schmelzpunkt besitzt.

- a) Für Temperaturen unterhalb des Karbidschmelzpunktes wurde die kalorische Zustandsgleichung über die spezifischen Wärmen des Karbides ermittelt:

$$E_{\text{MeC}}(T) = \int_0^T dT C_p^{\text{MeC}}(T) + E_{\text{MeC}}(0) \quad \text{für } T < T_F$$

Abb. 1 und 2 zeigen diese Werte nebst denen der Komponenten, die aus analogen Gleichungen berechnet wurden.

- b) Oberhalb des Karbid-Schmelzpunktes liegen sehr viel kompliziertere Verhältnisse vor. Das Karbid kommt in verschiedenen Modifikationen vor und dissoziiert leicht in der Gasphase. Aus diesen Gründen wird der Schmelzpunkt als Dissoziationspunkt aufgefaßt, und der Brennstoff wird als eine Mischung von Kohlenstoff und Metall aufgefaßt. Die Zustandsgleichung ergibt sich somit als Summe der Zustandsgleichungen der Komponenten. Für den Kohlenstoff wird eine kalorische Zustandsgleichung von Typ a) benutzt.

Die kalorischen Zustandsgleichungen der Metalle U und Pu werden über das Korrespondenzprinzip und die Tabellen von Hougen et al. berechnet.

Die dabei benutzten kritischen Daten sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

Als thermische Zustandsgleichung wird beim Kohlenstoff die extrapolierte Dampfdruckkurve verwendet. Für die Metalle erhält man die thermische Zustandsgleichung ebenfalls über das Korrespondenzprinzip und die Tabellen von Hougen (siehe Abb. 3 und 4).

Veröffentlichungen zu 1231:

- (1) H. Hoffmann, K. Thurnay  
Zustandsgleichungen der Kernbrennstoffe UC und PuC  
J. Nucl. Mat. 38 (71) 105 - 113
- (2) H. Hoffmann  
Thermische Ausdehnung, spezifische Wärme und Zustandsgleichung  
in "Karbidge Brennstoffe für schnelle Brutreaktoren"  
KFK 1111, VI 1 - VI 39
- (3) B. Kuczera  
REX, ein digitaler Code zur Berechnung dynamischer Probleme  
schneller Reaktoren  
Externer Bericht 8/71

Tabelle 1 Übersicht über die nach den verschiedenen Methoden hergeleiteten kritischen Daten

Methode	$T_K$ (° K)	$p_K$ (atm)	$V_K$ $(\frac{\text{cm}^3}{\text{g-Atom}})$	$\rho_K$ $(\frac{\text{g}}{\text{cm}^3})$	$z_K = \frac{p_K V_K}{RT_K}$
U: Cailletet	12 500	6860	73,9	3,22	0,495
Elrod	14 200	5130	68	3,50	0,300
Hirschfelder	-	-	40	5,95	-
Grosse	12 400	-	-	-	-
diese Arbeit	12 500	7688	40	5,95	0,300
Pu: Cailletet	10 000	1480	177	1,35	0,319
Elrod	22 000	6000	90	2,655	0,300
Hirschfelder	-	-	46	5,20	-
Grosse	10 000	-	-	-	-
diese Arbeit	10 000	5350	46	5,20	0,300

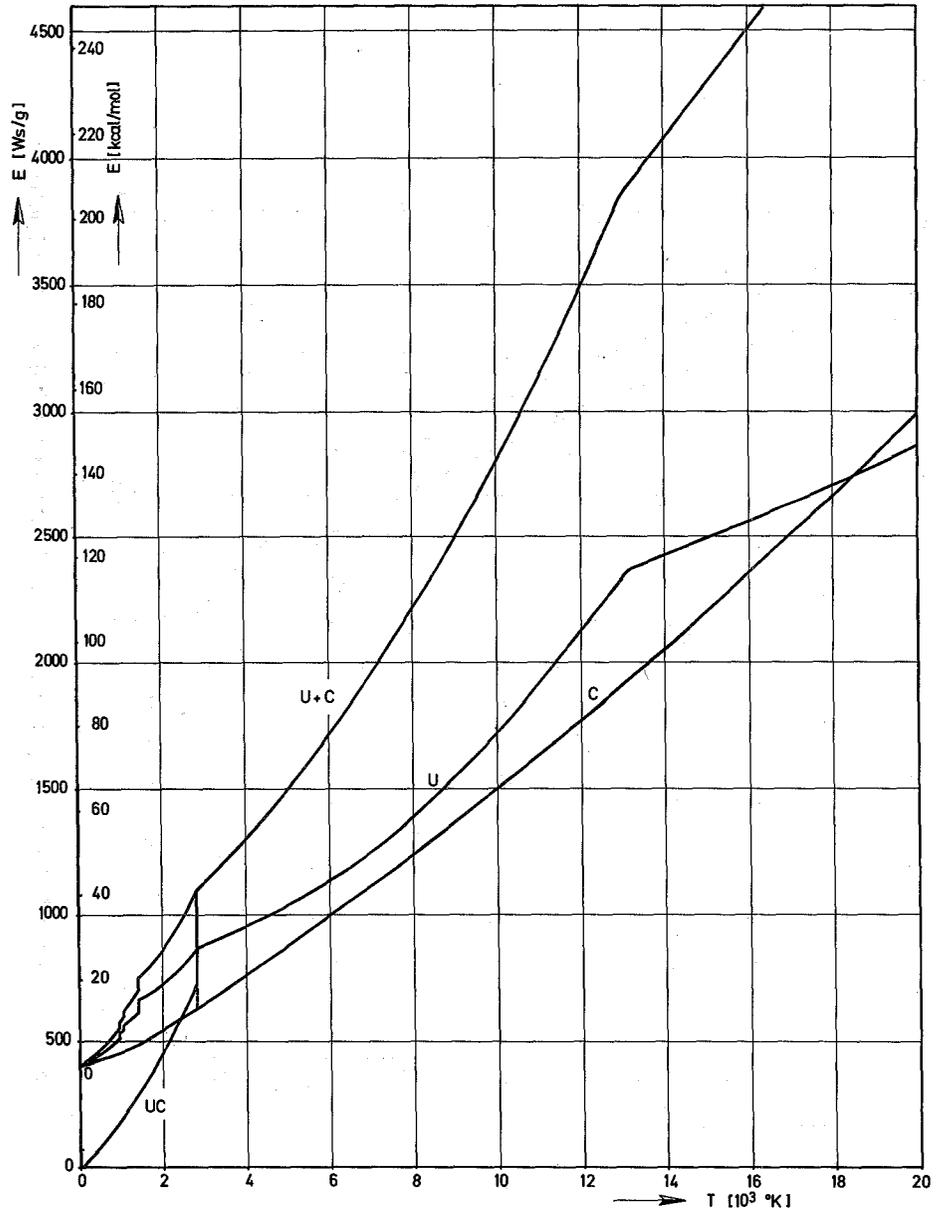


Abb.1: Energieinhalt von UC als Funktion der Temperatur

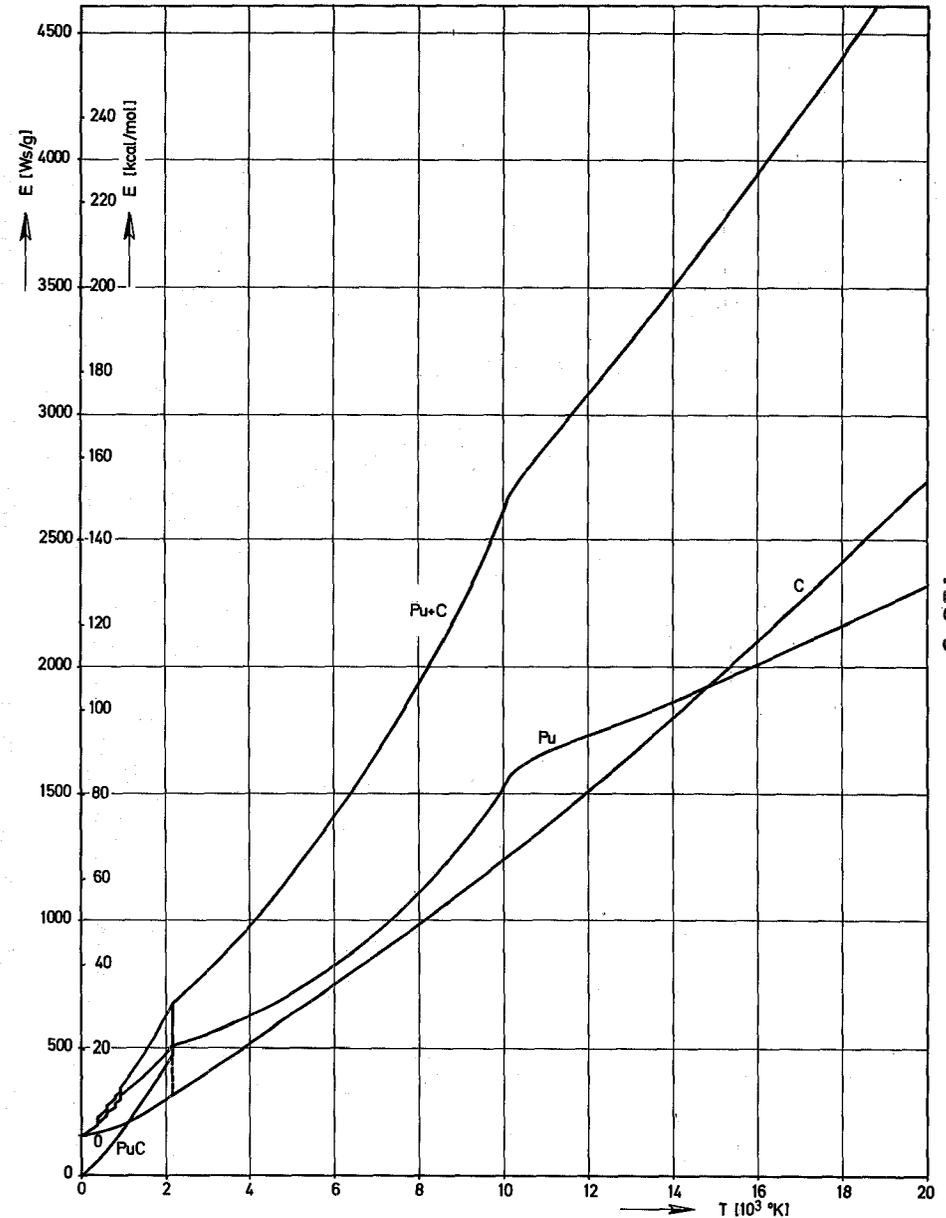


Abb.2: Energieinhalt von PuC als Funktion der Temperatur

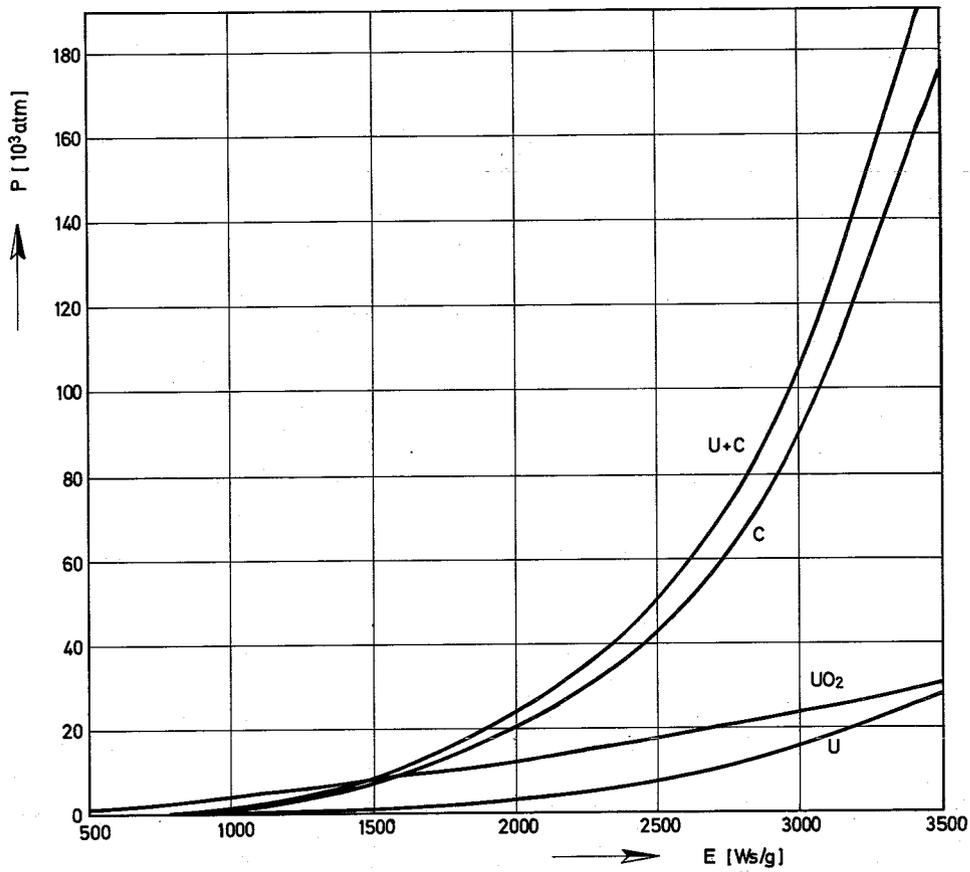


Abb. 3: Druck von UC als Funktion des Energieinhaltes oberhalb des Schmelzpunktes

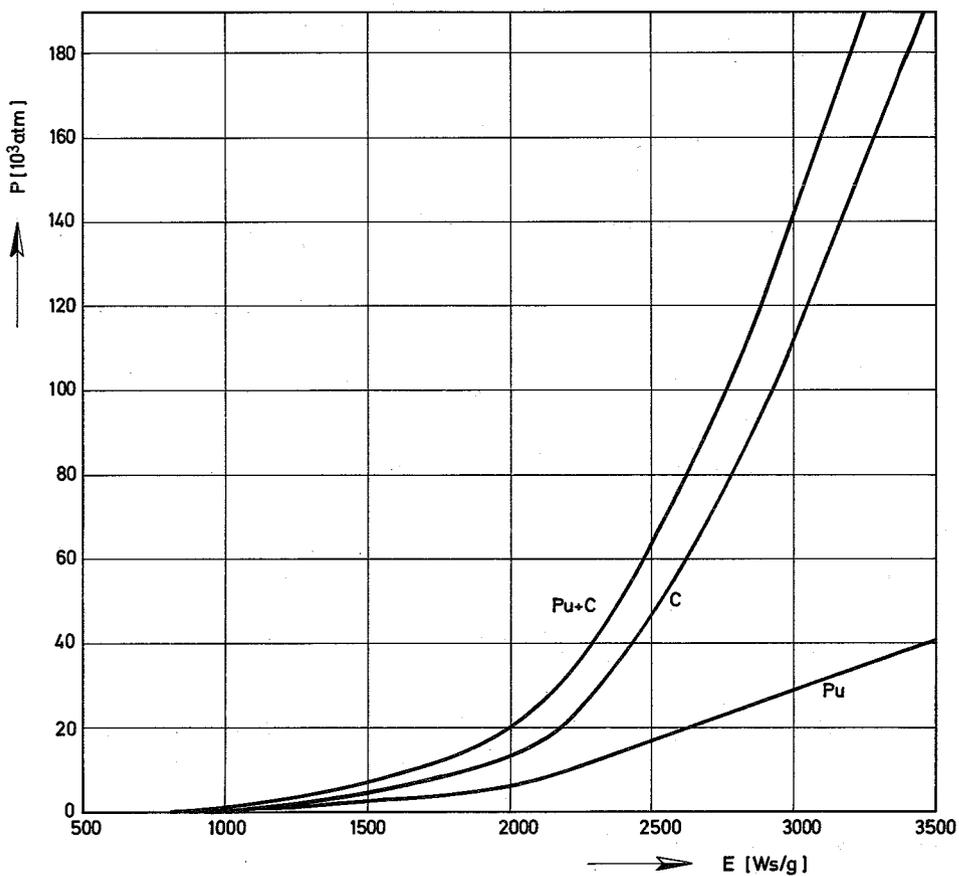


Abb. 4: Druck von PuC als Funktion des Energieinhaltes oberhalb des "Schmelzpunktes"

## †232 Spannungs- und Verformungsanalyse von Reaktorbauteilen

(R. Liebe, R. Krieg, T. Malmberg, IRE)

Ziel der Arbeiten ist es, unter Berücksichtigung des elastischen, plastischen und viskosen Materialverhaltens Methoden zur Spannungs- und Verformungsanalyse von Reaktorbauteilen zu entwickeln sowie Computerprogramme für spezielle Probleme bereitzustellen.

### Festigkeitsanalysen von Brennstabhüllrohren und sonstigen Corecomponenten

#### 1. Hüllrohre für Na-gekühlte Reaktoren

Eine Methode und ein entsprechendes Computerprogramm zur Berechnung des elastischen Spannungszustandes in längsgerippten Brennstabhüllrohren unter Innendruck und Wärmedurchgang wurde fertiggestellt. Ein Beitrag für die im September 1971 in Berlin stattfindende Konferenz "First International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology" wurde vorbereitet.

Die Arbeiten zu einem zweiten Rechenprogramm, welches das plastische Materialverhalten berücksichtigt, wurden weiter fortgeführt.

Die Untersuchungen zu dem elastischen Spannungszustand bei glatten Brennstabhüllrohren und azimuthal variierendem Temperaturfeld wurden abgeschlossen und zur Veröffentlichung auf der Reaktortagung 1971 in Bonn und auf der Konferenz in Berlin vorgesehen.

#### 2. Hüllrohre für gas- oder dampfgekühlte Reaktoren

Die Arbeiten zur Entwicklung von allgemeinen Variationsprinzipien der Kriechmechanik und insbesondere die Formulierung von Variationsprinzipien für dünnwandige, viskose Schalen und ihre Anwendung auf das Kriechkollapsproblem von Brennstabhüllrohren wurden beendet. Mit der Abfassung eines Berichtes wurde begonnen und eine Veröffentlichung für die Konferenz in Berlin, Sept. 1971, vorbereitet.

#### Veröffentlichung zu 1232:

R. Krieg

Zur Berechnung thermoeleastischer Spannungen infolge vorgegebener radialer und azimuthaler Temperaturvariationen in Brennstabhüllrohren.

H 5 - 180, Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Bonn (1971)

### 1233 Lokale Kühlungsstörungen

(K. Gast, IRE)

Ziel der begonnenen experimentellen und theoretischen Arbeiten ist es, lokale Kühlungsstörungen in einem Brennelement, z.B. infolge örtlicher Geometrieänderungen oder Blockaden von Kühlkanälen, im Hinblick auf die Möglichkeit einer Ausbreitung der Störung und damit einer Gefährdung des Reaktors zu untersuchen. Dabei stehen insbesondere folgende Fragen im Vordergrund:

- ▼ Unter welchen Bedingungen führen lokale Strömungshindernisse in einem Brennelement zu örtlichem Sieden?
- Wird der Kühlmitteldurchsatz durch das betroffene Brennelement bei örtlichem Sieden meßbar verändert?
- Kommt es in der Siedezone zur Überhitzung und zum Versagen von Hüllrohren infolge Dryout?

Außerdem dient dieses Programm der Entwicklung von Meßmethoden zur Detektion lokaler Kühlungsstörungen.

Eine erste Gruppe von Untersuchungen bezieht sich auf die Strömungs- und Temperaturverhältnisse in der kühlungsgestörten Zone, eine zweite auf die Vorgänge bei lokalem Sieden.

#### 1233.1 Untersuchungen zur Strömungs- und Temperaturverteilung hinter lokalen Störungen (D. Kirsch, IRE)

Zur Berechnung mittlerer Temperaturen im Totwasser hinter lokalen Kühlkanalblockaden wurden Form und Volumen des Totwassers sowie der Massenaustausch zwischen Totwasser und Hauptströmung im Wasserkreislauf des IRE experimentell ermittelt. Form und Volumen des Totwassers (Abb. 5) wurden aus der Verteilung des statischen Drucks für zwei Störungen bestimmt, die 14,7% bzw. 41,1% des Strömungsquerschnitts eines Modellbündels mit SNR-Abmessungen (169 Stäbe) vollständig blockierten. Die Ergebnisse sind im untersuchten Bereich unabhängig von der Re-Zahl.

Für die gleichen Störungen wurden die Verweilzeiten gemessen (Abb. 6). Der daraus berechnete Massenaustausch  $\dot{m}$ , dimensionslos gemacht mit dem Subassemblydurchsatz  $\dot{M}$ , läßt sich auf die Re-Zahl des SNR ( $\approx 10^5$ ) extrapolieren (Abb. 6). Die aus den gemessenen Daten berechneten mittleren Kühlmitteltemperaturen im Totwasser zeigt Tab. 2.

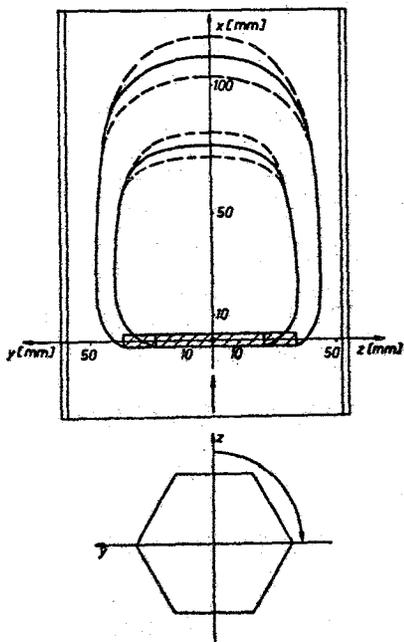


Abb. 5

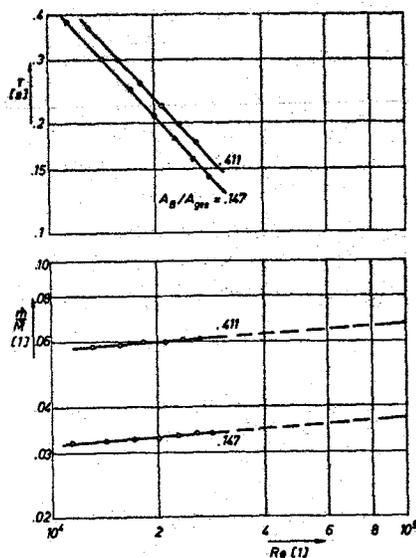


Abb. 6

Tab. 2: Mit den Auslegungsdaten von Na 2 (Coreintrittstemperatur  $380\text{ }^{\circ}\text{C}$ , Coreaustrittstemperatur  $576\text{ }^{\circ}\text{C}$ , Subassemblydurchsatz  $23,0\text{ kg/s}$ ) berechnete mittlere Kühlmitteltemperaturen im Totwasser.

		Coremitte		Coreende	
Stableistung	$[\text{W/cm}]$	446		190	
Versperrung (Flächenverhältnis	$A_B/A_{\text{ges}}) [\text{1}]$	0,147	0,411	0,147	0,411
Kühlmitteltemperatur unmittelbar vor der Blockade	$[\text{ }^{\circ}\text{C}]$	478	489	576	598
Mittl. Kühlmitteltemp. im Totwasser	$[\text{ }^{\circ}\text{C}]$	$688 \pm 14$	$781 \pm 20$	$665 \pm 6$	$723 \pm 9$
Siedetemperatur	$[\text{ }^{\circ}\text{C}]$	1000		950	

Der von Argonne übernommene Code COBRA II zur thermohydraulischen Berechnung von Brennelementbündeln wurde mit dem angegebenen Problembeispiel erfolgreich getestet. COBRA II wurde so umgestellt, daß die hier üblichen Einheiten MKS verwendet werden können. Ein  $30^{\circ}$ -Ausschnitt eines SNR-BE-Bündels wurde gerechnet und mit THESYS verglichen. Die Übereinstimmung ist gut. Der ursprüngliche Verwendungszweck, größere Kühlkanalverstopfungen mit COBRA zu rechnen, ist noch nicht erreicht worden. Es ist fraglich, ob das mit einem solchen Programm überhaupt möglich ist.

### 1233.2 Untersuchungen zum lokalen Sieden im Natrium-Siedekreislauf

(K. Schleisiek, IRE)

Die vorbereitenden Arbeiten zur Untersuchung des lokalen Siedens wurden mit der Messung der Temperaturverteilung im Totwasser (Teststrecke "Negativbündel" mit 4 blockierten Kanälen) mit Natrium fortgesetzt. Aus den gemessenen Temperaturdiffe-

renzen wurde die Verweilzeit des Kühlmittels im Totwassergebiet berechnet. Bei gleichen Kühlmittelgeschwindigkeiten ergeben sich für Wasser und Natrium gleiche Verweilzeiten. Daraus folgt, daß der Energieaustausch zwischen der gesunden Strömung und dem Totwasser im wesentlichen durch die Wirbelbewegung erfolgt. Die unterschiedliche molekulare Wärmeleitfähigkeit von Wasser und Natrium hat auf die Temperaturverteilung keinen Einfluß.

### 1233.3 Brennelementverhalten unter Siedeverzug (BEVUS)

(M. Cramer, IRE)

Nach Abschluß der ersten Versuchsphase, die 7 Siedeversuche durch Aufheizen unter konstantem Druck und 4 Siedeversuche durch schnelle Druckabsenkung nach Aufheizen auf eine vorgegebene Temperatur unter Überdruck beinhaltete, wurde mit der Auswertung begonnen.

Wie die Meßdaten zeigen, lagen während der Versuche zwei Belastungsarten am Elementkasten vor:

Druckbelastung und  
Thermoschockbelastung.

Bei der Druckbelastung traten sowohl Kurzzeitbelastungen von ca. 10 msec. Dauer auf, hervorgerufen durch Siede- und Kondensationsstöße, als auch quasistationäre Belastungen von mehreren sec. Dauer entsprechend der Lebensdauer der Blase. Die quasistationäre Belastung resultierte aus der Druckdifferenz zwischen dem im Element anstehenden Sättigungsdruck der Blase und dem außerhalb des Kastens herrschenden Pooldruck.

Der maximal auf die Kastenwand wirkende Differenzdruck betrug bei den Versuchen mit Druckentlastung 2,35 at. Der maximale Kollabierungsstoß wurde mit 1,6 at bei den Versuchen ohne Druckentlastung gemessen.

Außer durch Druckbeanspruchung werden die beteiligten Bauteile durch Thermoschocks, die bei der Pulsation der Dampfblase auftreten, belastet. Bei den vorliegenden Versuchen traten Frequenzen zwischen 0,5 und 2 Hz auf, solange sich die Blase noch innerhalb des Brennelementbündels befand. Die dabei aufgetretene maximale örtliche Temperaturänderung betrug 120 °C.

Nach Abschluß der ersten Versuchsserie wurde der Elementkasten erneut vermessen. Obwohl sämtliche Versuche mit demselben Elementkasten bei Temperaturen von ca. 750 °C durchgeführt worden waren, konnten keine Verformungen festgestellt werden.

Anhand der Auswertung wurden folgende Instrumentierungsänderungen für den 2. Elementeinsetz vorgesehen:

- Die Temperaturmeßstellenanzahl wurde von 28 auf 40 erhöht.
- Es wurden zusätzliche Druckmeßstellen in Kastenmitte und am Elementfuß vorgesehen.
- Um die bei der Pulsation auftretenden Natriumgeschwindigkeiten messen zu können, wird in dem Elementkopf ein Durchflußmesser eingebaut.
- Zur besseren Erfassung der schnellen Vorgänge werden alle Meßstellen mit 600 Hz abgefragt.

Die Auswertprogramme wurden den Änderungen angepaßt und verbessert. Das zweite Modellelement mit der erweiterten Instrumentierung ist nahezu fertiggestellt.

#### Veröffentlichungen zu 1233:

- (1) D. Kirsch, R. Meyder, G.F. Schultheiß  
Zur Strömungsverteilung im Bereich lokaler Kühlkanalbockaden im Stabbündelelementen  
Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Bonn 1971, Vortrag H5 - 133
- (2) W. Pepler  
Reentry of Sodium into a Superheated Test Section  
Meeting of the Liquid Metal Boiling Working Group,  
Ispra, 15. - 17. April 1971
- (3) K. Schleisiek  
Experimental Investigation of the Boiling Phenomena in Parallel Channels  
Meeting of the Liquid Metal Boiling Working Group,  
Ispra, 15. - 17. April 1971
- (4) G.F. Schultheiß  
Experimentelle Untersuchung des Siedeverzugs von Natrium an künstlichen Oberflächenrauigkeiten.  
H 5 - 140, Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Bonn (1971)

1238 Untersuchungen zur technischen Zuverlässigkeit (G. Weber, IAR)

Bei den Untersuchungen über technische Zuverlässigkeit von Systemen wurde die Monte Carlo-Methode [1] mit analytischen Methoden (1) verglichen. Die Methoden können im Prinzip für zwei Arten von Komponenten eines Systems eingesetzt werden:

- nichtreparierbare Komponenten, deren mittlere Lebensdauer gegeben sind, sowie
- reparierbare Komponenten, deren mittlere Lebensdauer und mittlere Reparaturzeiten gegeben sind.

Die Ausfallwahrscheinlichkeit kann beispielsweise für ein Modell der Notstromanlage des SNR durch ein Monte-Carlo-Programm (FBRR, Fast Breeder Reactor Reliability) und durch ein analytisches Programm (SPAFT; Simple Program for Fault Tree Analysis) angegeben werden. Die Resultate für nichtreparierbare Komponenten sind in Abb. 7 angegeben. Ein Fehlerbaum wurde auf einige der wichtigsten Komponenten reduziert ("A2") und dann durch FBRR und SPAFT ausgewertet.

Die Erweiterung auf reparierbare Komponenten zeigt sich als sehr wichtig, da sich dann - nach vorläufigen Rechnungen - die Ausfallwahrscheinlichkeit drastisch von rund  $10^{-2}$  auf  $10^{-4}$  reduziert. Hier geht entscheidend die Reparaturzeit der Komponenten in die Rechnung ein. Da wir dabei jedoch nahe an die Grenzen der Möglichkeiten des Monte-Carlo-Verfahrens gekommen sind, scheint es uns erforderlich, eine analytische Rechnung mit SPAFT zu machen. Eingabe-Daten sind

- Fehlerbaum und
- die mittleren Lebensdauern und mittleren Reparaturzeiten für die einzelnen Komponenten.

---

[1] F.W. Heuser, G. Weber

Reliability Analysis of Reactor Systems

1970 Annual Symposium on Reliability (Proc. p. 135-145), Los Angeles

Veröffentlichungen zu 1238:

(1) G.G. Weber

Methoden zur Zuverlässigkeitsanalyse von Systemen

Tagung 1971 "Technische Zuverlässigkeit" (Nürnberg) (p. 28-37)

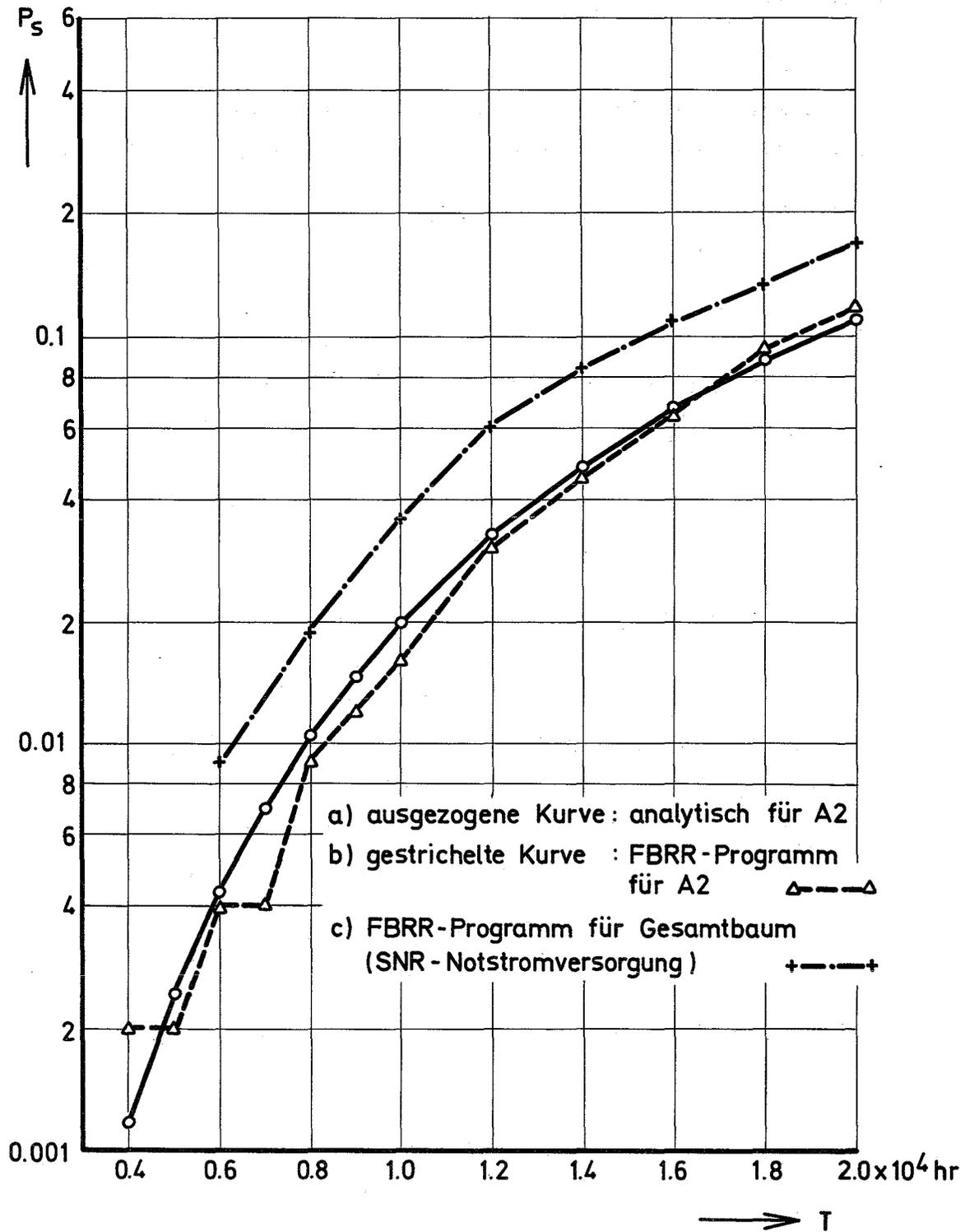


Abb. 7. Ausfallwahrscheinlichkeit von A2

124 ENTWICKLUNG DER INSTRUMENTIERUNG UND SIGNALVERARBEITUNG ZUR KERN-  
ÜBERWACHUNG

1241. Nachweis von Durchflußstörungen an Brennelementen

1241.1 Thermoelement-Entwicklung

(H. Twelmeier, Siemens, WWM)

Die Thermoelemente aus der Bestrahlungskapsel Mol-1T (Neutronendosis  $3 \cdot 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup>, Temperatur ca. 55 °C, NiCr-Ni-Thermoelemente von fünf Herstellern, davon 20 Thermoelemente  $\varnothing$  3 mm, 60 Thermoelemente  $\varnothing$  1,5mm) wurden in den Heißen Zellen der GfK nachuntersucht.

Die wesentlichen Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Bei 2 Thermoelementen vom  $\varnothing$  3 mm und 2 Thermoelementen vom  $\varnothing$  1,5 mm war der Mantel undicht. In allen vier Fällen kommt als Ursache falsche Handhabung der Thermoelemente in Frage.
- Bei einem der undichten Thermoelemente war zusätzlich als Folge der Volumenausdehnung beim Übergang von MgO  $\rightarrow$  Mg(OH)<sub>2</sub> ein Leiter abgerissen.
- Die Durchmesserzunahme war bei allen Thermoelementen kleiner als 10 $\mu$  und kann in dieser Größenordnung der bekannten Volumenzunahme des austenitischen Mantelmaterials aufgrund von Porenbildung zugeordnet werden.
- Die Änderungen der EMK betragen im Mittel ca. - 120 $\mu$ V ( $\hat{=}$  3 °C) bei 100 °C und ca. 200 $\mu$ V ( $\hat{=}$  5 °C) bei 232 °C bei Thermoelementen, die keine nachträgliche Wärmebehandlung erfahren haben. Thermoelemente, die nachträglich bei SNR-Temperatur (550 °C - 600 °C) ausgeheizt wurden, zeigten bei Temperaturen von 100 °C bis 540 °C innerhalb der Meßgenauigkeit keine EMK-Abweichungen mehr. Dies läßt darauf schließen, daß die zuvor beobachteten Abweichungen auf ausheilbaren Schäden durch schnelle Neutronen beruhen, die Transmutation jedoch keine Rolle spielt.

Die Thermoelemente aus den Bestrahlungskapseln Mol-1R und 1S (Neutronendosis  $10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>) werden im 2. Quartal 1971 den Heißen Zellen angeliefert und anschließend nachuntersucht.

Eine instrumentierte Bestrahlung von Thermoelementen (Bestrahlungskapsel Mol-3G) soll um die Jahreswende 1971/72 beginnen. Diese Kapsel enthält 20 Thermoelemente vom  $\emptyset$  1,5 mm, die in Gruppen von je 4 Thermoelementen in Tauchhülsen eingelötet sind, welche wiederum in Natrium eintauchen. Diese Einbauart entspricht weitgehend der für den SNR vorgesehenen Einbauart.

### 1241.3 Temperaturfluktuation am elektrisch beheizten Brennelement

(L. Krebs, G. Weinkötz, IRB)

#### 1. Modelluntersuchungen

Die im Jahre 1970 am Analogrechner durchgeführten Modellversuche wurden nach verschiedenen statistischen Verfahren ausgewertet. Dabei war das Ziel, eine von einem Rauschsignal  $r(t)$  überlagerte Rampenfunktion  $n(t)$  (Abb. 1) wiederzufinden. Insbesondere wurden bei den Modellversuchen einem Tiefpaßrauschen mit der Grenzfrequenz  $f_g = 0,5$  Hz verschiedene Rampenfunktionen überlagert, deren maximale Amplituden stets kleiner waren als die Spitzenwerte des Rauschsignals. Vom Gesamtsignal (Abb. 2)

$$x(t) = r(t) + n(t) \quad (1)$$

wurde zunächst die Autokorrelationsfunktion (Abb. 3)

$$\varphi_{xx}(\tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T x(t) \cdot x(t+\tau) dt \quad (2)$$

gebildet.

Bei der Grenzfrequenz von 0,5 Hz ist eine Meßzeit  $T$  von ca. 3 Minuten als ausreichend anzusehen, um die Grenzwertbedingung von (Gl.2) zu erfüllen. Für die verschiedenen Signalfunktionen  $n(t)$  ergaben die Berechnungen der Autokorrelationsfunktionen keine eindeutige Zuordnungen zu den Signalfunktionen. Dagegen konnte aus den Autokorrelationsfunktionen die Grenzfrequenz des Rauschsignals stets ermittelt werden, wodurch man eine zusätzliche Information über System und Geber bekam.

Bei dem zweiten möglichen statistischen Verfahren wurden für dieselben Gesamtsignale  $x(t)$  die Faltungskorrelationsfunktionen

$$\varphi_{xx}^f(\tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T x(T-t) \cdot x(t+\tau) dt \quad (3)$$

berechnet. Das hierzu notwendige Digitalprogramm wurde erstellt und getestet.

Abb. 4 zeigt die Faltungskorrelationsfunktion für den Fall der in Abb. 1 dargestellten Rampe, die zum Zeitpunkt  $t_E = 100$  sec einsetzt. Dieser Einsatzpunkt  $t_E$ , der im Gesamtsignal durch das Rauschen verdeckt ist (Abb. 2), kann nach der Gleichung

$$t_E = \frac{1}{2} (t_A + T) \quad (4)$$

aus dem Faltungskorrelogramm wiedergewonnen werden. In Gleichung (4) bedeuten  $t_A$  die Zeit, bei der die Faltungskorrelation zu steigen beginnt, und  $T$  die gesamte Meßzeit. Aussagen über Empfindlichkeit, Genauigkeit sowie technische Realisierbarkeit des hier skizzierten Verfahrens können noch nicht gemacht werden; sie sind Gegenstand weiterer Untersuchungen.

## 2. Untersuchungen an einem Na-Kreislauf des IRB

Zur Messung der Temperaturfluktuation wurden an einem 61-Stabbündel 2 geeignete Thermolemente (0,5 mm  $\emptyset$ , NiCr-Ni) ausgewählt, deren Anordnung in Abb. 5 schematisch dargestellt ist. In diesem Bündel ist der Zentralstab als Heizstab ausgebildet. Entsprechend den Modelluntersuchungen wurde hierbei die Signalfunktion durch einen rampenförmigen Anstieg der Heizleistung im Zentralstab verwirklicht. (Abb. 6)

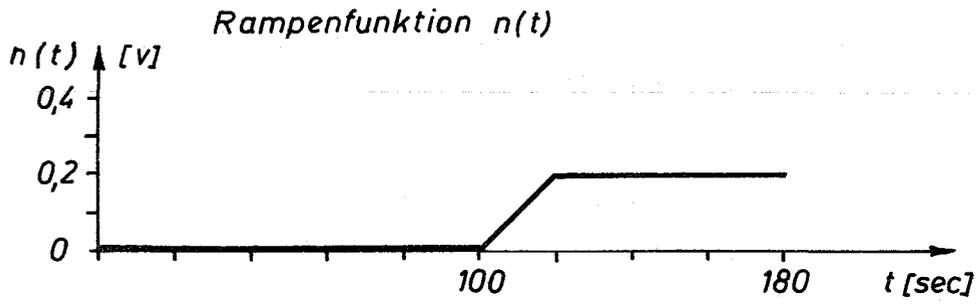


Abb.1

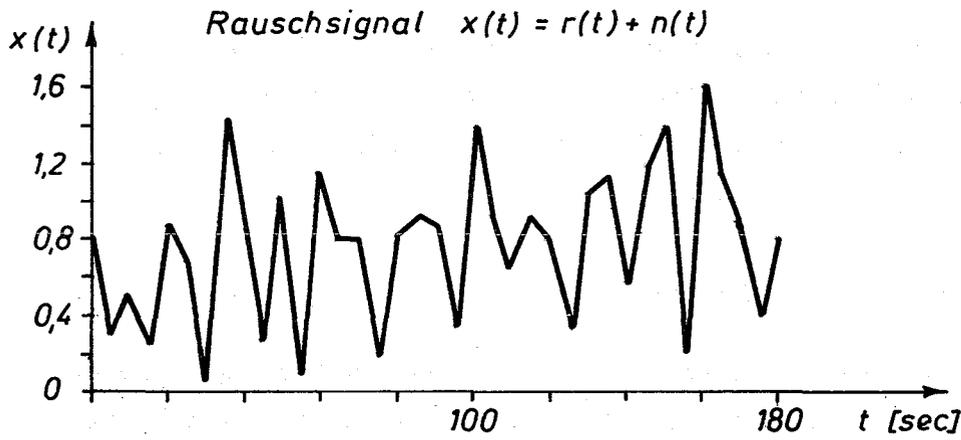


Abb. 2

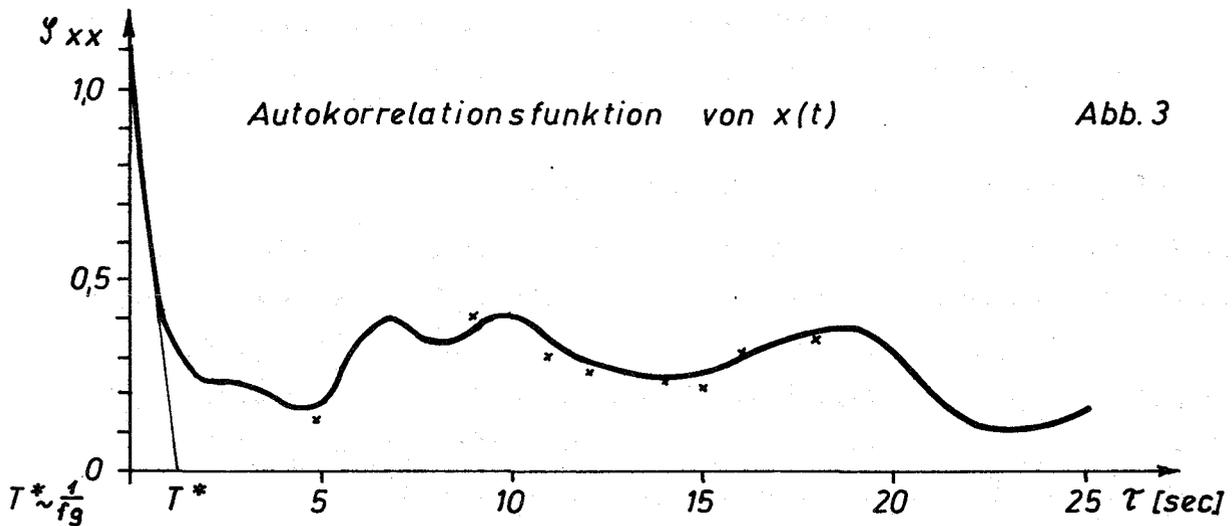


Abb. 3

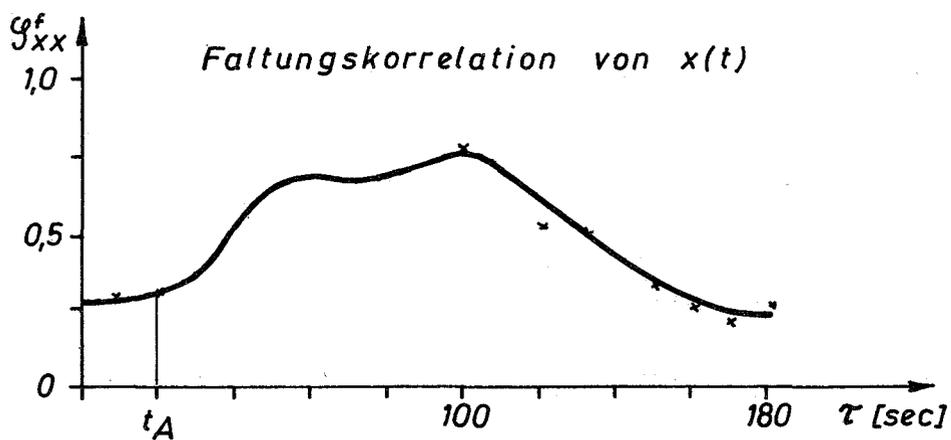


Abb. 4

Anordnung der Temperaturfühler am Brennelement

Abb. 5

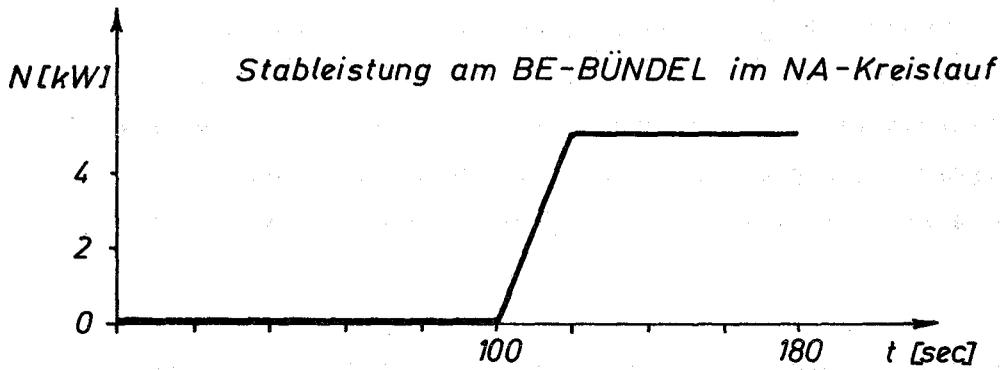
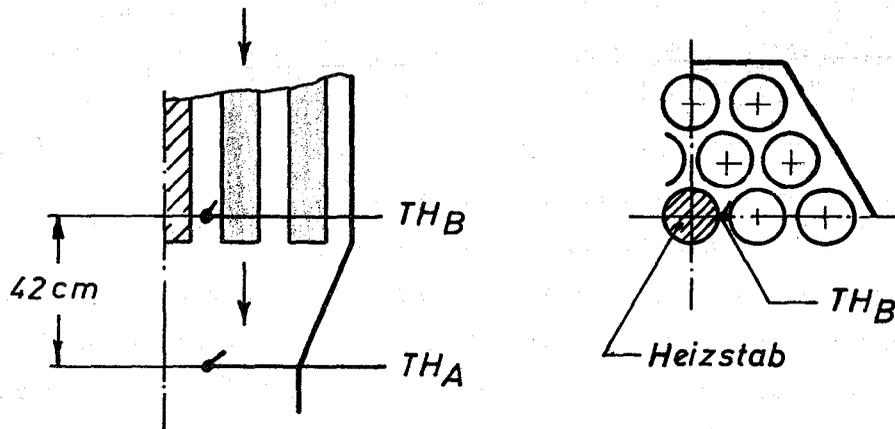


Abb. 6

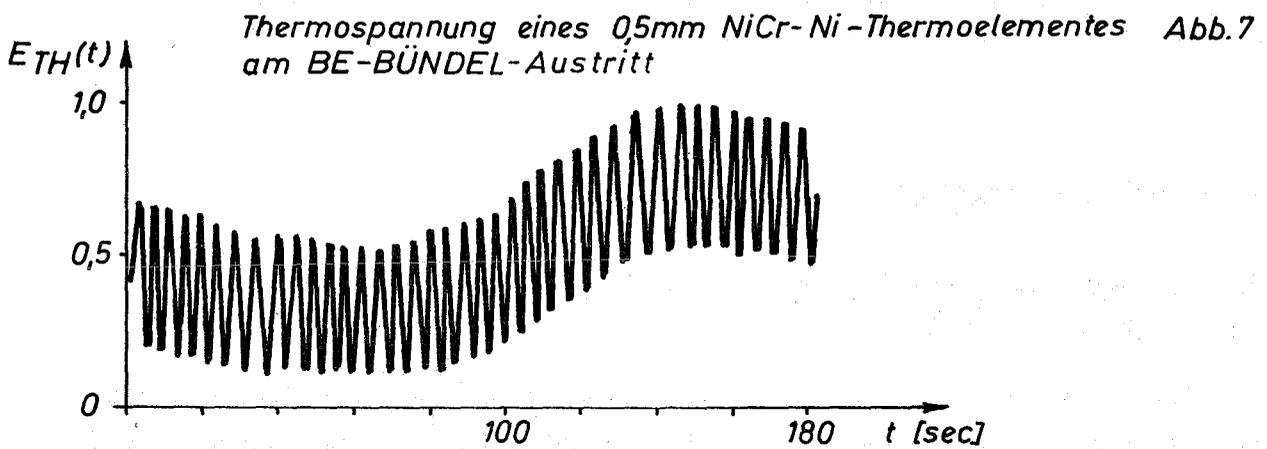


Abb. 7

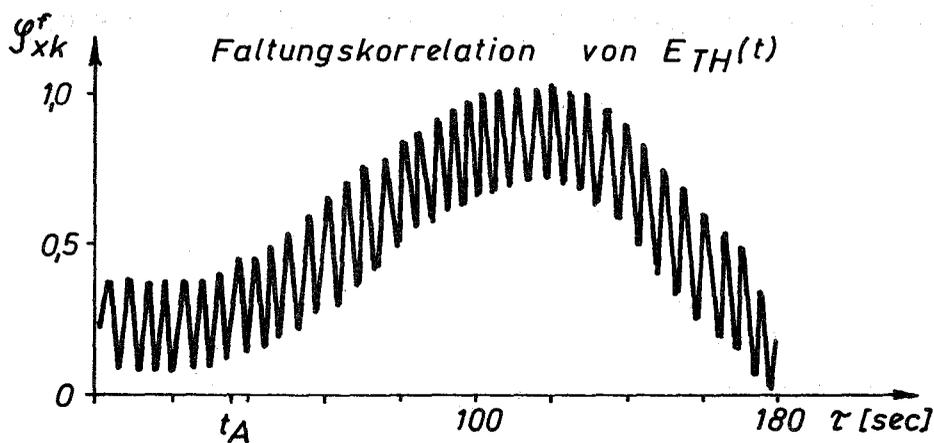


Abb. 8

Die zugeführte Heizleistung wurde variiert, der Einsatzpunkt konstant gehalten. Dabei ergab die Temperaturmessung mit dem Thermoelement  $TH_B$  den Anstieg der Heizleistung exakt wieder, so daß in diesem Fall die statistischen Auswertungsverfahren keinen zusätzlichen Informationsgehalt lieferten. Am Brennelementausgang (etwa 40 cm unterhalb der Brennstabenden) wurde mit dem Thermoelement  $TH_A$  ebenfalls ein der Änderung der Heizleistung entsprechender Temperaturverlauf gemessen. Statistische Temperaturschwankungen am BE-Austritt konnten mit dieser Versuchsanordnung nicht nachgewiesen werden. Allerdings war das Signal von einer starken niederfrequenten Schwingung ( $f = 1,5 \text{ Hz}$ ) überlagert, deren Herkunft noch nicht analysiert werden konnte. Dabei ist zu berücksichtigen, daß das rampenförmige Temperatursignal (Abb. 7) nur durch eine geeignete Kompensationseinrichtung und zusätzliche große Verstärkung ( $V \approx 2000$ ) des dynamischen Signalanteils zu gewinnen war. Abb. 8 zeigt den Verlauf der hierzu gehörenden Faltungskorrelationsfunktion mit dem Wert  $t_A = 30 \text{ sec}$ , woraus nach Gl. (4) die Einsatzzeit  $t_E \approx 105 \text{ sec}$  zu berechnen ist.

Weitere Messungen sollen darüber Aufschluß geben, inwieweit der vorhandene Na-Kreislauf für die Fortführung der Blockageuntersuchungen geeignet ist.

## 1242 Hüllenüberwachung von Brennelementen

### 1242.1 Abscheidung und Nachweis von Spaltgas am Brennelementaustritt

(H. Will, IRE)

Zur Detektion von Blasen im Kühlmittel eines schnellen Reaktors, wie sie nach lokalen Verstopfungen oder Hüllrohrbrüchen in einem Subassembly auftreten können, ist im IRE ein Zyklonabscheider mit Blasenerkennung entwickelt worden.

In dieser weiterführenden Arbeit soll nun nachgewiesen werden, daß das Kühlmittel in diesem Zyklonabscheider bereits so intensiv vermischt wird, daß der zusätzliche Einbau einer Mischstrecke zum Abbau von Temperaturgradienten nicht erforderlich ist.

In den vorgesehenen Experimenten werden Temperaturgradienten durch Farbspritzung simuliert. Die bestehende Versuchseinrichtung wurde so umgebaut, daß in einer Ebene kurz nach dem Abscheider 13 Proben aus einem Querschnitt entnommen werden können. Dabei ist die Probenahme so ausgeführt, daß innerhalb eines frei wählbaren Zeitintervalls bis zu 15 Proben an jeder der 13 Probenahmestellen anfallen können.

Die Vorrichtung einschließlich Probenahme ist nahezu fertiggestellt.

#### 1244 Ultraschall-Meßtechnik in Natrium

(H. Rohrbacher, R. Bartholomay, H. Arnswald, IRE)

Die Ultraschalldämpfung in Natriumteststrecken wurde im Hinblick auf die Einsatzmöglichkeit langer Koppelstangen bei unterschiedlichen Natriumtemperaturen gemessen. Die Schall-Übertragungsfunktion liefert dabei die erwarteten und von den klassischen Theorien (Stokes, Kirchhoff) abweichenden Werte für die Absorption longitudinaler Schallwellen oberhalb 1 MHz.

Für den austenitischen Stahl WSt. Nr. 4571 wurde die von MASON und McSKIMIN beschriebene und materialspezifische Streuung bzw. Diffusion der Ultraschallwellen in Stahl ab 7 MHz beobachtet. Es empfiehlt sich daher nicht, die Ultraschallversuche über diese Frequenz hinaus zu verlegen.

Vorbereitende Arbeiten zur Ultraschall-Echolottechnik in Natrium wurden aufgenommen. Zusammen mit der Übertragungsdämpfung einer Natrium-Versuchsstrecke wurde die Anpassung der mechanischen Impedanzen ermittelt. Die Ergebnisse zeigen jetzt schon, daß Mehrfach-Echos in den verwendeten Koppelstäben eine sorgfältige Auswahl der Eigenresonanzen der Wandlerelemente unter Berücksichtigung der jeweiligen Frequenzkonstanten notwendig machen.

#### Veröffentlichung zu 124:

K. Gast

Eine Methode zur schnellen Detektion und Lokalisierung von Hüllrohrschäden in natriumgekühlten schnellen Reaktoren.

H 8 - 221, Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Bonn (1971)



125 AUSWIRKUNG VON REAKTORSTÖRFÄLLEN AUF DIE UMWELT; AKTIVITÄTSFREISETZUNG1252. Natriumbrand-Versuchsprogramm

(S. Jordan, E. Rühl, IAR/AFTS)

Die technischen Einrichtungen zur Durchführung der Natriumbrand-Versuche hinsichtlich der Aktivitätsfreisetzung bei Störfällen befinden sich im Bau bzw. in der Erprobung.

Hierbei handelt es sich im wesentlichen um die Baugruppen

- A Reaktionsgefäß mit Analysenbox
- B Natriumofen
- C Auffang-Vorrichtung für Natrium
- D Meß- und Analystechnik

A Das Reaktionsgefäß befindet sich z.Zt. im Bau. Es besteht aus einem fünfteiligen Edelstahlzylinder mit einem Durchmesser von 1 m und einer Maximalhöhe von 5,5 m. Diese Höhe kann bis auf ca. 2 m verringert werden.

Innerhalb des Gefäßes auf dem Behälterboden befindet sich die Auffangvorrichtung für das Na, deren Inhalt nach Herablassen des Bodens durch eine Schleuse in die Analysenbox überführt werden kann.

B Auf dem Behälterdeckel wird der Na-Ofen angebaut. Dieser elektrisch beheizbare Ofen wurde so konstruiert, daß bis zu 1 kg Na bei Temperaturen zwischen 100 °C und 550 °C durch Düsen verschiedener Querschnitte in das Reaktionsgefäß eingebracht werden kann. (Der Na-Ofen befindet sich im Baustadium).

C Das geschmolzene Natrium durchfällt im Reaktionsgefäß eine definierte Atmosphäre und wird in einem Mantelgefäß aus Edelstahl aufgefangen. Der innere Auffangbehälter und sein geschlossener Mantel sind mit flüssigem Stickstoff gefüllt. Durch starkes Abpumpen wird über dem Stickstoff im Mantelgefäß ein Unterdruck erzeugt. Der hierdurch verdampfende Stickstoff kühlt das Gefäß unter den Siedepunkt von N<sub>2</sub>.

Von dieser Auffang-Vorrichtung wurde zunächst ein kleineres Modell hergestellt, mit dessen Hilfe Laborversuche durchgeführt wurden.

Untersuchungen mit verschiedenen flüssigen Metallen und auch brennendem Natrium haben gezeigt, daß es auf diese Weise möglich ist, mindestens 50 % der vom Metall an den Stickstoff abgegebenen Wärme abzuführen.

Die Vorteile dieses Auffängers sind:

- Verringerung des Druckanstiegs im Kessel durch verdampfenden Stickstoff auf maximal 0,1 atü.
- Sofortige Unterbrechung der Natrium-Luft/Wasser-Reaktion und
- Verwahrung des Reaktionsproduktes bis zur Analyse in einer absolut inerten Atmosphäre.

D Zur Ermittlung der Reaktionsraten und Aerosolparameter wurden Meßketten entworfen, deren Komponenten die Messung folgender Größen gestatten:

O<sub>2</sub>-Gehalt und relative Feuchte des Gases im Kessel, Temperatur, Druck (statisch und dynamisch) und die Aerosolkonzentration.

Es wurde weiterhin in Vorversuchen der Sauerstoffgehalt in Natrium bestimmt. Diese Sauerstoffbestimmung einer repräsentativen Probe im aufgefangenen Natrium gibt Aufschluß über die Raten der Natrium-Luft/Wasser-Reaktion.

Hierbei wird das Natrium durch Amalgamierung von Natriumoxyd getrennt. Für die Versuche wurde eine von Dorner vorgeschlagene Anordnung verwendet. Die Genauigkeit der Oxydbestimmung lag bei  $\pm 0,02\%$  der Probenmenge. Unter vereinfachenden Annahmen bedeutet dies, auf die gesamte Atmosphäre im Reaktionsgefäß bezogen, daß die sauerstoffhaltigen Reaktionsprodukte im Natrium noch bei einem Sauerstoffgehalt von 10 ppm nachgewiesen werden können.

Eine Vorrichtung zum Testen von Filterzellen am Na-Brand-Versuchsstand wurde entworfen. Mit ihrer Hilfe wird es möglich sein, industriell gefertigte Filter hinsichtlich ihrer Beständigkeit gegenüber Natriumoxyd-Aerosolen zu untersuchen.

1254.2 Kontamination von Kühlkreisläufen (H.H. Stamm, IRCH/AFTS)

Durch wiederholte Messungen von Spaltproduktgemische mit einem  $\gamma$ -Spektrrometer ist es möglich, kurz- und langlebige Radionuklide ohne chemische Trennungen in den gleichen Proben zu bestimmen. Auf diese Weise wurden auch die komplexen Gemische quantitativ analysiert, die im FR2-Heißdampfversuchskreislauf aus kontaminiertem Heißdampf auf Materialproben abgeschieden wurden. In Tabelle 1 sind als Beispiel die Ergebnisse mehrfacher Messungen an Edelstahlcoupons (Ti-stabilisierter 18/8-Stahl W.Nr. 4541) zusammengestellt worden. Quelle der Spaltprodukte war eine 1 mm  $\emptyset$  Bohrung in der Hülle eines verkürzten HDR-Stabs, in dem sich vibrationsverdichtetes  $UO_2$ -Pulver (3,17% U-235) als Brennstoff befand. Bemerkenswert ist dabei vor allem der hohe Anteil des Np-239 an der Gesamtaktivität. Beim vorhergehenden Versuch mit Leckbohrung im Spaltgasplenum und bei Experimenten mit pelletiertem Brennstoff unter sonst gleichen Bedingungen konnte kein oder nur wenig Np-239 auf den Proben nachgewiesen werden.

Tabelle 1

Versuch Beta

Aktivität auf Edelstahl-Proben W.Nr. 4541

(20 x 14 mm, elektropoliert, parallel z. Dampfstrom)

Coupon-Nr. Dicke	T52 1 mm	T13 0.5 mm	T14 0.5 mm	T53 1 mm	T15 0.5 mm	T16 0.5 mm
Nuklid	Aktivität am Ende der Expositionszeit (nCi/cm <sup>2</sup> )					
Mo-99	58	75	87	66	75	81
Te-132	420	477	509	557	539	577
J-131	35	38	32	42	38	55
Ba-140	39	38	17	22	23	15
Ru-103	3.6	10.5	6.2	3.7	4.4	4.0
Ru-Rh-106	0.10	0.27	0.20	0.13	0.13	0.13
Ce-141	10.9	26	16	8.6	8.9	7.1
Ce-144	0.62	4.4	3.1	0.76	1.21	0.93
Zr-95	1.41	16	7.6	2.4	3.5	2.8
Sb-125	0.15	0.13	0.09	0.15	0.11	0.10
Np-239	134	268	29	99	137	131
Sb-122	25	14	19	27	17	14
Sb-124	14	16	15	12	13	13
Cr-51	23	78	70	20	17	21
Co-60	1.11	3.9	4.0	1.13	1.5	1.16
Fe-59	0.62	3.6	3.6	0.92	0.94	0.97
Ta-182	2.0	13	15	2.9	3.8	3.3
Mn-54	0.09	0.33	0.24	0.07	0.10	0.07
Ag-110	0.07	0.05	n.a.	0.14	0.04	0.05

126 NA-TECHNOLOGIE-VERSUCHE1261 Schwingungsverhalten von Brennelementen

(J. Kadlec, K.D. Appelt, W. Krüger, IRE)

Die Auswertung der 1970 abgeschlossenen Untersuchungen der Reproduzierbarkeit der schwingungserzeugenden Druckpulsationen und der resultierenden Brennstabschwingung am Na 1/2 Modellsbassembley (1) in Versuchskreisläufen in Karlsruhe und in Ispra wurde abgeschlossen und zur Veröffentlichung vorbereitet (2). Dabei wurde festgestellt, daß sich die Niveaus und die Struktur der Druckpulsationen in den verschiedenen Kreisläufen stark voneinander unterscheiden. Die dadurch verursachte Streuung der Schwingungsamplituden der Brennstäbe bleibt aber im Bereich von etwa  $\pm 50\%$ , so daß auf eine begrenzte Übertragbarkeit der im Versuchsloop gewonnenen Ergebnisse auf den Zustand im Reaktor geschlossen werden kann. Diese Arbeit wird noch mit den geplanten Untersuchungen des Einflusses der Kühlmitteltemperatur und der künstlich erzeugten Turbulenz auf den Schwingungszustand ergänzt. Die Streuung der in (2) gemessenen quadratischen Mittelwerte der Relativen Biegedehnung des schwingenden Brennstabes  $\sqrt{\epsilon^2}$ , die mit den entsprechenden Werten des dynamischen Drucks  $q$  des strömenden Kühlmittels normiert sind, ist in Abb. 1 graphisch dargestellt, dabei bezeichnet  $Re$  die mittlere Reynoldszahl des strömenden Kühlmittels.

Für die geplanten Untersuchungen der Mikrostruktur der Kühlmittelströmung in Brennstabbündeln wurde der im IRE vorhandene Wasserversuchskreislauf mit je einem Dämpfungsbehälter vor und hinter der Teststrecke ausgestattet. Die damit erzielte Herabsetzung der störenden Druckpulsationen in der Teststrecke ist in Abb. 2 illustriert, wo die dimensionslose Spektraldichtefunktion der Druckpulsationen über der dimensionslosen Kreisfrequenz aufgetragen ist. Aus dem Diagramm folgt, daß die Eigenschaften des umgebauten Kreislaufes nun vergleichbar sind mit den Eigenschaften der Kreisläufe, die speziell für akustische Messungen [1,2] errichtet worden sind.

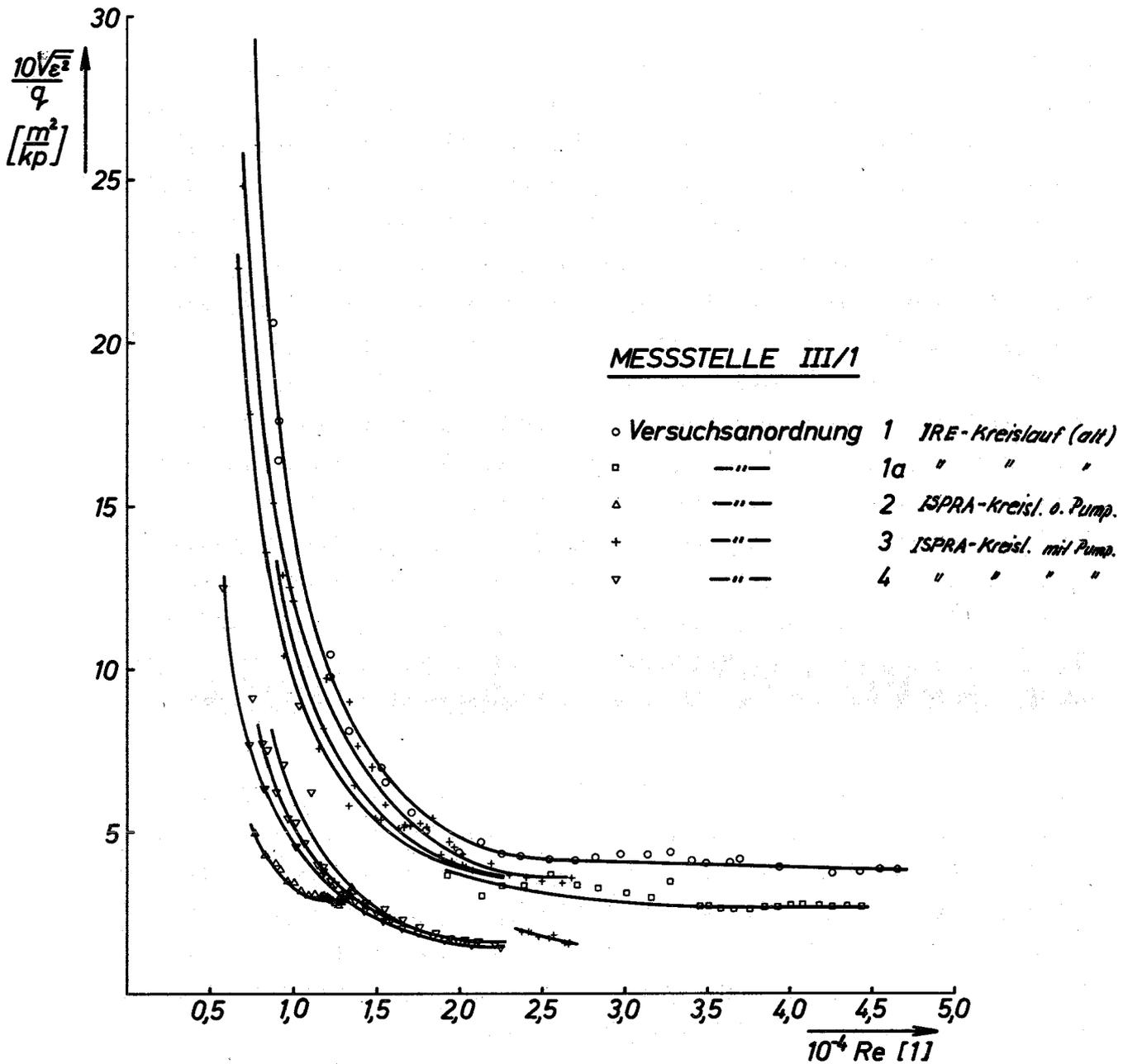


Abb. 1: Effektivwerte der Referenzdehnung des schwingenden Brennstabes bei verschiedenen Versuchsanordnungen

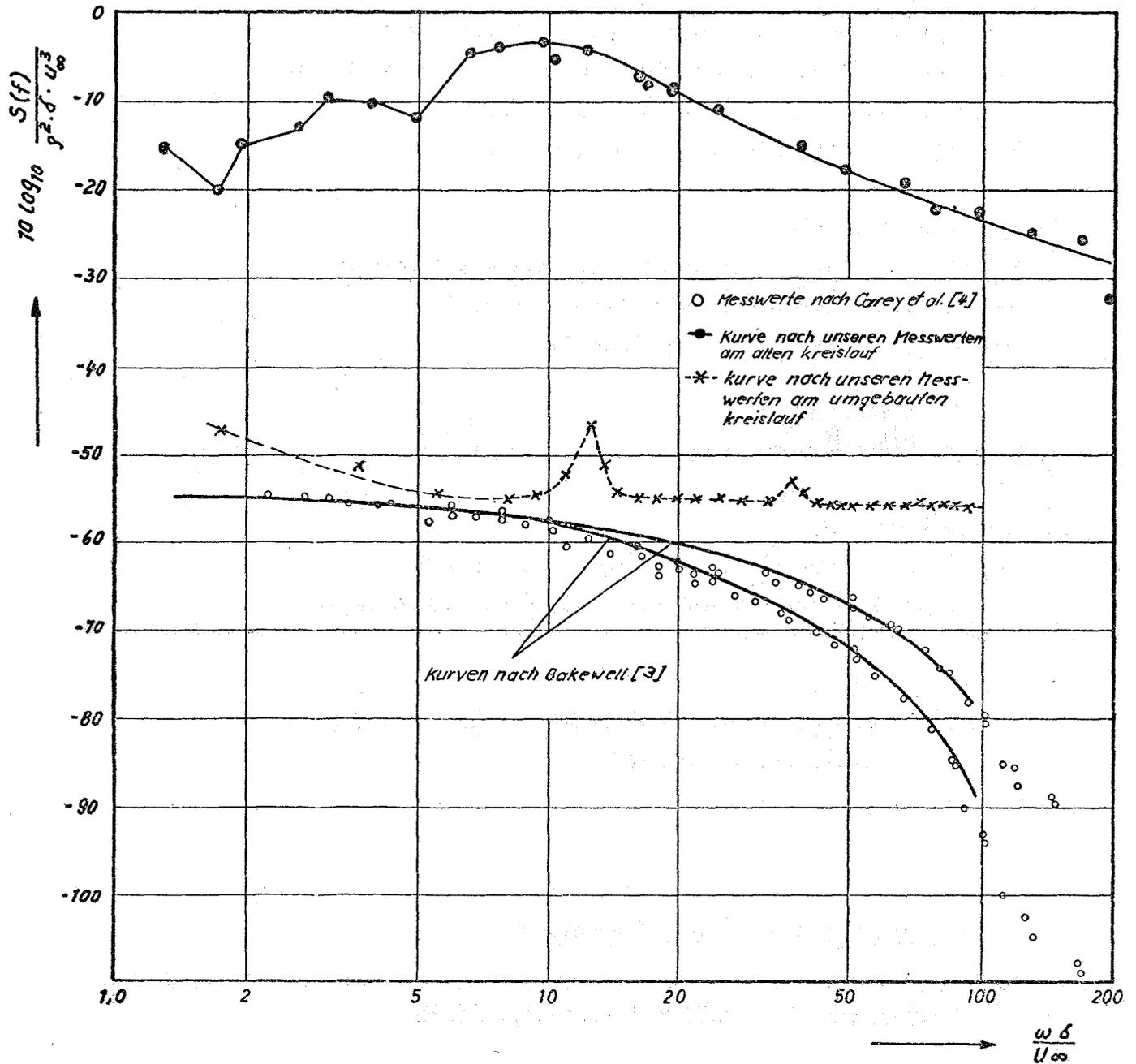


Abb. 2: Dimensionslose Spektraldichtefunktion der Druckpulsation im IRE-Wasserversuchskreislauf

Veröffentlichungen zu 1261:

(1) W. Krüger, R. Schwemmler

Untersuchung der Eigenfrequenzen, der Normal- und  
Dehnungsfunktionen und der Dämpfung der instrumentierten  
Modellbrennstäbe des Na 1/2 Modellsbassembley  
KFK-Bericht 1337, EUR 4572d, Dezember 1970.

(2) K.D. Appelt et al.

Experimental Investigation of Loop Caused Influences  
on Parallel Flow-Induced Vibration of Fuel Pins  
KFK-Bericht 1385, EUR 4574d, März 1971.

Literatur:

/1/ H.P. Bakewell et al.

Wall Pressure Correlations in Turbulent Pipe Flow,  
U.S. Navy Underwater Sound Lab. Rep. 559, August 1962.

/2/ G.F. Carey et al.

Acoustic Turbulent Water Flow Tunnel, J. Acoust. Soc.  
of America 1967, 41, 2, 373-379

1262 Untersuchungen von Reaktorbauteilen1262.3 Versuche zur Werkstoffpaarung unter NatriumVerschweißversuche (K. Mattes, IRE)

Die vier ersten Verschweißversuche der 2. Versuchsphase wurden durchgeführt. Bei diesen Versuchen wurden durchweg Proben mit geläppten Kontaktflächen verwendet. Hierdurch konnte die bisher aufgetretene Streuung der Meßergebnisse wesentlich verringert werden. Bei einem Versuch mit Paarungen aus unterschiedlichen Werkstoffen zeigte sich jedoch, daß infolge der thermischen Differenzdehnung bei der gegenwärtigen Testmethode die zu messenden Haftkräfte verfälscht werden.

Insgesamt zeigten die Ergebnisse eine gewisse Unabhängigkeit der durch das Verschweißen auftretenden Haftkräfte von der Flächenpressung. Hieraus resultierte eine Modellvorstellung, nach der nur derjenige Flächenanteil ganz oder teilweise verschweißt, der durch das Aufeinanderpressen plastisch verformt werden ist. Für den Grad der Verschweißung konnte somit eine Vergleichsgröße (Verschweißfaktor  $\lambda$ ) aus Haft- und Anpreßkraft, sowie aus Warmstreckgrenze und Zerreißfestigkeit einer gegebenen Paarung definiert werden.

Zur Bestätigung dieser Modellvorstellung und darüber hinaus zur Ermittlung von Abhängigkeiten dieses Verschweißfaktors von Einflußgrößen wie Spültemperatur, Spülzeit, Testtemperatur und Anpreßzeit werden zur Zeit geeignete Versuche durchgeführt.

#### Verschleißuntersuchungen in Natrium (E. Wild, IRB)

Der neue Verschleißprüfstand NV-II [1] wurde in Betrieb genommen. Die Funktion der Bewegungsmechanismen in den vier Teststrecken (Stift-Scheibe-Geometrie) sowie des meß- und regeltechnischen Teils der Anlage wurden unter Betriebsbedingungen erprobt. Danach wurden in über 1000 Stunden Betriebszeit 23 Verschleißversuche mit den folgenden Materialpaarungen durchgeführt:

Inconel 718	- Inconel 718
Colmonoy	- 1.4961
Stellit	- 1.4961
Akrit Co 50	- Akrit Co 42
Armco-Eisen	- Akrit Co 50

Diese Versuchsserie galt der Bestimmung des Verschleißverhaltens unter Berücksichtigung der Eintauchzeit einer Materialpaarung in Natrium vor Betätigung der Bewegungsmechanismen. Hierzu wurden parallel laufende Versuche ohne und mit einer konstanten Eintauchzeit von 15 Stunden durchgeführt. Die untersuchten Materialkombinationen zeigten folgendes Verhalten:

Inconel 718 - Inconel 718:

Die gemessenen Verschleißraten aus den Versuchen mit Voreintauchzeit lagen im Durchschnitt niedriger und wesentlich einheitlicher als jene ohne Berücksichtigung einer Voreintauchzeit.

Colmonoy - 1.4961; Stellite - 1.4961:

Alle Paarungen mit dem austenitischen Stahl 1.4961 zeigten mit und ohne Voreintauchzeit starke Aufschweißeffekte auf den Colmonoy- und Stellite-Stiften.

Die Werte für Stellite I gegen 1.4961, ohne vorherige Verweilzeit der Proben in Na, stimmen weitgehend mit Ergebnissen aus früheren Versuchen überein. [2].

Akrit Co 50 - Akrit Co 42; Armco-Eisen - Akrit Co 50:

Hierbei ließ sich keine eindeutige Aussage zum Einfluß der Voreintauchzeit von 15 Stunden auf das Verschleißverhalten machen.

Aufgrund der vorliegenden Ergebnisse ist eine eindeutige Entscheidung, ob alle zukünftigen Versuche erst nach einer definierten Voreintauchzeit gestartet werden sollen, noch nicht möglich. Es werden daher an ausgewählten Materialpaarungen weitere systematische Untersuchungen mit variabler Eintauchzeit durchgeführt.

Literatur zu 1262:

[1] E. Wild, K.J. Mack, G. Drechsler:

Die Prüfstände zur experimentellen Untersuchung des Verschleißverhaltens von Werkstoffkombinationen in strömendem Natrium.

(Veröffentlichung in Vorbereitung)

[2] E. Wild, K.J. Mack, H. Hoffmann:

Experimentelle Untersuchungen des Verschleißverhaltens von Stählen und Legierungen in flüssigem Natrium.

KFK-Bericht 1251, August 1970

Veröffentlichungen zu 1262:

(1) F. Hofmann

Temperaturfelder in Brennstoff, Hüllrohr und Kühlmittel in Brennelementen mit symmetrischer und asymmetrischer Bündelgeometrie.

H 5 - 133, Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Bonn (1971)

1263 Versuche zur thermo- und hydrodynamischen Core-Auslegung1263.1 Thermo- und hydrodynamische Untersuchungen1263.10 Theoretische Betrachtungen

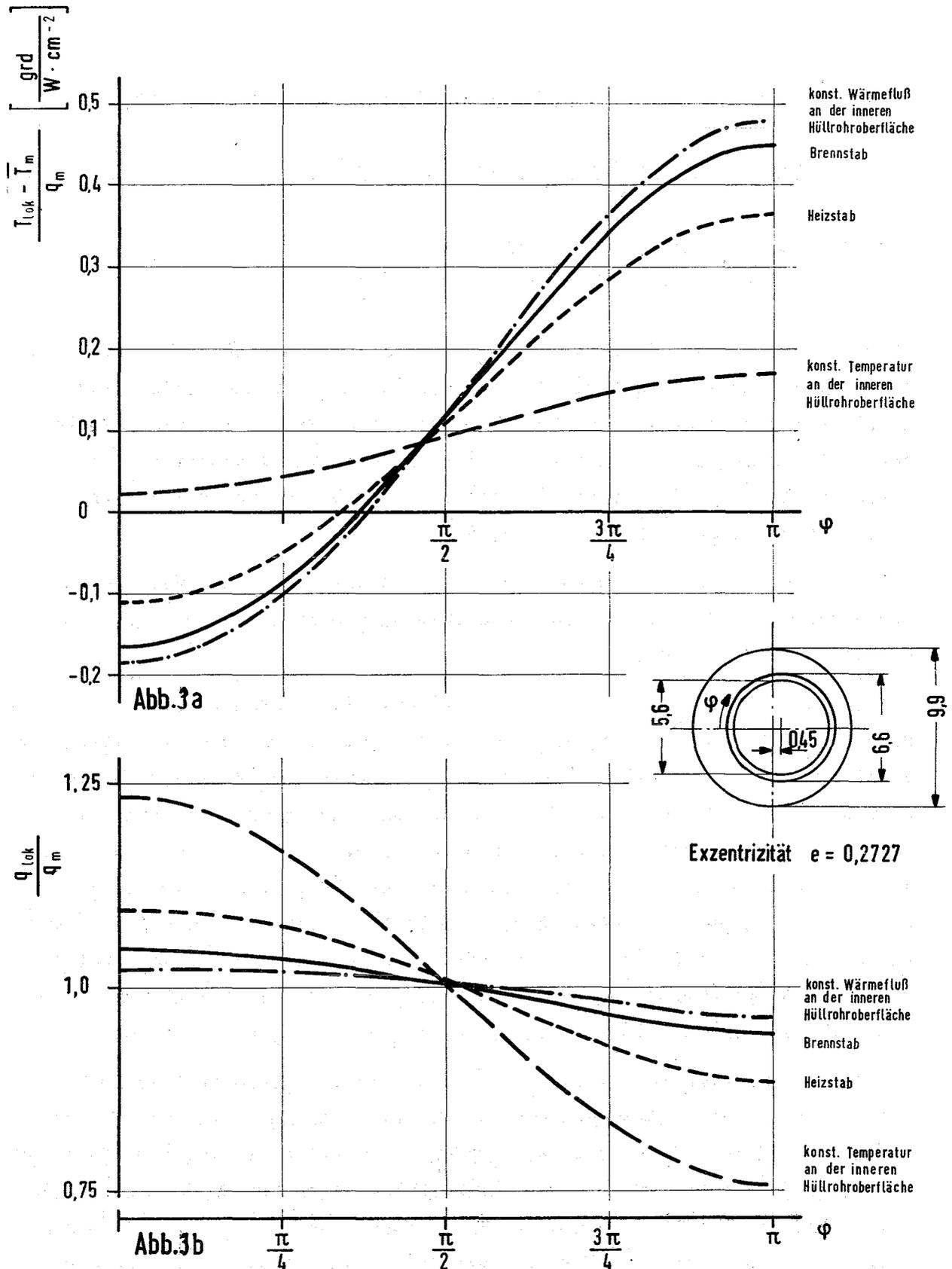
(W. Baumann, S. Malang, K. Rust, IRB)

Eine einfache Nachbildung der Strömungskanäle längsdurchströmter Stabbündel stellt die Ringraum-Geometrie dar. Zahlreiche analytische Studien zur Bestimmung der Temperaturfelder im exzentrischen Ringraum wurden bereits durchgeführt unter der Annahme entweder einer azimuthal konstanten Wärmestromdichte [1] oder einer azimuthal konstanten Temperatur [2] an der inneren bzw. äußeren Oberfläche der Hülle.

Mit Hilfe des Relax-Programmes [3] wurde untersucht, inwieweit durch diese Annahmen Abweichungen zu einem Brennstab oder zu einem elektrisch beheizten Stab entstehen.

Die Ergebnisse sind in Abb. 3a und 3b dargestellt. Aufgetragen ist der Verlauf der Oberflächentemperatur und des Wärmestromes über dem Umfang für einen Oxid-Brennstab, für einen indirekt elektrisch beheizten Stab mit Bor-nitrid-Isolierung [4] und für die Annahmen einer konstanten Temperatur sowie eines konstanten Wärmestromes an der inneren Hüllrohroberfläche. Es ist ersichtlich, daß die Verhältnisse an einem Brennstab am besten durch die Annahme einer konstanten Wärmestromdichte an der inneren Hüllrohrwand beschrieben werden können. In weiteren Untersuchungen soll festgestellt werden, wie ein elektrisch beheizter Stab beschaffen sein müßte, mit dem die Verhältnisse bei einem Brennstab besser simuliert werden können.

Mit dem MISTRAL-Rechenprogramm [5] wurden die Temperaturprofile im Bündelquerschnitt des SNR-Brennelementes Nr. 616 bestimmt. Sie wurden verglichen mit Ergebnissen, die Interatom mit den beiden Programmen HYDRA und THEA ermittelte. Ein wesentlicher Unterschied dieser Programme zu MISTRAL besteht darin, daß HYDRA und THEA als Austauschfunktion zwischen den einzelnen BE-Kanälen nur die Wärmeleitung des Kühlmittels, nicht aber die Kühlmittel-Quervermischung  $\mu$  berücksichtigen.



**Abb.3** Azimutaler Verlauf der normierten Temperatur und des Wärmeflusses an der inneren Hüllrohroberfläche eines Natrium gekühlten Stabes im exzentrischen Ringraum

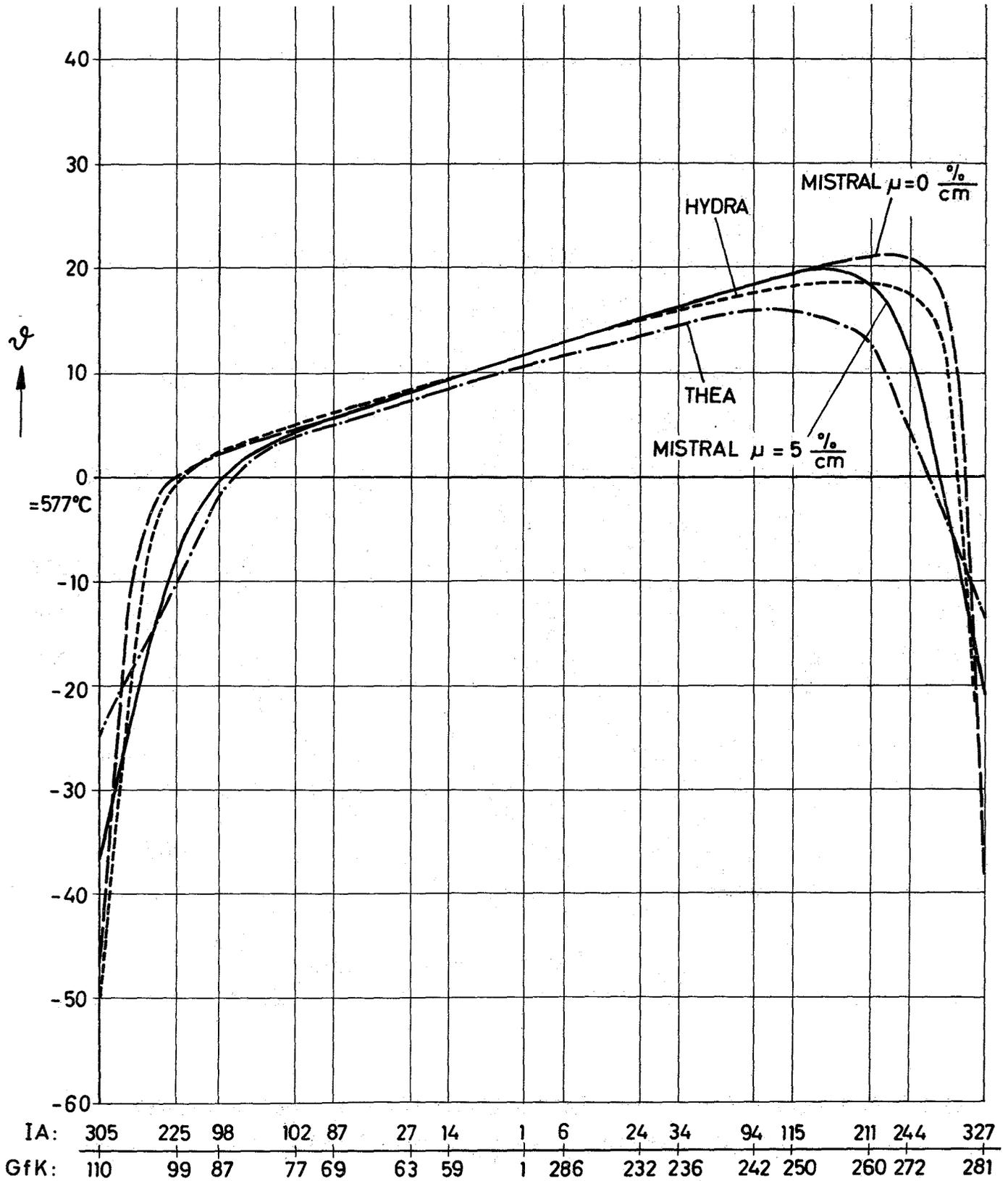


Abb. 4 : Kühlmitteltemperatur im SNR-BE Nr. 616 am Austritt aus der Spaltzone. Vergleich der mit HYDRA, THEA und MISTRAL berechneten Wandtraversen.

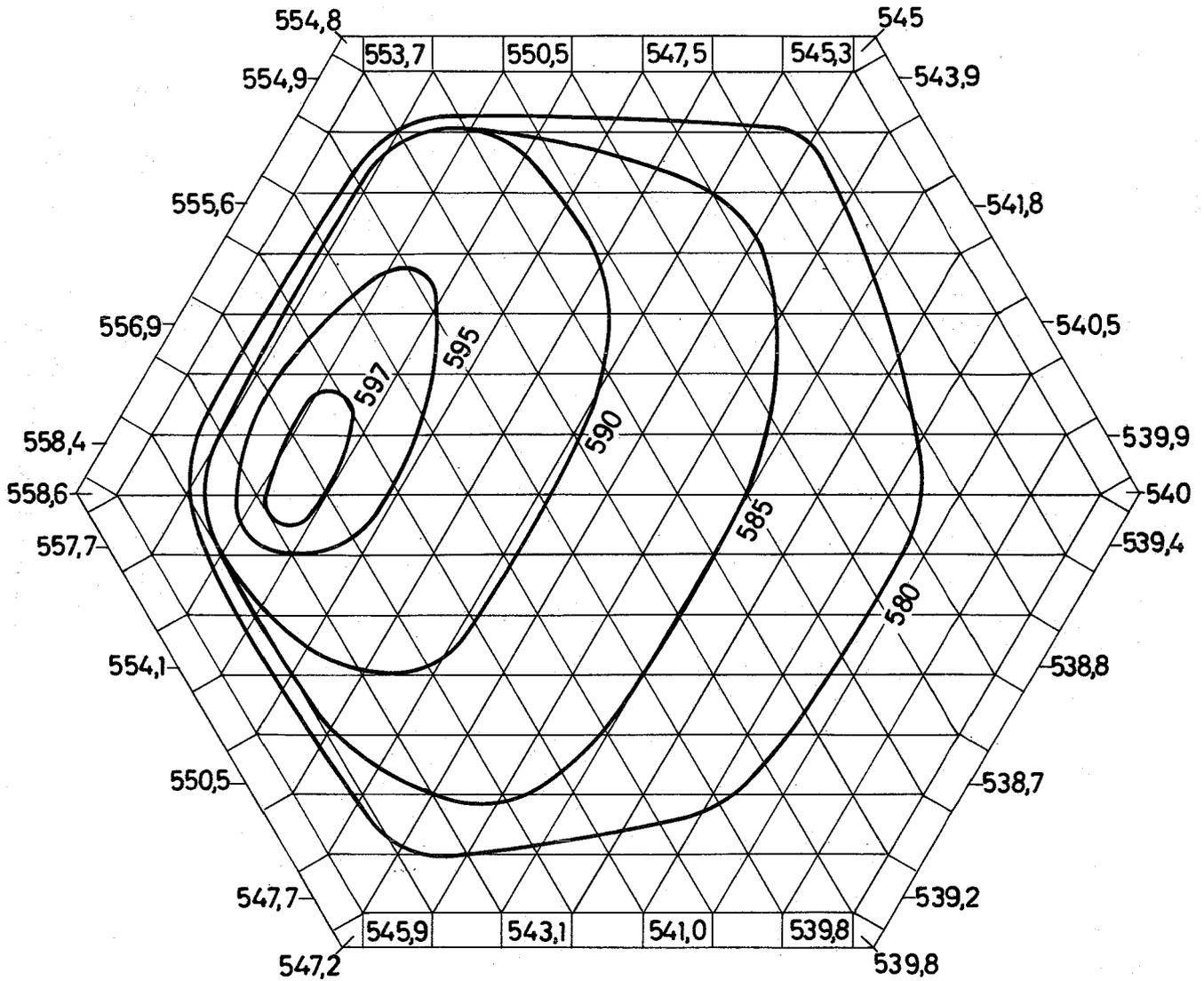


Abb. 5: Temperaturverteilung im SNR-BE Nr. 616 am Austritt aus der Spaltzone, berechnet mit MISTRAL für  $\mu = 5 \frac{\%}{\text{cm}}$

Die mit MISTRAL berechnete Temperaturverteilung des Kühlmittels wurde einmal unter ausschließlicher Beachtung der Wärmeleitung ( $\mu=0$  %/cm), zum anderen unter Berücksichtigung der Wärmeleitung und der Quervermischung des Kühlmittels ( $\mu = 5\%/cm$ ) berechnet.

Abb. 4 zeigt die Kühlmitteltemperaturen in den Teilkanälen auf einer Wandtraverse. (Die längs der Abszissenachse eingetragenen Teilkanalnummern von IA und GfK beziehen sich auf dieselbe Traverse und unterscheiden sich nur infolge verschiedener Numerierungsschemata). Die Größe der Quervermischung hat auf die Temperaturen im inneren Bündelbereich ersichtlich so gut wie keinen Einfluß. Die mit HYDRA und MISTRAL berechneten Profile fallen in diesem Bereich zusammen.

In den äußeren Bündelzonen, wo Temperaturunterschiede von etwa  $50^{\circ}\text{C}$  zwischen den Kanälen auftreten, besitzt der Energieaustausch eine nicht zu übersehende Bedeutung:

Für  $\mu = 0\%/cm$  verläuft die mit MISTRAL berechnete Temperaturkurve weitgehend parallel zum HYDRA-Profil,

für  $\mu = 5\%/cm$  verläuft die mit MISTRAL berechnete Temperaturkurve weitgehend parallel zum THEA-Profil.

Nach Abb. 5 unterscheiden sich die Temperaturen der Eckkanäle von denen der benachbarten Wandkanäle höchstens um einige Zehntel Grad C. Dabei liegen die Temperaturen der Wandkanäle durchweg um etwa  $20^{\circ}\text{C}$  unter denen der benachbarten Innenkanäle.

#### 1263.11 Wärmeübergangsmessungen im zentrischen und exzentrischen Ringraum

(P. Donath, H. John, D. Weinberg, G. Weinkötz, IRB)

Die für die praktischen und theoretischen Untersuchungen im zentrisch-exzentrischen Ringraum notwendigen Vorbereitungen wurden weitergeführt. So konnten die Miniatur-Anemometer in Wasser erprobt und geeicht, Teststreckeneinsätze für Wasser und Natrium fertiggestellt und eine Meßvorrichtung für Anemometer konstruktiv abgeschlossen werden.

Die mathematische Behandlung des zentrisch-exzentrischen Ringraums wurde ebenfalls weitergeführt, insbesondere der Lösungsweg der das Problem beschreibenden nichtlinearen Integro-Differentialgleichung. Die Frage nach der Länge des thermischen Einlaufs bei Störungen im Ringraum wurde eingehend behandelt.

**1263.12 Lokale Wärmeübergangsmessungen an Bündelgeometrien**

(R. Möller, H. Tschöke, IRB)

Zur Bestimmung der Oberflächentemperatur von Heistäben und zur Ermittlung des Temperaturfeldes im Bereich eines in die Heizstabwand eingelöteten Thermoelementes wurde für das Relax-Programm [3] ein im Vergleich zu früheren Rechnungen verfeinertes Netzwerk (450 gegenüber 100 Punkten) erstellt, welches einen  $60^\circ$ -Sektor des Stabquerschnittes sowie den zugehörigen Kühlkanalteil abdeckt.

Die Aufgabe wurde als zweidimensionales Wärmeleitproblem gelöst. Der Heizleiter bildet die Wärmequelle, der Kühlkanal die Wärmesenke. Es wird Kolbenströmung angenommen; damit sind die Wärmesenken im Kühlkanal gleichmäßig verteilt.

Die nun möglichen Rechnungen sollen den Einfluß der wesentlichen Störparameter auf die Größe der Meßungenauigkeit aufzeigen und damit zur optimalen Instrumentierung des Heizstabes führen.

**1263.12 Untersuchungen zur Kühlmittel-Quervermischung in Na-gekühltem Brennelement**

(W. Baumann, E. Baumgärtner, H. Hoffmann, IRB)

Die Untersuchungen mit drahtförmigen Abstandshaltern wurden für verschiedene Wendelsteigungen fortgeführt und die weiteren Vorhaben durch Betrachtungen zum Einfluß der Kühlmittelquervermischung auf die Temperaturverteilungen im Bündelquerschnitt für verschiedene Abstandshaltertypen definiert.

Aus Anlaß einer Betriebsstörung wurde das 61-Stabbündel mit einer vergrößerten Zahl von Thermoelementen auf zusätzlichen Unterkanalpositionen ausgestattet.

1263.14 Entwicklung und Erprobung von Hochleistungsheizstäben

(V. Casal, IRB)

Die in [6] beschriebenen Dauertests an Heizleitern mit BN als Isolator wurden bis zu folgenden Leistungsdaten fortgesetzt:

Hüllentemperatur 4. Lauf:	150 °C
Heizflächenbelastung:	850 W/cm <sup>2</sup>
Stromleitertemperatur:	1100 °C
Versuchszeit:	700 h

Die bisher erreichte Betriebszeit eines Stabes bei 150 °C Hüllentemperatur und bei einer Heizflächenbelastung von 550 - 770 W/cm<sup>2</sup> beträgt nunmehr 2000 h.

Die Fertigungs- und Entwicklungsarbeiten an Hochleistungsheizstäben mit verdichtetem BN-Pulver wurden damit abgeschlossen. Ihre Erprobung bei höheren Kühlmitteltemperaturen in Natrium- und Heißdampf-Teststrecken wurde vorbereitet.

Die weiterführenden Entwicklungsarbeiten konzentrieren sich auf die Leistungssteigerung der Stäbe durch Ersetzen des bisher aus Edelstahl bestehenden Stromleiters durch einen solchen aus hochschmelzenden Metallen.

1263.2 Mechanisch-hydrodynamische Untersuchungen an natrium-gekühlten Brennelementen

(E. Baumgärtner, G. Drechsler, G. Frees, IRB)

Es wurde ein 1000-Stunden-Langzeittest mit dem 61-Stabbündel aus Hüllrohren mit 6 integralen Wendelrippen als Abstandshalter durchgeführt, um das Verhalten der Brennstäbe im Bündel und den Metallabtrag an den Berührungstellen zu bestimmen.

Die Abmessungen des Bündels sind:

Stabdurchmesser:	6 mm
Rippenkopfdurchmesser:	7,9 mm
Rippenbreite:	0,6 mm
Stablänge:	1500 mm
Schlüsselweite des Sechskantrohres:	62,8 mm

Die Betriebsdaten des Brennelementkreislaufes waren:

Na-Temperatur:	600 °C
Na-Durchsatz:	25 m <sup>3</sup> /h
Na-Oxidgehalt:	15 <u>+5</u> ppm
Strömungsgeschwindigkeit im Bündel:	4,8 m/s

Nach Beendigung des Versuchs wurde das Bündel ausgebaut und zerlegt. Der mittlere Metallabtrag während der Versuchszeit wurde mit 0,8 g pro Stab ermittelt. Eine erste visuelle Inspektion ergab, daß von den theoretisch vorhandenen 90 Berührungsstellen pro Stab im Mittel nur ca. 30% festgestellt werden konnten. Zur detaillierten metallurgischen Untersuchung wurden ausgewählte Stäbe ins IMF gegeben.

Literatur zu 1263:

- [1] W.S. Yu and O.E. Dwyer:  
Heat Transfer to Liquid Metals Flowing Turbulently in Eccentric Annuli - I.  
Nuclear Science and Engineering, 24, 105-117 (1966)
- [2] W.S. Yu and O.E. Dwyer:  
Heat Transfer to Liquid Metals Flowing Turbulently in Eccentric Annuli - II.  
Nuclear Science and Engineering, 27, 1-9 (1967)
- [3] S. Malang, K. Rust:  
Relax - Ein Fortran Programm zur numerischen Bestimmung von Temperaturfeldern mittels der Relaxationsmethode der Thermodynamik.  
KFK-Bericht 1053, September 1969
- [4] V. Casal:  
Heizstäbe mit indirekter Widerstandsbeheizung zur Simulierung von Kernbrennstäben.  
KFK-Bericht 894, März 1969

[ 5 ] 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-Bericht 988, Juni 1969

[ 6 ] 4. PSB-Vierteljahresbericht 1970

KFK-Bericht 1270/4



127 THERMO- UND HYDRODYNAMISCHE VERSUCHE IN GAS UND DAMPF1272 Der Einfluß wendelförmiger Abstandshalter auf die Genauigkeit der Druckverlustmessung

(M. Kolodziej, R. Möller, IRB)

In Brennstabbündeln mit wendelförmigen Abstandshaltern liegt im Gegensatz zu glatten Bündeln keine wandparallele Strömung vor. Die zur Kanalachse geneigten Abstandshalter erzeugen Querkomponenten, und dadurch werden bei Druckverlustmessungen die Druckmeßbohrungen in der Kanalwand mit unterschiedlichen Staudruckanteilen beaufschlagt.

Um diese unbekanntenen Einflüsse der Abstandshalter auf die Druckmessung zu umgehen, wurde an anderen Stellen der Druckverlustbeiwert von Bündel mit wendelförmigen Abstandshaltern aus der Differenz der Gesamtdruckverluste von 2 verschieden langen Bündeln gewonnen. Voraussetzung für diese Methode ist, daß die Bündel bis auf ihre Länge identisch sind, so daß die Strömungsverhältnisse in den Meßquerschnitten genau übereinstimmen.

Ziel der laufenden Untersuchungen ist die Bestimmung des Einflusses einer durch wendelförmige Abstandshalter verursachten Kühlmittelquerbewegung auf die Genauigkeit der Druckverlustmessung an Vielstabbündeln. Erste Messungen wurden an einem 6l-Stabbündel mit 6 Rippen pro Stab durchgeführt (Abmessungen:  $d = 7 \text{ mm}$ ,  $p/d = 1,17$ , Rippensteigung  $h = 720 \text{ mm}$ ). Das Bündel war zu diesem Zweck axial verschiebbar in einen mit mehreren Meßquerschnitten versehenen Sechskantkasten eingebaut. Durch diesen Einbau konnte das Bündel relativ zu der Lage der Druckmeßbohrungen bewegt werden, die Abstandshalter konnten über die Bohrungen geschoben und somit der Einfluß der durch die Abstandshalter bewirkten Querbewegung auf den Druckverlust ermittelt werden.

Die Ergebnisse zeigen, daß in Bündeln mit 6 Rippen pro Stab die durch die Abstandshalter verursachten Kühlmittel-Strömungen zu Abweichungen in der Druckverlustermittlung führen, die innerhalb der Meßgenauigkeit liegen.

Handwritten text, likely bleed-through from the reverse side of the page. The text is extremely faint and illegible due to the quality of the scan and the nature of the bleed-through. It appears to be several paragraphs of text, possibly containing names, dates, and descriptive information, but no specific content can be discerned.

128. ENTWURFSSTUDIEN FÜR GAS- UND DAMPFGEKÜHLTE BRUTREATOREN1285. Studien zu dampfgekühlten schnellen ReaktorenDampfbrüter - Bericht (R. Hüper, PSB-PL)

Der bereits angekündigte<sup>+)</sup> Bericht über die im KFZ Karlsruhe durchgeführten Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zum dampfgekühlten schnellen Brüter ist fertiggestellt worden (1). Einer ausführlichen Dokumentation der Einzelergebnisse, zusammengestellt von zahlreichen Mitarbeitern der GfK, geht ein zusammenfassender Überblick voraus. Aufgrund der beschriebenen Ergebnisse und durch Vergleich mit dem Entwicklungsstand von schnellen Brütern mit Natrium- und Heliumkühlung wird eine Beurteilung der gegenwärtigen Situation und der Möglichkeiten für das weitere Vorgehen gegeben.

Die beschriebenen Arbeiten haben sich mit Entwurfsstudien, Komponentenentwicklung, Brennstab- und Hüllmaterialentwicklung, Physik, Sicherheit und Dynamik, Systemkontamination sowie fortgeschrittenen Brennstabkonzepten befaßt. Ein Teil der zu bearbeitenden Probleme ist im Zusammenhang mit den Arbeiten zum Prototyp bei der Industrie behandelt worden.

Die Entwurfsstudien der GfK ("D1") und der European Nuclear Energy Agency ("ENEA-05") sind zu der Folgerung gekommen, daß dampfgekühlte schnelle Brutreaktoren mit Ausnahme des Reaktorkernes unter Verwendung der heute verfügbaren Technologie mit einem vergleichsweise geringen Aufwand für die Komponentenentwicklung gebaut werden könnten: Zusätzliche Entwicklungsarbeiten wären für einige Komponenten und hauptsächlich für das Brennelement erforderlich. Eine Abschätzung zeigt, daß bis zur Beurteilung der Baureife eines Dampfbrüter-Prototyps etwa 160 Mio DM aufgewendet werden müßten und daß die Brennelemententwicklung hierfür einen Zeitraum von 10 Jahren erfordern würde.

---

+) KFK-Bericht 1270/4, S. 128-10

### Entwicklung von Brennelementen

Für die Brennstäbe werden z.Zt. Hüllrohre mit drei oder sechs integralen Wendelrippen als besonders aussichtsreich betrachtet. Spezielle Probleme ergeben sich bei Dampfkühlung vor allem durch die hohe Außendruckbelastung des Brennstabes sowie durch die Heißdampfkorrosion. Für die Lösung des ersten Problems werden wegen der nicht nennenswerten Stützwirkung des Brennstoffes zwei Möglichkeiten ins Auge gefaßt:

- Kriechfeste Hülle: Der auf die Hülle wirkende Differenzdruck zwischen außen und innen darf einen Wert von 70 at nicht überschreiten, was bei den ausgeführten Entwürfen durch einen inneren Heliumvordruck im Brennstab erreichbar scheint.
- Druckentlastete Hülle: Durch ein speziell entwickeltes Druckausgleichssystem können alle von der Spaltgaserzeugung und vom Kühlmitteldruck verursachten Hüllrohrbelastungen verhindert werden, so daß die Hüllrohre praktisch nur noch durch den Brennstoffschwelldruck belastet sind. Im Unterschied zu dem insbesondere für heliumgekühlte Schnellbrüter als Möglichkeit ins Auge gefaßten "vented fuel"-Konzept bleiben die Spaltgase bei dem für dampfgekühlte Reaktoren entwickelten Druckausgleichssystem im Brennstab eingeschlossen. Die bisher durchgeführten out-of-pile Erprobungen dieses Systems sind erfolgreich verlaufen; sein Verhalten unter Bestrahlung ist noch nicht untersucht worden.

Das Korrosionsverhalten von Hüllwerkstoffen in Heißdampf ist bislang unter isothermen Bedingungen untersucht worden. Die dabei erzielten ermutigenden Ergebnisse sind unter Wärmeübergang an maßstäblichen, beheizten Hüllrohren unter realistischen Dampfzuständen noch zu überprüfen.

Weitere Probleme der Brennelemente, wie die chemische Verträglichkeit zwischen Brennstoff und Hülle sowie das Schwellen und Kriechen von Strukturmaterial unter Bestrahlung sind ebenfalls noch nicht völlig geklärt, sind jedoch nicht dampfspezifisch.

### Sicherheit

Hinsichtlich der Sicherheit sind vor allem die oben erwähnten Entwürfe untersucht worden. "D1" hat bezüglich des Druckbehälters eine nicht integrierte, "ENEA-05" eine voll integrierte Bauweise (Der DSR-Entwurf von AEG sieht Teilintegration vor). Für den Fall der voll integrierten Bauweise können nach den Untersuchungen Rohrbrüche als auslösende Ereignisse für gefährliche Reaktivitätsrampen und schwere Unfälle ausgeschlossen werden, sofern man weitere passive konstruktive Maßnahmen trifft. Ein Bruch des Druckbehälters wird als ausgeschlossen und der Reaktor unter allen denkbaren Situationen als abschaltbar vorausgesetzt. Wird außerdem der Reaktivitätswert eines Steuerstabes entsprechend dem ENEA-05-Entwurf durch sog. Modulbauweise auf  $< 1 \beta$  begrenzt (was zu technischen Komplikationen führen kann), und wird ein Fangrost für niedergeschmolzenen Brennstoff unter den Steuerstabantriebsgehäusen vorgesehen, so werden die normalen Risiken mit denen eines Siedewasserreaktors vergleichbar. (Dies gilt jedoch nur, soweit man von der brütterspezifischen hypothetischen Möglichkeit einer Bethe-Tait-Exkursion absieht). Ähnlich wie für Siedewasserreaktoren werden gestaffelte Notkühleinrichtungen vorgeschlagen; ihre Zuverlässigkeit muß durch Funktionstests nachgewiesen werden.

Die bisherigen theoretischen Untersuchungen geben ein vorläufiges Bild der möglichen Unfallrisiken, der möglichen Maßnahmen zur inhärenten Sicherheit und der Voraussetzungen zur inhärenten Stabilität des Reaktors. Mögliche Beiträge zum Leistungskoeffizienten infolge der wegen des Schwellens von Struktur- und Hüllmaterial als notwendig erachteten Coreverformung wurden hierbei noch nicht berücksichtigt. Weitergehende Sicherheitsbetrachtungen erscheinen angebracht und erforderlich.

### Beurteilung der gegenwärtigen Situation

Nach dem Bericht bedarf es noch großer Anstrengungen, die Anlagekosten von Schnellbrutreaktoren auf das nach den bisherigen Wirtschaftlichkeitsstudien für erreichbar angesehene Niveau der Leichtwasserreaktoren zu senken. Spezielle Vor- und Nachteile der verschiedenen Brüttervarianten bzgl. Technologie, Bruteigenschaften und Entwicklungspotential werden miteinander verglichen, reichen nach Aussage der Autoren jedoch beim gegenwärtigen Kenntnisstand nicht für eine abschließende Entscheidung zwischen diesen Varianten aus.

Für den Fall, daß für einen dampfgekühlten Schnellbrüter-Prototyp baureife Unterlagen erstellt werden, schätzt der Bericht die erforderlichen Aufwendungen und die Zeit ab. Seit 1969 hat sich die Lage insofern geändert, als das beschriebene Druckausgleichssystem, falls es sich bewährt, zu einem Brennstab führt, dessen Belastung und Ausführung dem eines natriumgekühlten Schnellbrüters sehr ähnlich sind. Hierdurch erhebt sich die Frage, ob an der Bedingung C1 des Bewilligungsbescheides des BMwF vom 9.11.66 noch in Strenge festgehalten werden muß. Die Bedingung fordert einen integralen Test von mindestens 500 Prototyp-Brennstäben unter echten Bedingungen schneller Neutronen, der Heißdampfkühlung sowie der Differenzdruck- und Spannungsverhältnisse. Die Erfüllung dieser Bedingung machte bisher einen speziellen schnellen Testreaktor für Dampfbrüter-Brennelemente erforderlich.

Modifiziert man jedoch die Bedingung C1 mit der Begründung, daß man sich weitgehend auf Erfahrungen mit Brennstäben Na-gekühlter Reaktoren abstützen kann, so könnte ein weniger aufwendiges Entwicklungsprogramm für Dampfbrüter-Brennelemente ins Auge gefaßt werden. Seine Kosten werden auf 94 Mio DM geschätzt; es würde sich über etwa 10 Jahre erstrecken. Der Kern dieses Programms würde in einem Performance Test eines Brennelementes von etwa 300 Stäben in einem zu erstellenden Dampfloop im belgischen Reaktor BR2 bestehen. 30 dieser Stäbe würden sich in einem schnellen Fluß befinden, der dem eines Dampfbrüters hinsichtlich seines Neutronenspektrums nahekommt. Die sicherheitstechnische Durchführbarkeit eines solchen Dampfloops im BR2 müßte allerdings noch genauer geklärt werden.

Die bis zur Baureife und Ausarbeitung eines Angebots für einen dampfgekühlten schnellen Prototypreaktor nötigen Gesamtaufwendungen werden damit auf 156 Mio DM geschätzt, der erforderliche Zeitraum auf 10 Jahre. Bei einer Entscheidung über das weitere Vorgehen wird neben den technischen Fragen die internationale Entwicklung beachtet werden müssen.

#### Veröffentlichung zu 1285:

(1) P. Engelmann, F. Erbacher, G. Karsten, L. Ritz

Bericht über die im Kernforschungszentrum Karlsruhe durchgeführten Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zum dampfgekühlten schnellen Brüter.

KFK-Bericht 1370

129 ENTWURFSSTUDIEN ZU NATRIUMGEKÜHLTEN BRUTREAKTOREN1291 Theoretische Arbeiten zum Reaktorkern-EntwurfKernverspannungskonzepte schneller Brutreaktoren

(G. Class, K. Kleefeldt, IRE)

Bei allen Typen schneller Brutreaktoren wird durch hohe Dosen schneller Neutronen eine Strahlenschädigung der Strukturwerkstoffe bewirkt, deren Ausmaß über das bei thermischen Reaktoren bekannte weit hinausgeht. Dies führt im Zusammenhang mit der hohen Leistungsdichte schneller Brutreaktoren zu einer wesentlich neuen Aufgabenstellung für den Entwurf des Reaktorkernes.

Das Ausmaß der Strahlenschädigung der Strukturwerkstoffe ist erst im Laufe des Jahres 1970 einigermaßen überschaubar geworden. Vorher standen im wesentlichen nur die Hochtemperaturversprödung und seit den Jahren 1967 und 1968 das Strukturmaterialschwellen zur Diskussion.

Nach den neuesten Erkenntnissen ist nur im Temperaturbereich zwischen 350 und 650 °C mit dem Strukturmaterialschwellen zu rechnen. Offen ist die Frage der Schwellensättigung; es wird heute damit gerechnet, daß die Schwellensättigungswerte etwa bei 10 bis 14% Volumenschwellen liegen. Vermutlich hängt auch das Strukturmaterialschwellen vom Spannungszustand des Materials ab.

Als wesentlicher Gesichtspunkt für den Coreentwurf ist in jüngster Zeit das strahlungsinduzierte Kriechen hinzugekommen. Es nimmt mit fallender Temperatur unterhalb 500 °C leicht zu. Die Kriechgeschwindigkeit ist von der Spannung und vom Neutronenfluß etwa linear abhängig. Bei hohen schnellen Neutronendosen und niedrigen Temperaturen werden bei konventionell als klein zu betrachtenden Spannungen große Dehnungsbeträge erreicht.

Das erste Projekt, bei dem die Corekonstruktion tatsächlich den beschriebenen strahlungsbedingten Materialveränderungen voll angepaßt wird, ist das amerikanische FFTF-Projekt.

Für die Halterung der Brennelemente im Kern schneller Brutreaktoren stehen als Kernverspannungskonzepte das Verspannungsebenenkonzept (z.B. SNR) und das leaning-post-Konzept (PFR) zur Diskussion. Im IRE wurden beide Konzepte im Hinblick auf natriumgekühlte schnelle Brutreaktoren verglichen.

Kennzeichen des Verspannungsebenenkonzeptes:

- Das Reaktor-Core besteht aus voneinander unabhängigen, vertikal stehenden Elementen; die Brennelemente sind aus Brennstabbündel und Brennelementkasten zusammengesetzt.
- Zwischen den Brennelementen bleiben Lücken, die nur in den "Verspannungsebenen" durch Distanzstücke (Pflaster) überbrückt werden. Die Verspannungsebenen reichen teilweise oder ganz durch den radialen Reflektor hindurch.
- Die Elemente stützen sich gegeneinander ab; andere Stützstrukturen befinden sich nicht in Bereichen hoher und mittlerer Neutronenflüsse.
- Verspannungsebenen sind sowohl oberhalb als auch unterhalb der Spaltstoffzone angeordnet.
- In einzelnen oder mehreren Verspannungsebenen wird das Core von außen umfaßt.

Kennzeichen des leaning-post-Konzeptes:

- Die Elemente sind zu voneinander völlig unabhängigen Modulen von je 7 Elementen zusammengefaßt.
- Das zentrale Element jedes Moduls ist der "leaning-post", an den sich unterhalb des eigentlichen Cores die 6 umgebenden Elemente anlehnen.
- Im Bereich des eigentlichen Cores und oberhalb davon berühren sich die Elemente innerhalb oder außerhalb der Module zu keiner Zeit.
- Die Brennelemente innerhalb eines Moduls sind einzeln manipulierbar.
- Der leaning-post ist kein Brennelement. Er kann, wie auch der Fußteil jedes Moduls, ausgewechselt werden.

Die Kernverspannung dient dazu, die Dimensionsstabilität der Core-Struktur in allen Betriebszuständen des Reaktors insoweit zu sichern, daß die Strukturkoeffizienten der Reaktivität jederzeit definiert und zulässig sind. Darüber hinaus soll erreicht werden, daß trotz der Strahlenschädigung der Strukturmaterialien die Reaktorverfügbarkeit hoch ist. Das erfordert eine Begrenzung der Materialbeanspruchungen sowie die leichte Austauschbarkeit aller Core-Komponenten. Hierzu zählt, daß die Handhabung verformter Bauteile oder Brennelemente nicht wesentlich erschwert sein darf und daß (vorläufig) kein Strukturmaterial (weder bei hohen noch bei tiefen Temperaturen) schnellen Neutronendosen ausgesetzt werden sollte, die über etwa  $1 \text{ bis } 2 \cdot 10^{23} \text{ n/cm}^2$  hinausgehen.

Bei einer Beurteilung der Kernverspannungskonzepte können daher als Kriterien

- die Stabilität der geometrischen Anordnung
- die Materialbeanspruchung
- die Austauschmöglichkeit und Handhabung der Core-Komponenten und
- die Reaktorverfügbarkeit

herangezogen werden.

Aufgrund dieser Gesichtspunkte zeigte sich, daß für natriumgekühlte schnelle Brutreaktoren dem Verspannungsebenenkonzept der Vorzug zu geben ist. Diese Arbeiten werden fortgeführt mit dem Ziel, optimale Design-Parameter für das Verspannungsebenenkonzept zu ermitteln.

#### Veröffentlichungen zu 129:

- (1) R.A. Müller, H. Schnauder

Änderung der Auslegung von Zwischenwärmeaustauschern für Na-gekühlte Reaktoren bei Verwendung von ferritischen Werkstoffen.

H 1 - 207, Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Bonn (1971)

KFK-Bericht 1387 (März 1971)

- (2) R.A. Müller

Die inhärenten Eigenschaften der verschiedenen Primärkreisführungen natriumgekühlter Reaktoren.

KFK-Bericht 1379

Beiträge zu Teilprojekt 130 erscheinen im 2. Vierteljahresbericht.

