

# KERNFORSCHUNGSZENTRUM

# KARLSRUHE

Februar 1972

KFK 1271/4 EUR 4724 d

Projekt Schneller Brüter

4. Vierteljahresbericht 1971



.

## KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Februar 1972

KFK 1271/4 EUR 4724 d -----

Projekt Schneller Brüter 4. Vierteljahresbericht 1971

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

·

.

Der vorliegende 4. 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 auswärtigen Gruppen, soweit sie insbes. am Hochleistungsbrennstabprogramm im Rahmen des Basisprogramms Schneller Brüter mitwirken.

Dieser Bericht wurde zusammengestellt von R. Hüper.

a service and the service of the ser

# Inhaltsübersicht<sup>+)</sup>

- 112. Brennstabentwicklung
- 113. Materialuntersuchung und -entwicklung
- 114. Korrosionsversuche und Kühlmittelanalysen
- 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
- 129. Entwurfsstudien zu natriumgekühlten Brutreaktoren
- 130. Schneller Hochflußtestreaktor FR 3

+) Teilprojekte mit den zugehörigen PSB-Kennzahlen. Die Seiten sind innerhalb jedes Teilprojektes durchnumeriert.

Zum Druck eingereicht im Februar 1972

# ,

a de la composition d La composition de la c

> an an an an an an an an Arraigh. An an an an an Arraighteachta an Arraighteachta an an Arraighteachta an Arraighteachta an Arraighteachta an Arr

#### 112 BRENNSTABENTWICKLUNG

#### 1120 Brennstabmodel1theorie

### Entwicklung und Anwendung des Rechenprogrammes SATURN 1

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

Nach Abschluß der Testrechnungen zum Verhalten eines Schnellbrüter-Brennstabes unter stationären Betriebsbedingungen liefen Testrechnungen zum Verhalten unter wechselnden Betriebsbedingungen. Dabei wurden Probleme untersucht, die bei einem Brennstab auftreten, dessen Fertigungsspalt sich während seines Einsatzes bereits weitgehend geschlossen hat. Es handelte sich insbes. um die Abhängigkeit der Hüllbelastung bei einer Leistungserhöhung von der Änderungsgeschwindigkeit der Stableistung, der Größe der Leistungserhöhung, der Höhe des Ausgangsniveaus der Stableistung und der Anzahl der zyklischen Stableistungsänderungen.

Es konnte u.a. gezeigt werden, daß der Kontaktdruck während der Phase der Leistungserhöhung ein Maximum durchläuft. Die Höhe dieses Maximums nimmt ebenso wie die bleibende Verformung des Hüllrohrs mit wachsender Geschwindigkeit der Leistungsänderung zu.

Ferner ist bei einer festen linear durchgeführten Leistungserhöhung das Verhältnis aus der Zeitdauer bis zum Erreichen des maximalen Kontaktdrucks zur Gesamtdauer der Leistungsänderung konstant. Das heißt, das Maximum des Kontaktdrucks wird bei einem bestimmten Wert der Stableistung erreicht.

Das Zeitintegral des Kontaktdrucks ist ein Maß für die infolge der Leistungserhöhung aufgetretene bleibende Verformung des Hüllrohrs nach Maßgabe des Kriechvermögens des Hüllmaterials.

Die Grundlagen der z.Zt. vorliegenden Version, SATURN 1A, und charakteristische Ergebnisse von Modellrechnungen für Brennstäbe im schnellen Neutronenfluß sind in (1) niedergelegt.

SATURN 1A wird z.Zt. für die Auswertung von Bestrahlungsexperimenten, die im thermischen Neutronenfluß durchgeführt wurden, benutzt. Erste Ergebnisse von Rechnungen zu den Versuchsgruppen 2 (FR 2/He-Loop) und 4a (FR 2/KVE) sind in Übereinstimmung mit dem experimentellen Befund. Im Rahmen der bisher zur Verfügung stehenden Nachuntersuchungsergebnisse gilt dies auch für die Rechnungen zur Versuchsgruppe 3 (FR 2/He-Loop).

112-1

Im Rahmen der wissenschaftlichen Betreuung der Bestrahlungsexperimente des PSB-Bestrahlungsprogramms wurden die Bestrahlungsdaten der Prüflinge der FR 2-Versuchsgruppen 3, 4a, 4b, 4c, 5a und 5b ausgewertet. Mit Hilfe eines digitalen Rechenprogramms wurdender Verlauf der Hülltemperatur und Stableistungen als Funktion der Zeit sowie der Abbrand sämtlicher Prüflinge ermittelt. In Tab. 1 sind die Abbrandbereiche der einzelnen Versuchsgruppen zusammengestellt:

| Versuchsgr.    | Aufgabe  |     | Abbrandbereich<br>(MWd/kg M) |                |     |          |
|----------------|--|-----|------------------------------|----------------|-----|----------|
| 3              | Vorbereitung U02-Pu02-Bestrahlung  |     | 5                            | -              | 86  |          |
| 4a             | 1. UO2-PuO2-Bestrahlung  |     | 12                           |                | 85  |          |
| 4 <sub>b</sub> | Abbrandversuch U02-Pu02  | . * | 10                           | -              | 110 | 1999 (A. |
| 4c             | Untersuchung des Verhaltens versch.<br>Hüllmaterialien bei radialem Brenn-<br>stoffschwellen |     | 35                           | ء<br>ب         | 56  |          |
| <u>5</u> a     | Integrierter Dichteversuch   |     | 6                            | <del>.</del> . | 50  | 19       |
| 5b.            | 4 mm - Stabkonzept   |     | 10                           |                | 120 |          |

Eine Gesamtdarstellung der Bestrahlungsexperimente mit Brennstabproben mit oxidischem Brennstoff ist in Vorbereitung.

Die Betreuung umfaßte weiterhin die Bestrahlungsexperimente Mol 8B, Mol 8C sowie die Karbidbestrahlungsexperimente Mol 11, deren erste Kapseln zur Bestrahlung gelangten.

#### Veröffentlichung zu 1120:

 (1) H. Elbel, F. Depisch, H. Kämpf
Die Behandlung des mechanischen und thermischen Verhaltens von Brennstäben in SATURN 1
KFK-Bericht 1477 (Dez. 1971)

#### Erratum

Im 3. Vierteljahresbericht (KFK 1271/3) muß auf Seite 112-1 im 1. Absatz der Satzteil "...und über die Rechenprogramme LIFE II und ISUNE...." fortfallen.

#### 1121.0 Herstellung im Labormaßstab

# 1. Herstellung von Brennstofftabletten mit Stirnflächeneinsenkung (dishing) für die Versuchsgruppe Mol 7B

(Th. Dippel, R. Hanselmann, H. Nagel, M. Wittmann, IMF)

Für drei Brennstäbe der Versuchsgruppe Mol 7B waren die Brennstofftabletten, insgesamt 243 Stück, in spezieller Anpassung der Durchmesser an den Innendurchmesser der ausgewählten Hüllrohre in der Weise herzustellen, daß der Diametralspalt (90  $\mu$ ) innerhalb der Toleranzen tatsächlich erreicht wurde. Ferner war die Tablettendichte innerhalb enger Grenzen dicht an den oberen, zulässigen Grenzwert herangeschoben worden. Die 500 mm lange Brennstoffsäule war in eine 100 mm lange Zentralzone und zwei 200 mm lange Endzonen geteilt worden. Die Tabletten dieser Zonen waren hinsichtlich ihrer Dichten und Abmessungen gleich, sie unterschieden sich nur in den zulässigen Toleranzen für Dichte und Durchmesser.

Durch Zusammenfügen mehrerer Ausgangspulver wurde ein  $UO_2$ -Pu $O_2$ -Gemisch mit 27,3 % Pu-spaltbar hergestellt. Der Urananteil war seinerseits mit 70 % U-235 angereichert. Die Tablettendichte war mit 86,06 % th.D. als Mittel vorgeschrieben worden. Um diese Dichte zu erhalten, war die Pulvermischung außerdem so zusammengesetzt worden, daß das Pulver einen BET-Wert von  $4,7 \text{ m}^2/\text{g}$  besaß.

Die Herstellung der Tabletten geschah in der üblichen Weise durch Granulieren, Pressen, Entwachsen und Sintern der Grünlinge bei ca.  $1600^{\circ}$ C zwei Stunden lang in Argon-5 %-Wasserstoffgemisch. Anschließend wurden alle Tabletten auf den Durchmesser von 5,151 mm geschliffen. Danach wurden die Tabletten für die mittleren Zonen mit der Dichtetoleranz von  $\pm$  0,2 % th.D. und der Durchmessertoleranz von  $\pm$  0,01 mm ausgewählt. Die verbleibenden Tabletten ergaben dann die beiden äußeren Zonen der Brennstoffsäule.

Die folgende Tab. 2 gibt die wesentlichen Materialdaten wieder.

112-3

#### Tab. 2:

Stab Nr. GM 1

| Spezifikation                        | tatsächliche<br>Materialwerte |                          |        |
|--------------------------------------|-------------------------------|--------------------------|--------|
| Länge der Brennstoffsäule            | (mm)                          | 500 <u>+</u> 3           | 498,48 |
| Länge der Zentralzone                | (mm)                          | 100 <u>+</u> 10          | 98,40  |
| Durchmesser der Zentralzone          | (mm)                          | 5,151 <u>+</u> 0,010     | 5,149  |
| Durchmesser der Endzone              | (mm)                          | 5,151 + 0,010<br>- 0,110 | 5,151  |
| Dichte der Zentralzone (geom. I<br>9 | Dichte in<br>6 th.D.)         | 86,06 <u>+</u> 0,20      | 86,05  |
| Dichte der Endzonen (geom. I         | Dichte in<br>th.D.)           | 86,06 + 0,20<br>- 2,00   | 85,71  |

## 2. Herstellung von Einsätzen mit Pu-haltigem Brennstoff für die Kriechexperimente im Rahmen des Projektes 73 d

(Th. Dippel, R. Hanselmann, H. Nagel, M. Wittmann, IMF)

#### a) Herstellung von Brennstoffscheiben

Die Herstellung der Brennstoffscheiben mit 15%  $PuO_2$  ging von Tabletten mit ca. 10 mm Höhe aus. Durch Schleifen der Tabletten auf der spitzenlosen Rundschleifmaschine wurde der Durchmesser auf 5,100  $\pm$  0,01 mm eingestellt. Die Dichten der Tabletten waren mit 95,5% th.D. bzw. 87,0% th.D. festgelegt worden. Diese Tabletten wurden dem TU-Institut übergeben, wo sie in 1 mm hohe Scheiben zertrennt wurden. Mittels der Ultraschallmethode wurde dann die zentrale Bohrung hergestellt, anschließend wurden die Tabletten planparallel geschliffen. Das Waschen, Trocknen und Aussortieren der schadhaften Scheiben schloß sich an. Die brauchbaren Stücke wurden zu Sätzen von je 10 Stück zusammengestellt, die je ca. 1,6 g wogen.

112-4

#### b) Fertigung der Einsätze

Die Fertigung der brennstofftragenden Einsätze (Abb. 1) für die Bestrahlungskapseln geschah auf folgendem Weg: Um die Brennstofftabletten - in wechselnder Reihenfolge mit Mo-Scheiben - auf den Tragdorn des Einsatzes zu bringen, wurden Brennstoff- und Mo-Scheiben auf einer Spezialnadel aufgereiht. Diese Nadel konnte dann auf den Tragdorn des Einsatzes aufgesetzt werden. Nach schwachem Neigen der ganzen Anordnung glitten die Brennstoff- und Mo-Scheiben von der Nadel auf den Tragdorn über. Nachdem das den Scheibenstapel abschließende Druckstück ebenfalls auf den Tragdorn gesetzt worden war, konnte das Endstück des Einsatzes eingeschraubt werden. Dieses Endstück trägt auch den Stempel, der die Spannung eines Federbalges auf den Brennstoffstapel überträgt. Nach sorgfältiger Prüfung des Einsatzes auf etwaige Kontamination wurde das Endstück mit dem Einsatzkörper unter Schutzgas verschweißt. Sechs so vorbereitete Einsätze wurden zur Füllung mit NaK in einen Rezipienten überführt, der auch als Pu-Handschuhbox benutzt werden konnte. Unter Helium-Schutzgas wurde nach vorherigem Evakuieren die abgemessene Menge NaK in die Einsätze eingedrückt. Dies geschah durch eine im Endstück dafür vorgesehene Öffnung, die nach der Füllung mit einem Gewindestift verschlossen und unter Helium verschweißt wurde. Die abschließende Prüfung der Schweißnähte mit Hilfe des Röntgentests und des Helium-Lecktests auf Dichtheit der Einsätze ergab keine Beanstandungen.

Das Einfüllen des NaK und die Schweißarbeiten wurden vom RB durchgeführt.



<u>Abb. 1</u> Brennstoffträger der Einsätze für Projekt 73 d (ohne Umhüllung und Federbalg)

#### 1121.1 Technologische Eigenschaften von Mischoxid

## Erholung abgeschreckter UO<sub>2</sub>-Proben

(A. Orians, D. Vollath, IMF)

Die Kurven a, b, c in Abb. 2 geben den Erholungsverlauf von drei stöchiometrischen UO<sub>2</sub>-Einkristallen wieder, die von 500, 600 und 700 <sup>O</sup>C abgeschreckt wurden. Man sieht, wie mit steigender Abschrecktemperatur der Erholungseffekt größer wird. Gleichzeitig sieht man jedoch, daß der Effekt der Erhöhung der elektrischen Leitfähigkeit, kurz vor deren abruptem Abfall bei etwa 440 °C, mit steigendem Erholungseffekt abnimmt. Die Abb. 3 gibt eine wertvolle Hilfe bei der Deutung dieses Phänomens. Die Kurve a in diesem Bild gibt den Verlauf der elektrischen Leitfähigkeit bei der Erholung einer unterstöchiometrischen UO<sub>2</sub>-Probe wieder. Die Kurve b gehört zu einer nahezu stöchiometrischen UO2-Probe. Beide Proben wurden von 1400 °C abgeschreckt und während der Messung des Erholungsvorganges mit l <sup>O</sup>C/min aufgeheizt. Aus dem Vergleich dieser beiden Kurven sehen wir, daß die beim Abschrecken eingefrorene Fehlstellenkonzentration bei der stöchiometrischen Probe wesentlich größer als bei der unterstöchiometrischen ist. Dies war auch nach den thermodynamischen Daten von  $UO_{2+x}$  zu erwarten. Darüber hinaus ist zwischen diesen beiden Kurven noch ein sehr wesentlicher Unterschied: Während bei der unterstöchiometrischen Probe die Temperaturabhängigkeit der elektrischen Leitfähigkeit vor dem eigentlichen Erholungsprozeß größer ist als bei der erholten Probe, ist diese bei der stöchiometrischen Probe vor und nach der Erholung gleich. Da angenommen wurde, daß die erhöhte Temperaturabhängigkeit vor der Erholung auf eine Streuung der Ladungsträger an geladenen Punktfehlstellen zurückzuführen ist, folgt, daß bei stöchiometrischem UO, offenbar eine Nahordnung geladener Fehlstellen verschiedenen Vorzeichens zu beobachten ist. Die Erhöhung der elektrischen Leitfähigkeit, die bei der unterstöchiometrischen Probe während des Erholungsvorganges beobachtet wurde, ist demnach auf die Einstellung einer solchen Nahordnung zurückzuführen. Jetzt werden auch die in Abb. 2 dargestellten experimentellen Ergebnisse verständlich. Offenbar nimmt mit steigender Fehlstellenkonzentration die Tendenz zur Nahordnung der Fehlstellen zu, so daß bei stöchiometrischem UO<sub>2</sub> schon von 700 <sup>O</sup>C an fast alle Punktdefekte in einer Nahordnung gebunden vorliegen.

112-7





Es wurden out-of-pile Verträglichkeitsuntersuchungen mit simulierten oxidischen Abbrandproben durchgeführt, die einem Abbrand von ca. 10 At.-% entsprechen. Die bei der Spaltung entstehenden Spaltprodukte wurden dem oxidischen Brennstoff (UO<sub>2</sub>) einzeln oder in Gruppen zugegeben, um den Einfluß der einzelnen Spaltprodukte auf das Reaktionsverhalten des Brennstoffes mit dem Hüllmaterial feststellen zu können. Außerdem wurde die Abhängigkeit der Spaltprodukt-Reaktionen von der Stöchiometrie des Urandioxids, der Glühtemperatur, der Zeit und dem Hüllmaterial untersucht. In einer ersten Versuchsreihe wurden speziell die nichtmetallischen Spaltprodukte wie Se, Te und J sowie Cs eingesetzt, da bekannt ist, daß sie zu gefährlichen Reaktionen mit dem Hüllmaterial Anlass geben (siehe KFK 1271/2 und 1271/3).

Die ersten simulierten Abbrandproben wurden bei 800 °C 500 und 1000 h lang geglüht und sind z.T. ausgewertet; sie ergeben folgendes vorläufiges Bild: Obwohl alle Verträglichkeitsproben isotherm geglüht wurden, sammeln sich die flüchtigen Spaltprodukte (Se, Te, Cs, J) alle stets an der Phasengrenze Kernbrennstoff-Hüllmaterial an, wie mit der Mikrosonde eindeutig nachgewiesen werden konnte (Abb. 4 bis 7). Die chemischen Wechselwirkungen des UO, und der Spaltprodukte mit dem Hüllmaterial finden nicht gleichmäßig am Umfang der Probe statt. Es bildet sich stets an der inneren Oberfläche des Hüllmaterials eine homogene Reaktionsschicht, die jedoch an einigen Stellen aufbricht und so zu stärkeren Reaktionen mit der Hülle Anlass gibt. Tellur erweist sich - wie bei den Verträglichkeitsuntersuchungen in hohen Konzentrationen - als reaktivstes Element. Tellur wird stets in der Reaktionszone und in den Korngrenzen festgestellt (Abb. 4 bis 7), es reagiert bevorzugt mit Cr unter Bildung von Cr-Telluriden. Auch im isothermen Fall ist z.T. eine starke Cr-Diffusion mit Eindringtiefen bis zu 100 µm in den Brennstoff zu beobachten (Abb. 6). Cr. liegt im Brennstoff gemeinsam mit Te vor.

Von den untersuchten Hüllmaterialien (1.4970, 1.4981, 1.4988, SS Typ 316 und VTi3Si) zeigte die Vanadinlegierung VTi3Sil das beste Verträglichkeitsverhalten. Mikrohärteuntersuchungen an der Phasengrenze der Vanadinlegierung zeigen jedoch, daß bis zu einer Tiefe von ca. 400 µm eine Härtezunahme stattfindet. Bei den Stählen konnte kein Härtegradient beobachtet werden. Bei den hier beschriebenen Untersuchungen wurde zur Simulation der Spaltprodukte kein freies Cäsium, sondern CsJ eingesetzt, und zwar nur in der Menge , die der Jodausbeute nach 10% Abbrand entspricht. Bei der Untersuchung des Reaktionsverhaltens der Spaltprodukte bzw. Spaltproduktmischungen mit den Hüllmaterialien ohne Anwesenheit des Brennstoffs hat sich herausgestellt, dass sauberes CsJ und CsBr mit den Stählen bei 800°C/1000 h nicht reagiert. Bei geringen Verunreinigungen an Sauerstoff oder Wasser fanden jedoch starke Reaktionen statt, die denjenigen in den Glühproben mit freiem Jod entsprachen. Jodreaktionen bei Anwesenheit von CsJ sollten demnach bei höherem Sauerstoffpotential im Brennstoff möglich sein, was durch die oben beschriebenen Untersuchungen bestätigt wurde.

Abb. 4 - 7:

Effekte der Reaktion zwischen überstöchiometrischem UO<sub>2+x</sub> mit CsJ, Se, Te-Zusätzen (entspr. 10% Abbrand) mit verschiedenen nichtrostenden austenitischen Stählen und VTi3Sil im Probenstromund Elektronenrückstreubild sowie im Röntgenstrahlen-Rasterbild und -Intensitätsprofil der Mikrosonde.



negatives Probenstrombild



U-Röntgenstrahlung



20µm

Ni-Röntgenstrahlung



Cr-Röntgenstrahlung



Fe-Röntgenstrahlung



Te-Röntgenstrahlung

1.4970+U0<sub>2,01</sub>+Se+Te, 800<sup>o</sup>C/500h, 10% Abbrand Abb. 4



Abb. 5



1.4970+U02,04+CSJ+Se+Te ,800°/1000h (10% Abbrand)

20µm



Fe-Röntgenstrahlung

Ni-Röntgenstrahlung



**4**0µm

40:1m



Elektronenrückstreubild

Konzentrationsprofile



U-Röntgenstrahlung



Cr-Röntgenstrahlung



Te-Röntgenstrahlung

#### **4**0µm



VTi3Si1+U0<sub>2,04</sub>+CsJ+Se+Te ,800<sup>0</sup>/1000h (10% Abbrand)



Elektronenrückstreubild



Konsentrationsprofile



**V-Röntgenstrahlung** 

Abb. 7



V-Röntgenstrahlung



Ti-Röntgenstrahlung



Te-Röntgenstrahlung



J-Röntgenstrahlung

20µm

**2**0µm

# 1121.4 <u>Bestrahlungsnachuntersuchungen mit der Mikrosonde an UO<sub>2</sub>- und (U, Pu)O<sub>2</sub>-Brennstäben der Versuchsgruppen 3 und 4a der FR 2-Kapselbestrahlungen (H. Huber, H. Kleykamp, IMF)</u>

Mit der abgeschirmten Cameca-Mikrosonde wurden die Bestrahlungsnachuntersuchungen an den  $UO_2^-$  und  $(U_{0,85}Pu_{0,15})O_2^-$ Brennstäben der Versuchsgruppen 3 und 4a der FR 2-Kapselbestrahlungen (KVE 25, 27, 29, 33, 35, 36, 37) abgeschlossen. Die Schwerpunktuntersuchungen der bis zu Abbränden von ca. 6.5% bestrahlten Proben bestanden aus der

- radialen U- und Pu-Verteilung,
- Verteilung der Spaltprodukte im Brennstoff und an der Hülle
- Verträglichkeit mit der Hülle.

In den UO<sub>2</sub>-Brennstäben (11,5% U-235) wurde eine Abnahme der U-Konzentration im Brennstoffaußenbereich aufgrund eines Flußanstiegs und entsprechender Zunahme der Spaltungsdichte beobachtet. In den Mischoxid-Brennstäben wurde ein starker Anstieg der Pu-Konzentration in Zentralkanalnähe und meistens ein flaches Minimum im äußeren Bereich der Stengelkristallzone festgestellt. Beide Effekte beruhen vorwiegend auf der Thermodiffusion von PuO<sub>2</sub> im Temperaturgradienten. Der Verlauf der Urankonzentration ist komplementär (Abb. 8).

Die Zusammensetzung und Verteilung verschiedener metallischer und oxidischer Spaltproduktausscheidungen, die teilweise auch die Komponenten des Hüllmaterials Stahl 4988 enthalten, wurden untersucht. Neben den bekannten metallischen Ausscheidungen, die aus Mo, Tc, Ru, Rh und geringen Mengen Pd bestehen, wurden Pd, Sn und Te enthaltende Phasen sowie Fe-reiche Ausscheidungen zusammen mit Pd, Ni, Mo und Tc beobachtet. Ferner wurde eine Reihe oxidischer Phasen gefunden, die Cs, Sr, Ba, Zr, Mo und evtl. Cr enthalten (Abb. 9). In den untersuchten UO<sub>2</sub>-Proben wurden keine Unverträglichkeiten an der Hüllinnenseite festgestellt. Im Mischoxid wurden mit Ausnahme der Probe mit dem geringsten Abbrand (KVE 33: 1,3%) Reaktionen beobachtet: Hüllmaterial im Brennstoff, vorwiegend Fe, das am weitesten eingedrungen ist, in geringem Maß Ni; weiterhin Korngrenzenreaktionen und schichtförmiger Angriff der Hülle. Cr reichert sich vorwiegend in den Korngrenzen oder an der Hüllinnenseite an, das Verhalten von Ni und besonders Fe ist komplementär. Es konnten Anreicherungen von Cs, Ba, Mo und Te an der Hülle festgestellt werden (Abb. 10).



Abb. 8: Radiales Uran- und Plutonium-Profil der Probe KVE 35-4A/1-3a nach ca. 3,4% Abbrand. Der zählstatistische Fehler der Punktanalyse ist als Fehlergrenze eingezeichnet.



Palladium

Technetium

Eisen

Abb. 9: Mehrphasiger Einschluß im radialen Riss des Brennstoffs, KVE 37-4A/16-6, Abbrand ca. 6,0%, Vergrößerung ca. 650 x



Abb. 10: Spaltprodukt- und Hüllmaterialausscheidungen im Brennstoff und an der Oberfläche sowie Hüllmaterialangriff der Probe KVE 37-4A/19-4 nach ca. 6,6% Abbrand.

#### 1121.6 Spezielle Auswertungsmethoden bestrahlter Brennstoffproben

#### Strukturanalyse des bestrahlten Brennstoffes

(H. Hoffmann, IMF; W. Hellriegel, RB/CuM)

Während der Bestrahlung erfolgen im Brennstoff Strukturänderungen, wobei die markantesten die Ausbildung des Zentralkanals und der Stengelkornzone sind Diese Umstrukturierungerfolgt in den ersten Stunden des Reaktorbetriebes durch die Wanderung der Fertigungsporosität. Die fotografischen Aufnahmen kurzzeitig bestrahlter Prüflinge der He-Loop-Versuchsgruppe 2 vermitteln folgendes Bild:

- Im Bereich des ungerichteten Kornwachstums unterliegen die Sinterporen der Brown'schen Bewegung und agglomerieren beim Zusammentreffen.
- Im Bereich des gerichteten Kornwachstums wandern die Poren mit zunehmender Temperatur zu den Korngrenzen und dann bevorzugt an den Korngrenzen entlang, wobei sie verstärkt agglomerieren. An den dem Zentrum zugewandten Korngrenzenflächen nehmen sie meist längliche Gestalt an.
- Im Bereich der Stengelkörner können sich diese länglichen Blasen von den Korngrenzen losreißen und in Form von Linsenblasen zum Zentrum wandern.und dort den Zentralkanal bilden.

Das 1. Ziel im Rahmen der Strukturanalyse war es, die Wanderung der Fertigungsporen und gleichzeitig die Umstrukturierung des Brennstoffes mathematisch zu beschreiben. Zu die sem Zwecke wurden die Einzelbeiträge zur Gesamtporenwanderungsgeschwindigkeit abgeschätzt (1). Diese setzt sich aus 3 Anteilen zusammen, die durch verschiedene Transportmechanismen der Matrixatome hervorgerufen werden: Gitterdiffusion  $(V_G)$ , Oberflächendiffusion  $(V_O)$  und Verdampfung und Kondensation  $(V_{VK})$  der Matrixatome. Abb.11 enthält den Beitrag verursacht durch Oberflächendiffusion und Verdampfung und Kondensation der Matrixatome; der Beitrag über die Gitterdiffusion ist vernachlässigbar. In (1) wurden weiterhin die Porenwanderungsgeschwindigkeiten für 2 verschiedene Temperaturprofile im Brennstoff (X = 250 und 500 W/cm) und verschiedene Porengrößen errechnet. Hierbei zeigte sich, daß der durch Oberflächendiffusion hervorgerufene Geschwindigkeitsanteil mit steigendem Porenradius abnimmt, hingegen zu geringeren Brennstofftemperaturen, d.h. zu größeren Brennstoff-radien hin, zunimmt.

Zur Prüfung der bestehenden Wanderungsmodelle mußte ein Vergleich von experimentell bestimmten Porenverteilungen mit errechneten durchgeführt werden. Hierzu wurden einige Proben der Loop-Vg. 2, die kein zentrales Schmelzen aufwiesen, bezüglich des Porengehaltes analysiert. Abb. 12 zeigt eine typische Porenverteilung: Ausgangsporosität am Brennstoffrande, Verdichtung und Porositätsminimum mit anschließendem Porositätsanstieg, der in den Zentralkanal übergeht. Vergleichsrechnungen wurden mit dem Rechenprogramm SATURN, unter der Annahme, daß der dominierende Wanderungsmechanismus durch die Verdampfung der Matrixatome an der heißen Porenseite und Kondensation an der kälteren Seite hervorgerufen wird, ausgeführt. Zwischen Experiment und Theorie ergab sich recht gute Übereinstimmung.

Die Ergebnisse erscheinen in ausführlicher Form im Rahmen der Dokumentation der He-Loop-Versuchsgruppe 2 (2). Der Vergleich zwischen Experiment und Theorie wird an 5 verschiedenen Prüflingen, die eine stufenweise Strukturänderung des Brennstoffes zeigen, durchgeführt. Die Arbeiten werden ausgedehnt auf die Kapselversuchsgruppe 3 und alle laufenden Bestrahlungsexperimente des PSB. Das nächste Forschungsziel ist die quantitative Erfassung der Spaltgase mit zunehmendem Abbrand und deren Transport zum Zentralkanal.

#### Veröffentlichungen:

(1) H. Hoffmann

Die Wanderung der Herstellungsporen Beitrag in KFK 1400, S. 161 - 176 (1971)

 (2) H. Hoffmann, D. Geithoff, A. Gerken Kurzzeitbestrahlung oxidischer Brennstab-Prüflinge der FR 2-He-Loop-Versuchsgruppe 2, Auslegung - Herstellung - Bestrahlung - Nachuntersuchung - Auswertung KFK (erscheint demnächst)





#### 1122 Bestrahlungsexperimente - Oxid (Parametertests)

#### 1122.1 Einzelparametertests

Einfluß von Druck und Neutronenfluß auf das Kriechen des Brennstoffes (D. Brucklacher, W. Dienst, IMF)

Die Untersuchungen an UO<sub>2</sub>-Brennstoffproben nähern sich dem Abschluß. Im Berichtszeitraum wurden die ersten Kriechversuche an UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> durchgeführt. Daher wird im folgenden eine Zusammenfassung der bisherigen Arbeiten gegeben.

#### 1. Aufgabenstellung

Für die Voraussage des Brennelementverhaltens und für die Auslegung von Brennelementen mittels Rechenprogrammen der Brennstabmodelltheorie werden in-pile-Kriechdaten benötigt. In Karlsruhe wurde deshalb ein Versuchsprogramm in Angriff genommen, um die Kriechgeschwindigkeiten von keramischen Kernbrennstoffen bis 1000 <sup>O</sup>C in Abhängigkeit von der Temperatur, der Spannung, der Spaltungsrate, dem Abbrand und der Porosität zu messen. Bei diesen relativ niedrigen Temperaturen müßte ein zu messender Bestrahlungseinfluß besonders ausgeprägt sein.

2. Theoretische Abschätzung der bestrahlungsinduzierten Kriechgeschwindigkeit Nach einer theoretischen Betrachtung der bestrahlungsinduzierten Kriechgeschwindigkeit<sup>+)</sup> ergibt sich die Beziehung

$$\varepsilon_{\text{Bestr.}} = \frac{0,01 \cdot 15 \cdot D \cdot \Omega}{(1000 \text{ Å})^2 \cdot k \cdot T} \sigma$$
(1)

in der  $\sigma$  die äußere Spannung,  $\Omega$  das Atomvolumen und D der effektive Volumen-Selbstdiffusionskoeffizient unter Bestrahlung ist.

+) D. Brucklacher, W. Dienst, F. Thümmler Fast Reactor Fuels and Fuel Elements, Proc. of an Intern. Meeting GfK Karlsruhe, 1970, S. 343 In UO<sub>2</sub> liegt danach bei einer Uran-Spaltungsrate von 2,5.10<sup>14</sup> Spaltungen/cm<sup>3</sup>·s und einer Spannung von 2 kp/mm<sup>2</sup> die zu erwartende Kriechgeschwindigkeit im Bereich zwischen 1,2·10<sup>-5</sup>/h und 1,6·10<sup>-4</sup>/h (Abb. 13). Sie ist im wesentlichen auf die "thermal rods" entlang der Spaltfragmentbahnen zurückzuführen. Demnach sollte die bestrahlungsinduzierte Kriechgeschwindigkeit unterhalb 1000 - 1200 °C nur schwach temperaturabhängig sein und für Karbid- und Nitridbrennstoff bedeutend niedriger liegen als für Oxidbrennstoff.

#### 3. Bestrahlungseinsätze zur Messung der Kriechverformung

Um die abgeschätzten Ergebnisse durch Experimente zu überprüfen, wurden zwei Typen von in-pile-Kriechkapseln entwickelt, mit denen die Länge von pneumatisch belasteten Brennstofftabletten während der Verformung kontinuierlich gemessen werden kann. Die Bestrahlungskapsel für den Einsatz im FR 2-Reaktor (Karlsruhe) ist in einer Längsschnitt-Skizze in Abb. 14 dargestellt. Die Proben werden zur Gewährleistung eines möglichst geringen Temperaturgradienten und eines guten Zusammenhaltes bei Rissbildung im Brennstoff durch abwechselnde Stapelung von Brennstoffund Molybdän (TZM)-Ringen zusammengestellt (Abb. 15). Zur Belastung der Proben (O-4 kp/mm<sup>2</sup>) wird in einer ziemlich großen Druckkapsel, die zwei natriumgefüllte Probenkapseln und deren Meßsysteme (induktive Wegaufnehmer) enthält, ein bestimmter Helium-Druck fest eingestellt. Die Probentemperatur (bis 900 °C) ergibt sich aus der Breite des Gasspaltes zwischen Proben- und Druckkapsel.

Für in-pile-Kriechexperimente bei höheren Spaltungsraten (bis 4·10<sup>14</sup> Spaltungen/cm<sup>3</sup>·s) und bei hohen Abbränden wurde für Bestrahlungen im BR 2 (Mol) der Kapsel-Typ CONFLUENT entwickelt. Abb. 16 zeigt eine Röntgenaufnahme dieser Kapsel. Die Probentemperatur kann während der Bestrahlung durch Änderung des Gasgemisches in der thermischen Barriere um ungefähr 300 °C (bis zu Temperaturen von 1000 °C) variiert werden. Die Belastung des Probenstapels (s.o.) kann zwischen 0,5 und 5 kp/mm<sup>2</sup> verändert werden. Die Länge der Probe wird während der Verformung kontinuierlich gemessen. Das verwendete Meßsystem arbeitet mit elektromagnetischen Mikrowellen und einem Hohlraumresonator, dessen Länge durch die Probenverformung verändert wird.







Abb. 16 Röntgenaufnahme der Bestrahlungskapsel "CONFLUENT" zur kontinuierlichen Messung der Kriechverformung an keramischen Kernbrennstoffen



Abb. 19<sup>kriechgeschwindigkeit in UO<sub>2</sub> unter Bestrahlung, bezogen auf eine Uran-Spaltungsrate von 1,2 · 10<sup>14</sup> Spaltungen/cm<sup>2</sup> s und eine Spannung von 2 kp/mm<sup>2</sup> in Abhängigkeit von der Temperatur</sup>



Abb.20 Kriechgeschwindigkeit in keramischen Materialien (UO2, (U,Fu)O2, Al2O2) in Abhängigkeit von der Porosität P, mit in-pile Kriechgeschwindigkeiten von Nitridbrennstoffproben zum Vergleich



#### 4. Kriechverhalten von UO,

Kriechexperimente unter Bestrahlung an stöchiometrischem UO<sub>2</sub> hoher Dichte (96  $\pm$  1% TD) wurden bei Brennstofftemperaturen zwischen 250 und 850 °C durchgeführt. Die Kriechgeschwindigkeiten sind proportional zur angelegten Spannung (O bis 4 kp/mm<sup>2</sup>) und in einer vorläufigen Näherung auch zur Uranspaltungsrate (1.10<sup>13</sup> bis 2.10<sup>14</sup> Spaltungen/cm<sup>3</sup>.s) Abb. 17 und 18). Sie liegen in dem zuvor abgeschätzten Bereich (s. Abschnitt 2). Innerhalb der Grenzen der Ungenauigkeit ist die stationäre Kriechgeschwindigkeit unter Neutronenbestrahlung unabhängig von der Temperatur (250 bis 850 °C) (Abb. 19). Sie kann deshalb bis zu Temperaturen von 850 °C durch die Beziehung dargestellt werden:

$$\epsilon_{\text{Bestr.}} = (0.35 \pm 0.05/\text{kp mm}^2) \cdot \sigma \cdot R$$
 (2)

wenn R die Spaltungsrate in Spaltungen/U-Atom • Zeiteinheit ist.

Die in-pile Kriechgeschwindigkeit von hochdichtem UO<sub>2</sub> nimmt bis zu einem Abbrand von ca. 0.1% stark ab. Nach einem Abbrand von 0.2 – 0.3% scheint sich das stationäre Kriechen eingestellt zu haben. Bis zu dem bisher erreichten Abbrand von ca. 5% treten keine weiteren gravierenden Änderungen in der bestrahlungsinduzierten Kriechgeschwindigkeit auf.

Für die Porositätsabhängigkeit der Kriechgeschwindigkeit unter Neutronenbestrahlung wurde durch Untersuchungen an UN-Proben<sup>+)</sup> eine gute Übereinstimmung mit einer entsprechenden Beziehung für keramische Materialien ohne Bestrahlung im Bereich niedriger Spannungen gefunden (Abb. 20).

Es gilt:

$$\dot{\epsilon}_{\rm P}^{\prime}/\dot{\epsilon}_{\rm o} = 1 + 0,125 \ {\rm P}^2$$
 (3)

wobeí P die Porosität in Vol.-% ist.

<sup>+)</sup> D. Brucklacher

Einfluß von Druck und Neutronenfluß auf das Kriechen von UN in KFK 1271/3 (PSB, 3. Vierteljahresbericht 1971), S. 112-52

#### 5. Schlußbemerkungen

Keramische Kernbrennstoffe zeigen meßbare bestrahlungsinduzierte Kriechgeschwindigkeiten bis herunter zu Temperaturen von ungefähr 250 <sup>O</sup>C. Sie können kontinuierlich in-pile gemessen werden. Die in-pile ermittelten Kriechgeschwindigkeiten sind in guter Übereinstimmung mit den theoretischen Abschätzungen und den Ergebnissen anderer Autoren (Abb. 21). Experimente bei Batelle, Columbus, wurden bei höheren Bestrahlungstemperaturen durchgeführt und zeigen, daß in dem Temperaturbereich von etwa 1000 - 1200 <sup>O</sup>C die Kriechgeschwindigkeit von UO<sub>2</sub> noch merklich durch Bestrahlung beschleunigt wird. Sie ist bei diesen Temperaturen jedoch stark abhängig von der Temperatur.

Untersuchungen über das Kriechverhalten von UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> unter Neutronenbestrahlung sind im Gange.

## Veröffentlichung zu 1121.1:

(1) D. Brucklacher, W. Dienst

Creep Behavior of Ceramic Nuclear Fuels under Neutron Irradiation J. Nucl.Materials 42, 1972, im Druck
## 1122.2 Integrale Parametertests (G. Karsten, PSB-PL)

<u>Stand der Abbrandbestrahlungen im thermischen Fluß mit UO</u> <u>- PuO</u> <u>zum</u> SNR-Brennelement-Konzept

Am 1.1.72 hatten die Abbrandbestrahlungen im FR2 und BR2 folgenden Stand erreicht:

| Reaktor | Projekt  | Brennstoff-<br>länge<br>(mm) | Anz<br>erreichter<br>50-70 70-9 | zahl der Stäbe<br>r Abbrand (MWd/kgM)<br>90 90-100 110-130 |
|---------|--|------------------------------|---------------------------------|--|
|         |  |                              |                                 |  |
| FR2     | KVE-Vg. 4a   | 80                           | 70 70                           | )  |
|         | KVE-Vg. 4b   | 80                           | 14 • 7 0                        | 3 0  |
|         | KVE-Vg. 4C   | 80                           | 9 o                             |  |
|         | an an taon an an taon a<br>Taon an taon an |                              | 3 0 +                           |  |
|         | KVE-Vg. 5a   | 80                           | 3                               |  |
|         | KVE-Vg. 5b   | 80                           |                                 | 6 6  |
| BR2     | Mol 7A   | 500                          | 6 •                             |  |
|         |  |                              | 1 • +                           |  |
|         | Mol 8A/B   | 500                          | 2 •                             | 2  |
|         | Mo1 8C   | 500                          | 4 Δ                             |  |
|         |  | Summe                        | 49 14                           | 11 6   |

- o z.T. nachuntersucht (Außengeometrie)
- Nachuntersuchung abgeschlossen
- + Stab defekt
- $\Delta$  wird noch bestrahlt

# 1123 <u>Bestrahlungen zur Erprobung des SNR-Brennstabkonzeptes im schnellen</u> Neutronenfluß

<u>Stand der Abbrandbestrahlungen im schnellen Fluß mit UO</u> – PuO<sub>2</sub> zum SNR-Brennelement-Konzept (G. Karsten, PSB-PL)

Am 1.1.72 hatten die performance tests zum Brennelement-Konzept des SNR in schnellen Reaktoren (DFR, Rapsodie) folgenden Stand erreicht:

| Experiment                           |                                   | Anzahl der<br>Stäbe | Abbrand<br>MWd/t h.a. | Dosis<br>n/cm <sup>2</sup>                   | Stand  |
|--------------------------------------|-----------------------------------|---------------------|-----------------------|--|--|
| DFR 350                              |                                   | 39                  | 53,000                | 4,3·10 <sup>22</sup>                         | beendet  |
| DFR Trefoil                          | 304                               | 3                   | 57.000                | 4,6.1022                                     | beendet  |
| DFR Trefoil                          | 435/5 <sup>+)</sup><br>435/1 (BN) | 3 }                 | 79.000                | 7,5·10 <sup>22</sup>                         | läuft weiter bis<br>Sommer 1972                  |
| DFR Trefoil                          | 435/6 <sup>+)</sup>               | 1 ++)               | 68.000<br>58.000      | 6,5·10 <sup>22</sup><br>5,4·10 <sup>22</sup> | wird bis zu neuem<br>Defekt weiter-<br>bestrahlt |
| Rapsodie Mon                         | itor                              | 5                   | 68.000                | 6·10 <sup>22</sup>                           | beendet  |
| Rapsodie I,<br>2 Subassemb1<br>Stäbe | ies je 34                         | 68                  | 59.000                | 4,9·10 <sup>22</sup>                         | läuft weiter bis<br>ca. 100.000 MWd/t            |

Schneller Fluß

122 Stäbe über 50.000 MWd/t h.a. Abbrand

### Materialbestrahlungen:

DFR 397

Rapsodie-Testbestrahlungen

7,5·10<sup>22</sup> läuft bis ca. 9·10<sup>22</sup>; wird beendet im Sommer 72 6.85·10<sup>22</sup> beendet

+) Auswahlstäbe aus DFR 350

++) 2 Stäbe in DFR 435/6 wurden nach etwa 58.000 MWd/t h.a. defekt infolge mechanischer Beeinflussung der Brennstoffstruktur durch unkontrollierte Handhabung beim Auseinandernehmen des Stabbündels, vor Neubeladung eines Einsatzes zur Weiterbestrahlung.

### Bestrahlungsnachuntersuchungen (D. Geithoff, IMF)

Für die drei Stäbe aus dem Bestrahlungsexperiment <u>DFR-Trefoil-304</u> wurden die zerstörungsfreien Untersuchungen abgeschlossen und die Keramografie der Brennstoffproben weitgehend zu Ende geführt. Die Brennstäbe waren bis zu einem Abbrand von 6,2% bei einer Kühlmitteltemperatur von maximal 600 <sup>O</sup>C im Dounreay Fast Reactor bestrahlt worden.

Bei der Röntgendurchleuchtung der Brennstoffsäule wurde in allen Stäben ein gleichmäßiger Zentralkanal beobachtet, der nur am unteren (heißen) Ende eine Unregelmäßigkeit in Form einer Aussackung erkennen ließ. (Abb. 22). Dieser Hohlraum (ca. 1 cm lang) schien nach oben zu durch einen Stopfen im Zentralkanal abgeschlossen zu sein. Auf dieses Phänomen hin wurden die Stabenden in der nachfolgenden Keramografie besonders untersucht. Abb. 23 zeigt den Ausschnitt eines Längsschliffes kurz oberhalb einer Aussackung. Der Zentralkanal ist hier vollkommen ausgefüllt mit einem zweiphasigen Material, dessen dendritische Struktur auf ein Entstehen aus der Schmelze hindeutet. Da diese Füllung einerseits  $\alpha$ -aktiv ist und andererseits eine sehr hohe ß-, y-Aktivität aufweist, muß man annehmen, daß es sich um ein Gemisch von Spaltprodukten im Brennstoff handelt. Die dendritische Phase ist darin als Brennstoffphase anzusehen. Das Auftreten einer Schmelze wurde bei Oxidstäben der hier vorliegenden Stableistung (460 W/cm max.) bisher noch nicht beobachtet. Eine Ausnahme bilden lediglich die bekannten Edelmetall-Reguli.Proben aus diesem Brennstoffsäulenabschnitt werden zur Zeit für eine genaue Analyse mit der Mikrosonde vorbereitet.

Ein erheblicher Korrosionsangriff auf der Innenseite der Stabhülle wurde am unteren Stabende bei Hüllrohr-Innentemperaturen um 650 <sup>O</sup>C beobachtet (Abb. 24). Erstaunlicherweise ist dieser Angriff sehr ungleichmäßig in dem Sinne, daß bei höheren Temperaturen bereichsweise an der Hüllinnenseite überhaupt kein Angriff stattgefunden hat, während bei etwas niedrigeren Temperaturen ein Korrosionsabtrag von ca. 50 µm zusammen mit einer Korrosionsphase zwischen Hülle und Brennstofftablette zu beobachten ist. In allen Fällen, in denen die Hülle nicht korrodiert ist, liegt der Brennstoff









dicht an. Daraus kann jedoch nicht geschlossen werden, daß Hohlräume an der Hülle (Umfangs- und Radialspalte) hinsichtlich der Korrosion bevorzugt werden, denn im ringförmigen Hohlraum am Ende der Brennstoffsäule zeigt sich das Rohr nicht angegriffen (Abb. 25). Das Bild wird noch unübersichtlicher durch die Tatsache, daß unterhalb der Brennstoffsäule in Höhe der ersten Brutstofftablette der stärkste Korrosionsangriff zu beobachten ist. Hier sind ca. 100 µm auf der Hüllinnenseite angegriffen. (Abb. 25). Eine direkte Beziehung zwischen Innenkorrosion und Cs-Konzentration zum Zeitpunkt der Nachuntersuchung konnte noch nicht gefunden werden.

## 1124 Brennstäbe mit karbidischem bzw. nitridischem Brennstoff

### 1124.1 Verfahrens- und Geräteentwicklung

#### 1124.11 Herstellung im Labormaßstab

Pumpstandregelung für einen Reaktionssinterofen zur Herstellung von karbischem Brennstoff (E. Günther, W. Jahraus, IMF)

### 1. Problemstellung

Bei der Herstellung von Urankarbid entsteht während des Reaktionssintervorganges Kohlenmonoxid. Die Gasabgabe erfolgt spontan nach Erreichen einer bestimmten Temperatur und endet nach erfolgter Reaktion. Die chemische Umsetzung ist in vereinfachter Form folgende:

 $UO_2 + 3C > \frac{1200^{\circ}C}{2}$  UC + 2 CO/

Zur Beschleunigung des Reaktionsablaufes wird im Vakuum gearbeitet. Setzt die Umsetzung ein, so verschlechtert sich das Vakuum infolge der CO-Entwicklung.

Um eine Erhöhung der Reaktionsgeschwindigkeit durch Verschieben des Gleichgewichtes nach der rechten Seite der Gleichung zu erreichen und damit auch die Bildung höherer Karbide zu vermeiden, müssen die anfallenden CO-Mengen von einer geeigneten Pumpenkombination entfernt werden. Gleichzeitig wird durch die Verhinderung eines CO-Druckanstieges die Aufkohlung des Heizleiters vermieden.

Mit der vorhandenen Ofenanlage konnten bisher nur geringe Mengen Urankarbid hergestellt werden, da die Förderleistung des verwendeten Pumpstandes zu gering war, um größere Mengen anfallenden Reaktionsgases schnell zu entfernen. Weiterhin müssen der Pumpstand und die damit verbundenen Ventile von Hand geschaltet werden, so daß der Reaktionssintervorgang immer unter Aufsicht stehen mußte.

### 2. Aufbau und Wirkungsweise der Anlage

Die vorhandene Pumpenkombination Drehschieberpumpe-Öldiffusionspumpe (FD 1000) wurde mit einem Pumpensystem, bestehend aus Sperrschieberpumpe-Rootspumpe (RUTA 100), gekoppelt. Außerdem wurde statt eines handbetätigten Plattenventils zwischen Rezipienten und Diffusionspumpe eines mit elektropneumatischem Antrieb eingebaut, während ein elektromagnetisches Eckventil den Ofenraum vom Pumpstand RUTA 100 trennte. Eine am Rezipienten angeflanschte Meßröhre dient als Fühler für die Regelgröße Druck. Die Regelabweichung von der Führungsgröße a verschwindet durch entsprechende Stellgrößenabweichung. Eine Druckänderung über den Sollwert bewirkt eine Stellabweichung durch das Stellglied RUTA 100; eine Änderung unter der Führungsgröße bewirkt eine Abweichung durch das Stellglied PD 1000. Der Sollwert ist frei wählbar und kann nach der eingesetzten Reaktionsmenge und dem dadurch zu erwartenden Gasanfall am Sollwertsteller des Leitgerätes Thermovac eingestellt werden. Dieses ermöglicht außerdem die Umschaltung der Regelung von Hand auf Automatik.

#### 3. Reaktionsablauf

Die Synthesereaktion findet in einem widerstandsbeheiztem Hochtemperaturofen mit Wolframheizelement und W-Re-Thermoelement statt. Die Temperaturregelung erfolgt über die Ofenspannung mit Hilfe von Programmscheiben als Zeitplangeber.

Für den Betrieb im Hochvakuum wird die PD 1000 eingesetzt, die den Ofenraum über das geöffnete Umklappventil absaugt. Bei Beginn der Reaktion bricht das Vakuum durch die CO-Entwicklung zusammen und sinkt bis auf den Druckwert des am Regler eingestellten Schaltpunktes ab, während das Eckventil den Weg zwischen diesem und der RUTA 100 freigibt. Es empfiehlt sich, den Schaltpunkt auf einen Druck von  $\ge 10^2$  Torr zu stellen, da unterhalb dieses Wertes das Saugvermögen des Pumpstandes PD 1000 nur noch gleich dem seiner Vorpumpe ist (~3 L/sec), dagegen ist das Saugvermögen der RUTA 100 in diesem Punkt 15 (L/sec) (Abb.26). Der Einsatz dieses Pumpstandes ergibt eine Beschleunigung des Reaktionsablaufes um einen Faktor 5 gegenüber dem HV-Pumpstand. Wird gegen Ende der Reaktion das Vakuum wieder besser und der Schaltpunkt erneut überschritten, dann trennt das Eckventil die RUTA 100 vom Ofenraum, und das Plattenventil öffnet den Durchgang zum HV-Pumpstand. Dadurch ist für die abklingende Reaktion ein optimales Durchreagieren des Entstehungsproduktes gewährleistet. Um den Ablauf der Reaktion im Vakuum zu verfolgen, werden die Druckänderungen im Rezipienten mittels Meßröhren (Penning- und Thermotronröhre) verfolgt. Ein an das Vakuummeßgerät angeschlossener Mehrkanallinienschreiber registriert neben der Reaktionstemperatur gleichzeitig die Druckänderungen über die Zeit. Der Reaktionsanfang ist durch einen starken Druckanstieg und das Ende durch den ursprünglichen Druckwert gekennzeichnet. Dadurch ist es möglich, den gesamten Reaktionsablauf über den herrschenden Gasdruck in Abhängigkeit von der Temperatur zu verfolgen.



# Herstellung von sauerstoffarmem Uranmononitrid (C.Politis, H.Wedemeyer, IMF)

Bei vorausgehenden Arbeiten mit UN wurden folgende Beobachtungen gemacht: UN-Tabletten, die bei Temperaturen zwischen 1100 und 1200°C in strömendem Stickstoff geglüht worden waren, zerfielen während dieser Behandlung zu feinem Pulver und zeigten im Gegensatz zum unbehandelten Pulver ein pyrophores Verhalten.

Röntgenographische Untersuchungen dieser Pulver zeigten eine Abnahme der Gitterkonstanten, bedingt durch die Abnahme des Sauerstoff- und Kohlenstoffgehalts des Pulvers, und zwar bei  $1100^{\circ}$ C in stärkerem Masse als bei  $1200^{\circ}$ C. Die Reaktionstemperatur ist nach unten durch niedrige Umsetzungsgeschwindigkeiten und durch die Bildung von U<sub>2</sub>N<sub>3</sub> begrenzt, jedoch spielt das Entstehen von U<sub>2</sub>N<sub>3</sub> eine untergeordnete Rolle, da dieses im Hochvakuum bei Temperaturen >1050°C leicht zu UN zersetzt werden kann.

Es wurde nun versucht, bei Temperaturen unter 1200<sup>°</sup>C aus einem sauerstoffreichen Ausgangsprodukt der Fa.NUKEM ein sauerstoffarmes U<sub>2</sub>N<sub>3</sub> bzw. UN herzustellen. Die Restgehalte an Sauerstoff und Kohlenstoff bei den durch die Fa.NUKEM bereitgestellten Ausgangspulvern lagen teilweise sehr ungünstig, so dass durch Zumischen von Kohlenstoff ein stöchiometrisches O/C-Verhältnis hergestellt werden musste. Folgende Tabelle gibt typische Analysen-Werte von einigen Ausgangspulvern:

| Charge | Element - Gew% |              |      |  |
|--------|----------------|--------------|------|--|
| U      | 0              | C            | N    |  |
| UN l   | 0,51           | <b>0,</b> 15 | 5,21 |  |
| UN 2   | 8,77           | 5,75         | 1,1  |  |
| UN 3   | 2,47           | 1,54         | 4,2  |  |
| UN 4   | 0,21           | 2,16         | 3,08 |  |

Diese Pulver wurden unverändert oder mit zusätzlichem Kohlenstoff in Wolfram- und Molybdänschiffchen in einem Quarzrohr, welches mit Stickstoff durchströmt war, geglüht.

Die Gesamtverunreinigung des verwendeten Stickstoffs lag unter 1 vpm, dies war jedoch nicht unbedingt erforderlich. Eine Aussage über den Ablauf der Reaktion konnte über den CO-Partialdruck durch direkte Messung des CO-Anteils des durchströmenden Gases mittels DRÄGER-Röhrchen erfolgen. Die Empfindlichkeit der verwendeten Röhrchen reichte von 700 - 1 vpm.

Bemerkenswert ist, dass CO schon ab 200°C in geringen Mengen und ab 800°C in grösseren Mengen nachweisbar ist. Nach der obigen Methode ist es möglich, in einem Schritt die sauerstoffreichen Vorprodukte zu reduzieren. Als Ziel wird angestrebt, ein sinterfähiges Endprodukt von max. 500-1000ppm O herzustellen.

## 1124.2 Laborexperimente zur Brennstabauslegung

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

# Reaktionsverhalten der Spaltprodukte in Urankarbid bei simuliertem hohem Abbrand (H. Holleck, E. Smailos, IMF)

Über die Problematik des Reaktionsverhaltens der Spaltprodukte im Brennstoff sowie über eine Abschätzung des Reaktionsverhaltens anhand von Konstitutionsuntersuchungen in Teilsystemen wurde bereits berichtet (z.B<sup>x,xx,xxx</sup>).

Das Verhalten der Metalle aus der Reihe der Spaltprodukte in Teilsystemen muß nicht identisch dem Verhalten im Gesamtsystem Brennstoff-Spaltprodukte sein. Die Untersuchungen in Teilsystemen liefern Aussagen hinsichtlich möglicher Reaktionen und die Voraussetzung für die Deutung des Verhaltens in dem sehr komplexen Gesamtsystem.

Untersuchungen im Gesamtsystem bringen durch die sehr unterschiedlichen Schmelz- und Siedepunkte der einzelnen Spaltprodukte sowie wegen der Schwierigkeiten, einen Gleichgewichtszustand in der ganzen Probe bei den teilweise sehr geringen Konzentrationen einzelner Komponenten zu erreichen, besondere Probleme mit sich. Die Zahl der Komponenten wird deshalb gruppenweise erhöht.

Hier wird über Untersuchungen in dem 7-komponentigen System von UC mit den hochschmelzenden Spaltprodukten Zr, Mo, Ru, Rh und Pd berichtet: Es wurde ein Abbrand von 10, 20 und 30% simuliert. Zur Herstellung der Proben wurden zwei Verfahren angewendet, und zwar Sintern bei 1500 °C im Hochvakuum und Lichtbogenschmelzen unter Argon mit anschließender Homogenisierungsglühung der Proben bei 1500 °C.

| x   | H. | Holleck in KFK-Bericht 1111 (1969)                     |
|-----|----|--|
| xx  | H. | lolleck in KFK-Bericht 1270/1, S. 112 - 22             |
| XXX | H. | Holleck, E. Smailos in KFK-Bericht 1271/2, S. 112 - 19 |

Die Proben wurden röntgenographisch (Guinier- und Debye-Aufnahmen), metallographisch und mikroanalytisch untersucht. Die Proben enthielten nach der Glühbehandlung folgende Phasen: (U, Zr)C, UMoC<sub>2</sub> und U<sub>2</sub> (Ru, Rh, Pd)C<sub>2</sub>. Für die Mischphase (U, Zr)C wurde sowohl bei den Sinterproben als auch bei den im Lichtbogen geschmolzenen und anschließend homogenisierten Proben

bei 10% Abbrand eine Gitterkonstante von a = 4,952 Å, bei 20% Abbrand von a = 4.943 Å und bei 30% Abbrand von a = 4,930 Å bestimmt (reines UC: a = 4,960 Å).

Für das orthorhombische UMoC<sub>2</sub> und das tetragonale U<sub>2</sub>(Ru, Rh, Pd)C<sub>2</sub> wurden sowohl bei 10 als auch bei 20 und 30% Abbrand Gitterkonstanten von a = 5,642 Å, b = 3,250 Å, c = 11,027 Å für UMoC<sub>2</sub> (dies entspricht den Werten der reinen Verbindung) und a = 3,442 Å, c = 12,559 Å für U<sub>2</sub>(Ru, Rh, Pd)C<sub>2</sub> gemessen. Das Schliffbild einer Probe mit einer Konzentration der betrachteten Metalle entsprechend 20% Abbrand zeigt die drei Phasen (U, Zr)C, UMoC<sub>2</sub> und U<sub>2</sub>(Ru, Rh, Pd)C<sub>2</sub> (Abb. 27).

Die Identifizierung der einzelnen Elemente in den verschiedenen Phasen erfolgte mit Hilfe der Mikrosonde. Abb. 28 zeigt die relativen Konzentrationen der Elemente U, Ru, Rh, Pd und Mo in den verschiedenen Phasen. In Übereinstimmung mit den Untersuchungen in Teilsystemen ergibt sich:

- Zr wird gelöst als ZrC<sub>1-x</sub> im Brennstoff (Gitterparameterkontraktion der Matrix);
- 2. Mo tritt bei hohen Abbränden als Komplexcarbid (UMoC<sub>2</sub>) in Ausscheidungen auf;
- 3. Ru, Rh, Pd scheiden sich bei 1500 °C als U-haltige Komplexcarbide aus.

Versuche unter Miteinbeziehung der Seltenen Erden und der Erdalkalimetalle sind im Gange.



Abb. 27: Schliffbild einer bei 1500<sup>o</sup>C, 135 Stdn. im Hochvakuum homogenisierten Probe der Zusammensetzung UC+(Zr,Mo,Ru,Rh,Pd), entsprechend 20 % Abbrand, geätzt. Befund: (U,Zr)C (grau) + U<sub>2</sub>(Ru,Rh,Pd)C<sub>2</sub> (hell) + UMoC<sub>2</sub> (kleine Kristallite) x 500



Probenstrombild (negativ)



Ru



Pd



U



Rh



Mo

Abb. 28 Relative Verteilung der Elemente U,Ru,Rh,Pd,Mo in einer UC+(Zr,Mo,Ru,Rh,Pd) Probe entsprechend 20 % Abbrand x 620

Untersuchungen über die Verträglichkeit Brennstoff/Hülle (O. Götzmann, P. Hofmann, IMF)

Die Glühungen zur Untersuchung des Reaktionsverhaltens von UC mit Hüllmaterialien wurden abgeschlossen. Die Auswertung der Glühproben ist noch im Gang. Über die metallographische Auswertung und z.T. auch über die Mikrosondenuntersuchungen wurde früher schon berichtet<sup>+)</sup>.

Im abgelaufenen Zeitabschnitt wurden die ätztechnischen Untersuchungen durchgeführt. Diese Auswertung ist noch nicht abgeschlossen, so daß kein zuverlässiges Bild darüber gegeben werden kann. Das Ausscheidungsverhalten ist für die einzelnen Hüllmaterialien verschieden. Eine Temperatur- und Zeitabhängigkeit ist für die meisten Hüllmaterialien noch nicht festgestellt worden. Einen Einfluß auf das Ausscheidungsbild in der Hülle nach den Unverträglichkeitsreaktionen mit UC hat auch die Korngröße des Hüllmaterials. In den folgenden Abbildungen werden einige Ätzbilder gezeigt.

# 1124.23 Chemische Analysen (H. Schneider, IMF)

Im Rahmen der Versuche zur Herstellung von sauerstoffarmen UN wurde eine große Zahl an Proben auf C, N und O analysiert. Die für die Bestimmung von Sauerstoffgehalten <0,1% ausgearbeitete Bestimmungsmethode wurde in einem Bericht zusammengefaßt. Für die Verträglichkeitsuntersuchungen wurde eine große Anzahl an Proben vor allem auf Sauerstoff analysiert.

+) KFK-Bericht 1271/3, S. 112-38



1.4981/UC

250 x



1.4988/UC

loo x



Abb. 29

Ausscheidungen in Stählen nach Glühung mit UC bei 800<sup>0</sup>/1000 h (UC mit ca. 4,85 äquiv. % Gew.C)

1.4970/UC





1.4970/UC

loo x



Abb. 30

Ausscheidungen in Stählen nach Glühung mit UC bei 900<sup>0</sup>C/ looo h (UC mit ca. 4,85 äquiv.% Gew. C)

316 ss/UC

50 x

### 1127 FR3-Brennelemententwicklung

# Abbrandverhalten von FR3-Stäben in FR2-Kapseln (H. Häfner, IMF)

Ende 1971 wurde die im Juli 1970 im FR2 begonnene Bestrahlung von 18 oxidischen Testbrennstäben für einen schnellen Testreaktor mit Erfolg abgeschlossen. Es handelt sich um Stäbe von 4,7 mm Hüllrohraußendurchmesser und ca. 170 mm Länge mit UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstoff. Jeweils drei Stäbe sind übereinander in einem Kapselversuchseinsatz (KVE) des bewährten Na/PbBi-Doppelkapseltyps<sup>+)</sup> untergebracht. Die angestrebten Werte sind bei der Bestrahlung sämtlich erreicht worden, und zwar:

| Stableistung            | 350 - 500 W/cm                     |
|-------------------------|------------------------------------|
| Hüllrohraußentemperatur | bis 500 <sup>o</sup> C             |
| Abbrände:               | 1 KVE (3 Prüflinge) 13000 MWd/tM   |
|                         | 1 KVE (3 Prüflinge) 32000 MWd/tM   |
|                         | 2 KVE (6 Prüflinge) 100000 MWd/tM  |
|                         | 2 KVE (6 Prüflinge) 120000 MWd/tM. |

Während der Bestrahlung aller 6 Kapseln sind keinerlei Störungen aufgetreten. Auch das Verhalten der jeweils 10 Thermoelemente in einer Kapsel war einwandfrei.

+) Vgl. KFK 1271/1, S. 112-18

# 113 MATERIALUNTERSUCHUNG UND -ENTWICKLUNG

1131 Materialuntersuchungen an technischen Legierungen

1131.1 Hüllmaterial

1131.11 Mechanische Eigenschaften

## 1. Zeitstand- und Kriechverhalten

(H. Böhm, L. Schäfer, M. Schirra, H. Scholz, IMF)

Für das Bestrahlungsprogramm Mol 1 P wurden von drei austenitischen Legierungen Zeitstandversuche bei 650 °C mit unbestrahlten Blechproben vorgenommen. Es handelt sich hierbei um die Werkstoffe X10 NiCrMoTiB 1515 (12R72HV) und X8 CrNiMoVNb 1613 (DA 1613Nb). Die dritte Legierung ist ein 1616 CrNi-Stahl mit einem niedrigen C-Gehalt (0,02%) und nur 0,2% Niob; also nicht identisch mit der Werkstoff-Nr. 1.4981. Jede Legierung wurde in zwei Zuständen untersucht.



Abb. 1

Die ermittelten Standzeiten sind in Abb. 1 in Abhängigkeit von der Spannung aufgetragen. Bei allen drei Stählen führt die der Lösungsglühung nachfolgende Auslagerung bei 800°C zu etwas geringeren Zeitstandfestigkeitswerten. Die sehr niedrigen Zeitstandfestigkeitswerte des Stahles DA 1616 sind auf den niedrigen C- und Nb-Gehalt zurückzuführen. Trotz der geringen Zeitstandfestigkeit zeigt diese Legierung auch eine verhältnismäßig geringe Duktilität. Für Zeiten > 10<sup>2</sup> Std. liegt die Bruchdehnung für beide Zustände zwischen 5-10%. In diesem Bereich liegen auch die Werte für den Stahl DA 1613 Nb im nur lösungsgeglühten Zustand. Dagegen steigen die Werte durch die nachfolgende Auslagerung auf 35-40% an. Die Legierung 12R72HV zeigt mit zunehmender Standzeit eine Abnahme der Bruchdehnung auf Werte zwischen 10-15% bei Standzeiten von 2000-4000 Std.

Die gemessenen Werte für diese sekundäre Kriechgeschwindigkeit i lassen gerade für den Stahl 12R72HV eine starke Spannungsabhängigkeit erkennen, wie sie für diese Legierung schon mehrfach beobachtet wurde. Die bisher durchgeführten metallographischen Untersuchungen zeigen für die Legierung 12R72HV ein überwiegend transkristallines Bruchverhalten. Am Stahl DA 1613Nb sind teils transkristalline Brüche mit interkristallinen Anrissen zu beobachten. Die Legierung DA 1616 bricht überwiegend interkristallin.

Im Rahmen der Mol 2-Vergleichsversuche wurde das Zeitstandverhalten folgender Stähle weiter untersucht:

| Nr. | Werkst.Nr. | Chg.Nr. | Anlieferungs-<br>zustand | Wärmebehand-<br>lung   | Prüftemperatur                         |
|-----|------------|---------|--------------------------|------------------------|--|
| 1.  | 1.4988     | 25 116  | lg + <u>&lt;</u> 5% kv   | 800 <sup>0</sup> C 1h  | 700 <sup>0</sup> C                     |
| 2.  | 1.4988     | 25 116  | lg + <u>&lt;</u> 5% kv   | 750 <sup>0</sup> C 3h  | 700 <sup>0</sup> C                     |
| 3.  | 1.4970     | 8-29052 | lg + 15% kv              | 800 <sup>0</sup> C 23h | 700 <sup>0</sup> 0, 600 <sup>0</sup> 0 |

Die aufgeführten Wärmebehandlungen erbrachten folgende Ergebnisse: Die Zeitstandfestigkeit bei 700<sup>°</sup>C wird nur unwesentlich gegenüber dem Anlieferungszustand verringert. Die Bruchdehnung nimmt leicht zu, wobei der Stahl Nr. 2 eine zeitlich stark steigende Tendenz aufweist.

## 2. Rohrprüfung (O. Jacobi, R. Scherwinsky, IMF)

### Glattrohrprüfung

Ein vom IMF/LB beim LEM in Auftrag gegebenes Wanddickenmeßgerät konnte in Betrieb genommen werden. Es gestattet bei Kenntnis der Schallgeschwindigkeit die Wanddicke (auf ca.  $\pm 2 \mu m$  genau) in einem Bereich von 0,2 bis 2  $\mu m$  linear anzuzeigen, wobei eine digitale Anzeige in 1  $\mu m/digit$ . möglich ist. Durch Vorwahl einer Bezugswanddicke können Abweichungen von dieser digital angezeigt oder analog proportional registriert werden. Der Vorteil des neuen Wanddickenmeßgerätes liegt u.a. in der absolut linearen Anzeige und in dem Fortfall der Eichung über ein Wanddicken-Stufen-Testrohr. Durch Verringern des Trägerrohrdurchmessers bei der pneumatischen Innendurchmesserprüfung gelang es, die für Mol 7B vorgesehenen Rohre zu vermessen, obschon eine Seite mit einem Endstopfen versehen war.

## Rippenrohrprüfung

Auf der "Deutschen Industrieausstellung" in Berlin wurde das im IMF/LB entwickelte Meßgerät zur kontinuierlichen Messung des Kopfkreisdurchmessers vorgestellt. Durch Innendruckversuche an Hüllrohren mit 6 integralen Längsrippen mit FR 3-Abmessungen konnte nachgewiesen werden, daß Fehlstellen im Rippengrund zu katastrophalen Schäden führen können. Der Vertrag mit der Firma Mannesmann konnte nicht fristgerecht beendet werden, jedoch zeigten Versuche, daß sowohl das Ultraschall- als auch das Wirbelstromverfahren bei der Rippenrohrprüfung reproduzierbare Anzeigen von künstlichen Fehlern lieferten.

#### 3. Schweißuntersuchungen (W. Scheibe, IMF)

Nachdem die Schweißuntersuchungen am Sandvikstahl gezeigt haben, daß die erzielten Ergebnisse stark vom Werkstoffzustand abhängen, werden vergleichende Versuche an der Legierung DA 1613 Nb (W.-Nr. 1.4988) durchgeführt. Es handelt sich auch hierbei um Blechproben von 1 mm Dicke in zwei Zuständen: 1.) 15% kaltverformt, 2.) 15% kaltverformt + 800 °C/23h, die nach dem Schweißen auf 0,5 mm Dicke abgefräst und bei 650 °C geprüft wurden. Die besten Ergebnisse sind am ausgelagerten Zustand zu verzeichnen. Hier lassen sich die Ausgangswerte von Streckgrenze, Zugfestigkeit und Bruchdehnung der ungeschweißten Vergleichsproben erreichen. Der Bruch tritt überwiegend im Grundmaterial auf. Bei den nur kaltverformten Proben sind Zugfestigkeit und Streckgrenze praktisch unverändert, während die Bruchdehnung nur ein Drittel des ungeschweißten Materials beträgt. Die Proben sind alle in der Schweißnaht bzw. wärmebehandelten Zone gerissen. Bei den verschiedenen Schweißparametern zeigen sich jedoch bei beiden Zuständen deutliche Unterschiede.

Schutzgasgeschweißte Bleche (ohne Zusatzwerkstoff) konnten nicht zu einem Vergleich herangezogen werden, da diese unmittelbar nach dem Schweißen gerissen sind.

#### 1131.12 Bestrahlungsversuche

#### 1. Kurzzeitfestigkeit (H. Böhm, G. Heß, W. Scheibe, IMF)

Die Auswertung der Nachuntersuchungen von Proben aus dem Bestrahlungsprojekt Mol 1 P (Dosis  $\phi t = 10^{22} n/cm^2$ , E > 0,1 MeV) mit den drei austenitischen Stählen 1.4970, 1.4981 und 1.4988 wurde fortgesetzt. Aus den Spannungs-Dehnungsdiagrammen wurden die wahren Spannungen für die lösungsgeglühten Zustände der drei Legierungen berechnet und im Diagramm über der bleibenden Gleichmaßdehnung aufgetragen.

Abb. 2 zeigt, daß am titanstabilisierten Sandvikstahl 1.4970 im Gegensatz zu den niobstabilisierten Stählen 1.4981 und 1.4988 mit steigender Testtemperatur kein Abfall der wahren Spannungen auftritt. Allerdings nimmt die Gleichmaßdehnung mit zunehmender Versuchstemperatur beim Werkstoff 1.4970 wesentlich stärker ab. Das dürfte auf das unterschiedliche Ausscheidungsverhalten der Stähle zurückzuführen sein. Beim Sandvikstahl kommt es mit zunehmender Testtemperatur zu feindispersen Ausscheidungen vom Typ TiC, die die Festigkeit des Korns erhöhen und außerdem zu einer Stabilisierung der durch schnelle Neutronen erzeugten Gitterfehler führen. Da die Korngrenzenfestigkeit des Sandvikstahls im lösungsgeglühten Zustand durch das



Bestrahlungsdosis :  $\oint t \approx 10^{22} n \text{ cm}^2$  E > 0,1 MeV Bestrahlungstemperatur : 50°C (Projekt Mol 1P)

Fehlen semikohärenter Ausscheidungen vom Typ M<sub>23</sub>(C,B)<sub>6</sub> - wie sie nach Auslagerungen bei Temperaturen zwischen 800 °C und 900 °C beobachtet werden - sehr gering ist, kommt es mit zunehmender Verfestigung zu geringeren Gleichmaßdehnungen.

Bei den niobstabilisierten Stählen 1.4981 und 1.4988 laufen die Ausscheidungsvorgänge schneller ab, wie metallographische Untersuchungen erkennen lassen. Dadurch kommt es mit zunehmender Versuchstemperatur zu einer schnellen Koagulation der Ausscheidungen, was eine Verminderung der Festigkeit und damit auch einen Abfall der wahren Spannungen zur Folge hat. Das höhere Verformungsvermögen der Körner in Verbindung mit einer höheren Korngrenzenfestigkeit führt zu einer größeren Duktilität der niobstabilisierten Stähle im lösungsgeglühten Zustand.

### 2. Zeitstand- und Kriechverhalten

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

Im Rahmen der Arbeiten über den Einfluß von Neutronenbestrahlung auf das Zeitstand- und Kriechverhalten potentieller Hüllwerkstoffe wurden die Untersuchungen an bestrahlten Proben des niedrig gekohlten 1616 CrNi-Stahles (Bestrahlungsprojekt DIDO-M4) abgeschlossen.

Die Ergebnisse der bei 650 <sup>o</sup> und 700 <sup>o</sup>C durchgeführten Versuche zeigen, daß neben den bereits berichteten Zeitstand- und Kriecheigenschaften der Einfluß der Bestrahlung auf die Duktilität in noch viel stärkerem Maße zum Ausdruck kommt. Die Abb. 3 zeigt die starke Abhängigkeit vom Werkstoffzustand.

Ebenfalls zeigten z.B. die bei 700 <sup>o</sup>C durchgeführten Versuche des Zustandes 1050 <sup>o</sup>C + 12% kv + 850 <sup>o</sup>C lh, daß die Einsatzmöglichkeit auf max. 650 <sup>o</sup>C begrenzt ist. Die Proben gingen bereits kurz nach Erreichen der Testtemperatur unter einer Vorlast von nur 1 kp/mm<sup>2</sup> zu Bruch.

Aus dem Bestrahlungsprojekt Mol 2 liegen erste Ergebnisse von Nachbestrahlungsuntersuchungen am Werkstoff Nr. 1.4981 vor. Das Material (Charge HV 139, Mannesmann) wurde in Form von Rohren mit den Abmessungen 6 mm Außendurchmesser und 0,4 mm Wandstärke untersucht. Die Rohre waren etwa 5% kaltverformt. Die Proben wurden im BR 2 unter Innendruck bei 615 °C und 720 °C bis zu Standzei-



### Abb. 3

ten von maximal 4000h bestrahlt, was einer Dosis schneller Neutronen (> 0,1 MeV) von etwa 7 x  $10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> entspricht.



In Abb. 4 sind die Zeitstandfestigkeitskurven der unbestrahlten und bestrahlten Rohrproben wiedergegeben. In den eckigen Klammern wurde die Bruchdehnung der Prüflinge eingetragen, die bereits in den Heißen Zellen nachuntersucht worden sind.

Abb. 4 In-pile Zeitstandfestigkeit des Stahls 1.4981

Bei einer Prüftemperatur von 615 <sup>o</sup>C führt die Neutronenbestrahlung zu einer Abnahme der Standzeit etwa um den Faktor 3,5 und zu einer deutlichen Reduktion der Bruchdehnung. Eine Bestrahlung bei 720 <sup>o</sup>C hat eine geringere Standzeitverkürzung als bei 615 <sup>o</sup>C zur Folge. Die Hochtemperaturversprödung bewirkt hier eine etwa um den Faktor 1,8 niedrigere Standzeit. Bemerkenswert ist vor allem, daß bei dieser Temperatur die Bruchdehnung der bestrahlten Prüflinge deutlich über 2% liegt und zu längeren Standzeiten hin ebenso wie im unbestrahlten Zustand noch weiter anzusteigen scheint.

#### 3. Metallphysikalische Grundlagenuntersuchungen

(K. Ehrlich, N. Packan, E. Starke, IMF)

Die experimentellen Nachuntersuchungen von Hüllmaterialien des Bestrahlungsprogrammes DFR 304 wurden abgeschlossen. Sie enthalten Dichtemessungen und elektronenmikroskopische Arbeiten am Stahl 1.4988, der im Temperaturbereich von 300-630 °C bis zu 4,4 x  $10^{22}$  n/cm<sup>2</sup> bestrahlt wurde. Abb. 5 gibt eine Übersicht über die Porenkonzentrationen und Porengrößen in verschiedenen Bestrahlungszuständen.

Ein Vergleich mit kürzlich veröffentlichten Schwellwerten (Referenzdaten 1971 für FFTF) des nichtstabilisierten Hüllmaterials 316 ergibt für den lösungsgeglühten Zustand bei gleichen Neutronendosen im wesentlichen dieselbe Temperaturabhängigkeit von  $\Delta V/V$ , jedoch um etwa 50% reduzierte Schwellwerte.

### 4. Simulation von Strahlenschäden

(D. Kaletta, R. Groß, K. Ehrlich, IMF)

Die Untersuchungen verschiedener Hüllwerkstoffe (1.4981, 1.4988 und 1.4970) durch Beschuß mit C<sup>2+</sup>-Ionen sind fortgeschritten. Als nun sichtbare Tendenz kann angegeben werden, daß die hier untersuchte Gruppe der stabilisierten Stähle unterhalb der unter gleichen Simulationsbedingungen gewonnenen Schwelldaten für den Stahl 316 liegt.

Durch Beschuß mit niederenergetischen Nickelionen (E~50 keV) wurde bei einem Fluß von 2 x 10<sup>14</sup> Ni<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup> sec in lösungsgeglühtem und kaltverformtem Nickel Porenbildung erreicht. Es wurden Schwellraten von <0,4% gemessen. Die P<sub>oren-</sub> größe liegt zwischen 150-800 Å, und die Porenformist im allgemeinen oktaedrisch.





O A pe





Abb. 5 Porenbildung im Stahl 4988 bei verschiedenen Bestrahlungs-temperaturen und Neutronendosen (E>0.1 MeV):
a) 360°C; 3,74 x 10<sup>22</sup> n/cm<sup>2</sup>, b) 425°C; 3,94 x 10<sup>22</sup> n/cm<sup>2</sup>,
c) 485°C; 3,92 x 10<sup>22</sup> n/cm<sup>2</sup>, d) 535°C; 3,78 x 10<sup>22</sup> n/cm<sup>2</sup>.

### 114 KORROSIONSVERSUCHE UND KÜHLMITTELANALYSEN

1141 Natriumkühlung

1141.1 Korrosionsverhalten bei Natriumkühlung

1141.11 Korrosionsverhalten von austenitischen Stählen (Helga Schneider, H.U. Borgstedt, A. Marin, IMF; G. Frees, G. Drechsler, IRB)

Die Korrosionsuntersuchung an den 5200 h im Kreislauf "Cerberus" exponierten Proben aus dem Stahl Werkstoff-Nr. 1.4970 wurde fortgesetzt. Die Ergebnisse der chemischen Analysen, die einen starken Verlust der Proben an Bor angezeigt hatten, wurden durch autoradiographische Messungen an drei Proben bestätigt.

Die Veränderungen der Zusammensetzung in der Oberflächenzone wurden nach schichtweiser chemischerAbtragung mit Hilfe der Atomabsorptionsmethode bestimmt. Dabei konnte die Stärke der Diffusionszone zu etwa 10 µm ermittelt werden. In dieser Zone haben wir geringere Konzentrationen an Cr und Mn und höhere an Fe und Mo als in der Matrix gemessen, im Gegensatz zur Literatur jedoch nur schwache Effekte des Natriums auf die Ni-Gehalte (siehe Abb. 1).



## Abb. 1

Konzentrationsverschiebungen der Legierungselemente in den Randzonen von Proben aus dem Stahl 1.4970 durch Natriumeinwirkung über 5200 h bei 600 <sup>o</sup>C.

Die Unterschiede zu den Literaturangaben führen wir auf die niedrige Geschwindigkeit des Natriums in den Reststrecken zurück (Re ≈5600).

Diese Befunde wurden qualitativ durch Mikrosondenmessungen bestätigt. Beide Methoden ergaben Resultate, die auch mit den Ergebnissen von spektralanalytischen Messungen mit der Glimmentladungslampe in Einklang sind.

Die Analysenergebnisse machen nun die vergebliche Suche nach ferritischen Zonen mit Hilfe von Strukturuntersuchungsverfahren verständlich. Die austenitische Struktur der Werkstoffe mit 15% Ni und 15% Cr ist wesentlich stabiler als die der 18% Cr-8% Ni-Stähle. Da nun nur Cr in wesentlichen Mengen herausgelöst wird, bleibt die austenitische Struktur selbst in der Diffusionszone beständig, die Bildung ferritischer Schichten ist nicht zu erwarten.

Die Arbeiten zur Bestimmung der Korrosionszonen von austenitischen Stählen mit Hilfe der RSV-Glimmentladungslampe wurden fortgesetzt.

Aufgrund der auf der Hechendorfer Tagung dargelegten neuesten Erfahrungen wurde der Betrieb unserer Glimmentladungslampe auf Reinst-Argon umgestellt. Es zeigte sich, daß dadurch die Intensität der Chromstrahlung wesentlich erhöht werden konnte und die Reproduzierbarkeit der Eichkurve verbessert wurde. Chrom ist extrem sauerstoffempfindlich, so daß sich bereits sehr geringe Mengen an Sauerstoff auf die Anregung auswirken, während die Nickelintensitäten gleichbleiben. Durch Wahl anderer Chrom- und Eisen-Spektrallinien für die Auswertung konnte die durch den laufenden Abtrag allein vorgetäuschte Cr-Intensitätserhöhung eliminiert werden, so daß nun die endgültige Auswertung der 7 untersuchten Korrosionsproben erfolgen konnte.

### 1141.3 Reinheit und Reinheitskontrolle des Na (Analyse)

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

Die Vorrichtung zum Ziehen von Natriumproben wurde am Kreislauf "Cerberus" mehrfach erprobt. Die Vorrichtung erlaubt die Entnahme von Proben unter Vermeidung von Kontamination durch die Atmosphäre und läßt sich auch in der Schutzgasbox gut handhaben. Allerdings bereitet die Entnahme repräsentativer Proben aus dem Kreislauf Schwierigkeiten, die gezogenen Proben enthielten durchweg zu hohe Konzentrationen an Sauerstoff wie an Metallen (Cr,Fe,Ni). Die Ursache der hohen Verunreinigungsgrade der Proben konnte durch Variationen der Betriebsbedingungen bei der Probenziehung ermittelt werden. Danach kann man mit reinen, repräsentativen Proben nur rechnen, wenn man den Durchsatz des Natriums in der Vorrichtung auf 0,25-0,50 1/sec und die Temperatur auf über 300 <sup>O</sup>C einstellt. Die Spülzeiten müssen unter diesen Bedingungen 10 bis 12 h betragen. Im "Cerberus" lassen sich die Bedingungen nur unter Schwierigkeiten einstellen, daher muß die Probenziehungsvorrichtung an eine günstigere Position verlegt werden.

Mit der Destillationstechnik wurde auch eine Reihe von Proben aus dem Kreislauf der SGAE in Zusammenhang mit dem Korrosionsversuch an Rohrproben unter Innendruck auf die Sauerstoffgehalte analysiert. Auch bei diesen Natriumproben lagen die Sauerstoffgehalte höher, als nach den Plugtemperaturen zu erwarten. Wir führen die Diskrepanzen auf die geschilderten Probleme bei der Probenahme zurück.

Die EMK-Sonde TPE-1/233 (United Nuclear Corp., Elmsford, N.Y.) ist nach 17 000 h noch voll funktionsfähig. Die zweite Sonde Nr. 341 hat inzwischen 4500 Betriebsstunden erreicht. Beide Sonden sind ohne Schaden an der Keramik einige hundert Stunden bei Temperaturen über 350 <sup>O</sup>C betrieben worden. Bei dieser Temperatur liegt die Anzeige der beiden Sonden nahezu auf dem gleichen Wert.

Die EMK beider Sonden ist mit dem hochohmigen Digitalvoltmeter "Solartron" gemessen worden. Die Übereinstimmung mit der Anzeige des UNC-Indikators war sehr gut. Das Digitalvoltmeter ist nicht nur preiswerter, sondern bietet neben anderen technischen Vorteilen die Möglichkeit, Werte direkt in eine EDV einzugeben.

Neben verschiedenen Sauerstoffbestimmungen im Natrium aus Destillationsrückständen wurden zahlreiche Natriumproben teils nach Umsetzung, teils nach Destillation auf ihre metallischen Verunreinigungen Fe, Cr, Ni, Mn, Co und Cu analysiert. Die letzte, am 6.12.1971 gezogene Na-Probe aus dem Kreislauf "Cerberus" zeigte eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den nach Umsetzung und den aus dem Destillationsrückstand bestimmten Werten, so daß daraus einerseits geschlossen werden kann, daß die Probenahme im Hinblick auf diese Elemente repräsentativ war, andererseits scheint unter den eingehaltenen Versuchsbedingungen kein Verlust dieser Elemente während der Destillation stattzufinden.

Die für verschiedene metallische Verunreinigungen im Natrium ausgearbeiteten Analysenvorschriften wurden in einem PSB-Bericht zusammengefaßt.

# 1142 Dampf- und Gaskühlung

### 1142.1 Korrosionsverhalten in Dampf, Laborversuche (S. Leistikow, IMF)

Vergleichende Untersuchungen der Abhängigkeit des Heißdampf-Korrosionsverhaltens von der Kaltverformung und von der Korngröße wurden mit Blechmaterial der Legierung Inconel 625 durchgeführt. Dazu wurden statische Autoklavenversuche in Heißdampf von 600 <sup>°</sup>C, 70 at während 1000 Stunden an folgendermaßen vorbehandelten, sodann elektropolierten Proben durchgeführt:

- unverformt, 10, 30, 50, 70% kaltverformt und geschmirgelt,

- bei 900, 950, 1000, 1050, 1100, 1150, 1200, 1250 und 1300 <sup>O</sup>C einstündig geglüht.



Abb. 2





Die Ergebnisse (Abb. 2 u. 3) zeigen unter den gewählten Versuchsbedingungen praktisch keine Abhängigkeit der Heißdampf-Korrosion von der Kaltverformung und der Korngröße. Die in der nicht-linearen Übergangsphase von etwa 1000 Versuchsstunden oxidierten Metallmengen ( $W_0$ ) – wie die auch in anderen Versuchen bei 620 <sup>o</sup>C langzeitig gemessenen Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten ( $k_1$ ) (1) – sind gleich denen der Heißdampf-Korrosion hochkaltverformter CrNi-
Stähle. Siehe dazu die Versuche mit den Werkstoffen Nr. 4301<sup>+)</sup> und Incoloy 800.

Die Identität der Resultate kann in erster Näherung unabhängig von der unterschiedlichen Legierungsbasis, aufgrund der gleichzeitigen protektiven Schichtbildung durch Doppeloxide (d.h. Spinelle (Fe,Mn) $\operatorname{Cr}_2O_4/\operatorname{NiCr}_2O_4$ ) und die selektive Oxidation des beiden Legierungen gemeinsamen Elementes Chrom erklärt werden. Da praktisch immer Spinelle und  $\operatorname{Cr}_2O_3$  in der Oxidschicht identifiziert wurden, muß die chemische Analyse im Einzelfall entscheiden, welcher Oxidzusammensetzung die beobachtete Korrosionsgeschwindigkeit zuzuordnen ist.

# 1142.2 <u>HKW-Kreislauf (Heißdampf-Korrosion unter Wärmeübergang)</u> (F. Erbacher, J. Vasarhelyi, IRB; S. Leistikow, IMF)

Der HKW-Kreislauf wurde erstmals mit maßstäblichen, elektrisch indirekt beheizten Probestäben im Langzeitbetrieb gefahren. Es waren 5 Probestäbe mit einem Durchmesser von 6 mm und einer beheizten Länge von 70 bzw. 100 cm eingesetzt. 3 Incoloy 800-Stäbe wurden mit einer Oberflächenbelastung von 55 W/cm<sup>2</sup>, 2 Sandvik-Stäbe mit 200 W/cm<sup>2</sup> betrieben, die max. Hüllentemperatur betrug etwa 700  $^{\circ}$ C.

Die 2 Sandvik-Stäbe sind nach 125 bzw. 205 Stunden, 2 Incoloy-Stäbe nach 276 bzw. 357 Betriebsstunden ausgefallen. Zur Feststellung der Schadensursachen sind weitere Untersuchungen im Gang.

Die isothermen Teststrecken waren 316 Stunden mit rund 150 Probestücken bei einer Dampftemperatur von 600 <sup>O</sup>C in Betrieb.

Das weitere Versuchsprogramm sieht die Untersuchung des Hüllwerkstoffes Incoloy 800 bei einem Wärmefluß von 200 W/cm<sup>2</sup> und einer Hüllrohrtemperatur von 700 <sup>°</sup>C im Langzeitbetrieb vor. Für diesen Versuch sind die Stäbe weitgehend fertiggestellt.

+) KFK-Bericht 1271/3, S. 114-3

# Veröffentlichungen zu 114:

(1) S. Leistikow

Untersuchungen über das Korrosionsverhalten von austenitischen CrNi-Stählen und Nickellegierungen in überhitztem Wasserdampf. Allianz-Berichte Nr. 16 (1971) 41-50

- H.U. Borgstedt, G. Frees
   Relations between corrosion test results and a possible mechanism of liquid sodium corrosion.
   Symposium on Chemical Aspects of Corrosion and Mass Transfer in Liquid Sodium, Detroit, 19.-20. Oktober 1971
- (3) H.U. Borgstedt, G. Drechsler, G. Frees, Helga Schneider, G. Wittig Die Bestimmung der Sauerstoffkonzentration in Natriumkreisläufen. Reaktortagung 1971, Tagungsbericht S. 379

المحمد معرد معرف معرف الفرانس المعرد مسلح الما المحمد المعرفة المحمد المحمد التركي المعرد التركي المعرفة المحمد المسلح المحمد المحمول المحمد المحمد المتركة المعرد المحمد المحم المتركة المحمد المحم

e kar a stora stata in sue cuesti su sustano che statucenta su cue sano si e che cuesti a polo in E Successi cuesti stata e la sua atta cina cuesti cuesti e cuestas.

## 121 PHYSIKALISCHE EXPERIMENTE

1211 Experimentelle Reaktor- und Neutronenphysik

1211.1 Meßmethoden für Nulleistungsreaktoren

### Digitale Auswertung von Spaltspurdetektoren

(B. Goel, INR; R. Papp, IAR)

Für die Computerauswertung von Spaltspuraufnahmen sind Spuren mit möglichst großem Verhältnis von Länge zu Breite erwünscht. Da mit zunehmender Ätzdauer die Spurendicke stärker wächst als die Länge, ist man auf relativ kurze Ätzzeiten angewiesen. Bei sehr kurzen Ätzzeiten ergibt sich jedoch ein so geringer optischer Kontrast, daß die Spuren sehr schlecht zu erkennen sind. Man einigte sich daher auf eine Ätzdauer von 40 min bei 50 °C in 6n KOH. Damit konnten Spuren der Länge 17 bit und Breite 5 bit bei einer 250-fachen optischen Vergrößerung erzielt werden.

Eine für Eichzwecke angefertigte Bestrahlungseinrichtung wurde zur Feststellung der Zählverluste eingesetzt; dabei bediente man sich einer 10µCi starken Cf-252-Quelle.

Die Abbildung zeigt die mit dem Computerprogramm COUNT bzw. dem "CLASSIMAT" ermittelten Zusammenhänge zwischen wahrer und gezählter Spurendichte. Aus Vergleichsgründen wurden beide Auswertearten gleichzeitig durchgeführt, wobei die TV-Kamera für den CLASSIMAT im direkten Strahlengang, die für die Computerauswertung unter 90 <sup>o</sup> montiert war. Dadurch ergaben sich für letztere ein wenig schlechtere optische Bedingungen, sodaß andernfalls ein noch besserer Verlauf der "Computer-Kurve" erreichbar ist.

Beim CLASSIMAT machen sich die Zählverluste ab 1000 Spuren/mm<sup>2</sup> bemerkbar. Im übrigen entspricht die Kurvenform hier den theoretischen Überlegungen. Im Falle der Computerauswertung ist der Kurvenverlauf Gegenstand weiterer Untersuchungen.



Wie schon früher erwähnt, ist die Rechenzeit pro Spur relativ groß; aus Termingründen wurde derzeit auf eine völlige Umstellung des Programms verzichtet. Durch Veränderung einzelner Subroutinen konnte jedoch eine Zeitersparnis von zunächst 39 und dann nochmals 9% erreicht werden, sodaß man auf eine Rechenzeit von 1.6 sec pro Spur kam.

Die Einrichtung zur automatischen Fokussierung des Mikroskops wurde fertiggestellt und an den CLASSIMAT angeschlossen.

Messung und Berechnung des Spektrums einer unreflektierten Natururan-Anordnung (D. Rusch, INR; E. Wattekamps<sup>+</sup>, IAR)

# 1. Einleitung

Die Messung schneller Spektren ist selbst bei "reinen" Physik-Cores wie SNEAK-7A und 7B nur von begrenztem Wert, da sich die Korrektur eines bestimmten Wirkungsquerschnittwertes kaum aus der Diskrepanz zwischen gemessenen und berechneten Spektren ableiten läßt. Diese Schwierigkeit entsteht dadurch, daß das Core-Spektrum von verschiedenen Reaktionstypen vieler Isotope abhängt, die in einer heterogenen Struktur angeordnet sind, und daß das gemessene Spektrum nur bis auf etwa 10% genau ist. Es scheint daher ratsam zu sein, homogene Systeme mit möglichst nur einem Isotop zu untersuchen und durch Berechnung die besonderen Kennzeichen des Systems zu finden. Diese Kennzeichen, z.B. das Spektrum oder die Reaktionsraten, sollten eine erhöhte Empfindlichkeit gegenüber dem zu untersuchenden fehlerhaften Wirkungsquerschnitt haben, und die Empfindlichkeit sollte bezüglich der Genauigkeit der gemessenen Größe untersucht werden. Unsere rechnerischen Untersuchungen zeigen, daß das Leckage-Spektrum und das Zeit-Energie-Spektrum kleiner Kugeln mit einer äußeren Quelle im Zentrum stark von den inelastischen Querschnitten abhängen. Natururan, Strukturmaterial und Natrium sind besonders interessant, weil ihre (n,n')-Wirkungsquerschnitte nicht gut bekannt sind und diese Daten einen starken Einfluß auf die Genauigkeit von Schnellbrüterberechnungen haben.

+) Delegiert von EURATÔM

# 2. Theoretische Untersuchungen

## a) Energiespektren

Zur Auswertung des Einflusses von Ungenauigkeiten der inelastischen Streudaten sind Berechnungen mit dem MOXTOT-Satz und mit dem KFKINR-Satz durchgeführt worden. Der Vektorfluß an der Oberfläche einer Natururankugel mit einer 10 MeV-Quelle im Zentrum wurde mit dem eindimensionalen  $S_8$ -Code DTK berechnet. Eines der Ergebnisse wird in Abb. 2 gezeigt. Das Verhältnis der inelastischen Wirkungsquerschnittsdaten zwischen MOXTOT und KFKINR ist in derselben Abbildung zu sehen. Beide Sätze haben auch verschiedene (n,n')-Streumatrizen, sind aber im übrigen identisch, soweit es sich um andere Wirkungsquerschnitte für diese spezielle Zusammensetzung in dem interessierenden Energiebereich handelt.

Eine zweite theoretische Untersuchung betrifft das Verhältnis der Neutronenflüsse für zwei Anordnungen, nämlich eine Urankugel und dieselbe Urankugel mit einer sphärischen Uranumhüllung. Die hier interessierende Meßgröße ist das Verhältnis zwischen den Spektren der unreflektierten Kugel und der umhüllten Kugel. Dieses Verfahren empfiehlt sich besonders aus praktischen Gründen, da systematische Fehler in der spektroskopischen Meßanordnung reduziert werden und Mängel in der Neutronennachweiswahrscheinlichkeit des Detektors vermieden werden. Das Verhältnis zwischen den Werten, die sich bei Berechnung mit dem MOXTOT gegenüber dem KFKINR-Satz ergeben, zeigt Abb.2.

Das Spektrum einer unreflektierten Kugel und das Verhältnis der Spektren beider Anordnungen sind sehr empfindlich gegenüber Änderungen in den inelastischen Streudaten, und auch die Diskrepanzen zwischen den berechneten Werten sind größer als die Fehlergrenzen der spektroskopischen Versuchsanordnung.

> an an ann an Arran ann an Arrainn an Arrainn an Arrainn. An Arrainn a



## b) Zeit-Energie-Spektren

Das zeit- und energieabhängige Neutronenfeld nach dem Einschuß eines kurzen Neutronenpulses in eine Natururankugel wurde mit dem Karlsruher Monte-Carlo-Code berechnet. Die Berechnung wurde mit den KEDAK-Daten durchgeführt, und eine zweite Rechnung wurde mit denselben Daten gemacht, wobei jedoch die inelastischen Streuquerschnittdaten gleichmäßig um 20% erhöht waren. Diese Berechnungen dienten der Bestimmung der Emissionszeitverteilung, die für die Auflösungskorrektur in Flugzeitmessungen erforderlich ist, sowie zur Untersuchung des Einflusses der inelastischen Querschnittsdaten auf das Zeitverhalten des Neutronenfeldes. Nach Abb. 3 scheint unsere Rechnung zu dem Ergebnis zu führen, daß die zeitabhängigen Reaktionsratenverteilungen sehr empfindlich gegenüber Änderungen in Querschnittsdaten sind. Insbesondere zeigt die Energiegruppe 7, mit Energiegrenzen 821 - 498 KeV, Reaktionsratenänderungen um den Faktor 2 im Zeitgebiet von 0 - 20 ns für Wirkungsquerschnittsänderungen von nur 20%.

# 3. Experimenteller Aufbau

Die Natururananordnung "UNAT" wird in Abb. 5 gezeigt. Das Uranparallelepiped hat die Dimensionen 20,27 cm x 20,27 cm x 15,20 cm. Eine Strahlöffnung von 5.07 cm x 5.07 cm und 7,5 cm Tiefe läßt in der Mitte Raum zur Einpassung des Tritium-Targets des Deuteronenbeschleunigers. Leider ist die Geometrie des Systems nur eine grobe Näherung für eine Kugel mit 10,14 cm Radius. Wegen der begrenzten Zeit war es die beste Näherung für eine Kugel, die mit den verfügbaren Blöcken von 5,07 cm x 5,07 cm x 5,07 cm aufgebaut werden konnte. Die Zusammensetzung des Systems ist  $4.7405 \cdot 10^{22}$  U<sup>238</sup>-;  $3.4404 \cdot 10^{20}$  U<sup>235</sup>- und  $1.5713 \cdot 10^{20}$  Ni-Atome/cm<sup>3</sup>. Das Parallelepiped steht auf einer quadratischen Aluminiumplatte von 25 cm Seitenlänge und 0,8 cm Dicke und wird von vier kleinen Stahlbeinen getragen. Die rechte Seite des Parallelepipeds, die in Abb.5 zu sehen ist, kann mit einer Natururanplatte mit den Maßen 15,2 x 20,3 x 5,07 cm bedeckt werden ("UNAT + 5 cm").





Zur Messung des Spektrums des sehr schnell zerfallenden Neutronenflusses im Uranparallelepiped durch Flugzeitverfahren muß man sich die sehr schmale Startzeitverteilung zunutze machen. Sie erfordert einen kurzen Neutronenimpuls und Kurzzeitelektronik des Neutronendetektors. Um Neutronenimpulse von einigen nsec mit möglichst hoher momentaner Neutronenausbeute zu erhalten, wurde der verfügbare 200 KeV Deuteronenbeschleuniger durch ein Bündelungssystem verbessert. Dieses liefert, ausgehend von Impulsen von 70 nsec FWHM-Impulse von 2 ns am Target und vergrößert die momentane Ausbeute um einen Faktor von annähernd 25. Die Flugzeitdetektoren sind: ein Flüssigkeitsszintillator NE 213 von 4.5 inch Durchmesser und 3,5 inch Länge mit Pulsformdiskrimination, eine Bor<sup>10</sup>-Vaselinescheibe umgeben von 4 NaJ-Kristallen, und ein NE 905 Li<sup>6</sup>-Glas mit 1 inch Dicke und 4,5 inch Durchmesser. Die Bor<sup>10</sup>-Vaselinescheibe ist unser Vergleichsstandard, und ihre Empfindlichkeit sowie auch die Li<sup>6</sup>-Glas-Empfindlichkeit wurden mit dem Karlsruher KAMCCO-Code berechnet. Oberhalb 1 MeV wurde eine theoretisch berechnete Empfindlichkeit des Flüssigkeitsszintillators zugrunde gelegt, und unsere analytische Berechnung stimmt sehr gut mit der Berechnung von Verbinski et al. / 1 /überein.

# 4. Messungen und Ergebnisse

a) Emissionszeitverteilung

Um aus der Messung der Flugzeitverteilung die Energieverteilung abzuleiten, muß die effektive Flugzeit des Neutrons bekannt sein. Zur Bestimmung der energieabhängigen Emissionszeitverteilung durch ein Experiment wurden Transmissionsmessungen von Proben mit bekannten Resonanzenergien gemacht. Die Lage des beobachteten Minimums in der Transmission minus der theoretischen Flugzeit ergibt die wahrscheinlichste Emissionszeit bei der Resonanzenergie. Dieser Wert ist in Abb. 4 zusammen mit dem theoretischen Wert aufgetragen. Die theoretischen Werte wurden mit dem KAMCCO-Code erhalten.

/ 1\_/ V.V. Verbiski et al.

Calibration of an organic scintillator for neutron spectroscopy Nucl.Instr. & Meth. <u>65</u>. 8 (1968) Die Übereinstimmung mit der Theorie ist zumindest befriedigend, wenn man Auflösungskorrekturen der Flugzeitverteilungen berücksichtigt. Detailliertere Messungen zur Bestimmung der Form der energieabhängigen Emissionszeitverteilung werden gegenwärtig durchgeführt.

## b) Neutronenspektren

Das Spektrum von "UNAT" wurde mit Hilfe der Flugzeitmethode mit zwei Detektoren gemessen. Der Flüssigkeitsszintillator ist für den Energiebereich von 14 MeV bis hinunter zu 600 keV benutzt worden, während der Bor<sup>10</sup>-Vaselinedetektor hauptsächlich für niedere Energien Verwendung fand. Die gemessenen Spektren wurden auf gleiche Gesamtneutronenflüsse im Energiebereich von 0,8 MeV bis 1,4 MeV normiert. Innerhalb dieses Bereiches stimmen die integrierten Gruppenflüsse in 0,05 Lethargiebreite bis auf 2% oder noch besser überein. Das gesamte experimentelle Spektrum zeigt Abb. 6. Das gemessene Spektrum ist in Gruppenflüsse integriert, derart daß es der 208-KARCOS-Gruppenstruktur mit Lethargiebreiten von annähernd Au=0,05 entspricht. Die Glätte des gemessenen Spektrums zeigt den geringen statistischen Fehler. Unterhalb 10 keV werden systematische Fehler in der Bestimmung des Untergrundes wichtig wegen des ungünstigen Verhältnisses zwischen Signal und Untergrund.

Das gemessene Spektrum wurde mit einem Leckagespektrum verglichen, das mit dem 208-Gruppen KARCOS-DTK-S<sub>8</sub> ( $\mu$ =0,98) nach Kondensation der Energiegruppen in 106 Gruppen berechnet worden war. (vgl. auch Abb. 6). Die Berechnung wurde für eine Kugel von 10,14 cm Radius durchgeführt, wobei eine äußere Quelle mit einem Energiespektrum von 10,15 bis 10,5 MeV angenommen wurde, die sich in einer konzentrischen Kugel von 1,5 cm Radius befand. Die gemessenen und berechneten Spektren wurden auf gleiche Gesamtflüsse im Energiebereich von 10 keV bis 6,0 MeV normiert.

Der berechnete Fluß um 1,5 MeV ist signifikant kleiner als der gemessene Fluß, während es sich bei ungefähr 0,7 MeV umgekehrt verhällt. Diese Diskrepanz zeigt, daß der angenommene Wert im KARCOS-Satz für die inelastischen Wirkungsquerschnitte um 2 MeV um etwa 20% zu groß ist. Dieser Schluß wurde schon durch die integralen Experimente nahegelegt, und der KFKINR-Satz nahm bereits eine Korrektur dieser Größe an.



## c) Verhältnis der Neutronenspektren

Die gemessenen Spektren der Anordnung "UNAT" und "UNAT + 5 cm" werden in Abb. 7 oben gezeigt. Von besonderem Interesse ist das Verhältnis der Gruppenflüsse der beiden Anordnungen (Abb. 7 unten). Diese Verhältnisse wurden für jeden Detektor getrennt bestimmt. Jede Flugzeitverteilung ist auf eine gleiche 14 MeV Neutronenausbeute normiert. Das Verhältnis der Spektren zweier Anordnungen, die man mit zwei Detektoren erhalten hat, stimmen in ihrem gemeinsamen Energiebereich gut überein.

Die Berechnungen wurden durchgeführt in 208 Gruppen (KARCOS-DTK-S<sub>8</sub>;  $\mu$ =0,98) für eine Kugel mit dem Radius 10,14 cm bzw. 15,21 cm und eine äußere Quelle mit einem Energiespektrum von 10,15 - 10,50 MeV im Zentrum der Kugel. Die berechneten Verhältnisse zwischen den Spektren wurden von den berechneten Spektren, die auf eine gleiche Neutronenausbeute einer äußeren Quelle normiert sind, hergeleitet. Große Diskrepanzen zeigen sich zwischen den gemessenen und berechneten Verhältnissen. Die Form der Kurven wie auch die absoluten Werte unterscheiden sich um viel mehr als die experimentellen Fehler.

## 5. Schlußfolgerungen

Die theoretischen Untersuchungen zeigen, daß das Leckageenergiespektrum wie auch das Zeit-Energie-Spektrum einer kleinen Urankugel mit einer gepulsten 14 MeV-Quelle im Zentrum sehr empfindlich gegenüber Änderungen in den inelastischen Streuquerschnittsdaten sind. Der Deuteronenbeschleuniger mit 2 nsec Impulsbreite und die schnellen Neutronendetektoren erwiesen sich als zuverlässig und zur Messung schneller Neutronenspektren geeignet. Die Spektrumsmessungen an dem unreflektierten Natururansystem zeigen, daß der  $\sigma(n,n')$ -Wirkungsquerschnitt von U<sup>238</sup> in der Gegend von 2,0 MeV im MOXTOT-Satz um etwa 20% überschätzt wird. Damit man genauere quantitative Schlüsse ziehen kann, müssen die Berechnungen verbessert werden: durch die Erweiterung der Wirkungsquerschnittdaten von 10 MeV auf 14 MeV, durch eine detailliertere Beschreibung der Geometrie und durch Untersuchung des Einflusses konkurrierender Reaktionen wie z.B. schnelle Spaltung. Diese Probleme so wie eine konsistente Deutung der Spektrumsmessung an SNEAK-8, am Exponentialexperiment und "UNAT" werden zur Zeit untersucht. Mit derselben Technik sollen auch die inelastischen Streuquerschnittdaten von Strukturmaterialien, die für schnelle Brutreaktoren vorgesehen sind, untersucht werden.



Abb.7 MEASURED AND CALCULATED RATIOS OF THE "UNAT" TO "UNAT + 5 cm " ASSEMBLIES

# 1211.2 Ergänzungsexperimente zu den Nulleistungsreaktoren (Uranblock-Experiment)

# Spektrumsmessungen in einem abgereicherten Uranmetallblock zur Untersuchung von diskrepanten U-238 Wirkungsquerschnitten

(H. Bluhm, G. Fieg, H. Werle, INR)

# 1. Einleitung

Dieser Beitrag bringt erste Ergebnisse der Neutronenspektrumsmessungen in einem abgereicherten Uranmetallblock. Obwohl noch nicht alle Messungen vollständig ausgewertet wurden, erlauben diese Ergebnisse dennoch schon deutliche Aussagen über einige Wirkungsquerschnitte von U-238.

Der experimentelle Aufbau wurde bereits an anderer Stelle beschrieben  $f_1$ , Das Ziel des Experiments war es, durch einen detaillierten Vergleich von gemessenen und gerechneten Spektren Aussagen über den inelastischen Querschnitt und den Einfangquerschnitt von U-238 zu gewinnen. Die experimentellen Spektren wurden im Energiebereich von 10 keV bis 1.4 MeV mit Protonenrückstoßzählern und im Energiebereich von 100 keV bis 5 MeV mit He<sup>3</sup> gefüllten Halbleitersandwichzählern gemessen. Beide Meßmethoden sind bereits vielfach beschrieben worden  $f_2$ . Thre Zuverlässigkeit wurde durch eine Vielzahl von Vergleichsmessungen an sehr verschiedenen Anordnungen bewiesen, und ihre Fehler können daher im Energiebereich von 20 keV bis 4 MeV mit weniger als 10% angegeben werden.

# 2. Empfindlichkeit der Uranblockspektren gegen Änderungen der Wirkungsquerschnitte

Zur Untersuchung der Empfindlichkeit der Uranblockspektren gegen Änderungen der verschiedenen Querschnitte, haben wir eindimensionale 26-Gruppen-S8-Rechnungen mit dem DTK-Programm  $\sqrt{3}$  durchgeführt. Dabei sind wir von den Querschnitten des Gruba file ausgegangen und haben diese, orientiert an verschiedenen differentiellen Messungen, schrittweise verändert. Es stellte sich heraus, daß lediglich 5 Typen von Kerndaten für die Verhältnisse im Uranblock von Bedeutung sind:

 $\Sigma_{in}(238), \Sigma_{c}(238) \text{ (oder } \Sigma_{f}(235) \text{ )}, \Sigma_{f}(238), \nu(238) \text{ und } \nu(235),$ 

sofern man den totalen Querschnitt von U-238 und das Verhältnis von  $\Sigma_{\rm c}(238)/\Sigma_{\rm f}(235)$  konstant hält. Dennoch ist die Situation nicht einfach, da sowohl der totale inelastische Querschnitt als auch die inelastische Streumatrix von großer Wichtigkeit sind. Die einzelnen Querschnitte sind jedoch in verschiedenen Energiebereichen von sehr unterschiedlicher Bedeutung. So kann z.B. der Einfluß des Einfangquerschnitts auf das Spektrum oberhalb 1 MeV vernachlässigt werden, während der inelastische Streuquerschnitt unterhalb 100 keV nur noch geringe Bedeutung hat.

Abb. 8 zeigt den totalen inelastischen Streuquerschnitt, der zwischen 1.6 und 1.7 MeV ein breites Maximum besitzt. Wir haben bisher für zwei, in Abb. 8 mit SI 1 und SI 2 bezeichnete, Querschnittsverläufe Rechnungen durchgeführt. Die Spektren werden um den gleichen Betrag geändert, und die Struktur des Ausgangsquerschnitts wird im Verhältnis des ursprünglichen zum neuen Spektrum reproduziert (Abb. 12 unten; mit SO wird im folgenden stets der völlig unveränderte Querschnittssatz bezeichnet). Dargestellt sind in Abb. 12 nur die Ergebnisse für die Position 28 im Uranblock, d.h. 28 Zoll von der thermischen Neutronenquelle entfernt. Für den Ausgangsquerschnitt SO und den variierten Querschnitt SI 2 wurden auch mit 208 Energiegruppen Rechnungen durchgeführt. Das in Abb. 12 mit SO/SI 2 (308) bezeichnete Verhältnis wurde aus diesen beiden Rechnungen durch Zusammenfassung in 26 Energiegruppen gewonnen. Ein Vergleich mit der mit SO/SI2 bezeichneten Kurve zeigt, daß die Abweichungen nur sehr gering sind. Für Empfindlichkeitsuntersuchungen scheinen 26-Gruppen-Rechnungen daher adäquat zu sein. In Abb. 9 ist der ursprüngliche Einfangquerschnitt von U-238 zusammen mit zwei Variationen eingezeichnet. Die erste Änderung bezieht sich auf Messungen von Moxon / 4 7 und Poenitz / 5 7 und reduziert den Einfangquerschnitt im Energiebereich von 60 bis 300 keV um maximal 25%. Die zweite Änderung liegt etwas oberhalb der von Davey  $\frac{1}{6}$ , empfohlenen Kurve; sie erhöht den ursprünglichen Einfangquerschnitt zwischen 25 keV und 60 keV um höchstens 10% und reduziert ihn unterhalb 25 keV um etwa den gleichen Betrag. Wie man aus der Kurve SO/SCAPT1 in Abb. 12 unten sieht, ändert sich das Spektrum bei Einführung des Einfangquerschnitts SCAPT1 nicht nur im Energiebereich der Querschnittsänderung, sondern auch noch weit unterhalb und zwar in wesentlich verstärktem Maße: zwischen 10 und 20 keV macht diese Änderung bereits mehr als 40% aus. Der Querschnitt SCAPT2 dagegen führt im dargestellten Energiebereich nur zu einer geringen Spektrumsänderung von etwa 10% zwischen 21 und 46 keV.



## 3. Vergleich von gemessenen und berechneten Spektren

Die Abbildungen 10 und 11 zeigen zwei an den Positionen 16 und 28 mit He<sup>3</sup>- und Protonenrückstoßspektrometern gemessene Spektren zusammen mit den aus 208 Gruppen-Rechnungen mit unverändertem Querschnitt (SO) gewonnenen Spektren. Sie wurden zwischen 100 keV und 1.4 MeV auf gleichen Fluß normiert. Das Spektrum in Pos. 28 kommt zumindest im dargestellten Energiebereich dem asymptotischen Spektrum sehr nahe. Aus den Abbildungen 10 und 11 sowie aus der Darstellung der Verhältnisse von gerechneten zu gemessenen Spektren in Abb. 12 oben erkennt man einerseits die ausgezeichnete Übereinstimmung der gemessenen Spektren untereinander im überlappenden Energiebereich, andererseits die außerordentlich großen Differenzen zu den berechneten Spektren im Energiebereich von 10 keV bis 60 keV und von 800 keV bis mindestens 3 MeV. Die maximalen Abweichungen in diesen beiden Energiebereichen betragen mehr als 40%. Aus den unter Punkt I beschriebenen und in Abb. 12 unten dargestellten Empfindlichkeitsuntersuchungen wird deutlich, daß diese Änderungen nur auf  $\Sigma_{c}$  (238) und  $\Sigma_{in}$  (238) zurückzuführen sind. Betrachten wir zunächst das Verhältnis von berechnetem zu gemessenem Spektrum für die Pos. 28 im Energiebereich von 100 keV bis 4 MeV (Abb. 12 oben) und vergleichen es mit dem Verhältnis SO/SII in Abb. 12 unten. Man erkennt, daß die Absenkung der Verhältnisse bei 1.7 MeV etwa von gleicher Größenordnung ist. Mit dem gemessenen Spektrum ist die Absenkung jedoch nicht so breit und kommt oberhalb 3 MeV wieder näher an den ursprünglichen Wert des Verhältnisses zwischen 100 keV und 700 keV heran. Daraus können wir schließen, daß der mit SI2 bezeichnete Verlauf des inelastischen Querschnitts (Abb. 8) dem tatsächlichen Verlauf bereits bedeutend näher kommt, daß SI2 jedoch vermutlich oberhalb 2 MeV etwas zu stark erniedrigt wurde. Aus dem Verhältnis des gerechneten zum gemessenen Spektrum im Energiebereich zwischen 10 keV und 60 keV läßt sich unter Berücksichtigung der in Abschnitt I diskutierten außerordentlich starken Abhängigkeit des Spektrums vom U-238 Einfangquerschnitt in diesem Energiebereich schließen, daß der von Moxon  $\sqrt{4}$ , gemessene Einfangquerschnitt sicher viel zu tief ist und daß man im Gegenteil den Einfangquerschnitt im Energiebereich von 20 keV bis etwa 60 keV um 15 - 20% heraufsetzen muß.

Interessant ist ein Vergleich der hier gewonnenen Ergebnisse mit dem von Kiefhaber <u>/</u>7\_7 hauptsächlich aus k<sub>eff</sub>-Messungen an einer Reihe von verschiedenen Reaktoren gewonnenen KFKINR-Satz. Die Abb. 13 zeigt das Verhältnis der mit unserem Ausgangsquerschnittssatz S0 und dem KFKINR-Satz berechneten Spektren zusammen mit dem bereits in Abb. 12 dargestellten Verhältnis S0 zu gemessenem Spektrum für die Pos. 28. Man stellt eine ausgezeichnete Übereinstimmung zwischen 10 keV und 400 keV fest, während die Übereinstimmung oberhalb 400 keV nicht völlig befriedigend ist; hauptsächlich zwischen 400 keV und 800 keV ergeben sich große Abweichungen, die vermutlich darauf zurückzuführen sind, daß der inelastische Querschnitt im KFKINR-Satz in dieser Gruppe zu stark erniedrigt wurde.

#### Zusammenfassung

Die außerordentliche Empfindlichkeit der Uranblockspektren gegen Änderungen vom  $\Sigma_{c}$  (238) und  $\Sigma_{in}$  (238) ermöglicht es, trotz der noch recht unvollständigen Auswertung der Meßergebnisse bereits folgendes festzustellen:

- Der totale inelastische Querschnitt muß im Energiebereich von 800 keV bis 2 MeV um bis zu 40% erniedrigt werden. Oberhalb 2 MeV ist eine Reduktion um etwa 10 - 15% notwendig.
- Der Einfangquerschnitt von U-238 muß zwischen 20 keV und ungefähr
   60 keV um 15 20% erhöht werden (bezogen auf die Daten des Gruba file) und vielleicht unterhalb 20 keV erniedrigt werden.
- 3. Die Übereinstimmung der Spektren mit dem KFKINR-Satz ist generell befriedigend, lediglich zwischen 400 keV und 800 keV ergeben sich größere Abweichungen. Hier scheinen die im KFKINR-Satz eingeführten inelastischen Querschnitte zu niedrig zu sein.

# Literatur

- / 1\_7 H. Bluhm
  PSB, 4. Vierteljahresbericht 1970
  KFK 1270/4, S. 121-21
- [2]7 H. Bluhm PSB, 2. Vierteljahresbericht 1970 KFK 1270/2, S. 121-1
- [3]7 C. Günther, W. Kinnebrock Das eindimensionale Transportprogramm DTK KFK 1381 (1971)
- / 4\_7 M.C. Moxon The Neutron Capture Cross Section of U-238 in the Energy Region 0.5 to 100 keV Report AERE-R-6074 (1969)
- / 5\_7 H.O. Menlove, W.P. Poenitz Nucl. Sci. Eng. 33 (1968) 24
- [-6\_7] W.G. Davey An Analysis of the Neutron Capture Cross Section of U-238 between 1 keV and 15 MeV Nucl. Sci. Eng. 39, 337-360 (1970)

/ 7\_7 E. Kiefhaber KFKINR-Satz Private Mitteilung









ABB-12 COMP-OF CALC-AND MEASURE SPECTRA AT POS- 16 AND 28



. ..

formen en en en en en en en en

# 1213 SNEAK

1213.3 SNEAK-7

(P. Fehsenfeld, E.A. Fischer, P. McGrath, M. Pinter, W. Scholtyssek,H. Walze, IAR)

#### 1. Spektralindizes und Ratenbilanz

Ebenso wie in SNEAK-7A  $/ 1_{1}$  wurden auch in 7B die Spektralindizes, der Reaktivitätswert einer Cf-252-Quelle und des Corematerials gemessen. Die Meßmethoden wurden bereits früher beschrieben  $/ 1_{1}$ . Den Spaltratenmessungen in 7B liegen jedoch neue Spaltkammereichungen zugrunde. Die Masse der U<sup>235</sup>-Folie wurde von Meister und Kuhn (INR) angegeben, die Interkalibrierung gegen U<sup>238</sup> und Pu<sup>239</sup> von Scholtyssek (IAR) durchgeführt. Diese Scholtyssek-Meister (S-M)-Eichung liefert um 4.3% niedrigere absolute Spaltraten als die Cadarache-Eichung, die für SNEAK-7A verwendet wurde. Außerdem liegen  $\sigma_{f8}/\sigma_{f5}$  um 2% höher,  $\sigma_{f9}/\sigma_{f5}$  um 1% niedriger. Eine genaue Überprüfung der Eichung wird in nächster Zeit durchgeführt.

In Tabelle I sind die Spektralindizes nach der S-M-Eichung für beide Anordnungen SNEAK-7 zusammengestellt.

| Ta | be | 11 | e | 1 |
|----|----|----|---|---|
|    | _  |    | _ |   |

Spektralindizes in SNEAK-7 (Zellmittelwerte)

|                                  | Si                 | NEAK-7A | ************************************** | SNEAK-7B           |             |        |  |
|----------------------------------|--------------------|---------|--|--------------------|-------------|--------|--|
|                                  | Experiment         | Rechn   | ./Exp.                                 | Experiment         | Rechn./Exp. |        |  |
|                                  | мохтот             |         | KFKINR                                 | KFKINR             |             | KFKINR |  |
| σ <sub>f8</sub> /σ <sub>f5</sub> | 0.0449 <u>+</u> 3% | 0.785   | 0.88                                   | 0.0328 <u>+</u> 2% | 0.82        | 0.95   |  |
| σ <sub>f9</sub> /σ <sub>f5</sub> | 0.984 <u>+</u> 3%  | 0,915   | 0.965                                  | 0.975 <u>+</u> 2%  | 0.94        | 1.02   |  |
| <sup>o</sup> c8 <sup>/o</sup> f5 | 0.132 <u>+</u> 3%  | 0.98    | 1.02                                   | 0.126 <u>+</u> 3%  | 1.035       | 1.07   |  |

Der KFKINR-Satz gibt bessere Übereinstimmung für die Spaltraten, ist aber schlechter für die Einfangrate in U<sup>238</sup>.

Tabelle 2

Ratenbilanz in SNEAK-7

|    |  | SNEAL                 | K-7A                 |                        | SNEAK-  | 7B                      |
|----|--|-----------------------|----------------------|------------------------|---|-------------------------|
| a) | Überschüsse  | •<br>•                |                      |                        |   |                         |
|    | ν <sub>9</sub> -1  | 1.971 <u>+</u> 0.045  |                      |                        | 1.959 <u>+</u> 0.045  | (b)                     |
|    | (v <sub>8</sub> -1)R <sub>f8</sub> /R <sub>f9</sub>        | 0.249 <u>+</u> 0.008  |                      |                        | 0.457 <u>+</u> 0.0 <b>97</b>  | (a)                     |
|    | $(v_{5}^{-1})R_{f5}^{}/R_{f9}^{}$                          | 0.033 <u>+</u> 0.001  |                      |                        | 0.081 <u>+</u> 0.002  | (a)                     |
|    | (v <sub>40</sub> -1)R <sub>f40</sub> /R <sub>f9</sub><br>+ | 0.070                 |                      |                        | 0.063   | (b)                     |
|    | $(v_{41}^{-1})R_{f41}^{R}/R_{f9}$                          | 2 223+0 045           | (2 222)              |                        | 2 560+0 0/7   | (2.560)                 |
|    | ./. Verluste   | -2.445 <u>+</u> 0.077 | (-2.358)             |                        | -2.663 <u>+</u> 0.070   | (-2.567)                |
|    |  | -0.122 <u>+</u> 0.085 | (-0.035 <u>+</u> 0.0 | )85)                   | -0.103 <u>+</u> 0.085   | (-0.007 <u>+</u> 0.085) |
| b) | Verluste   |                       |                      |                        | e de la constante<br>Altra de la constante<br>Altr |                         |
|    | R <sub>c8</sub> /R <sub>f9</sub>                           | 0.405 <u>+</u> 0.012  | (0.388)              |                        | 0.952 <u>+</u> 0.030  | (0.913) <sup>(a)</sup>  |
|    | R <sub>c5</sub> /R <sub>f9</sub>                           | 0.007                 |                      |                        | 0.016   | (b)                     |
|    | $(R_{c40}^{+R}+R_{c41}^{-1})R_{f9}$                        | 0.023                 |                      |                        | 0.020   |                         |
|    | R <sub>cSt</sub> /R <sub>f9</sub>                          | 0.042                 |                      |                        | 0.066   | (b)                     |
|    | R <sub>L</sub> /R <sub>f9</sub>                            | 1.715 <u>+</u> 0.070  | (1.645)              |                        | 1 <b>.</b> 385 <u>+</u> 0.055   | (1.328) <sup>(a)</sup>  |
|    | ۵ <sub>9</sub>   | 0.253 <u>+</u> 0.030  |                      | ۰۰<br>۱<br>۱<br>۱<br>۱ | 0.224 <u>+</u> 0.030  |                         |

2.445<u>+</u>0.077 (2.358) 2.663<u>+</u>0.070 (2.567)

(a) experimenteller Wert

(b) berechneter Wert

Experimentelle Werte ohne Klammern: S-M-Eichung Experimentelle Werte in Klammern: Cadarache-Eichung

Die Leckrate R<sub>L</sub> kann nach [1] aus dem Reaktivitätswert des Corematerials erhalten werden. Damit läßt sich die Ratenbilanz aufstellen. Sie ist für beide Anordnungen in Tabelle 2 angegeben. Die S-M-Eichung wurde verwendet. Für Größen, die eine absolute Spaltratenmessung enthalten, ist in Klammern der Wert nach der Cadarache-Eichung beigefügt. Die berechneten v-Werte sind:  $v_5 = 2.470$ ,  $v_8 = 2.835$ ,  $v_9 = 2.959$ . Die Unsicherheit in den berechneten Größen wurde für  $v_9$  und  $\alpha_9$  zu 1.5% und 15% angenommen, für die übrigen vernachlässigt.

Für beide Anordnungen ergibt sich ein Defizit an Neutronen, das jedoch nur wenig außerhalb der geschätzten Standarda**bweich**ung liegt. Mit der Cadarache-Eichung liegt jedoch das Defizit deutlich innerhalb der Standardabweichung.

# 2. Materialwerte im Core-Zentrum

Die Materialwerte im Core-Zentrum wurden mit dem Pileoszillator gemessen. Die wichtigsten Ergebnisse für die Brennstoffisotope und einige Absorber sind für beide Anordnungen in Tabelle 3 zusammengestellt.

#### Tabelle 3

# Materialwerte im Core-Zentrum, 10<sup>-3</sup>\$/g

|                        | SNEAK-7A               |             |      | SNEAK-7B            |             |      |
|------------------------|------------------------|-------------|------|---------------------|-------------|------|
|                        | Provent and the second | Rechn./Exp. |      |                     | Rechn./Exp. |      |
|                        | Experiment             | Hom.        | Het. | Experiment          | Hom.        | Het. |
| u <sup>235</sup> 3 g   | 2.25 <u>+</u> 3%       | 1.24        | 1.21 | 1.265 <u>+</u> 2%   | 1.18        | 1.18 |
| v <sup>238</sup> 125 g | -0.110 <u>+</u> 3%     | 1.50        | 1.39 | -0.0670 <u>+</u> 2% | 1.38        | 1.35 |
| Pu <sup>239</sup> 2 g  | 3.03 <u>+</u> 2%       | 1.18        | 1.15 | 1.707 <u>+</u> 2%   | 1.07        | 1.07 |
| Pu <sup>240</sup> 3 g  | 0.72 <u>+</u> 8%       | 0.85        | 0.81 | 0.30 <u>+</u> 10%   | 0.86        | 0.84 |
| B <sup>10</sup> 0.3 g  | -55.2 <u>+</u> 2%      | 1.37        | 1.28 | -21.4 <u>+</u> 2%   | 1.25        | 1.18 |
| Ta 36 g                | -0.865 <u>+</u> 2%     | 1.92        | 1.34 | -0.320 <u>+</u> 2%  | 1.65        | 1.31 |
| Cf-252<br>(1/βνF)      | 2.04 <u>+</u> 4%       | 1.25        |      | 0.84 <u>+</u> 4%    | 1.18        |      |

# 121-28

Die Rechnungen wurden homogen, d.h. mit Störungstheorie 1. Ordnung, und außerdem mit dem Programm KAPER durchgeführt, das die Heterogenität von Probe und Umgebung berücksichtigt. Die Rechnung mit KAPER verbessert die Übereinstimmung wesentlich. Nimmt man an, daß die Cf-Messung die Reaktivitätsskala bestimmt, dann werden Pu<sup>239</sup> und Pu<sup>240</sup> unterschätzt, U<sup>238</sup> überschätzt, U<sup>235</sup> und B<sup>10</sup> werden gut berechnet. Es muß jedoch beachtet werden, daß der Cf-Wert von der Eichung der Spaltraten (hier S-M) abhängt; mit der Cadarache-Eichung würde der Meßwert um 4.3% höher liegen.

## Referenz

[1] KFK-1271/3, EUR-4723d - Abschnitt 1213.3

#### 121-29

# 1213.4 SNEAK-8

## Zellwert-Messungen, Spektralindices und Ratenbilanz

(W. Bickel, P. Fehsenfeld, E.A. Fischer, P. McGrath, M. Pinter,W. Scholtyssek, G. Wittek, IAR)

### 1. Einleitung

Die Anordnung SNEAK-8 ist ein reines Urancore mit einer zentralen Testzone, in der k<sub>oo</sub> etwa gleich Eins ist. Es wurden zwei Modifikationen untersucht, die in der Anreicherung etwas verschieden waren. Die Anreicherung betrug 5.87% in der Grundanordnung und 6.05% in der Modifikation SNEAK-8Z. Die Experimente sind abgeschlossen.

### 2. Zellwert-Messungen und Bestimmung von k

Die Zellwert-Messungen in der Grundanordnung wurden bereits beschrieben; sie wurden auch in der Modifikation 8Z durchgeführt. Die Ergebnisse sind in folgender Tabelle mit Rechnungen verglichen.

### Tab. 4: Gemessene und berechnete k

|          | Experiment    | Rechnung MOXTOT | Rechnung KFKINR |
|----------|---------------|-----------------|-----------------|
| SNEAK-8  | 1.0065+0.0015 | 0.9835          | 0.9985          |
| SNEAK-8Z | 1.018+0.003   | 0.9967          | 1.0115          |

Der KFKINR-Satz führt zu wesentlich besserer Übereinstimmung mit dem Experiment als der MOXTOT-Satz. Dies liegt an den besseren Daten für den inelastischen Streuquerschnitt von U<sup>238</sup> und für das Spaltspektrum.

### 3. Spektralindizes und Ratenbilanz

Die Spektralindizes  $\sigma_{f8}/\sigma_{f5}$  und  $\sigma_{c8}/\sigma_{f5}$  wurden mit Folien nach der Aktivierungsmethode gemessen. Zur Bestimmung der Einfangrate in U<sup>238</sup> wurde ein Ge(Li)-Detektor verwendet, der durch ein Am<sup>243</sup>-Präparat für Absolutmessungen geeicht war. Die Spaltraten sind auf die Spaltkammereichungen von Scholtyssek und Meister (vergl. 1213.3) normiert.

Die Raten wurden an mehreren Stellen der zentralen Einheitszelle, meist zwischen den Plättchen, gemessen. Nur die Spaltrate in U<sup>238</sup> zeigte eine merkliche Feinstruktur; sie ist für das Grundcore in Abb. 14 dargestellt. Die Meßpunkte stimmen gut mit der Rechnung überein, die mit dem KAPER-Programm und dem MOXTOT-Querschnittssatz durchgeführt wurde. Als Zellmittelwert für den Spektralindex  $\sigma_{f8}/\sigma_{f5}$  erhält man

$$\sigma_{fR} / \sigma_{fS} = 0.0224 + 3\%$$

Die gemessenen und berechneten Spektralindizes sind in folgender Tab. 5 zusammengestellt.

| SNEAK-8                          |                    |          |        |                    | SNEAK-8Z |        |
|----------------------------------|--------------------|----------|--------|--------------------|----------|--------|
| Experiment                       |                    | Rechnung |        | and the second     | Rechnun  | 3      |
|                                  |                    | MOXTOT   | KFKINR | Experiment         | MOXTOT   | KFKINR |
| <sup>σ</sup> f8 <sup>/σ</sup> f5 | 0.0224 <u>+</u> 3% | 0.01965  | 0.0227 | 0.0228 <u>+</u> 3% | 0.0200   | 0.0232 |
| <sup>o</sup> c8 <sup>/o</sup> f5 | 0.110 <u>+</u> 3%  | 0.1165   | 0.1206 |                    | 0.116    | 0.1203 |

Die gute Vorhersage der Spaltraten mit KFKINR deutet darauf hin, daß die inelastische Streuung von U<sup>238</sup> richtig erfaßt wird.

Die theoretischen Werte wurden durch nulldimensionale homogene Rechnung im Grundmode, d.h. mit Buckling, erhalten. Der Einfluß der Heterogenität auf die berechneten Spektralindizes ist vernachlässigbar.





Fig.14 Feinstruktur der Spaltrate R<sub>f8</sub> in U238

Die Ratenbilanz für das Grundcore wurde für das unendliche Gitter, d.h. für den fiktiven Fall  $B^2 = 0$ , aufgestellt. Die Umrechnung der Spektralindizes auf diesen Fall ergibt Korrekturen von weniger als 1%.

Die Größen  $v_5 = 2.474$ ,  $v_8 = 2.85$  sowie  $a_5 = 0.23$  und die Einfangrate  $R_{cSt}$  im Strukturmaterial wurden mit MOXTOT berechnet.

Mit dem Atomverhältnis  $N_8/N_5 = 16.04$  erhält man die Bilanz

|                             | Überschüsse                          | :                  |     | Ver1                              | uste |                    |      |
|-----------------------------|--------------------------------------|--------------------|-----|-----------------------------------|------|--------------------|------|
| $\frac{v_5}{k_{\infty}}$ –  | 1<br>No. 10 - 10 - 10                | 1.46 <u>+</u> 0.03 | (b) | R <sub>c8</sub> /R <sub>f5</sub>  |      | 1.77 <u>+</u> 0.05 | (a). |
| $(\frac{v_8}{k_{\infty}} -$ | 1 ) R <sub>f8</sub> /R <sub>f5</sub> | 0.66 <u>+</u> 0.02 | (a) | α <sub>5</sub>                    |      | 0.23 <u>+</u> 0.03 | (b)  |
|                             |                                      |                    |     | R <sub>cSt</sub> /R <sub>f5</sub> |      | 0.02               | (b)  |
|                             |                                      | 2.12 <u>+</u> 0.04 |     |                                   |      | 2.02 <u>+</u> 0.06 |      |

(a) gemessene Größe

(b) berechnete Größe

Für  $v_5$  und  $\alpha_5$  wurden Unsicherheiten von ca. 1% bzw. 15% angenommen. Es zeigt sich, daß in der Bilanz ein Überschuß von ca. 5% auftritt, der etwas außerhalb der Standard-Abweichung liegt.

Man kann die Bilanz in dem vorliegenden Core als einen Test auf die Messung der Einfangrate R<sub>C8</sub> auffassen. Die vorhandene Unstimmigkeit deutet dann darauf hin, daß die Einfangmessung etwas zu niedrig liegt. Die andere mögliche Erklärung ist die, daß die aus differentiellen Daten berechneten Größen  $\alpha_5$  bzw.  $\nu_5$  zu niedrig bzw. zu hoch sind. Welche Erklärung richtig ist, kann an dieser Stelle nicht entschieden werden.

#### Spektrumsmessungen an SNEAK 8

(H. Bluhm, G. Fieg, H. Werle, INR)

Im Zentrum (Pos. 17/20) der Grundanordnung von SNEAK 8 wurden Spektrumsmessungen mit Protonenrückstoßzählern und dem He<sup>3</sup>-Halbleiterspektrometer durchgeführt. Für die Messungen mit den Rückstoß-Zählern waren die Trimmstäbe 3 und 7 sowie der Regelstab nur teilweise eingefahren, für die Messungen mit dem He<sup>3</sup>-Spektrometer wurde der Reaktor kritisch mit einer Leistung von 0,2 W gefahren. Die Höhe der Detektoreinbauten betrug 17 cm bei den Rückstoß-Zählern und 10 cm für das He<sup>3</sup>-Spektrometer.

Es wurden kugelförmige Rückstoßprotonen-Zähler mit 2 und 4 atm  $H_2^-$  sowie 4 atm  $CH_4^-$ Füllung verwendet. Im Energiebereich unterhalb 100 keV wurde die  $\gamma$ -n-Diskriminationsmethode verwendet. Die Si-Detektoren des He<sup>3</sup>-Spektrometers hatten eine Fläche von 200 mm<sup>2</sup> und eine empfindliche Dicke von 200  $\mu$ .

Abb. 15 zeigt die gemessenen Spektren zusammen mit einem berechneten 208-Gruppen-Spektrum<sup>+)</sup>. Die beiden Messungen stimmen im gesamten überlappenden Energiebereich sehr gut miteinander überein. Gegenüber dem berechneten Spektrum bestehen Diskrepanzen im Bereich oberhalb 1 MeV und unterhalb 100 keV. Die Diskrepanz oberhalb 1 MeV ist mit Sicherheit auf falsche inelastische U<sup>238</sup>-Streuquerschnitte auf dem KEDAK-Band zurückzuführen.

+)<sub>E.A.</sub> Fischer, IAR


### 1215. Wirkungsquerschnittsmessungen

1215.1 Van-de-Graaff-Beschleuniger

# 1215.11 <u>Betrieb und Ausbau des Beschleunigers</u> (A. Ernst, S. Liese, D. Roller, J. Nadasdy, IAK)

Der Van-de-Graaff-Beschleuniger arbeitete im Berichtszeitraum zufriedenstellend. Er wurde 1185 Stunden für Messungen eingesetzt, davon 71% für Arbeiten für das PSB. Außerdem wurden Arbeiten am Strahlführungssystem zur Schaffung einer weiteren Experimentierregion durchgeführt, die bereits im nächsten Berichtszeitraum für Kerndatenmessungen genutzt werden soll.

### 1215.12 Resonanzen mittelschwerer Kerne

(H. Beer, R.R. Spender, F.H. Fröhner, J. Serman, IAK)

Die Analyse der totalen Wirkungsquerschnitte von  ${}^{62}$ Ni,  ${}^{64}$ Ni,  ${}^{50}$ Cr,  ${}^{52}$ Cr und  ${}^{54}$ Fe wurde abgeschlossen (1) (2). Die Ergebnisse der Auswertung für  ${}^{54}$ Fe sind in Tab. 1 zusammengestellt.

Ferner wurden für die Anfang 1970 gemessenen Einfangdaten von  ${}^{58}$ Ni,  ${}^{60}$ Ni und  ${}^{61}$ Ni die Strahlungsbreiten T $_{\gamma}$  der s-Wellen-Resonanzen und die Beiträge zum Resonanzintegral für die p-Wellen-Resonanzen bestimmt. Eine Veröffentlichung wird vorbereitet.

### 1215.13 Spaltquerschnittsmessungen

(F. Käppeler, R.R. Spencer, D. Roller, IAK)

Die Messung des Spaltquerschnitts von <sup>235</sup>U vom Frühjahr 1971 wurde wiederholt, wobei von uns selbst hergestellte und analysierte Radiatorfolien für die Flußmessung verwendet wurden. Im Bereich zwischen 600 und 1200 keV wurden 12 Messungen durchgeführt. Endgültige Werte werden erst nach Abschluß der Auswertung und einer Massenanalyse der Meßproben vorliegen.

121-36

Veröffentlichungen zu 1215.1:

- (1) H. Beer, R. Spencer, F.H. Fröhner
   Die totalen Wirkungsquerschnitte von <sup>62</sup>Ni, <sup>64</sup>Ni, <sup>50</sup>Cr und <sup>52</sup>Cr
   im Energiebereich 10 keV 300 keV.
   KFK 1517
- (2) H. Beer, R. Spencer, F.H. Fröhner, M. Cho Der totale Wirkungsquerschnitt von <sup>54</sup>Fe im keV-Energiebereich KFK 1516

Tab. 1 Multiniveau-Parameter aus der Formanalyse von Transmissionsdaten von Fe<sup>54</sup>

| Nuklid           | R'<br>(fm)     | <b>S</b><br>1999 - 1997 | <sup>E</sup> λ<br>(keV)         | T bzw. gT<br>n (keV) | l       |
|------------------|----------------|-------------------------|---------------------------------|----------------------|---------|
| Fe <sup>54</sup> | 4.0+0.2        | (8.0+3.0)10-            | <sup>4</sup> 7.68 <u>+</u> 0.01 | 1.01+0.01            | 0       |
|                  |                |                         | 30.696+0.004                    | 0.010+0.001          | >0      |
|                  |                |                         | 39.180 <u>+</u> 0.007           | 0.015+0.001          | >0      |
|                  |                |                         | 55.47 <u>+</u> 0.01             | 0.027+0.002          | >0      |
|                  |                |                         | 52.781 <u>+</u> 0.006           | 2.16+0.01            | 0       |
|                  |                |                         | 71.862+0.008                    | 1.77+0.01            | 0       |
|                  |                |                         | 98.52 <u>+</u> 0.02             | 0.51+0.02            | · · 0 · |
|                  |                |                         | 129.62+0,03                     | 3.00 <u>+</u> 0.06   | 0       |
|                  |                |                         | 147.13 <u>+</u> 0.04            | 2.75+0.06            | 0       |
|                  |                |                         | 159.0 +0.2                      | 0.18 <u>+</u> 0.03   | 0       |
|                  |                |                         | 163.9 +0.4                      | 0.08+0.03            | >0      |
|                  |                |                         | 173.87+0.05                     | 2.8 <u>+0.1</u>      | 0.0     |
|                  |                |                         | 191.2 +0.2                      | 42.4 +0.4            | 0       |
|                  |                |                         | 222.82+0.08                     | 1.74+0.06            | 0       |
|                  | a da ser artes |                         | 229.9 +0.2                      | 0.27+0.03            | 0       |
|                  |                |                         | 245.7 +0.2                      | 24.6 +0.5            | 0       |

Anmerkung

Im 3. Vierteljahresbericht (KFK 1271/3) wurden unter 1215.11 zwei Schreibfehler gefunden:

1.) S. 121-36, zweite Zeile. Es muß heißen:  ${}^{54}$ Fe statt  ${}^{54}$ Cr 2.) S. 121-38, Tab. 1. ${}^{62}$ Ni erste Zeile: E<sub> $\lambda$ </sub> = 42,879 <u>+</u> 0.008 keV statt 12.879

#### 122 REAKTORTHEORIE

#### 1221. Wirkungsquerschnitte und Gruppenkonstanten

#### Fertigstellung der KFKINR-Gruppenkonstanten-Datenbibliothek

(H. Bachmann, J. Braun, B. Hinkelmann, E. Kiefhaber, B. Krieg, D. Thiem, INR)

Der vorläufige KFKINR-Datensatz von Gruppenkonstanten  $\sqrt{1}$  wurde weiter überarbeitet und in seiner endgültigen Form fertiggestellt. Dabei ist von besonderer Bedeutung, daß zur Bestimmung der Gruppenkonstanten für die elastische Abwärtsstreuung als Wichtungsfunktion die Stoßdichte des SNR, also eines schnellen, natriumgekühlten Reaktors, verwendet wurde. Außerdem wurde erreicht, daß durch die teilweise Vorwegnahme der sog. REMO-Korrektur die Auswirkung einer exakten Behandlung der REMO-Korrektur in Routine-Rechnungen für den SNR vernachlässigt werden kann. Für die am SNR-Project beteiligten Firmen Interatom und Belgonucléaire bedeutet dies eine erhebliche Vereinfachung und Erleichterung des zur nuklearen Reaktorauslegung notwendigen Berechnungsverfahrens, ohne daß die Genauigkeit und Zuverlässigkeit der Rechnungen nennenswert beeinträchtigt wird.

Eine detaillierte Beschreibung der durchgeführten Änderungen der Gruppenkonstanten gegenüber den im MOXTOT-Satz / 2/ enthaltenen Werten wird in einem ausführlichen Bericht erfolgen. Einige bedeutende Änderungen sollen hier erwähnt werden:

- 1.) Für U-235 werden die  $\alpha$ -Werte von U-235 ( $\alpha = \sigma_c / \sigma_f$ ) unterhalb 1 keV erheblich reduziert.
- 2.) Beim Einfangquerschnitt von U-238 wurde darauf geachtet, daß die Gruppenkonstanten mit den Ergebnissen von neueren differentiellen Messungen des Querschnittsverhältnisses von  $\sigma_{c}$  (U-238)/ $\sigma_{f}$  (U-235) vertäglich sind.
- 3.) Außerdem wurden für U-238 die Gruppenkonstanten für die inelastische Streuung reduziert und die Spektren der inelastisch gestreuten Neutronen derart modifiziert, daß die Verteilung zu höheren Energien hin verschoben wurde.
- 4.) Die Gruppenkonstanten für Pu-239 basieren weitgehend auf der neueren Karlsruher Auswertung von Hinkelmann  $\sqrt{3}$ .

- 5.) Die Gruppenkonstanten für den totalen Querschnitt von U-235, U-238 und Pu-239 wurden aufgrund der neueren Messungen von Cabe et. al.  $\underline{/4}$ , verändert.
- 6.) Die Gruppenkonstanten in der thermischen (26.) Gruppe wurden als Mittelwerte über ein Maxwell-Spektrum festgelegt.
- 7.) Für C und H wurden zusätzlich Gruppenkonstanten bestimmt, bei denen das Wichtungsspektrum aus einem 1/E-Spektrum (zwischen 0,215 eV und 2.5 MeV) und einem Spaltspektrum (zwischen 2.5 MeV und 10.5 MeV) bestand.

Für den Test des verbesserten Satzes von Gruppenkonstanten haben wir zunächst die gleichen experimentellen Ergebnisse aus Messungen an kritischen Anordnungen benutzt, die bereits bei den zum MOXTOT-Satz  $\int 27$  führenden Studien verwendet wurden, der als Grundlage für den verbesserten Datensatz angesehen werden kann. Die Abweichung zwischen gemessenen und gerechneten Kritikalitätswerten lag im allgemeinen innerhalb eines Bereichs von <u>+</u> 1%. Bei den zwei festgestellten Ausnahmen, nämlich SUAK-UH1B und SNEAK-5C, sind eventuell die gegenwärtig verfügbaren Berechnungsmethoden noch nicht genügend genau; daher können die größeren Kritikalitäsdifferenzen nicht unbedingt ausschließlich auf Unstimmigkeiten in den Gruppenkonstanten zurückgeführt werden. Außer den bereits für frühere Vergleiche zwischen Theorie und Experiment benutzten kritischen Anordnungen wurden weitere Anordnungen als Testfälle nachgerechnet, u.a. SNEAK-6A, SEFOR-1C, ZEBRA-8H, ZPR IX-25. In allen Fällen wurde eine befriedigende Übereinstimmung zwischen berechneten und gemessenen Kritikalitätswerten festgestellt.

Die mit dem neuen KFKINR-Gruppenkonstantensatz berechneten Reaktionsratenverhältnisse befinden sich in recht guter Übereinstimmung mit den als verläßlich anzusehenden experimentellen Resultaten; insbesondere für die Anordnung SNEAK-6D wurde eine deutliche Verbesserung gegenüber den mit früheren Gruppensätzen erzielten Resultaten erreicht. Lediglich bei der Einfangrate in U238 besteht noch eine nennenswerte Diskrepanz von etwa 5% zwischen Theorie und Experiment. Mögliche systematische Fehler sowohl in den differentiellen Querschnittsmessungen erlauben augenblicklich keinen eindeutigen endgültigen Schluß auf die Korrektheit der experimentellen und theoretischen Werte für die Einfangsrate in U-238. Die vorliegenden Testrechnungen für eine große Anzahl kritischer Anordnungen haben gezeigt, daß der jetzt verfügbare KFKINR-Gruppenkonstantensatz als gesicherte Basis für die beim Entwurf schneller Leistungsreaktoren notwendigen nuklearen Auslegungsrechnungen angesehen werden kann. Eine weitere Überprüfung an experimentellen Resultaten aus schnellen Testreaktor-Anordnungen wie SNEAK, MASURCA, STEK, SUAK, STARK, ZPR-III, ZPR-VI, ZPR-IX, ZPPR und ZEBRA wird notwendig sein. Es ist zu hoffen, daß dabei die bisherigen guten Erfahrungen im wesentlichen bestätigt werden, so daß eine gesteigerte Sicherheit bei der Anwendung dieses Gruppensatzes erreicht werden kann. Es ist zu erwarten, daß sich auch Möglichkeiten und Notwendigkeiten für weitere Verbesserungen zeigen werden, vor allem im Hinblick auf Spaltprodukte und Strukturmaterialien, für die gegenwärtig noch keine ausreichend umfangreiche und genaue Imformation vorhanden ist.

#### Literatur:

| <u>/</u> 1_7 | E. Kiefhaber<br>KFK 1271/1, S. 122-14 (1971)                                    |
|--------------|---|
| <u>/</u> 2_7 | E. Kiefhaber, J.J. Schmidt et. al<br>KFK 969, EANDC (E) - 118 "U", (1970)       |
| <u>/</u> 3_7 | B. Hinkelmann<br>KFK 1340 (1971)  |
| <u>/</u> 4_7 | J. Cabe et. al.<br>Second International Conference on Nuclear Data for Reactors |

Helsinki 15 - 19 June 1970, paper IAEA - CN - 26/68

#### a the second second second

.

#### 123 SICHERHEIT SCHNELLER REAKTOREN

#### 1232 Spannungs- und Verformungsanalysen von Reaktorbauteilen

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

# 1232.4 <u>Verhalten von Reaktorbauteilen unter dynamischer Belastung bei</u> <u>Störfällen</u>

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

Die Auswertung der Simulationsexperimente zur Auswirkung der Brennstoff-Natrium-Reaktion auf die Corestruktur (vergl. 1235) erfordert ergänzende und vertiefende theoretische und experimentelle Untersuchungen über das Verhalten des Kernverbandes unter dynamischer Belastung. Ein Programmentwurf für diese Vorhaben wurde erstellt. Danach umfaßt die erste Phase dieses Vorhabens die folgenden Aktivitäten:

- 1) Literaturstudie zum Stoffverhalten und zu Stoffgesetzen von metallischen Werkstoffen unter dynamischer Belastung.
- 2) Studien zur Theorie der Faltwerke bei großen Deformationen.
- Die Entwicklung eines Rechenmodells zur statischen und dynamischen Analyse eines hexagonalen Einzelkastens unter Innen- und Außendruckbelastung.
- 4) Die Entwicklung eines Modells zum dynamischen Verhalten von einer bzw. zwei Brennelementreihen.
- 5) Statische und dynamische Experimente an einem Einzelkasten unter Berücksichtigung der hydrodynamischen Kopplung. Ziel ist die Überprüfung der theoretischen Modelle.

Die in der ersten Phase gewonnenen Erkenntnisse und die Erfahrungen aus den Simulationsexperimenten (Vorhaben 1235) sollen als Grundlage für die als Fernziel angestrebte Entwicklung eines "integralen Multireihenmodells" dienen. Dieses Modell soll dann die Deformation einer größeren Corezone bei vorgegebenem Druck-Zeitverlauf beschreiben. Mit der Literaturstudie zum Stoffverhalten wurde begonnen.

#### 1233 Lokale Kühlungsstörungen

#### 1233.1 Strömungs- und Temperaturverteilung im Bereich lokaler Kühlkanalblockaden

Berechnung von Temperaturfeldern in Brennelement-Bündeln bei Stabauslenkung (W. Baumann, IRB)

Die Störwirkung ausgelenkter Brennstäbe auf das Temperaturfeld im Bündel wurde mithilfe einer Version des MISTRAL-Codes für 169-Stabbündel  $\int 1_{\overline{1}}$  untersucht.

Die Rechnungen sollten zeigen, wie weit sich die Störungen im Bündel ausbreiten. Sie sollten damit den Einfluß der Wärmeleitung und der Quervermischung des Kühlmittels als Ausgleichsfunktion demonstrieren und zugleich die Grunlage für die Auslegung geeigneter Versuchsbündel schaffen.

Die gewählten Eingangsparameter bezogen sich auf den SNR. Der Zentralstab des Bündels wurde um die Strecken 0,25 mm, 0,5 mm, 0,75 mm und 1 mm über die ganze Länge gleichmäßig ausgelenkt.

Die schwerpunktmäßig (makroskopisch) bestimmten Kühlmitteltemperaturen ergaben sich aus der Wechselwirkung aller Kühlkanäle des Bündels.

Bei der Anpassung der Austauschparameter an die Gegebenheiten der gestörten Bündelgeometrie mußten programmtechnische Vereinfachungen des MISTRAL hingenommen werden, die eine Beeinflussung der Ergebnisse zur pessimistischen Seite hin zur Folge hatten  $\sqrt{2}$ .

Die für den Brennelementaustritt berechneten Kühlmitteltemperaturen für Imm Stabauslenkung sind in Abb. 1 in Form einer Wandtraverse dargestellt. Die hohen adiabat berechneten Temperaturen werden durch Wärmeleitung des Kühlmittels nur schwach reduziert.

Eine wesentlich günstigere Temperaturverteilung entsteht erst durch zusätzliche Einführung der Kühlmittelquervermischung. Den Temperaturverlauf in den Primär-, Sekundär- und Tertiärkanälen zeigt Abb. 2 für 1 mm Stabauslenkung und Austausch durch Wärmeleitung und Kühlmittelquervermischung. Die Variation

(a) A second to the term of the control of the control of the term when the terms of the second to the term of term

beträgt in den Sekundärkanälen 42%, in den Tertiärkanälen 14% der Primärvariation. Da die gestörten Kanäle auf den Ausgangspunkt der Störung zurückwirken, muß gefordert werden:

Das Problem der Stabauslenkung ist stets durch die Miteinbeziehung unmittelbar und mittelbar angrenzender Kanalbereiche zu lösen.

Die maximalen Übertemperaturen sind in Abb. 3 als Funktion der Stabauslenkung für 3 Fälle dargestellt:

- a) adiabate Berechnung der Kühlkanaltemperaturen
- b) Verknüpfung der Kanäle durch Wärmeleitung
- c) Verknüpfung der Kanäle durch Wärmeleitung und Quervermischung des Kühlmittels.

Die Übertemperatur steigt mit zunehmender Stabauslenkung progressiv an. In allen Fällen trägt die Wärmeleitung nur etwa zu 30% zur Senkung der Maximaltemperatur bei.

#### Literaturhinweise:

/1/ W. Baumann

MISTRAL, thermodydraulischer Mischströmungsalgorithmus für Stabbündel - ein digitales Rechenprogramm zur Ermittlung örtlicher Temperaturen und Massenströme in Brennelementen mit 169 Stäben unter Berücksichtigung der Kühlmittel-Quervermischung und des Energieaustausches durch Wärmeleitung -

November 1971 (unveröffentlicht)

/2/ W. Baumann

Temperaturfelder von Brennelementbündeln bei Stabauslenkung. Januar 1972 (unveröffentlicht)

[3] W. Baumann, H. Hoffmann Coolant Cross-Mixing of Sodium Flowing In-Line through Multi-Rod Bundles with Different Spacer Arrangements. 1971 International Seminar 'Heat Transfer in Liquid Metals', Trodir/Jugoslawien, Sept. 1971



Abb. 1: Kühlmitteltemperatur im Austrittsquerschnitt eines 169-Stabbündels **9**= t<sub>aus</sub> - (t<sub>aus</sub>)<sub>m</sub>

bei um 1 mm ausgelenkten Zentralstab(Wandtraverse)

Abmessungen: SNR Beheizung: 600 W/cm Mischrate: 5 %/cm [3]



Abb. 2: Kühlmittel-Temperaturverteilung um den um 1 mm ausgelenkten Zentralstab bei Berücksichtigung von Wärmeleitung und Kühlmittel-Quervermischung.



Abb. 3: Maximale Kühlmitteltemperatur im Austrittsquerschnitt eines 169-Stabbündels **3**= t<sub>aus</sub>-(t<sub>aus</sub>)<sub>m</sub>

als Funktion der Stabauslenkung Bezugspunkt ist die mittlere Kühlmittel-Austrittstemperatur.

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

Die Versuche zur Beobachtung der Strömungsform hinter lokalen Kühlkanalblockaden mit dem Modell eines in Längsrichtung halbierten Brennelements (Abb. 4) wurden abgeschlossen. Eine erste Auswertung dieser Versuche brachte folgende Ergebnisse (vgl. auch Tab. 1):

- Bei undurchlässiger Blockade wird auch in der Stabbündelgeometrie wie erwartet - eine ausgeprägte Rezirkulationszone mit Strahleinschnürung ausgebildet. Ein geringer Restdurchsatz führt zum Abheben der Rezirkulationszone, ohne daß diese sonst wesentlich verändert wird. Der Abstand zwischen Rezirkulationszone und Blockade nimmt mit steigendem Restdurchsatz zu, und zwar von etwa 5 mm bei einem Restdurchsatz von etwa 1% des Gesamtdurchsatzes auf etwa 15 mm bei einem Restdurchsatz von etwa 5%. Bei einem Restdurchsatz von etwa 15% ist die Rezirkulationszone aufgelöst.
- Form und Volumen der Rezirkulationszone sind im untersuchten Bereich unabhängig von der Re-Zahl. Dies bestätigt die Ergebnisse der Bestimmung von Form und Volumen der Rezirkulationszone aus der Verteilung des statischen Drucks (s. KFK 1271/1).
- Die Lage des hinteren Staupunkts der Rezirkulationszone, die aus der Druckverteilung nur ungenau zu ermitteln war, läßt sich aus den Hochfrezquenzfilmen sehr viel genauer bestimmen. Für vergleichbare Versuche werden die aus der Druckverteilung ermittelten Ergebnisse auch hier bestätigt.

# 1233.2 Untersuchungen zum lokalen Sieden im Natrium-Siedekreislauf (W. Peppler, K. Schleisiek, IRE)

Es wurden zwei Versuchsreihen zum lokalen Sieden mit der Negativbündel-Teststrecke (16 Unterkanäle) durchgeführt. Die Versuchsparameter lagen in folgendem Bereich:

Kühlmittelgeschwindigkeit0,5 - 2,5 m/secWärmestromdichte $60 - 160 \text{ W/cm}^2$ Druck0,4 - 1,2 ata



Abb. 4: Momentaufnahme des Strömungsbildes hinter der Blockade (Belichtungszeit 1/250 sec, Durchsatz  $\dot{v} = 50 \text{ m}^3/\text{h}$ , zentrale Lage der Blockade, kein Restdurchsatz; zur besseren Sichtbarmachung ist hier als Frontplatte statt der sonst verwendeten profilierten eine glatte durchsichtige Wand eingesetzt worden). Auswertung der Versuche mit Restdurchsatz bei zentraler Lage der Blockade

| d     | F <sub>d</sub> /F <sub>Bl</sub> | m <sub>d</sub> /M | v                   | Re                     | L/D         | S      |
|-------|---------------------------------|-------------------|---------------------|------------------------|-------------|--------|
| [mm ] | [1]                             | [1]               | [m <sup>3</sup> /h] | [1]                    | [1]         | [ mm ] |
| 0,0   | 0,0                             | 0,0               | 52                  | 3,00 · 10 <sup>4</sup> | 1,57 ± 0,07 | 0      |
| 0,5   | 0,015                           | 0,008             | 50                  | 3,34 · 10 <sup>4</sup> | 1,50 ± 0,04 | 5      |
| 1,0   | 0,061                           | 0,054             | 50                  | 3,23 · 10 <sup>4</sup> | 1,50 ± 0,04 | 15     |
| 1,5   | 0,136                           | 0,162             | 50                  | 3,13 · 10 <sup>4</sup> |             | -      |

d: Durchmesser der Bohrungen in den blockierten Unterkanälen; F<sub>d</sub>: Fläche aller Bohrungen; F<sub>Bl</sub>: Fläche der Blockade (einschl. Bohrungen, ohne Querschnittsflächen der Stäbe) = 41 <sup>o</sup>/o des gesamten Strömungsquerschnitts; m<sub>d</sub>: Massenstrom durch alle Bohrungen, abgeschätzt aus dem Druckunterschied zwischen Ober- und Unterseite der Blockade, gemessen <u>ohne</u> Restdurchsatz; M: Gesamtmassenstrom durch die Teststrecke; V: Durchsatz durch die Teststrecke; Re: Reynoldszahl im ungestörten Bereich der Teststrecke; L: Länge der Rezirkulationszone; D: Eckmaß der Blockade (größte radiale Abmessung); s: Ungefähre Distanz zwischen Oberseite der Blockade und Unterseite der Rezirkulationszone

Die Versuche werden zur Zeit ausgewertet. Zum Ablauf der Siedevorgänge können jedoch schon einige vorläufige Aussagen gemacht werden. Es wurden Siedeverzüge zwischen einigen <sup>O</sup>C und mehr als 100 <sup>O</sup>C gemessen. Niedrige Siedeverzüge traten fast immer bei den höheren Kühlmittelgeschwindigkeiten auf. Die Siedevorgänge begannen dann mit kleinen Blasen und hohen Frequenzen (> 10 Hz). Eine Verringerung der Kühlmittelgeschwindigkeit während des Siedevorganges führte zur Bildung größerer Blasen mit längerer Lebensdauer, ohne daß sich dabei die Temperaturen im Siedebereich wesentlich erhöhten.

Hohe Siedeverzüge traten bevorzugt bei niedrigen Geschwindigkeiten auf. Wegen des ungünstigen Verhältnisses des gestörten Querschnitts zum Gesamtquerschnitt und der kleinen Druckdifferenzen führten hohe Siedeverzüge fast immer unmittelbar zu einer Kühlmittel-Instabilität und zur Ausbildung trockener Stellen im Bereich der Störung. Dieses Ergebnis kann auf Reaktorbedingungen nicht übertragen werden, insbesondere weil das o.g. Verhältnis bei Blockaden im Brennstabbündel sehr viel günstiger ist.

Eine endgültige Interpretation der Versuche ist erst nach Abschluß der Auswertung möglich.

# 1233.3 <u>Brennelementverhalten unter Siedeverzug (BEVUS)</u> (M. Cramer, IRE)

Im 4. Quartal 1971 wurde neben der Auswertung der BEVUS I - Experimente die Versuchsapparatur für die zweite Versuchsserie bereitgestellt. Die Arbeiten an der Versuchsapparatur umfaßten u.a. eine Erweiterung der Instrumentierung.

Beim ersten Versuch der BEVUS II - Experimente fiel eine größere Anzahl von Heizern aus, sodaß der Versuch abgebrochen werden mußte. Als Ursache der Heizerausfälle erwies sich Kohlenstoff aus einem Bindemittel im Asbest. Der Kohlenstoff war verdampft und hatte stromleitende Niederschläge gebildet, die zu Kurzschlüssen führten.

## 1233.5 <u>Theoretische Untersuchungen zum integralen Sieden</u> (P. Wirtz, IRE)

Es wurde mit der Erstellung eines Modells zur Beschreibung des Siedens in Na-gekühlten Reaktoren begonnen. Das Modell soll den Siedevorgang und die Ejektion des Na aus einem Brennelement (BE) beschreiben als Folge schwerer hypothetischer Unfälle bzw. der ganzen oder teilweisen Blockade einzelner BE. Es ist vorgesehen, das Modell in ein Programmsystem zur Behandlung der ortsabhängigen Dynamik als Modul einzufügen. Der generelle Aufbau des Programms gewährleistet volle Kompatibilität mit dem zweidimensionalen Dynamik-Programm RADYVAR.

Das theoretische Modell wurde gegenüber BLOW 2 in entscheidenden Punkten erweitert. Das betrifft nicht nur die Simulationsmöglichkeiten zu betrachtender Störfälle sowie ausreichende Repräsentation der Reaktorgeometrie, sondern auch die Vorstellungen zum Sieden selbst. Der Ejektionsvorgang des Na wird durch eine Folge von Einzelblasen beschrieben. Die sich während der Ejektion ausbildende Zweiphasenströmung, die das Gesamt-Durchsatzverhalten sowie das mögliche Austrocknen (Dryout) eines BE beeinflußt, wird berücksichtigt.

Der den einphasigen Kühlmittelzustand beschreibende Programmteil ist fertiggestellt und getestet. Die Programme zur Beschreibung des Siedens werden z.Zt. erstellt.

#### 1236 Untersuchungen zu "Brennstoff-Natrium-Reaktionen"

#### Vergleichsstudie (G. Koutsouvelis, IRE)

Im Rahmen der Untersuchungen des IRE zur "Brennstoff-Natrium-Reaktion" (BNR) wurde eine vergleichende Studie über neuere theoretische Modelle durchgeführt.

Ein wesentliches Ergebnis dieser Studie ist, daß die einzelnen Teilphänomene, wie z.B. die Fragmentation und Dispersion des Brennstoffes, der Mechanismus des Wärmetransportes Brennstoff/Kühlmittel, die für den Ablauf der Reaktion, insbesondere für den zeitlichen Druckverlauf maßgebend sind, bisher theoretisch nicht faßbar sind.

Diese Lücken werden in den existierenden theoretischen Modellen durch Annahmen bzw. durch Parameter abgedeckt. In Anwendungsrechnungen werden diese Parameter über weite Intervalle variiert, bzw. für die Interpretation von Experimenten an die Versuchsergebnisse angepaßt. Diskussion verschiedener Modelle zur Beschreibung der Brennstoff-Natrium-Reaktion (H. Jacobs, H. Küsters, K. Thurnay, INR)

#### 1. Einleitung

Das Ziel einer im INR durchgeführten Untersuchung bestand darin, die wesentlichsten Charakteristika der Modelle zur Beschreibung der BNR herauszustellen und die Ergebnisse im Hinblick auf die verfügbare mechanische Arbeit zu diskutieren. In der Untersuchung wird die Frage der Übertragbarkeit der Modelle auf Unfälle der schnellen Leistungsreaktoren erörtert. Mögliche Erklärungen für die Unterschiede in der Energieausbeute zwischen Brennstoff/Natrium und Brennstoff/Wasser-Reaktionen werden gegeben.

#### 2. Modelle zur Beschreibung einer BNR

Eine obere Grenze für die bei der BNR freiwerdende mechanische Energie liegt dann vor, wenn geschmolzener Brennstoff mit dem umgebenden flüssigen Natrium instantan und homogen vermischt wird und man das Wärmeangebot des Brennstoffes durch adiabatische Expansion des Brennstoff-Natrium Gemisches auf 1 atü Enddruck in Arbeit umwandelt. Das für diesen Fall von <u>Hicks und Menzies / 1 /</u> entwickelte Verfahren erfaßt also nicht die beim Mischprozess durch zahlreiche Experimente nachgewiesene endliche Partikelverteilung des Brennstoffs im Natrium und vor allem nicht den zeitlichen Verlauf der Druckentwicklung, der für die mechanische Beanspruchung der Reaktorstruktur von entscheidender Bedeutung ist.

Alle weiterführenden Modelle führen daher zunächst eine Mischzone ein, in der Brennstoffpartikel eines repräsentativen Durchmessers ihre Wärme an das Natrium übertragen. Der transiente Charakter dieses Wärmeübertragungsvorganges und der entsprechenden Druckentwicklung wird durchweg in eindimensionaler Geometrie dargestellt.

Bei <u>Padilla / 2, 3 / wird die Wärmeübertragung der gleichmäßig im</u> Natrium der Mischzone verteilten Brennstoffpartikel durch Lösung des Wärmeleitproblems für kugelförmige Partikel bestimmt. In dieser Phase der Wechselwirkung wird kein Na-Dampf oder Gas (Spaltgas) in der Mischzone angenommen. Der Temperaturanstieg der Mischzone führt zur thermischen Ausdehnung des flüssigen Natriums, wobei die Expansionsrate aus der Ausbreitung einer Druckwelle in der oberhalb der Mischzone befindlichen kompressiblen Natriumsäule bestimmt wird (Akustische Näherung). Die Wärmeübertragung an das Natrium wird verfolgt bis zu dem Zeitpunkt, bei dem der Na-Druck kleiner als der Sättigungsdruck in der Mischzone wird. Dann setzt Na-Verdampfung ein, und die restliche Arbeit wird berechnet aus einer adiabatischen Ausdehnung des Na in der Mischzone. Dieses Modell führt zu Spitzendrücken in der Größenordnung von 1000 atm.

In den Arbeiten von <u>Cho et. al. / 4...8</u> wird im Unterschied zu Padilla das Wärmeleitungsproblem Partikel-Na nur näherungsweise gelöst. Weiterhin wird der Effekt eines in der Mischzone vorhandenen Gases (Spaltgas) untersucht.

Parametrische Untersuchungen zeigen den Unterschied im Druckzeitverlauf bei angenommener kompressibler bzw. inkompressibler Na-Säule außerhalb der Mischzone. Wärmeübertragung von der Mischzone an diese Säulen findet nicht statt. Zwei wichtige Ergebnisse sollten festgehalten werden:

- a) Wird keine Kompressibilität der begrenzenden Na-Säulen angenommen, so ergibt sich ein im Vergleich zur akustischen Näherung viel größerer Spitzendruck. Während der ersten Zeit der Wechselwirkung (einige msec) ist die Annahme der Kompressibilität der Na-Säulen eine wesentlich bessere Näherung. Erst bei oder auch kurz vor Beginn der Na-Verdampfung wird der Auswurf einer inkompressiblen Na-Säule realistischer sein. Eine Kombination beider Möglichkeiten wird auch von Cho et. al. in Beispielen für eine BNR im <u>FFTF / 8\_7</u> benutzt. Wenn man annimmt, daß zu Beginn der BNR im Wechselwirkungsraum Gas oder Na-Dampf vorhanden ist, erscheint es sinnvoller, die Na-Säule als inkompressibel zu betrachten.
- b) Die Anwesenheit von Gas oder Dampf in der Wechselwirkungszone führt zu einer Reduktion der Spitzendrücke und zu einer Behinderung des Wärmeübergangs Brennstoff-Natrium.

Im Unterschied zu den vorhergehenden Modellen ist nach dem Modell von <u>Cronenberg</u> / 9 / der Wechselwirkungsraum ständig in thermischem Kontakt mit seiner Umgebung. Cronenberg behandelt die begrenzenden Säulen immer als inkompressibel. Er diskutiert sein Modell an den Daten des Experimentes H2 in TREAT (bei H2 wurde ein einzelner Pin des FFTF-Entwurfs einem Leistungstransienten unterworfen). Bei der Simulation des Experimentes wird angenommen, daß von Anfang an Dampf in der Mischzone vorhanden ist. Dieser Dampf wird zurückgeführt auf den Fragmentationsmechanismus. Bei einem Schmelzen des Brennstoffs in den Stäben ist es zunächst unwahrscheinlich, daß nur ein verhältnismäßig kleines Loch in der Hülle entsteht, aus dem der Brennstoff wie aus einer Düse fein verteilt in das Na gespritzt wird. Es wird daher angenommen, daß der Brennstoff in Form relativ großer Partikel aus größeren Schadensbereichen der Hülle austritt und der eigentliche Fragmentationsmechanismus durch den direkten Kontakt mit Na entsteht. Cronenberg schätzt ab, daß weder die bei dem Austritt des Brennstoffs erzeugten Trägheitskräfte noch die bei Direktkontakt mit dem Na entstehenden Druckpulse ausreichen, Fragmentation in größeren Maße zu bewirken. Die Fragmentation aufgrund der durch Entstehung und Kollabieren von Dampfblasen an der Brennstoffoberfläche vorhandenen Turbulenz dagegen erscheint Cronenberg sehr viel wahrscheinlicher (violent boiling 107). Damit ist mit der Fragmentation gleichzeitig auch Dampf vorhanden. Dieser Prozess bewirkt, daß nur ein Teil des Brennstoffs, der in die Mischzone eintritt, zu jeder Zeit der Wechselwirkungsphase in direktem Kontakt mit dem flüssigen Na ist. Dies wird unterstützt durch Experimente in England / 11 /, bei denen heiße Metallpartikel sich mit einer Dampfschicht umgeben (inverses Leidenfrost-Phänomen). Durch Variation der im Cronenberg-Modell am direkten Kontakt permanent beteiligten Brennstoffpartikel und der im sinnvollen physikalischen Parameterbereich liegenden Wärmeübergangskoeffizienten an die Wände läßt sich das H2-Experiment in TREAT interpretieren.

Das wichtigste Ergebnis ist, daß sowohl die (ursprünglich aus unabhängigen Gründen geforderte) Anwesenheit von Dampf oder Gas in der Mischzone als auch Wärmeaustausch mit der Umgebung bei dem TREAT-Experiment eine entscheidende Rolle spielten. Nur dann lassen sich die Expansionsrate der Mischzone und auch die Druckverläufe in einer vernünftigen Weise wiedergeben.

### 3. Energiekonversionsfaktoren und mechanische Arbeit (Tab. 2)

3.1 Zwecks Vergleichbarkeit der Modelle wurde in jedem Fall zunächst die geleistete Arbeit auf diejenige Brennstoffmenge bezogen, die tatsächlich ihre thermische Energie an das Natrium abgibt. Das Verhältnis der Arbeit zu der in diesem Brennstoff oberhalb der Natrium-Siedetemperatur (1150 <sup>O</sup>K) verfügbaren thermischen Energie ergab n (Mischung).

Alle hier aufgeführten Arbeiten außer Hicks und Menzies / 1 / 5 beziehen sich auf reale Situationen in Reaktoren oder Versuchsaufbauten. Bei den Rechnungen von Cho wird vorausgesetzt, daß nicht der ganze in der zerstörten axialen Zone befindliche Brennstoff sich an der Reaktion beteiligt. Cronenberg muß diese Voraussetzung machen, um das Experiment beschreiben zu können. Das Verhältnis der Arbeit zu der thermischen Energie, die (oberhalb 1150 °K) im gesamten in der Mischzone vorhandenen Brennstoff enthalten ist, ergab n (Mischzone).

Berücksichtigt man ferner, daß die Zone, in der der Stab versagt hat, nur ein Teil seiner Länge im Core ist und daher eine weitere Brennstoffmenge nicht an der Reaktion beteiligt ist, obwohl auch sie verfügbare thermische Energie aufzuweisen hat, erhält man n (Pin).

- 3.2 Bei Padilla unterscheiden sich n (Mischzone) und n (Pin) nicht von n (Mischung) weil er die extrem pessimistische Annahme macht, die gesamte im Brennelement vorhandene Brennstoffmenge trete in Form von Kügelchen von 1 mm Durchmesser mit Natrium in thermischen Kontakt. Der relativ hohe Wert von n (Mischung) in Tab. 2 folgt aus der Tatsache, daß Entspannung bis auf 1 atü berechnet wurde. Außerdem gibt Cho <u>/ 4 / an</u>, daß die Drücke in der Mischzone etwa proportional zu ihrer anfänglichen Länge sind. Das bedeutet, daß die getroffene Wahl der Mischzone die größtmögliche Energieausbeute bringt.
- 3.3 Bei Padilla / 3 / und der Arbeit / 5 / von Cho sind in Tab. 2 in Klammern die Drücke beim Eintreten der Sättigungsbedingung und die bis dahin geleistete (akustische) Arbeit angegeben.

Bei der Arbeit / 5 / von Cho können nur diese Werte mit anderen verglichen werden, da die Endwerte unter der unrealistischen Annahme berechnet wurden, die akustische Näherung gelte für beliebig lange Zeiten (Bei diesem Vorgehen kann die Arbeit auch unterschätzt werden).

3.4 In der Cronenberg-Arbeit / 9 / werden keine mechanischen Energien

| n an an an an Araban an Araban<br>Araban an Araban an Ar | 1      |                      |  |                                 | 1           |            | a ny dia 1977.     |   | n na sa<br>∯aran ga |           |            |          | . ( |                    | ана<br>1. т. р. <b>)</b> |
|--|--------|----------------------|--|---------------------------------|-------------|------------|--------------------|---|---------------------|-----------|------------|----------|-----|--------------------|--------------------------|
| יים<br>איזאי בבאר יים און ביים און ו<br>}  | Hic    | ks, M                | enzie  | S                               | Padill      | a          | Cho, Ivi           | ns, Wright                                    | Cho,                | Cher      | ı, Wri     | ght      |     | Crone              | enberg                   |
|  |        | /1/                  |  | <del>Teala ageig Ma</del> ecabe | 151         |            | /5                 | • [/]   |                     | /         | 3/         |          |     | /                  | 9/                       |
| Verfügbare $(\frac{J}{g})$<br>therm. Energie $(K)$   |        | 690                  | )" ye et<br>•  |                                 | 1 100       |            | 875                | a di San<br>Manananan<br>Manananan di Sananan |                     | 1 40      | œ          |          |     | 85                 | 30                       |
| Geleistete Arbeit $(\frac{J}{g})$  | 90     | 120                  | 230  | 310                             | 86 (3       | .6)        | 36 (24)            | 15.3 (3.4)                                    | 112                 | 90        | 53.4       | 100      | 5.7 | 42                 | 82                       |
| nMischung) (%)   | 13     | 17                   | - 33   | 45                              | 7.8         |            | 4.1                | 1.75  | 8.0                 | 6.4       | 3.8        | 7.1      | 0.4 | 4.8                | 9.3                      |
| M <sub>Br</sub> (Mischung)<br>M <sub>Br</sub> (Mischzone)  |        | e al 174<br>Anna 174 | an an the Samuel Sa<br>Samuel Samuel Samuel<br>Samuel Samuel | a a sta                         | 1           | ter to the | 70 %               |   |                     | - <b></b> | 76 %       |          |     | <u>3.3g</u><br>19g | <u>1.1g</u><br>19g       |
| r(lischzone) (%)   |        |                      |  |                                 | 78          |            | 2.9                | 1.23  | 6.1                 | 4.8       | 2.9        | 5.4      | 0.3 | 0.83               | 0.54                     |
| Zerenlinte Pinthum<br>Pinthuge im Core   |        |                      |  | wite in<br>in<br>in             | 1<br>1<br>1 |            | 35<br><b>91.</b> 5 | <u>cm</u>                                     |                     |           | 61<br>91.5 | cm<br>cm |     | 37                 | 10 cm                    |
| r(Pin) (%)   | •-4,-1 |                      |  |                                 | 7.8         |            | 1.12               | 0.47  | 4.0                 | 3.2       | 1.9        | 3.6      | 0.2 | 0.24               | 0.16                     |

# Tabelle 2 (1. Teil)

 $= \frac{1}{12} \sum_{i=1}^{n} \frac{1}{i} \sum_{j=1}^{n} \frac{1}{i} \sum_{i=1}^{n} \frac{1}{i} \sum_{j=1}^{n} \frac$ 

| a secondaria de la composición de la co | Hicks, Menzies Padilla<br>/1/ /3/             |  | Cho, Ivins, Wright<br>/57/  | ; Cho, Chen, Wrig<br>/8/  | ght .                           | Cronenberg<br>/9/   |  |  |
|---|---|--|---|---|---------------------------------|---|--|--|
| Brennstofftemper.["K]   | 3450  | 3040   | 29∞   | 3400 (3962 )  | )<br>)<br>)<br>)                | 3070  |  |  |
| Natriumtemper. [°K]   | 1150  | 672  | 1100  | 922   |                                 | 1190  |  |  |
| Spez. Wärme des ( <u>J</u> )<br>Brennstoffs ( <u>g.K</u> ) 0.3  |   | variabel   | o <b>.</b> 5  | 0.5   |                                 | 0.46  |  |  |
| Massenverhältnis<br>Brennstoff/Na   | Nach Judd /13/<br>nicht so bedeutsam          | 11.2   | 8.3   | 6.4   |                                 | 3.7 1.2   |  |  |
| Enddruck der<br>Mischz. (absolut) <sup>(atm)</sup>  | 136 68 6.8 1                                  | 1 (250)  | 118 (180) 122 (12   | 22) ~ 30  | 3.7                             | ≈ 2.5   |  |  |
| Radius der<br>Brennstoffkug, (µ)  |   | 500  | 117   | 117 585   | 117                             | 500 250   |  |  |
| Durchmischungs-<br>konstante bzw.<br>Typ der Näherung   | mischungs-<br>ante bzw.<br>er Näherung gleich |  | Transient QSS, d<br>Conduct. Durch-<br>d.h. nur mischu<br>Wärme- nicht<br>widerst. instan | .h. o.1 1omsec<br>msec<br>≘ (34msec<br>Trans.≘ QSS He<br>tan Cond. Transfer | o.1 10<br>msec                  | Nur Wärme-<br>widerstand<br>des UO <sub>2</sub>                 |  |  |
| Ende des Nicht vor Ende<br>Wärmeübergangs des Prozesses   |   | Nach 1.2<br>msec bei<br>Einsetzeń<br>d.Verdampf. | Nicht vor Ende<br>des Prozesses   | Nicht vor<br>Ende des<br>Prozesses  | Beim Ein-<br>setzen<br>der Verd | Beim Aus-<br>trocknen<br>des Flüssig<br>keitsfilmes<br>~ 510 ms |  |  |

Tabelle 2 (2. Teil)

berechnet. Deshalb wurde hier an Stelle von ∫pdV die Wärmemenge eingesetzt, die während der ersten Natriumejektion im Natriumdampf zur Umwandlung in Arbeit zur Verfügung stand. Tatsächlich kann nur ein Bruchteil davon umgewandelt werden. In einem Fall, der den beiden aufgeführten ähnelt, kann durch Auswertung verschiedener graphisch gegebener Rechenergebnisse auf einen Wirkungsgrad (der Umwandlung) von kleiner als 20% geschlossen werden.

Cronenberg betrachtet nur die erste Natriumejektion. Im Experiment erfolgt etwa 200 msec später eine zweite, die aber wesentlich schwächer ist / 12  $\overline{/}$ .

### 4. Anwendbarkeit der Modelle auf überpromptkritische Leistungsexkursionen

Bei schnellen Leistungsexkursionen in natriumgekühlten Reaktoren sind bisher der Versagensmechanismus der Brennstäbe in Abhängigkeit von der Unfallgeschichte (z.B. der Reaktivitätszuführung), dem Abbrand (Spaltgas, Brennstoffverteilung im Pin, Risse) und der Brennstofftemperatur, und auch der Disperionsmechanismus in Verbindung mit der Wärmeübertragungsrate vom Brennstoff auf das Natrium experimentell nicht genügend abgesichert. Die theoretischen Modelle sind daher vielfach zunächst nur zur parametrischen Untersuchung der wirksamen Größen für eine BNR eingesetzt werden. Eine Beurteilung der Modelle muß sich an folgenden Punkten orientieren:

#### 4.1 Versagensmechanismus der Brennstäbe

Bei einem Leistungstransienten wird der Brennstoff zuerst in den zentralen Bereichen des Stabes schmelzen. Das im Pin vorhandene Gas (Spaltgas und Bond-Gas) wird mit aufgeheizt. Der entstehende Druck auf die Hülle führt zum Bersten - Brennstoff wird ausgetrieben. Die mittlere Temperatur des austretenden Brennstoffs dürfte bei etwa 3000 <sup>O</sup>K liegen, falls Versagen der Hülle dann eintritt, wenn weniger als 50% des Querschnitts eines Pins geschmolzen sind. Die in den Modellen verwendeten Anfangstemperaturen für die BNR liegen um 3000 <sup>O</sup>K, wie aus Tab. 2 ersichtlich. Die Größe des Schadensbereiches dürfte im wesentlichen durch den Energieinput und die Austrittsrate des Brennstoffs durch den Zeitverlauf des Transienten bestimmt sein.

Der anfängliche Schadensbereich wird mit Sicherheit kleiner als die Corehöhe sein. Eine Variation zwischen 10 - 60 cm erscheint nicht unvernünftig. Die Fragmentation und Dispersion des Brennstoffs, gleichgültig durch welchen physikalischen Prozess (z.B. violent boiling oder durch Trägheitskräfte) wird nicht instantan erfolgen. Der Wärmeübertragungsmechanismus an das Na wird also zeitlich verzögert werden. Aus den Modellen von Cho ergibt sich eine niedrigere Arbeit (QSS-Fälle) bei gleichem repräsentativen Partikelradius. Die Größe des effektiven Brennstoffpartikelradius ist in den verschiedenen Modellen in dem durch die experimentellen Verteilungskurven aus verschiedenen Fragmentationsprozessen gegebenen Bereich sinnvoll gewählt. Kleinere Partikel (z.B. 50  $\mu$ ) können die Wärme rascher an das Natrium abgeben und liefern daher eine größere Arbeitsleistung pro Gramm Brennstoff. Unter Punkt 4.4 wird jedoch darauf hingewiesen, daß in einer Reaktorexkursion kleinere Partikel auch zu kleineren Energieausbeuten führen können.

### 4.3 Mechanismus der Wärmeübertragung auf das Natrium

Dieser Punkt wurde bereits eingehend in Abschnitt 2 besprochen. Hier sollte nur festgehalten werden, daß Anwesenheit von Dampf oder Gas die Wärmeübertragung behindern wird, vor allem in den späteren Phasen der Expansion des Wechselwirkungsbereiches. Cronenberg weist auf die Bedeutung dieses Effektes bei der Interpretation des H2- Experiments hin. Rechnungen ohne die Möglichkeit der Reduktion des Wärmeübergangs infolge Dampfbildung werden demnach die geleistete Arbeit überschätzen.

4.4 Dynamische Entwicklung der Reaktionszone und Reaktivitäsrückwirkungen Auch dieser Punkt wurde bereits in Abschnitt 2 weitgehend diskutiert. Die thermische Isolation der Reaktionszone ist sicherlich eine konservative Annahme. Das Modell von Cronenberg ist bislang das einzige, welches thermischen Kontakt mit der Umgebung berücksichtigen kann, und es wird gezeigt, daß bei der Interpretation von H2 dieser Effekt entscheidend die Arbeit beeinflußt. Sicherlich wird in einem Brennelement eines schnellen Reaktors die Wärmeabgabe eines den ganzen Querschnitt einnehmenden Reaktionsbereiches an die direkte Umgebung nicht so groß sein wie in den TREAT-Experimenten, jedoch ist sie von Null verschieden, so daß Modelle ohne Wärmekontakt pessimistische Aussagen bezüglich der geleisteten Arbeit liefern.

Auf einen Punkt sei hier besonders hingewiesen: In allen Modellen, die oben angeführt wurden, wird nur das Na ejiziert, der Brennstoff wird nicht mitbewegt. In Wirklichkeit wird auch eine Brennstoffbewegung stattfinden, und zwar um so leichter, je kleiner die Partikel sind. Zwar ist die Energieübertragung bei kleinen Partikeln größer und der Na-Auswurf heftiger, jedoch wird bei einer Reaktorexkursion der Reaktivitätsgewinn infolge der Na-Ejektion sehr rasch durch die Mitnahme der kleineren Brennstoffpartikel überkampensiert, so daß die Energieausbeute kleiner wird als bei größeren Partikeln und einem nicht instantanen Mischungsvorgang. Dies wurde von Lorenzini und Flanagan  $/_{16}$  gezeigt.

Zusammenfassend kann man also sagen, daß Cronenberg mit seinen Erfahrungen bei der Interpretation von H2 zwar nicht den Prozess der BNR völlig transparent gemacht hat, daß aber wohl die Bedeutung bisher nicht genau oder gar nicht erfaßter Effekte bei der BNR herausgestellt wurde. Im Lichte dieser Arbeit ist anzunehmen, daß die Aussagen der hier zitierten anderen Modelle bei sonst vergleichbaren Voraussetzungen bezüglich der Konversion von Wärme in mechanische Arbeit pessimistisch sind.

# 5. Übertragbarkeit der Ergebnisse von B<del>rennstof</del>f-Wasser-Reaktionen auf Brennstoff-Natrium-Reaktionen

Bei der Untersuchung der Frage, wie weit man die Ergebnisse von Experimenten, bei denen heißer Brennstoff mit Kühlwasser in Berührung kam (SPERT), auf eine Brennstoff-Natrium-Reaktion übertragen kann, muß man folgende Punkte berücksichtigen:

5.1 Das Wasser erzeugt im Gegensatz zum Natrium nicht nur als thermodynamisches Medium kinetische Energie auf Kosten der angebotenen thermischen Brennstoffenergie, sondern es setzt durch chemische Reaktion zusätzlich Energie frei. Bei einem Vergleich muß man also den Anteil der kinetischen Energie, der aus der chemischen Energie herrührt, von der Gesamtarbeit des Wassers abziehen.

5.2 Sowohl die kritische als auch die Siedetemperatur des Wassers liegen wesentlich niedriger als die entsprechenden Natriumtemperaturen. Durch die niedrigere Siedetemperatur vergrößert sich bei Wasser als Reaktionsmedium die beim Natrium zur Verfügung stehende Wärmemenge um den Faktor

$$(T_{Br} - 373 ^{\circ} K) / (T_{Br} - 1150 ^{\circ} K)$$

Durch die niedrigere kritische Temperatur des Wassers,

$$T_{1,m}(H_{2}O)/T_{1,m}(Na) = 650 \text{ }^{O}\text{K}/2600 \text{ }^{O}\text{K},$$

treten beim Wasser-Prozess wesentlich höhere reduzierte Temperaturen ( $T_r = T/T_{kr}$ ) auf, wodurch der Wirkungsgrad gegenüber dem eines Natrium-Prozesses erhöht wird (Wasser verhält sich bei gleichen Temperaturen einem idealen Gas ähnlicher als Natrium). Beide Effekte lassen also bei Wasserreaktion mehr Arbeit erwarten als bei der Natriumreaktion. I. Puig / 17 / führte unter vergleichbaren Bedingungen, nämlich

| $T_{Na,1} = T_{Na,2} = 1150 $ <sup>o</sup> K | $P_2 = 1 atm$   |     |
|--|-----------------|-----|
| $T_{H_2O,1} = T_{H_2O,2} = 373 ^{O}K$        | l = Anfangszust | and |
| $M_{Na} = M_{P_0} = 0.1 M_{Br}$              | 2 = Endzustand  |     |

einen Hicks-Menzies-Prozess mit Wasser bzw. mit Natrium durch. Er fand, daß mit Wasser als Medium rund doppelt so viel kinetische Energie wie mit Natrium entwickelt wird.

5.3 Wie die folgende Tabelle zeigt, weichen auch die spezifischen Wärmen  $c_p$ , Verdampfungswärmen  $\Delta H$  und Wärmeleitzahlen  $\lambda$  beider Stoffe an ihrem jeweiligen Siedepunt voneinander erheblich ab:

| T | ab | e | 1 | 1 | е | 1 | 5. |
|---|----|---|---|---|---|---|----|
| - | -  |   | - |   |   |   |    |

| Ei             | genschaften          | Wasser | Natrium |
|----------------|----------------------|--------|---------|
| с <sub>р</sub> | J/g/ <sup>0</sup> K  | 4,2    | 1.3     |
| ΔH             | J/g                  | 2300.  | 4200.   |
| λ              | W/cm/ <sup>0</sup> K | 0,0069 | 0,5     |

In welcher Richtung diese Unterschiede die erzeugte kinetische Ener-

giemenge beeinflussen, kann man - ohne Parameteruntersuchungen durchgeführt zu haben - nicht sagen, da die Effekte teilweise gegenläufig sind (z.B. Wasser verbraucht mehr Wärme zur Temperaturerhöhung als das Natrium, dafür ist seine latente Wärme beim Verdampfen geringer, den Wärmewiderstand des flüssigen Natriums kann man neben dem Wärmewiderstand des UO<sub>2</sub> vernachlässigen, beim Wasser ist eher das umgekehrte Verfahren angebracht).

Aus den aufgeführten recht großen Unterschieden in den thermophysikalischen Eigenschaften beider Stoffe und den daraus folgenden Konsequenzen - soweit man sie überblicken kann - folgt, daß es auch bei gleicher Brennstoffenergiedichte nicht sinnvoll ist, Zahlenwerte von Brennstoff-Wasser-Reaktionen auf Brennstoff-Natrium-Reaktionen zu übertragen.

#### Anmerkung der Red.:

Theoret. Untersuchungen zur Brennstoff-Natrium-Reaktion laufen ebenfalls im IAR. Voraussichtlich wird ein Beitrag darüber im nächsten PSB-Vierteljahresbericht erscheinen.

### 123-22

### Literatur

- /17D.C. Menzies, E.P. Hicks Theoretical Studies on the Fast Reactor Maximum Accident Proceedings of the Conf. on Safety, Fuels, and Core Design in Large Fast Power Reactors, ANL-7120 p. 654  $1^{-2}$  7 A. Padilla Transient Analysis of Fuel-Sodium Interaction. Trans ANS 13 (1970) 375 A. Padilla Work Energy Considerations in the Analysis of Fast Reactor Maximum Accidents. BNWL-SA-3402, zur Veröffentlichung in "Nuclear Applications and Technology" eingereicht. 147 R.W. Wright, D.H. Cho Acoustic and Inertial Constraint in Molton Fuel-Coolant Interactions. Trans ANS 13 (1970) 658 D.H. Cho, R.W. Wright A Rate-Limited Model of Molton Fuel-Coolant Interactions Trans ANS 13 (1970) 659 D.H. Cho, R.O. Ivins, R.W. Wright Pressure Generation by Molton Fuel-Coolant Interactions under LMFBR Accident Conditions. ANS Topical Meeting, Idaho Falls, March 1971, CONF-710302, p.25 177 D.H. Cho, R.O. Ivins, R.W. Wright Private Mitteilung
- <u>1</u>8\_7 D.H. Cho, W.L. Chen, R.W. Wright Pressure Pulses and Mechanical Work from Molten Fuel-Cooant Interactions: A Parametric Study. Trans ANS <u>14</u> (1971) 290

- [9\_7] A.W. Cronenberg A Thermodynamical Model for Molten U0<sub>2</sub>-Na Interaction, Pertaining to Fast Reactor Fuel Failure Accidents. Dissertationsschrift in Vorbereitung. Northwestern University, Juni 1971
- [10]7 A.W. Cronenberg, H.K. Fauske, D.T. Eggen Transient Analysis and TREAT Experiments for Molten Fuel-Sodium Interaction Trans ANS 14 (1971) 285
- [11]7 A.W. Cronenberg, H.K. Fauske Some Safety Aspects of Film Condensation During Fuel-Failure Accidents Trans ANS 14 (1971) 739
- [ 12\_7 D. Swift, J. Pavlik
  Fuel-Coolant and Cladding-Coolant Interaction
  ANL-7125, p. 187
- [13\_7] R.S. Hall, S.J. Board, A.J. Clare, R.B. Duffey, T.S. Playle, D.H. Poole Inverse Leidenfrost Phenomenon. Nature <u>224</u> (1969) 266

/ 14\_/ C.E. Dickermann Transient In-pile Tests with Ceramic Fuel. ANL-7753, p. 147

/ 15\_7 A.M. Judd Calculation of the Thermodynamic Efficiency of Molten-Fuel-Coolant Interactions. Trans ANS 13 (1970) 369

- <u>/</u>16\_7 R.A. Hein, P.N. Flagella, J.B. Conway High-Temperature Enthalpy and Heat of Fusion U0<sub>2</sub>. Journ. of the Am. Ceramic So <u>51</u> (1968) 291
- [ 17\_7 L. Leibowitz, M.G. Chasanov Enthalpy of Liquid Uranium Dioxide to 3500 K. Journ. of Nucl. Mat. 39 (1971) 115
- [18\_7] P.G. Lorenzini, G.F. Flanagan An Evaluation of Fuel-Coolant Interactions During Disassembly of an LMFBR. ANS Topical Meeting, Idaho Falls, March 1971, CONF-710302, p.50
- / 19\_7 I. Puig Private Mitteilung
- <u>/</u>20\_/ R.B. Duffey

Channel Voiding due to Fuel-Coolant Interactions in Sodium-Cooled Fast Reactors: A Theoretical Model Central Electricity Generating Boord RD/B/N 1609, CFRSWP/P (70) 17, March 1970

/21\_7 J. Radles

A Thermo-Hydrodynamic Model for the Theoretical Study of the Boiling and Ejection of the Coolant from a Reactor Channel due to a Direct Contact with Hot Molten Fuel EUR 4592e, 1971

#### 124 INSTRUMENTIERUNG UND SIGNALVERARBEITUNG ZUR KERNÜBERWACHUNG

#### 1241 Nachweis von Durchflußstörungen an Brennelementen

# 1241.3 <u>Temperaturfluktuationen am elektrisch beheizten Brennelement</u> (L. Krebs, G. Weinkötz, IRB)

Die bisherigen Versuchsreihen mit dem vorhandenen 61-Stabbündel hatten folgendes gezeigt: Die Amplituden der statistischen Temperaturschwankungen am Brennelementausgang sind geringer als die Amplituden der durch lange Leitungen sowie Verstärker und Filter bedingten zusätzlichen Störungen, wenn nur ein Stab elektrisch beheizt wird. Aus diesem Grund wurden die elektrischen Anschlüsse für die maximal drei Heizstäbe des Bündels erweitert. Die daran anschließend geplante dritte Versuchsreihe konnte infolge eines Defekts an den Temperaturfühlern bisher noch nicht durchgeführt werden.

Stattdessen wurden erste Untersuchungen von "Vielstellenthermoelementen" in Wasser durchgeführt. Den Aufbau eines derartigen Thermoelementes, bei dem mehrere Lötstellen hintereinandergeschaltet sind, zeigt Abb. 1. Wird dieses Element in einem von Mischwasser durchströmten Rohr eingebaut (Abb. 2), so erhält man ein statistisches Temperatursignal. Dieses Signal besitzt einen wesentlich höheren Informationsgehalt als dasjenige eines Thermoelementes mit nur einer Lötstelle. Es erscheint daher für Messungen am Ausgang eines Brennelementbündels besonders geeignet. Allerdings müssen für den Einsatz im Natrium noch einige konstruktive Schwierigkeiten überwunden werden, da sämtliche Lötstellen einerseits von ihrer Natriumumgebung elektrisch isoliert, andererseits aber thermisch möglichst gut mit ihr verbunden sein müssen.

Weiterhin wurden spezielle "Na-Fe-Thermoelemente" (Abb. 3) angefertigt und in einen Natriumkreislauf eingesetzt. Diese Elemente nützen die Thermospannung zwischen Natrium und Stahl direkt aus. Der für die Untersuchung von Temperaturfluktuationen besonders wichtige Vorteil dieser Elemente besteht in der vernachlässigbar kleinen Ansprechzeit (sehr viel kleiner als 1 ms). Mehrere Messungen an diesen Elementen sollen entsprechend den japanischen und französischen Untersuchungen über die Einsatzmöglichkeiten im technischen Maßstab Aufschluß geben.



Bild 3 Aufbau von speziellen Na-Fe-Thermoelementen, zur Messung von Temperaturfluktuationen.

# 1242 <u>Hüllenüberwachung von Brennelementen</u> (H. Will, IRE)

Im Rahmen der Core-Überwachung auf Brennelementschäden wird der Einsatz des im IRE entwickelten Zyklonabscheiders (s. KFK-Ber. 1380) erwogen. In Ergänzung zu den bei der Entwicklung gemachten Versuchen wurde untersucht, wie sich Gasblasen abscheiden und nachweisen lassen, die auf dem Wege von der Leckstelle durch ein Brennelement laufen und dabei an den Abstandshaltern sehr fein verteilt werden.

Die Untersuchungen fanden im Wasserkreislauf des IRE statt. Es wurden der gleiche Versuchsaufbau und die gleiche Teststrecke verwendet wie bei den früheren Versuchen. Lediglich die Gaseinspeisung wurde verändert und befand sich am Fuße einer dem Zyklonabscheider vorgeschalteten Brennelementattrappe. Dieses Element bestand aus 169 Stäben mit 8 Abstandshaltern und war in seinen Abmessungen nahezu identisch mit dem Original-Brennelement-Teil oberhalb des Spaltgasplenums.

Es wurde Gas in bekannter Menge in einem definierten Zeitraum injiziert und das sich daraus ergebende Temperatursignal an einem beheizten Thermoelement auf einem Linienschreiber dargestellt. Durchsatz und Systemdruck wurden variiert.

In einer zusätzlichen Versuchsreihe wurde der Systemdruck variiert, um seinen Einfluß auf die Ansprechempfindlichkeit zu messen. Es zeigte sich, (Abb. 4) daß die Sensibilität des Zyklons mit steigendem Systemdruck sinkt. Dies ist wahrscheinlich mit einer anderen Blasengrößenverteilung und einer Verringerung des Effektivvolumens des Restgases mit steigendem Druck zu erklären. Wegen der speziellen SNR-Gegebenheiten – sowohl zeitlich als auch örtlich nahezu konstanter Druck von etwa 2 ata – ist eine genaue Kenntnis der Ursachen für die Druckabhängigkeit nicht notwendig.

In den beschriebenen Versuchen konnte nachgewiesen werden, daß die Nachweisgrenze des Zyklonabscheiders für Gasblasen praktisch unverändert wenige cm<sup>3</sup> Effektivvolumen beträgt, auch wenn die Blasen auf ihrem Weg zum Zyklon durch ein Brennelement laufen.



124-4

1

Da gegenüber den früheren Versuchen, außer der Vorschaltung des Stabbündels, keine Änderungen vorgenommen wurden, konnten die Versuchsergebnisse direkt mit den früheren verglichen werden. Es zeigte sich kein wesentlicher Unterschied zwischen den in KFK 1380 veröffentlichten Ergebnissen und den bei diesen Versuchen gemessenen Daten. Das bedeutet, daß die Feinverteilung von Gasblasen während ihres Durchtritts durch ein Brennstabbündel keinen nennenswerten Einfluß auf die Anzeigeempfindlichkeit des Zyklonabscheiders hat.

### 1244 Ultraschall-Meßtechnik in Natrium

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

Als erfolgversprechende Alternativen zu mechanischen Vorrichtungen für die Positionierung der Brennelement-Beladeeinrichtung und für die Abtastung des Kerns werden entsprechende Ultraschall-Meßgeräte entwickelt. Vom Einsatz dieser Geräte werden erhebliche Kosten- und Zeitersparnisse erwartet. Es wurden Prototyp-Vorläufer beider Instrumente entwickelt und im Modellversuch in Wasser getestet.

Im Hinblick auf den Direkteinsatz der Piezo-Kristalle im Bereich höherer Temperaturen (ca. 450 <sup>O</sup>C) wurden Klebe- und Lötproben vorbereitet. Es ist dabei vorgesehen, temperaturbeständige Kleber hinsichtlich ihrer Koppelkoeffizienten zu untersuchen und das Ergebnis mit den Meßdaten der gelöteten Wandler zu vergleichen.

Für die BE-Positionierungseinrichtung wurden drei maßstabsgetreue BE-Mischköpfe angefertigt, welche zunächst in Wasser, später in einem Natrium-Behälter als Versuchsobjekt für die Ultraschall-Impuls-Abtastung dienen. Hierbei wird angestrebt, mit Hilfe mehrerer, gleichzeitig arbeitender Sensoren etwa in Form eines einfachen Facettensystems - den Positionierungsvorgang weitgehend zu automatisieren.

1246 Untersuchungen zur Signalverarbeitung für ein Resktorschutzsystem

1246.1 <u>Multi-Input-Reaktorschutzsystem</u> (S. Jacobi, H. Lenhardt, R. Schneider, LEM)

Der SNR stellt durch seinen Prototyp-Charakter an die Prozeßüberwachung erhöhte Anforderungen. Diese resultieren aus der Themengruppe



Der erhöhte Informationsfluß dient dem Sammeln von Erfahrungen und Erkennen von Störursachen und -abläufen.

In ganz besonderem Maße betrifft dies den Reaktorkern. Ein ausgewähltes System von Meßfühlern wird die notwendigen Meßwerte liefern, eine umfangreiche Datenverarbeitungsanlage soll die notwendigen Signale zur Verfügung stellen. Aus Meßfühlern, Datenverarbeitungsanlage und möglichen Abschalt-Kriterien ein Reaktorschutzsystem zu konzipieren und in Form einer Projektstudie für weitere Diskussionen vorzulegen, war die Aufgabe des vergangenen Jahres.

Es ist vorgesehen, jedes Brennelement des SNR mit vier Thermoelementen und einem Durchflußmesser zu bestücken, die Brutelemente sollen nur je vier Thermoelemente erhalten. Daß diese Redundanz und Diversität auch bei der Datenverarbeitungsanlage erhalten bleibt, war ein wesentliches Auslegungskriterium. Es wird realisiert durch ein erstes und ein zweites Reaktorschutzsystem, Abb. 5. Beide arbeiten für sich in 2-von-3-Wertungslogik. Das erste Schutzsystem ist konventioneller Bauart und soll 32 sogenannte integrale Daten verarbeiten, wie z.B. Neutronenfluß am Corerand, Kühlmitteltemperaturen am Eintritt und Austritt des Reaktors und Natriumdurchsatz durch Hauptkühlmittelleitungen. Jede dieser Größen wird dreifach gemessen.
Das zweite Schutzsystem verarbeitet voraussichtlich außer den 12 wesentlichen integralen Daten - ebenfalls dreifach gemessen - die Meßwerte der einzelnen Brennelemente, lokale Daten genannt:

4 x 199 Thermospannungen und 155 Durchsatzmeßwerte. Wegen der vielen Eingangsdaten wird dieses System Multi-Input-Schutzsystem = MISS genannt. Es besteht aus drei Strängen mit je einem Multiplexer, Analog-Digital-Wandler, Sicherheitsrechner und Auswahllogik. Neben dieser Hardware-Redundanz ist erstmals eine dynamische Funktionskontrolle vom Meßwerteingang bis zur Haltespule des Abschaltstabes vorgesehen. Die angefertigte Studie zeigt die Notwendigkeit der Anwendung von Rechnern, macht aber auch ihre wesentlichen Vorteile gegenüber einem konventionellen System deutlich:

- Dynamische Grenzwertführung in Abhängigkeit vom Reaktorbetriebszustand.
- Statische Grenzwertführung in Abhängigkeit der Brennelement-Position.
- Quasistatische Grenzwertführung in Abhängigkeit von Brennelement-Abbrand.
- Anwendung des Prinzips der Diversität gegenüber Schutzsystem Nr. 1.
- Maximal mögliche Flexibilität der noch nicht endgültig definierten Abschaltkriterien, welche Wandlungen unterworfen sein werden durch weitere Forschungsergebnisse und Betriebserfahrungen.



Abb.5 <u>Multi-Input-Schutzsystem</u> (MISS)

# 125 AUSWIRKUNG VON REAKTORSTÖFÄLLEN AUF DIE UMWELT; AKTIVITÄTSFREISETZUNG

# 1254 <u>Kontamination von Reaktorkühlkreisläufen</u> (H.H. Stamm, IRCh)

#### Kontamination von Natriumkreisläufen

Aus dem zerschnittenen in-pile Na-Loop "Mol-7A" wurden weitere Kühlmittelreste entnommen und die darin enthaltenen Aktivitäten gemessen. Im allgemeinen hatten sich diese Kühlmittelreste durch Kontakt mit feuchter Luft in ein Gemisch von NaOH und Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> umgesetzt, im (unteren) Zulaufkonus des Wärmetauschers waren jedoch unter einer schützenden Oxid-Karbonat-Schicht etwa 30 g metallischen Natriums in Kugelform zurückgeblieben. In der äußeren Schicht war neben viel Cs-137 und Cs-134 nur wenig Na-22 meßbar; in der metallischen Innenzone war das Aktivitätsverhältnis zugunsten von Na-22 verschoben, zusätzlich waren Sb-125 (Spaltprodukt) und Ag-110 m (Aktivierungsprodukt) meßbar. Abbildung 1 zeigt einen Vergleich zweier Proben im Bereich bis 1 MeV.

Nach radiochemischen Trennungen konnte Sr-90/Y-90 identifiziert werden, jedoch keine anderen Spaltprodukte (vermutet wurden Ce-144 und Ru-106). Co-60 und Mn-54 wurden nur in solchen Loopteilen gemessen, die noch im Neutronenfeld des BR2 gewesen waren und in metallischen Sägespänen (vom Zerlegen des Loops), die beim Auflösen von Kühlmittelproben zurückblieben. Wegen der nicht-stöchiometrischen Zusammensetzung der meisten Kühlmittelreste war es sinnlos, die Proben einzuwiegen. Eine Normalisierung der gemessenen Aktivitäten war jedoch möglich durch Bezug auf die Na-22-Aktivität, da diessRadionuklid in einem konstanten Verhältnis zur Na-Gesamtmenge vorliegen muß.



#### Abb. 2 Gammespektren von Mol-7A-Kühlmittelproben 600 Tage nach Betriebsende

Ein Vergleich der normalisierten Aktivitäten von Proben aus verschiedenen Teilen des Loops deutet auf eine Anreicherung von Cäsium an den Grenzschichten Na/Edelstahl bzw. Na/Schutzgas während des Abkühlens hin. Die an den Rohrleitungen zurückgebliebenen Kühlmittelmengen und die Oberfläche der erwähnten Na-Kugel sind als Reste dieser Grenzschichten zu betrachten. Die Umsetzung zu Na<sub>2</sub>O bzw. NaOH und Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> erfolgte erst beim Zerlegen des Kreislaufs und steht in keinem Zusammenhang mit der Cs-Anreicherung. Ein ähnlicher Effekt ist für Sb-125 oder Ag-110m nicht beobachtet worden. Als Ergänzung zu den Untersuchungen am demontierten in-pile Kreislauf "Mol-7A" (Edelstahl AISI 316) wurden SNR-typische Werkstoffproben vorbereitet und in den Kreislauf "Mol-7B" eingebaut, der 1972 in Betrieb gehen soll; die Oberflächen der Proben waren z.T. geschmirgelt, z.T. elektropoliert worden. Nach Abschluß des Loop-Betriebs sollen die Materialproben ausgebaut und die auf ihnen deponierten Radionuklide gammaspektrometrisch ermittelt werden. Dekontaminationsexperimente sollen Möglichkeiten zur Reinigung des SNR-Primärkreislaufs aufzeigen.

### Kontamination von Dampfkreisläufen

Der FR2-Heißdampfversuchskreislauf wurde 1971 für das DK-Programm umgebaut und stand deshalb für Experimente nicht zur Verfügung. Während der in-pile Testphasen im 4. Quartal war es jedoch möglich, die beiden neuen Kontaminationskammern III (im Kondensatteil) und IV (im Niederdruckdampf) zu erproben. Auf den eingesetzten Metallcoupons wurden dabei nur aktivierte Korrosionsprodukte abgelagert, weil für den Test ein unbeschädigter Brennstab (U 31) verwendet worden war. Die abgeschiedenen Aktivitäten lagen im Nanocuriebereich und waren in der Kammer IV höher als in der Kondensat-Kammer III.

Im Kondensat waren 16 Proben aus verschiedenen Werkstoffen hintereinander eingesetzt. Auf allen Proben waren Sb-124, Cr-51, Co-60 und Fe-59 meßbar. Die höchste Kontamination wurde auf den Kohlenstoffstahl-Coupons gemessen, gefolgt von Nickel, martensitischem Chromstahl (W.Nr. 4120), austenitischen Edelstählen (4550 und 4541) und Platin in der genannten Reihenfolge, die mit der in Hochdruck-Heißdampf gefundenen Folge übereinstimmt (vgl. KFK 1270/2). Edelstahlproben (4541) mit geschmirgelter Oberfläche waren auch im Kondensat stärker kontaminiert (ca. Faktor 2) als elektropolierte Coupons.

Im überhitzten Niederdruckdampf (Kammer IV) waren neun Probenpaare (Edelstahl W.Nr. 4541, parallel zum Dampfstrom, je zwei Coupons hintereinander) über den 10cm-Querschnitt der Dampfleitung verteilt. Auf den ausgebauten Blechen war nur Sb-124 meßbar, und zwar auf den in Dampfrichtung hinteren Proben immer etwa in doppelter Aktivität (nCi/cm<sup>2</sup>) der vorderen Coupons. Über den Rohrquerschnitt ergab sich qualitativ die gleiche Verteilung für die abgelagerte Aktivität wie für die Dampfgeschwindigkeit.

125-3

#### 125-4

Ende Dezember begann die erste Loop-Betriebsphase im Rahmen des DK-Programms mit einem angebohrten Brennstab, der als Brennstoff UO<sub>2</sub>-Tabletten mit auf 35% angereichertem U-235 enthält.

(4) Conjunction of the control of

المتحدي من من موجود ما يراحد من العمار المعالي المعالي المالي من من المحدود المحدية المحدية من المحدية المحدية المحدود أن المحدية من معرفة المحدية الم المحدية المحد المحدية المحد المحدية المحد المحدية المح

(a) a conserver the result of the set of the set of 100 memory and 100 memory 126 Na-TECHNOLOGIE-VERSUCHE

#### 1262 Untersuchungen von Reaktorbauteilen

# 1262.2 Untersuchungen zum Verschleiß- und Reibverhalten von Abstandshaltergittern unter Natrium (F. Huber, IRE)

Die Mitte 1971 begonnenen Untersuchungen zum Verschleiß- und Reibverhalten von Abstandshaltergittern unter Natrium wurden mit der Untersuchung eines Bündels mit Röhrchen-Abstandshaltern fortgesetzt. Der Versuch mußte nach ca. 37000 Doppelhüben wegen Erreichen der maximal zulässigen Axialkraft vorzeitig beendet werden. Die anschließende Inspektion und Vermessung des Bündels ergab, daß eines der 6 Abstandshaltergitter unzulässige Verbiegungen aufwies. Die Versagensursachen werden untersucht.

#### 1262.3 Versuche zur Werkstoffpaarung unter Natrium

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

In Fortführung der im 3. Vierteljahr mit Interatom durchgeführten Vergleichsversuche wurde an den Werkstoffpaarungen

> Inconel 718 - Inconel 718 Hastelloy C - Hastelloy C

der Einfluß verschiedener Probengeometrien untersucht.

Hierfür wurden die zylindrischen Stifte einmal mit planparalleler Gleitfläche (Standardgeometrie) und im anderen Fall mit halbkugeligen Enden ausgeführt. Tab. 1 zeigt die dabei gewonnenen Ergebnisse. Für beide Werkstoffe ergab sich an den Proben mit parallelen Gleitflächen ein höherer Gesamtverschleiß als an der Kombination mit Kugelgeometrie.

Außerdem ist in allen Fällen der Materialabtrag an den flachen Ringscheiben erheblich höher als an den zylindrischen Proben. Damit wurde ganz allgemein ein erheblicher Geometrieeinfluß nachgewiesen, zu dessen Klärung weitere Versuche erforderlich sind.

| Werkstoff          |               | Verschleißrate<br>cm <sup>3</sup> /cm kp | Gesamtverschl.<br>cm <sup>3</sup> /cm kp   |
|--------------------|---------------|--|--|
|                    | Stift U       | <u>6,88·10<sup>-11</sup></u>             | 13,08.10-11  |
| <u>Hastelloy C</u> | Scheibe       | 12,20.10 <sup>-11</sup>                  | and a second |
|                    | Stift U       | 1,3.10-11                                | 15.7.10-11   |
|                    | Scheibe       | 14,4.10 <sup>-11</sup>                   |  |
| Inconel 718        | Stift U       | 5,46.10-11                               | 19.46.10-11  |
|                    | Scheibe       | 14,0.10 <sup>-11</sup>                   |  |
|                    | Stift U       | 3,8.10-11                                | $26.9 \cdot 10^{-11}$  |
|                    | Scheibe       | 23,1.10 <sup>-11</sup>                   |  |
| Die Verschleif     | Brate als Fun | uktion                                   |  |
| der Prober         | igeometrie    | the Advances of the                      | and in Andra <b>Tab, I</b> gun Alteratu  |

Im Rahmen der Vorauswahl-(Standard-) Versuche wurde die von Interatom empfohlene Werkstoffpaarung

#### Nimonic 80 (RGT3) - Colmonoy 6

untersucht. Gegenüber anderen Werkstoffen, die in früheren Versuchen mit Colmonoy 6 kombiniert wurden (Inconel 718 und 1.4981), wies diese Nickelbasislegierung mit ca.  $0,5.10^{-11}$  cm<sup>3</sup>/cmkp eine relativ hohe Verschleißresistenz auf.

An der Werkstoffpaarung

# Stellit 6H gegen 1.4961

wurde in ersten Versuchen der Einfluß des NaO<sub>2</sub>-Gehaltes im Natrium untersucht.

126-2

Unter Kostanthaltung aller anderen Parameter wurde durch Erhöhung der Kaltfallentemperatur ein Reinheitsgrad von ca. 50 ppm eingestellt. (Pluggingmeter-Messung). Die nach den Versuchen gemessenen Verschleißraten waren an den austenitischen Ringscheiben um ca. einen Faktor 2 geringer, an den Stellitstiften eher etwas höher als bei Versuchen unter kontinuierlich gereinigtem Natrium bei Reinheitsgraden zwischen 5 - 10 ppm.

Während dieser Versuche entstand am 6.12.71 durch eine Undichtheit am Erhitzer ein Natriumbrand. Die erforderlichen Reparaturarbeiten werden etwa 2 1/2 Monate in Anspruch nehmen.

#### 1263 Versuche zur thermo- und hydrodynamischen Core-Auslegung

# Vergleich von zwei verschiedenen Heizstabkonzepten mit indirekter Widerstandsbeheizung (S. Malang, K. Rust, IRB)

In /  $1_/$  wurde dargestellt, wie genau sich bei Wärmeübergangsuntersuchungen die Verhältnisse bei einem Oxid-Brennstab durch indirekt elektrisch beheizte Stäbe simulieren lassen. Hierbei wurden ausschließlich die in  $/2_/$  beschriebenen Heizstäbe betrachtet, die aus zwei konzentrischen Rohren mit dazwischenliegender Isolationsschicht bestehen.

Nach dem gleichen Verfahren wurde das in  $\sqrt{3}$  dargestellte Heizstabkonzept untersucht. Bei diesen in Frankreich entwickelten Heizstäben erfolgt die Beheizung über 8 parallel zur Stabachse gespannte Drähte, die in Bornitrid eingebettet sind. Abb. I zeigt den Querschnitt eines solchen, Nibofil genannten, Heizstabes.

Es ist anzunehmen, daß diese Heizstäbe, ähnlich wie die im IRB entwickelten, rundgehämmert werden, damit ein guter Kontakt zwischen den Drähten und der elektrischen Isolation einerseits und zwischen der Isolation und dem Hüllrohr andererseits gewährleistet ist. Unter der Annahme eines Kontaktkoeffizienten von 25 W/(cm<sup>•</sup>grd) ergibt sich der in Abb. 2 dargestellte azimutale Verlauf des normierten Wärmestromes an der äußeren Hüllrohroberfläche eines zentrisch im Kühlkanal angeordneten Stabes. Bei reiner Wärmeleitung im Natrium beträgt damit die Differenz zwischen dem max. und min. Wärmefluß lediglich 3%. Die Schwankung der Hüllrohrtemperatur ist praktisch null. Durch die Verwendung von hochschmelzendem Tantal als Hüll- und Drahtwerkstoff erscheinen solche Heizstäbe besonders geeignet für hohe Kühlmitteltemperaturen und hohe Stableistungen.

126-3



äußeren Hüllrohroberfläche eines Notrium gekühlten "Nibofil"- Heizstobes

An dem Beispiel eines exzentrisch angeordneten Stabes wurden solche Heizstäbe mit dem Brennstab verglichen. Als Vergleichsbasis dienten die in  $\underline{/ 1_{7}}$  untersuchten Heizstäbe, wobei zusätzlich bei einem solchen Heizstab das Incoloy 800 des Hüllrohres und des Stromleiters durch Tantal ersetzt wurde.

Die Temperatur- und Wärmestromverteilung über dem Stabumfang zeigt Abb. 3. Es ist aus dieser Darstellung ersichtlich, daß

- a) beide Heizleiterkonzepte, mit rohr- und drahtförmigen Stromleitern, hinsichtlich der Simulation eines Oxid-Brennstabes mit einem Hüllrohr aus Incoloy 800 gleichwertig sind,
- b) Hüllrohre aus Tantal wesentlich größere Abweichungen gegenüber dem Brennstab verursachen als Edelstahlhüllen. Dies erklärt sich aus der hohen Wärmeleitfähigkeit des Tantals.

Ein Vergleich des untersuchten Nibofil-Heizleiters mit den aus konzentrischen Rohren bestehenden Heizleitern ergibt das folgende Ergebnis:

- 1. Die thermische Simulation von Oxid-Brennstäben ist gleich gut.
- 2. Mit beiden Heizleitertypen lassen sich etwa gleich hohe Stableistungen erzielen.
- 3. Die Stromversorgung der Nibofil-Heizleiter ist etwas einfacher infolge des größeren Widerstandes der drahtförmigen Stromleiter gegenüber den rohrförmigen. Daraus resultiert eine geringere Stromstärke.
- 4. Die Herstellungskosten der französichen Heizleiter dürften etwas höher liegen als bei dem Konzept mit den 2 konzentrischen Rohren.



Abb. 3 Azimutaler Verlauf der Temperatur und der Wärmestromdichte an der äußeren Hüllrohroberfläche verschiedener Heizstäbe bezogen auf einen Brennstab bei Natriumkühlung im exzentrischen Ringraum

126-6

Die theoretischen Untersuchungen zur Wandtemperaturmessung an simulierten Brennstäben für thermodynamische Experimente in Natrium wurden abgeschlossen. In der Umgebung des in die Heizstabwand eingelöteten Thermoelementes wurden mit Hilfe des Relax-Programmes / 4 / für verschiedene Werkstoffkombinationen und unterschiedliche Störgeometrien die Temperaturfelder in der Querschnittsebene des Heizstabes ermittelt. Abb. 4 und 5 zeigen typische Temperaturfelder für Mantelthermoelemente mit MgO- bzw. BN-Isolation  $\sqrt{5}$ . Für die beiden Fälle ist die Temperatur- sowie die Wärmestromdichte-Verteilung an der Oberfläche in Abb. 6 und 7 dargestellt. Man erkennt deutlich die starke Störung des Temperaturfeldes durch das mit Ag-Lot eingelötete Mg-Thermoelement. Diese Art der Instrumentierung mit Ag-Lot ist also für örtliche Temperaturmessungen ungeeignet. Ein mit Ni-Lot eingelötetes BN-Thermoelement verursacht dagegen nur eine sehr geringe Störung des Temperaturfeldes, womit günstige Voraussetzungen für eine zuverlässige Messung örtlicher Oberflächentemperaturen gegeben sind. Die Genauigkeit einer rechnerischen Meßwertkorrektur (das ist die Temperaturdifferenz zwischen Meßwert und Oberfläche) hängt jedoch entscheidend von der zuverlässigen Bestimmung der Tiefenlage der eigentlichen Meßstelle ab. Da eine zerstörungsfreie Bestimmung der Tiefenlage nicht ausreichend genau möglich ist, soll die Oberflächentemperatur durch Eichversuche an den instrumentierten Einzelstäben ermittelt werden. Mit vorbereitenden Überlegungen und einer Fehlerabschätzung zu Eichversuchen wurde begonnen.

#### Natrium-Stopfbuchse für drehbare Heizstäbe

(M. Kolodziej, R. Möller, IRB)

Für örtliche Wärmeübergangsmessungen an beheizten Vielstabbündeln müssen instrumentierte Heizstäbe drehbar in die Teststrecke eingebaut werden. In einem Vorversuch soll geklärt werden, ob eine verbesserte Stabdrehvorrichtung durch Einfrieren und Auftauen des Natriums in einer Stopfbuchse funktionstüchtig ist.

Im Berichtszeitraum wurden die Teststrecke sowie ein instrumentierter Heizstab fertiggestellt.

# Daten:

mittlere Oberflächenleistung Wärmeleitfähigkeit von Silberlot elektr.Isolation BN Thermoelement-Isolation MgO Kontaktzahl im TE Kontaktzahl zwischen elektr.Isol.und Heizleiter bzw.Hülle engster Lotspalt zw.TE und Nutflanke Wärmeleitfähigkeit der Hülle Wärmeleitfähigkeit von Na 300 Watt/cm<sup>2</sup>  $\lambda_{Ag}$ =2.Watt/(cm grd)  $\lambda_{BN}$ =0,24 Watt/(cm grd)  $\lambda_{Mg0}$ =0,03 Watt/(cm grd) ( $\alpha_{K}$ )<sub>TE</sub>=1.Watt/(cm<sup>2</sup> grd)

 $(\alpha_{\rm K})_{\rm H}$ =25.Watt/(cm<sup>2</sup> grd)

0,01mm λ von Incoloy 800 nach KFK 924

Abb.4

Temperaturfeld für Silberlot mit MgO-Isolation im Thermoelement 470[°C]

520 540 560



Daten:

mittlere Oberflächenleistung Wärmeleitfähigkeit von Ni-Lot elektr.Isolation BN Thermoelement-Isolation BN Kontaktzahl im TE engster Lotspalt zw.TE u.Nutflanke Wärmeleitfähigkeit der Hülle Wärmeleitfähigkeit von Na 300 Watt/cm<sup>2</sup>  $\lambda$ von Incoloy 800  $\lambda_{BN}$ =0,24 Watt/(cm grd)  $\lambda_{BN}$ =0,24 Watt/(cm grd) ( $\alpha_{K}$ )<sub>TE</sub>=20 Watt/(cm<sup>2</sup> grd) 0,01mm  $\lambda$ von Incoloy 800 nach KFK 924

# Abb.5 Temperaturfeld, für Ni-Lot mit BN-Isolation im Thermoelement



Abb.6 Verlauf der Oberflächentemperatur und Wärmestromdichteverteilung an der Oberfläche für Ag-Lot mit MgO als TE-Isolation.



Abb.7 Verlauf der Oberflächentemperatur und Wärmestromdichteverteilung an der Oberfläche für Ni – Lot mit BN als TE – Isolation.

# Untersuchungen zur Kühlmittelquervermischung in Na-gekühlten Brennelementen (E. Baumgärtner, H. Hoffmann, IRB)

Die bisherigen Untersuchungen in Natrium wurden durch Experimente in Luft ergänzt. Hierbei kam dieselbe Teststrecke mit 61-Stabbündel und gitterförmigem Abstandshalter zum Einsatz. Die Ergebnisse lassen sich mit vorausgegangenen Luftmessungen in Bündeln mit unterschiedlicher Abstandshalteranordnung sowie mit Ergebnissen aus  $\sqrt{6}$  vergleichen. Sie stinmen nicht mit den Resultaten aus Natriumversuchen überein. Es muß geklärt werden, ob dies auf das Verhalten der Kühlmedien (kompressibel/inkompressibel) oder auf evtl. vorhandene unkontrollierte axiale Energiefreisetzungen des beheizten Stabes (Monostab) zurückzuführen ist. Die Teststrecke wurde mittlerweile konstruktiv so geändert, daß der letztgenannte Effekt weitgehend reduziert wird.

#### 1263.5 Entwicklung und Erprobung von elektrischen Hochleistungsheizstäben

### Weiterentwicklung von Heizstäben

(W. Casal, E. Graf, W. Hartmann, IRB)

Im Berichtszeitraum wurde die Fertigung von Heizstäben begonnen mit Bornitrid-Isolation, rohrförmigem Tantal- bzw. Niobstromleiter und einer Hülle aus Tantal. Diese Heizstäbe werden für Natrium-Siedeexperimente benötigt. Die ersten Versuchsstäbe wiesen nach der Fertigung Risse auf, die infolge zu starker Durchmesserreduktion durch Rundhämmern von 9 mm auf 6 mm entstanden. Eine geringere Reduktion des Stabdurchmessers von beispielsweise 8 mm auf 6 mm erscheint möglich und reicht voll aus, um das pulverförmig eingebrachte Bornitrid auf seine Enddichte zu komprimieren.

#### Instrumentierung von Heizstäben

(V. Casal, E. Graf, W. Hartmann, IRB)

Zur Durchführung von Wärmeübergangsversuchen an Brennelementen müssen Heizstäbe, welche im Versuch die Brennstäbe simulieren, mit Thermoelementen versehen werden. Im Berichtszeitraum wurden Heizstäbe von 6 mm Durchmesser instrumentiert (Abb. 8). Diese Entwicklung wurde in Zusammenarbeit mit der Hauptwerkstatt durchgeführt.



# Abb. 8: Heizstabausschnitt mit Hüllenthermoelement. Thermoelement-Durchmesser vor der Deformation: 0,25 mm

#### Überwachung von Heizstäben

(K. Hitzig, IRB)

Um beim Versagen von Heizstäben Schäden an den Versuchsanlagen zu verhindern, müssen im Betrieb elektrische Heizstäbe mit einem schnell ansprechenden Sicherheitssystem überwacht werden, welches im Schadensfalle Verbraucher und Stromversorgung voneinander trennt. Im Berichtszeitraum wurde ein solches im IRB entwickeltes System an BN-Heizstäben im Natriumbetrieb erprobt. Es zeigte sich, daß beim Versagen eines Heizstabes, der zusammen mit 3 weiteren von einem Gleichrichter gespeist wurde, die Ansprechempfindlichkeit und die Abschaltzeit (3 msec) des Sicherheitssystems ausreicht, um eine mechanische Zerstörung des versagenden Stabes zu verhindern. Erprobung von Heizstäben (G. Drechsler, G. Hennrich)

Im Berichtszeitraum wurden der Heizleiterprüfstand den Anforderungen der BN-Heizstäbe angepasst und erste Probeläufe mit jeweils 4 BN-Stäben durchgeführt.

Handmessgerät zur Ermittlung des Flüssigmetallstandes oder von eingefrorenem Natrium in Rohrleitungen (S. Müller, IRB)

In / l\_/ wurde ein Meßverfahren für die Prüfung von Heiz- und Brennstäben auf eingedrungenes Natrium sowie zur Messung der beheizten Länge von Heizstäben beschrieben. Dieses Prinzip wurde weiterentwickelt und der Einsatzbereich durch die Ausführung als Handgerät wesentlich erweitert (Abb. 9).



Abb. 9: Handmeßgerät zur Ermittlung von Flüssigmetallstand oder eingefrorenem Natrium in Rohrleitungen

In der Praxis hat es sich bei der Suche nach eingefrorenem Natrium in Edelstahl-Rohrleitungen gut bewährt. Der Einsatz des Gerätes zur Überwachung des Höhenstandes oder Meldung eines Maximalstandes von flüssigem Natrium in Rohrleitungen ist möglich, weil eine Messung durch mäßig dicke Wärmeisolationsschichten nicht beeinflußt wird. Das Gerät ist an das Meßobjekt weitgehend anpaßbar. Die Polschuhe sind auf den Prüfrohrdurchmesser einstellbar; sie sind ausserdem abnehmbar. Der Spulenkopf läßt sich mit Polschuhen vom Restgerät trennen und kann so an schwer zugänglichen Stellen montiert werden.

In Abb. 9 ist zur zusätzlichen akustischen Darstellung des Meßausschlages ein Prüfsummer angeschlossen.

126-15

### Literaturhinweise zu 1263:

- <u>/</u>1<u>/</u> PSB 2. Vierteljahresbericht 1971 KFK 1271/2, September 1971
- <u>/</u>2\_/ V. Casal Heizstäbe mit indirekter Widerstandsheizung zur Simulierung von Kernbrennstäben. KFK-894, März 1969
- [-3\_7] A. Teytu Les simulateurs themmiques d'éléments combustibles CEA-B.I.S.T. No 156, Feb. 1971
- [4\_7] S. Malang, K. Rust RELAX - Ein FORTRAN-Programm zur numerischen Bestimmung von Temperaturfeldern mittels der Relaxationsmethode der Thermodynamik. KFK-1053, September 1969
- <u>/</u>5\_7 S. Malang, K. Rust, H. Tschöke The Influence of Heating Methods and Rod Eccentricities on the Measurement in Sodium Experiments. 1971 International Seminar on 'Heat Transfer in Liquid Metals', Trogir/Jugoslawien, 6.-11. September 1971
- [6] W. Baumann, R. Möller Experimentelle Untersuchung der Kühlmittel-Quervermischung an Vielstabbündeln, bestehend aus unberippten, ein-, drei- und sechsfach berippten Brennstäben. KFK-807, März 1969

# 129 ENTWURFSSTUDIEN FÜR NA-GEKÜHLTE SCHNELLE REAKTOREN

# 1291 <u>Theoretische Arbeiten zum Reaktorkern-Entwurf</u> (A. Amendola, K. Doetschmann, IRE)

Mit dem Programm THESYS (KFK-Ber. 1271/2, S. 129-2) wurde die dreidimensionale nominelle Temperaturverteilung im Kernverband des SNR 300 berechnet. Das Ergebnis sind 2 Dateien, von denen eine die Temperaturverteilung der Kastenwände (bei deren Berechnung thermische Wechselwirkung mit Nachbarelementen berücksichtigt wurde) und die andere die Temperaturfelder von Kühlmittel, Hüllrohr und Brennstoff enthält.

Weiterhin wurde durch Kopplung von THESYS mit dem Programm zur statistischen Heißstellenanalyse (s. Abb. 1) eine Optimierung der thermischen Kernauslegung des SNR durchgeführt und damit die Anwendung beider Programme an einem konkreten Fall demonstriert (1). Im folgenden werden die einzelnen Rechenschritte und die wesentlichsten Ergebnisse aufgeführt.

Dem ersten Rechenschritt liegen die bisherigen SNR-Auslegungskriterien zugrunde. In der Leistungsverteilung sind Steuerstab einflüsse und verschiedene Abbrandzustände der Brennelemente (BE) durch die vorangegangene dreidimensionale Diffusionsrechnung bereits berücksichtigt.

Bei der Temperaturberechnung zeigt sich als neues Ergebnis, daß durch die thermischen Ausgleichsvorgänge im BE die Eckkanäle, für die bisher die höchsten Temperaturen erwartet wurden, fast dieselbe Temperatur annehmen wie die benachbarten Randkanäle und damit deutlich unter den Temperaturen im Inneren des BE liegen.

Die BE im Reaktorkern des SNR sind in 9 Kühlgruppen unterteilt. In den jeweils höchstbelasteten BE wird die nom. max. Hüllrohrtemperatur (Innenseite) auf 618 °C eingestellt. Die nom. max. Brennstofftemperatur ergibt sich unter Einhaltung einer Stableistung von 461 W/cm zu 2090 °C. Die statistische Heißstellenanalyse ergibt, daß die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von Heißstellen in der Hülle über 700 °C verschwindend gering ist. Für den Brennstoff ist die gesamte Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von lokalem Brennstoffschmelzen mit 0,002 (2,85) ebenfalls ausreichend klein. In einem zweiten Schritt wird der Reaktorkern so ausgelegt, daß sich auch für die Hülle eine gesamte Heißstellenwahrscheinlichkeit entsprechend 2,8¢ ergibt. Für diesen Fall erhöht sich die nom. max. Hüllrohrtemperatur auf 643 <sup>O</sup>C und die mittlere Kernaustrittstemperatur von 564 auf 584 <sup>O</sup>C. Die Brennstofftemperatur wird hiervon kaum beeinflußt.

Als dritter Schritt wird im betrachteten Fall eine Optimierung der Durchsatzverteilung vorgenommen, durch die bei konstanter Heißstellenwahrscheinlichkeit (2,%) ein Maximalwert für die Kernaustrittstemperatur erzielt wird. Dieses Optimum wird erreicht, wenn sich für alle BE des Reaktorkerns dieselbe Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von Heißstellen ergibt. Durch diese Gleichverteilung des Risikos steigt die mittlere Kernaustrittstemperatur nochmals um 6 °C auf 590 °C, dagegen sinkt die nom. max. Hüllrohrtemperatur auf 637 °C ab. Außer dem Anstieg in der mittleren Austrittstemperatur bringt diese Optimierung den weiteren sehr wesentlichen Vorteil, daß durch Streuung des Risikos die Schadenserwartung sinkt. Bei gleicher Gesamtwahrscheinlichkeit für das Auftreten mindestens einer Heißstelle im Kern ist die Anzahl der zu erwartenden beschädigten Brennstäbe dann nur halb so groß.

Die wichtigsten Ergebnisse der 3 Rechnungen sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

#### Veröffentlichung:

A. Amendola
THEDRA - A Code for Thermal Design Reliability Analysis

KFK 1507 - EUR 4722 e, 1971

|   | Hüllrohr                        |   |  | Brennstoff   |                                 |  | -  |   |                                |  |
|---|---------------------------------|---|--|--|---------------------------------|--|--|---|--------------------------------|--|
|   | Max. nom.<br>Temperatur<br>[°C] | Nichtauftre-<br>tungs-Wahr<br>scheinl. von<br>Heißstellen | Beim Auftr. v<br>zu erwart.<br>Anzahl im<br>Kern | / Heißstellen<br>  Anzahl der<br>  betroffenen<br>  BE | Max. nom.<br>Temperatur<br>[°C] | Nichtauftre-<br>tungs-Wahr-<br>scheinl. von<br>Heißstellen | Beim Auftr.<br>zu erwart.<br>Anzahl im<br>Kern | v. Heißstellen<br>Anzahl der<br>betroffenen<br>BE | Druckverlust<br>im BE<br>[ata] | Mittlere<br>Kühlmittel-<br>Austr-Temp.<br>[°C] |
| Bisherige Auslegung                         | 618                             | ~ 100%  | - 0  |  | 2088                            | 99,8 %<br>(2.8 °)  | 4  | 1   | 4,05                           | 564  |
| Anpassung der Ausle-<br>gung an krit. Temp. | 643                             | 99,8 %<br>(2,85)  | 99   | 1  | 2095                            | 99,5 %<br>(2,66)   | 5  | 1   | 3,35                           | 584  |
| Optimale Auslegung                          | 637                             | 99,8%<br>(286)  | 53   | 1  | 2093                            | 99,6%<br>(2,6 G)   | 5  | 1   | 3,5                            | 590  |

| Tabelle 1: | Zusammenfassuna der | wichtigsten Frgebnisse der | Rechnungen für den SNR 300   |
|------------|---------------------|----------------------------|------------------------------|
| iquette 1. | zusunmenussung der  | wichigsten Eigebhisse der  | Rechnungen für den Start 500 |

Anmerkungen : Nom. Natriumeintrittstemp : 377 °C

Max.nom. Stableistung : 461 W/cm (bei 0 MWd /to)

Zugrundegelegte krit. Temp. bei frischen, 1/3 und 2/3 abgebrannten BE:

Hüllrohrinnenseite : 705, 700, 695 °C

Brennstoffzentrum : 2750, 2700, 2650 °C



## Abb. 1: Ablaufschema einer thermodynamischen Kernauslegung

### 1293 Reaktorentwurf, spezielle Untersuchungen

129 - 4

Untersuchung über die Verwendung von heat pipes in Dampferzeugern (U. Hitzschke, IRE)

Im Rahmen eines Forschungsauftrages wird untersucht, ob die Verwendung von heat pipes als Bauelemente für einen natriumbeheizten Dampferzeuger Vorteile gegenüber der konventionellen Ausführung bietet. Insbesondere soll eine klare Aussage darüber erarbeitet werden, ob die Sicherheit einer heat pipe-Dampferzeugeranlage in bezug auf eine Na-H<sub>2</sub>O-Reaktion größer ist als die bei einer konventionellen Ausführung, und ob damit möglicherweise auf den sekundären Natriumkreislauf verzichtet werden kann.

Die bisherigen Ergebnisse zeigen, daß das maximale axiale Wärmetransportvermögen der heat pipes nicht voll ausgenutzt werden kann.

Zwar ergaben sich bei Ausschöpfung dieses angebotenen Potentials sehr kleine Rohrzahlen, jedoch sind dann zur radialen Wärmeübertragung große Baulängen erforderlich. Damit kann aber die durch die begrenzte Saugkraft der Kapillaren auferlegte Längenbeschränkung der Wärmerohre nicht eingehalten werden, was wiederum entsprechend größere Rohrzahlen notwendig macht.

Die Studie wird mit einem ersten konstruktiven Entwurf, einer Untersuchung über die Sicherheit bei einer Natrium-Wasser-Reaktion sowie einer Kostenabschätzung fortgesetzt.

#### 130 SCHNELLER HOCHFLUSS-TESTREAKTOR

#### Steuerstab für den Schnellen Hochflußtestreaktor (E. Wolf, IRE)

Für den FR 3 wurde ein Steuerstabentwurf fertiggestellt, der gleichermaßen Regel- und Abschaltfunktionen erfüllt / 1\_7. Er stellt eine Alternativlösung zu der in der FR 3-Feasibility-Studie gewählten Konzeption eines räumlich getrennten Regel- und Abschaltsystems dar.

Folgende wesentliche Forderungen werden mit dieser Konstruktion erfüllt:

- Einhaltung einer möglichst niedrigen Bauhöhe über dem ReaktordeckeL
- Zum Beladen des Cores muß sich das Antriebsgestänge ca. 3,5 m in die Höhe fahren lassen. Ferner müssen die über dem Reaktordeckel befindlichen Bauteile zum Auswechseln der Bestrahlungsrohre fernbedient abnehmbar sein.
- Die Konstruktion muß sich mit derzeit zur Verfügung stehenden Mitteln realisieren lassen. Soweit wie möglich sollen bisher bewährte Bauprinzipien zur Anwendung kommen.
- Schnellabschaltzeit: < 0,4 sec; Regelgeschwindigkeit: ca. 2 3 mm/sec.

#### Veröffentlichung:

/ I / E. Wolf

Steuerstabentwurf für einen natriumgekühlten Hochfluß-Testreaktor

Diplomarbeit, Universität Karlsruhe 1971

المعالمية. 1973 - معالم معالمة المعالمية المعالمية مع المعالمية مع المعالمية مع المعالمية المعالمية المعالمية المعالمية ال 1973 - معالمية