

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

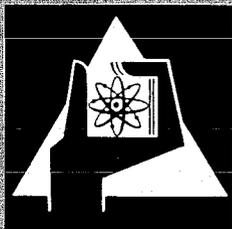
Mai/Juli 1971

KFK 1459

Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Schneller Brüter

UO_2 -/ PuO_2 -Stahl-Cermets als Brennstoff in Brennelementen

C. A. Föhl, S. Nazare, G. Ondracek



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Son
Ver
REA

Pul

Von
Institu

Zusa
UO₂
für s
Beric
cher
des
spro
druc
die L
Stahl
ticu
Frag
oder

Abstr
Powde
UO₂-/I
flux re
techno
steel
consid
tent,
tempe
basis
and U

EURAT

1. Ein

Für g
von l
woge
therr
währ
wurde
In ne
aufge
schne

Die b
gute
Korro
(Was:
im Ve
Brenn
die S
perati
ringe
weil s
Folge

¹ Geme

Pulvermetallurgische Herstellung von UO_2 -/ PuO_2 -Stahl-Formkörpern

Von C. A. Föhl und G. Ondracek

Institut für Material- und Festkörperforschung, Kernforschungszentrum Karlsruhe

Zusammenfassung

UO_2 -/ PuO_2 -Stahl-Cermets werden als möglicher Brennstoff für schnelle Hochflußreaktoren betrachtet. Der vorliegende Bericht faßt die technologischen Daten zur Herstellung solcher Cermets zusammen. Die Charakteristik des UO_2 - und des Stahlpulvers, ihre Mischung und Verdichtung wird besprochen. Die Einflüsse des Spaltstoffgehaltes, des Preßdruckes, der Sinteratmosphäre, -dauer und -temperatur auf die Dichte werden ermittelt und gedeutet. Die an UO_2 -/ PuO_2 -Stahl-Dispersionen gewonnenen Ergebnisse bilden die Orientierungsgrundlage für zukünftige Arbeiten über andere in Frage kommende Dispersionsbrennstoffe wie UO_2 -/ PuO_2 -Cr oder UO_2 -/ PuO_2 -V-Cermets.

Abstract

Powder metallurgical production of UO_2 -/ PuO_2 -steel-pellets

UO_2 -/ PuO_2 -steel-cermets are possibly a fuel material for fast neutron flux reactors. In the present paper the data are compiled concerning the technology of such cermets. The powder characteristic of the UO_2 - and steel powder as well as their mixing conditions and densification are considered. It is shown, how the density is affected by the oxide content, densification pressure, sintering atmosphere, sintering time and temperature. The results received with UO_2 -/ PuO_2 -steel-dispersions are the basis for the forthcoming work about dispersion fuels as UO_2 -/ PuO_2 -Cr and UO_2 -/ PuO_2 -V-cermets.

EURATOM/INIS DESCRIPTORS

FABRICATION	PELLETS
POWDER METALLURGY	MIXING
POWDERS	COMPACTING
CERMETS	DENSITY
URANIUM DIOXIDE	QUANTITY RATIO
PLUTONIUM OXIDES	PRESSURE
STAINLESS STEELS	SINTERING

1. Einleitung

Für geplante schnelle Hochflußreaktoren wird der Einsatz von UO_2 - bzw. PuO_2 -Stahl-Dispersionen als Brennstoff erwogen. Solche Brennstoffe haben sich bereits in einigen thermischen Leistungsreaktoren (VBWR, SM-1, PM-1) bewährt [1]. Auch der natriumgekühlte schnelle Reaktor EFFBR wurde zeitweilig mit UO_2 -Stahl-Brennelementen betrieben. In neuerer Zeit wurde dieser Brennstoff für den inzwischen aufgegebenen thermischen Hochflußreaktor AARR und den schnellen Testreaktor FTR vorgeschlagen.

Die besonderen Vorteile dieses Dispersionssystems sind die gute Verträglichkeit zwischen den Komponenten und die Korrosionsbeständigkeit des Hüllmaterials im Kühlmedium (Wasser oder Natrium). Auch die hohe Festigkeit des Stahles im Vergleich zu den üblichen thermischen Hochflußreaktor-Brennstoffen auf Al-Basis (z. B. UAl_x bzw. U_3O_8 -Al) dürfte die Stabilität des Brennelementes bei höheren Betriebstemperaturen gewährleisten. Dieser Vorteil wird durch die geringe Wärmeleitfähigkeit des Stahles zum Teil aufgewogen, weil sie eine hohe Zentraltemperatur des Brennelementes zur Folge hat. In diesem Zusammenhang würden andere Metall-

phasen wie Chrom oder Vanadin günstiger erscheinen, weswegen sie in zukünftige Betrachtungen einbezogen werden sollen.

Der vorliegende Bericht faßt den heutigen Kenntnisstand der Technologie von UO_2 -/ PuO_2 -Stahl-Dispersionen zusammen.

2. Pulvercharakteristik

Als Ausgangsmaterial wird möglichst stöchiometrisches Urandioxid ($UO_{1,998}$ bis $UO_{2,01}$) verwendet, weil dann seine Wärmeleitfähigkeit am besten ist. Eine typische chemische Zusammensetzung [2] zeigt Tab. 1. Das Stahlpulver für die Matrix ist überwiegend identisch mit dem des Hüllmaterials.

Tab. 1: Chemische Zusammensetzung von UO_{2+x} -Pulver [2]

Table 1: Chemical analysis of the UO_{2+x} -powder [2]

Bestandteil	Anteil
U	≥ 87,6 Gew.-%
B	1 ppm
Be	0,5 ppm
Li	5 ppm
Co	10 ppm
Cd	10 ppm
Gd	10 ppm
Al	200 ppm
Andere metallische Verunreinigungen (zusammen)	500 ppm

Damit wird die Anpassung der Eigenschaften (z. B. Festigkeit, thermische Ausdehnung) von Brennstoff und Hülle für die spätere Warmbearbeitung optimal. Auch entfallen dadurch Verträglichkeitsprobleme zwischen Brennstoff und Hülle. Verwendet werden vorlegierte austenitische Stahlpulver bzw. -bleche. Ihre chemische Zusammensetzung [3] ist in Tab. 2 angegeben.

Tab. 2: Chemische Zusammensetzung austenitischer Stähle [3]

Table 2: Chemical analysis of stainless steels [3]

Bestandteil	Zusammensetzung [Gew.-%]		
	AISI 304-L	AISI 316-L	AISI 347-L
C	0,03	0,03	0,03
Ni	10,43	12,92	11,30
Cr	18,14	17,31	17,04
Si	0,90	0,76	0,98
P	0,014	0,013	0,011
S	0,010	0,013	0,012
Nb	–	–	0,87
Mn	0,44	0,31	0,35
Co	–	–	–
Ta	–	–	–
O ₂	–	–	–
Mo	–	2,21	–
Fe	Rest	Rest	Rest

¹ Gemeint sind immer austenitische, rostfreie Stähle.

Die Dispersionsbrennelement-Theorie [1; 4] bildet die Grundlage für die Festlegung der geeigneten Partikelgröße und -gestalt des Dispergenten. Für das optimale Verhalten der Dispersion unter Bestrahlung sollen sich die durch Rückstoßatome geschädigten Zonen (Recoilzonen) in der Matrix nicht berühren. Bei Annahme dichtester Packung des kugeligen Dispergenten ist der mittlere Abstand zwischen den Partikeln gegeben durch:

$$d = \left[\sqrt[3]{\frac{\pi}{3\sqrt{2}V_D} - 1} \right] D \quad (1)$$

(d = Partikelabstand, D = Partikeldurchmesser, V_D = Volumenanteil des Dispergenten).

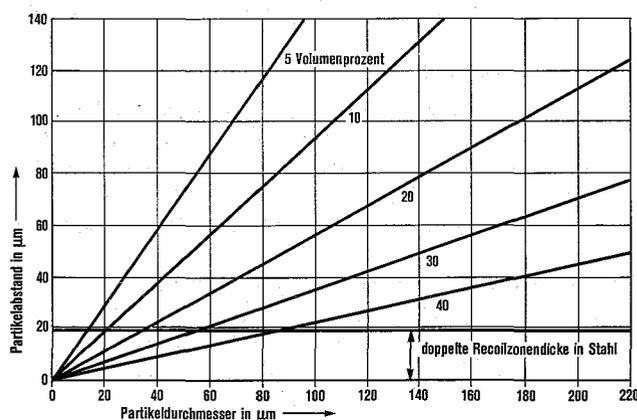


Fig. 1: Der Abstand dispergierter UO_2 -Partikel als Funktion des Partikeldurchmessers bei verschiedenen UO_2 -Konzentrationen

Fig. 1: Relationship between the diameter, concentration and interparticle distance for dispersed UO_2 -particles

Der Partikelabstand ist als Funktion des Partikeldurchmessers für verschiedene UO_2 -Konzentrationen in Fig. 1 aufgetragen. Der doppelte Betrag der Dicke der Recoilzone in Stahl (etwa 9,4 mm [5]) wurde als waagrechte Linie ebenfalls in Fig. 1 eingetragen. Nur Bedingungen oberhalb dieser Linie gewährleisten eine zumindest teilweise unbeschädigte Matrix. Allerdings werden in der Praxis meist erheblich größere UO_2 -Partikel gewählt (74 bis 149 μm bei 20 Vol.-% UO_2 , 350 bis 500 μm bei 40 Vol.-% UO_2 , 100 bis 150 μm bei 20 Vol.-% PuO_2) [2; 6; 7]. Dies ist einerseits dadurch begründet, daß der Anteil der Spaltfragmente, die in die Matrix gelangen, mit steigendem Partikeldurchmesser abnimmt. Die Beziehung lautet [8]:

$$P_a = \frac{1}{2} \left[3 \frac{\lambda_f}{D} - \left(\frac{\lambda_f}{D} \right)^3 \right] \text{ für } D \geq \lambda_f \quad (2)$$

(P_a = Anteil der austretenden Spaltfragmente, D = Partikeldurchmesser, λ_f = Dicke der Recoilzone).

Andererseits führt die Anwendung größerer Partikel zu einer Erhöhung der Partikelabstände. Damit wird auch der Widerstand des umgebenden Metallnetzes, das als Druckbehälter gegen den Spaltgasdruck wirkt, gesteigert.

Kugelige Dispergentengestalt wird im wesentlichen aus zwei Gründen bevorzugt: Erstens haben sphärische Partikel das kleinstmögliche Oberflächen/Volumen-Verhältnis und erzeugen daher durch Spaltfragmentaustritt die geringste Schädigung der Metallmatrix [9], und zweitens ist bei kugelförmiger Einlagerung der Einfluß der Kerbwirkung auf den Spannungsverlauf am geringsten [10; 11].

Die Partikelgröße und -gestalt des Stahlpulvers, das die Matrix der Dispersion bildet, wird mehr nach technologischen Gesichtspunkten gewählt. Es wurden verschiedene Teilchengrößen (bis zu etwa 100 μm) verwendet [12]. Annähernd sphärische Gestalt soll sich beim Naßmischen günstig auswirken, weil kugelige Stahlteilchen auf den UO_2 -Partikeln eine gleichmäßige Schicht bilden [2]. Die Stabilität der Preßlinge wird jedoch durch sphärisches Matrixpulver nachteilig beeinflusst, da sich kugelige Teilchen beim Pressen mechanisch nur schlecht verzahnen. Daher wird ein Gemisch von sphärischen und unregelmäßigen Teilchen (z. B. 7:1 Gew.-Anteile) verwendet [2; 13; 14]. Andererseits haben vergleichende Walzversuche ergeben, daß durch die Verwendung von kugeligem Stahlpulver die Tendenz zur Dispergenten-Zertrümmerung und Zeilenbildung verringert wird [2].

Der Einsatz poröser Dispergenten wird als Mittel angesehen, das Schwellen des Brennstoffes während des Betriebes zu verringern [10]. Die Porosität wirkt als Reservoir für die Spaltprodukte. Ihr Einfluß ist allerdings nur dann zu bemerken, wenn die umgebende Metallmatrix bzw. die Hülle bei den herrschenden Betriebstemperaturen genügend Festigkeit aufweist, um den Spaltstoff zu zwingen, in die eigene Porosität zu schwellen. Hier ist zum Teil die Forderung nach einer Matrix mit hoher Warmfestigkeit und guter Wärmeleitfähigkeit (geringe Zentraltemperatur) begründet. Der günstige Einfluß der Porosität auf das Schwellverhalten wurde bei Bestrahlungsversuchen bestätigt. Solche Versuche an UO_2 -Stahl-Cermetplatten (37 Gew.-% = 25 Vol.-% UO_2) haben bei niedrigen Zentraltemperaturen (130 bis 250 $^{\circ}\text{C}$) die in Tab. 3 aufgeführten Volumenänderungen ergeben [15; 16].

Tab. 3: Der Einfluß der Porosität auf das Schwellverhalten von bestrahlten UO_2 -Partikeln [15; 16].

Table 3: The effect of porosity on the swelling of irradiated UO_2 -particles [15; 16].

UO_2 -Dichte % TD	mittlere gemessene Volumen- änderung $\Delta V/V$ pro 10^{20} f/cm 3
81,9	0,26
89,1	0,40
100,0	0,638 (berechnet)

Auch bei höheren Temperaturen (550 bis 700 $^{\circ}\text{C}$ an der Oberfläche) wurde an Cermetplatten und -stäben (30 bis 50 Vol.-% UO_2) der günstige Einfluß von Brennstoffpartikel-Porosität auf das Schwellverhalten beobachtet [7; 17]. Erst wenn die vorhandene Porosität durch die unter Bestrahlung anfallenden Spaltprodukte aufgebraucht ist, beginnt die Gesamtdispersion zu schwellen (Schwellrate etwa 2% pro 1% Abbrand).

Technologisch bereitet die Verwendung poröser UO_2 -Partikel in der Dispersion einige Schwierigkeiten. Die porösen Teilchen werden wegen ihrer niedrigen Druckfestigkeit beim Pressen bzw. Walzen zertrümmert. Damit wird die Homogenität der Dispersion nachteilig beeinflusst. An plattenförmigen Elementen wurde festgestellt, daß die Tendenz zur Teilchenzertrümmerung vermindert wird, wenn die UO_2 -Partikel (Dichte zwischen 85 und 90% TD) eine Druckbelastung von etwa 100 kp/mm^2 aushalten [2; 18].

3. Mischen der Komponenten

Die Homogenität der Dispersion hängt entscheidend vom Mischprozeß ab. Die Tendenz zur Entmischung, die aus der unterschiedlichen Dichte der Komponenten (UO_2 : 10,96 g/cm^3 , Stahl: etwa 7,97 g/cm^3) resultiert, wird noch durch die verschiedene Größe und Gestalt der Partikel verstärkt. Be-

sonders starke Entmischungen treten auf beim Auffüllen von Preßmatrizen mit trocken gemischtem Pulver. Daher wird das Naßmischen mit verschiedenen Zusätzen (1 bis 5 Gew.-% Paraffin- CCl_4 , 1 Gew.-% Canphor- CCl_4 , ethelene glycol, Canphor-Alkohol, Ceremul C, Cranco) vorgezogen [2; 12; 18-31]. Das geeignete Binde- bzw. Lösungsmittel muß leicht und vollständig während der späteren Wärmebehandlung zu entfernen sein.

Beim Naßmischen [18] wird das UO_2 -Pulver zunächst mit dem flüssigen Bindemittel gemischt und dann bis zum Gefrierpunkt abgekühlt. Anschließend wird es durch ein Sieb (z. B. $177 \mu\text{m}$) passiert, um Agglomerationen zu trennen. Die paraffinbeschichteten UO_2 -Kugeln fallen in einen vibrierenden Behälter mit dem abgewogenen kalten Stahlpulver. Während des Vibrierens erwärmen sich die UO_2 -Kugeln, die Paraffinschicht auf ihnen wird klebrig und die Stahlpartikel haften auf ihnen. In einem Taumelmischer wird weiter homogenisiert (15 bis 30 min bei 30 Upm). Auf diese Weise erhält man Dispersionen mit einer relativ geringen Schwankung des UO_2 -Gehaltes ($\pm 2\%$ des Nominalanteils in einem Kreis von $25,4 \text{ mm } \phi$ [40]).

Die Beschichtung der UO_2 -Partikel mit dem Matrixmetall über die Gasphase (idealisierte Dispersion = coated particles) ist nur für geringe Schichtdicken (hoher Keramikanteil) praktikabel und außerdem für Mehrkomponentensysteme wie Stahl kaum durchführbar.

Über die Oxidreduktion soll es jedoch gelungen sein, UO_2 -Pulver (105 bis $149 \mu\text{m } \phi$) mit Stahlschichten bis zu $50 \mu\text{m}$ Stärke in größeren Mengen herzustellen [9]. Die beschichteten Teilchen wurden dann durch Heißpressen zu einer Dispersion (mit $45 \text{ Gew.}\% = 37,5 \text{ Vol.}\% \text{UO}_2$) verarbeitet.

4. Verdichtung der Pulvermischung

Die Pulvermischungen werden meist durch einseitiges oder doppelseitiges Kaltpressen verdichtet [1; 12; 19; 22; 23; 27; 32]. Als Gleitmittel wird überwiegend ein dünner Stearinsäurefilm verwendet.

Die Abhängigkeit der Preßlingsdichte von der Dispergentenkonzentration (konstanter Preßdruck: $9,3 \text{ Mp/cm}^2$) zeigt Fig. 2 [33]. Der Kurvenverlauf zeigt den Übergang von einer Stahl- zu einer PuO_2 -Matrix (für die verwendete Partikelgröße und -gestalt bei etwa $40 \text{ Vol.}\% \text{PuO}_2$).

Der Verlauf der Preßlingsdichte als Funktion des Preßdruckes bei UO_2 -Stahl-Cermets ($30 \text{ Vol.}\% \text{UO}_2$) wird in Fig. 3 dargestellt [34]. Ähnliche Verhältnisse liegen auch bei PuO_2 -Stahl-Cermets vor (Fig. 4) [33]. Es wurde festgestellt, daß diese Kurven dem folgenden Potenzgesetz gehorchen [35]:

$$\rho = a p^n \quad (3)$$

(ρ = Preßlingsdichte, a = Konstante, p = Preßdruck, n = Deformationsverfestigungsexponent).

Trägt man diese Funktion in doppellogarithmischem Maßstab auf, so ergeben sich Geraden (Fig. 5). Der Exponent n hängt mit der Verfestigung des Matrixmetalls und indirekt mit dem Anteil an keramischer Phase zusammen, da diese das Verfestigungsverhalten der metallischen Komponente wesentlich beeinflusst. Je höher der keramische Anteil in der Dispersion ist, desto flacher verlaufen die Geraden. Der Exponent n sinkt also mit steigendem UO_2 -Anteil. Die keramische Komponente wird als weitgehend starr angesehen, d. h. sie erfährt keine Verformung unter Druckbelastung. Das Preßverhalten von UO_2 - und $(\text{UPu})\text{O}_2$ -Stahl-Cermets mit gleichen Volumenkonzentrationen und Partikelcharakteristika

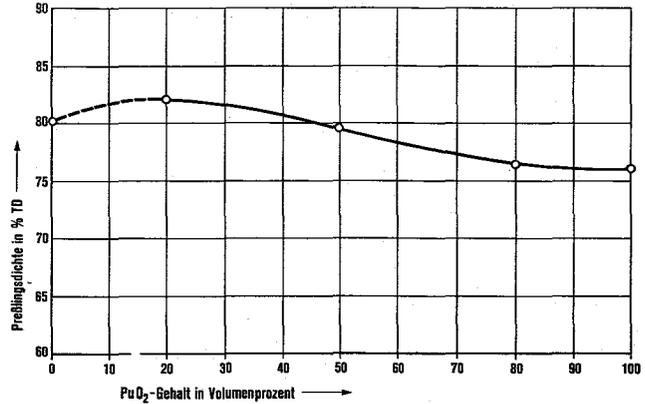


Fig. 2: Die Preßlingsdichte von PuO_2 -Stahl 302 B-Pellets als Funktion der PuO_2 -Konzentration (Preßdruck: $9,3 \text{ Mp/cm}^2$) [33]

Fig. 2: As-pressed density of PuO_2 -steel 302 B-pellets in dependence on PuO_2 -concentration (densification pressure $9,3 \text{ Mp/cm}^2$) [33]

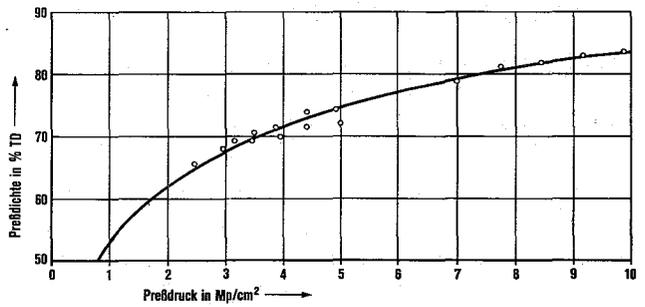


Fig. 3: Die Preßlingsdichte als Funktion des Preßdruckes bei $30 \text{ Vol.}\% \text{UO}_2$ -Stahl 304-Cermets [34]

Fig. 3: As-pressed density of UO_2 -steel 304-cermets ($30 \text{ vol.}\% \text{UO}_2$) as a function of pressure [34]

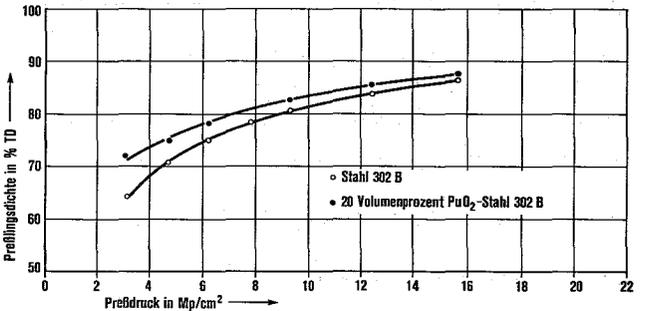


Fig. 4: Die Preßlingsdichte als Funktion des Preßdruckes bei Stahl 302 B und bei $20 \text{ Vol.}\% \text{PuO}_2$ -Stahl 302 B-Cermets [33]

Fig. 4: As-pressed density of steel 302 B and PuO_2 -steel-cermets ($20 \text{ vol.}\% \text{PuO}_2$) as a function of pressure [33]

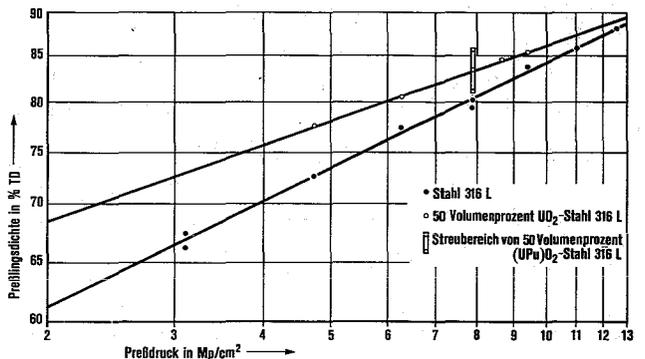


Fig. 5: Die Preßlingsdichte als Funktion des Preßdruckes bei Stahl 316 L, bei $50 \text{ Vol.}\% \text{UO}_2$ -Stahl 316 L-Cermets und bei $50 \text{ Vol.}\% (\text{UPu})\text{O}_2$ -Stahl 316 L-Cermets [35]

Fig. 5: As-pressed density of steel 316 L, UO_2 -steel 316 L-cermets ($50 \text{ vol.}\% \text{UO}_2$) and $(\text{UPu})\text{O}_2$ -steel 316 L-cermets ($50 \text{ vol.}\% (\text{UPu})\text{O}_2$) as a function of pressure [35]

zeigt einen ähnlichen Verlauf. Das wird als Bestätigung für die Tatsache angesehen, daß das Preßverhalten von Cermets mit metallischer Matrix weitgehend von dieser bestimmt wird [35].

Das isostatische Kaltpressen (Preßdruck: 3,15 Mp/cm²) wurde dort als Verdichtungsverfahren angewandt, wo vom Brennelementkonzept her kugelige Pelletgeometrie (3,18 bzw. 6,35 mm ϕ) erwogen wurde (z. B. Ordered Bed Reactor) [29].

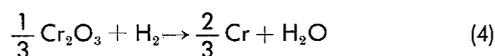
Wenn Stab- oder Röhrenform als Geometrie des Brennelementes vorgegeben ist, kann die Pulvermischung auch direkt in der entsprechenden dünnen Hülse aus Stahl verdichtet werden. Um den dabei auftretenden radialen Kräften entgegenzuwirken, werden die Hülsen in massive Stahlmatrizen eingebaut [36].

Die Verdichtung, die man durch Kaltpressen erzielt, ist nur dann ausreichend, wenn noch eine Warmbearbeitung (Walzen, Strangpressen, Rundhämmern) zur Herstellung des umhüllten Brennelementes vorgesehen ist. Während dieser Bearbeitung wird in einem Schritt sowohl eine metallurgische Bindung zwischen Brennstoff und Hülle als auch eine fast vollständige Verdichtung der Dispersion erzielt.

5. Sintern

Bei der Herstellung plattenförmiger Brennelemente mit der Bilder-Rahmen-Technik werden die Preßlinge meistens gesintert. Wegen der Legierungselemente Cr und Si, die sehr stabile Oxide bilden, werden hohe Anforderungen an die Sinteratmosphäre gestellt. Grundsätzlich kommen sowohl hohes Vakuum als auch reduzierende Atmosphären (Wasserstoff oder Ammoniak-Spaltgas) in Frage. Stähle mit Ti, Ta oder V bilden mit Wasserstoff Hydride und mit Stickstoff Nitride; sie können daher nur im Vakuum gesintert werden. Bei Anwendung von Wasserstoff bzw. Ammoniak-Spaltgas ist eine zusätzliche Trocknung der Gase erforderlich.

Die Reduktion der vorhandenen Metalloxide (z. B. Cr₂O₃) findet nach folgender Gleichung statt:



Die freie Enthalpie dieser Reaktion ist:

$$\Delta G = \Delta G^0 - RT \ln \frac{P_{\text{H}_2}}{P_{\text{H}_2\text{O}}} \quad (5)$$

Im thermodynamischen Gleichgewicht ist $\Delta G = 0$. Für $\Delta G < 0$ ist die Atmosphäre reduzierend, die Reaktion verläuft von links nach rechts.

In Fig. 6 sind für verschiedene Legierungselemente in Stählen die Gleichgewichtsbedingungen von Metalloxiden in H₂-H₂O-Atmosphäre eingetragen. Bei vorgegebener Sintertemperatur ist die Reduktion des betreffenden Oxids nur dann sichergestellt, wenn das H₂/H₂O-Verhältnis oberhalb der jeweiligen Kurve liegt [37]. Die Ofenatmosphäre wird durch die Messung des Taupunktes kontrolliert [23; 37]. Ein bestimmter Taupunkt des H₂-H₂O-Gemisches ist erforderlich, um bei gegebener Temperatur eine reduzierende Wirkung des Wasserstoffes zu gewährleisten (z. B. Taupunkt -32 °C für Chromoxid bei 1100 °C).

Der Einfluß der Sintertemperatur ist bei UO₂-Stahl-Dispersionen nicht systematisch untersucht worden. Vorausgesetzt eine Stahlmatrix liegt vor, so dürfte das Sinterverhalten der Matrix für die ganze Dispersion maßgebend sein [38]. In

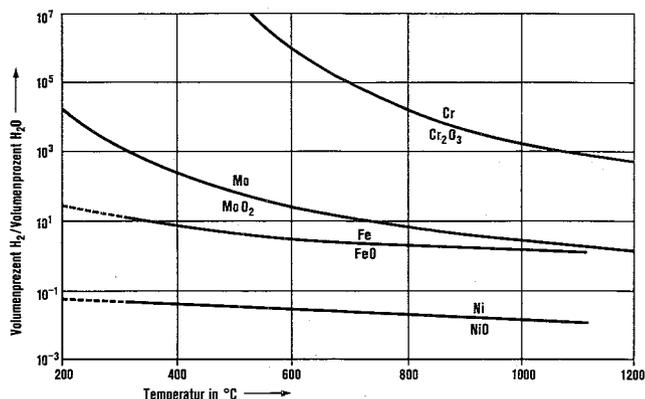


Fig. 6: Das zur Reduktion der Oxide von Legierungselementen in Stählen erforderliche H₂/H₂O-Volumenverhältnis in Abhängigkeit von der Temperatur [37]

Fig. 6: Relationship between the temperature and the H₂/H₂O-ratio necessary to reduce oxides of alloying elements in steels [37]

Fig. 7 ist die Sinterlingsdichte als Funktion der Sintertemperatur für Stahl CrNi 18/8 aufgetragen [39]. Die Preßlinge wurden aus vorlegierten Pulvern hergestellt (Preßdruck: etwa 5 Mp/cm², Sinterdauer: 4 Std., Sinteratmosphäre: hochreiner Wasserstoff). Die Sintertemperatur (für UO₂-Stahl-Dispersionen zwischen 1250 und 1350 °C) ist so zu wählen, daß keine oder nur geringe Verdampfungsverluste von Cr und Si auftreten [1; 23; 33; 40].

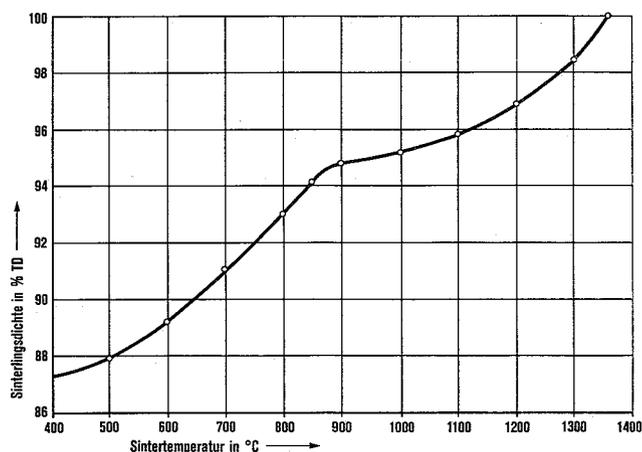


Fig. 7: Die Sinterlingsdichte als Funktion der Sintertemperatur bei Stahl CrNi 18/8 (Preßdruck: 5 Mp/cm², Sinterdauer: 4 h, Sinteratmosphäre: hochreiner Wasserstoff) [39]

Fig. 7: The effect of temperature on the sintered density of steel CrNi 18/8 (pressure: 5 Mp/cm², sintering time: 4 h, sintering atmosphere: pure hydrogen) [39]

Den Einfluß der Sinterdauer auf die Dichte von Stahl bzw. UO₂-Stahl-Dispersionen zeigt Fig. 8. Daraus ersieht man, daß eine beliebige Steigerung der Sinterdauer (> 4 Std.) zu keiner wesentlichen Verbesserung der Dichte mehr führt [39].

Durch Kaltpressen und Sintern allein wird die gewünschte Verdichtung der Matrix meist nicht erzielt. Eine dichte Matrix ist jedoch aus zwei Gründen erwünscht. Einerseits hat Porosität in der Matrix eine Erniedrigung ihrer Wärmeleitfähigkeit und damit eine Erhöhung der Zentraltemperatur im Brennstoff zur Folge. Andererseits erniedrigt sie den Widerstand, den die metallische Komponente dem schwellenden Spaltstoff entgegensetzen soll, und ermöglicht außerdem den Austritt von gasförmigen Spaltprodukten aus dem Brennstoff.

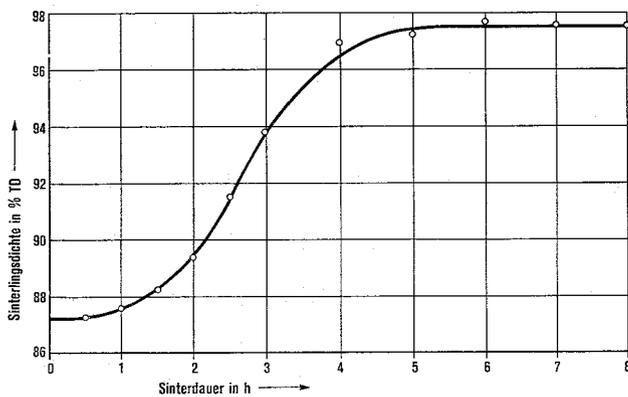


Fig. 8: Der Einfluß der Sinterdauer auf die Sinterlingsdichte von Stahl CrNi 18/8 (Sintertemperatur: 1250 °C, Preßdruck: 5 Mp/cm², Sinteratmosphäre: hochreiner Wasserstoff) [39]

Fig. 8: The effect of sintering time on sintered density of steel CrNi 18/8 (sintering temperature: 1250 °C, pressure: 5 Mp/cm², sintering atmosphere: pure hydrogen) [39]

Eine zusätzliche Verdichtung der Stahlmatrix wird durch die Doppelpreßtechnik erzielt [12; 19; 20; 24; 34; 40; 41]. Das gesinterte Pellet wird ein- oder mehrmals kaltgepreßt. Die dabei verfestigte Stahlmatrix wird unterhalb der Sintertemperatur (z. B. 1050 °C [35]) weich gegläht und dann wieder gepreßt. Den Verlauf der Dichte als Funktion des Preßdruckes von doppelgepreßten und gesinterten (UPu)O₂-Stahl-Pellets (50 Vol.-% (UPu)O₂) zeigt Fig. 9. Hier erhält man wiederum – analog zu Fig. 5 – eine lineare Abhängigkeit im doppellogarithmischen Maßstab, was auf den gleichen Verdichtungsmechanismus hinweist.

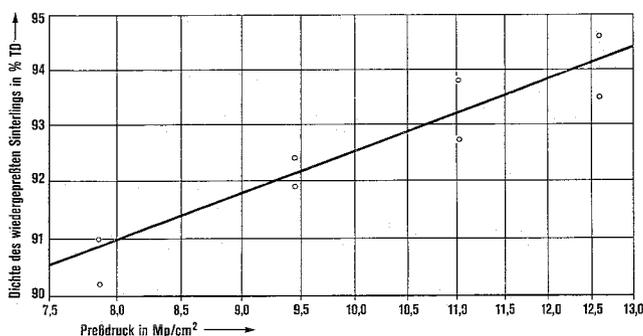


Fig. 9: Der Verlauf der Dichte als Funktion des Preßdruckes bei doppelgepreßten und gesinterten (UPu)O₂-Stahl 316 L-Pellets (50 Vol.-% (UPu)O₂, Erstpressen mit 7,87 Mp/cm², gesintert bei 1350 °C in Wasserstoffatmosphäre) [35]

Fig. 9: Relationship between pressure and density of coined and sintered (UPu)O₂-steel 316 L-pellets (50 vol. % (UPu)O₂, first pressure route 7,8 Mp/cm², sintering temperature 1350 °C, hydrogen atmosphere) [35]

Auch das Drucksintern von UO₂-Stahl-Dispersionen [19] ergibt Pellets mit sehr hohen Dichten. Diese letzte Methode ist allerdings etwas unwirtschaftlich, weil im Umhüllungsprozeß sowieso eine weitere Verdichtung der Dispersion stattfindet. Stahlmatrizen halten die hohen Temperaturen (etwa 1125 °C) und Drücke (etwa 4,5 Mp/cm²) nicht aus. Auch Wolframkarbidmatrizen haben zu geringes Standvermögen (1 bis 2 Sinterlinge). Daher werden meist Graphitmatrizen mit optimalen Drucksinterbedingungen (Preßdruck: 1,25 Mp/cm², Sintertemperatur: 1125 °C, Sinterdauer: 10 min.) verwendet (Sinter-

dichte: etwa 96 % TD bei Dispersionen mit 50 Vol.-% (UPu)O₂). Der aufgenommene Kohlenstoff (0,1 bis 0,2 Vol.-%) tritt als Karbid an den Korngrenzen auf. Durch nassen Wasserstoff (1200 °C, 4 Std.) wird zunächst das Karbid in Metalloxid übergeführt. Anschließend werden diese Oxide mit einer ähnlichen Behandlung in trockenem Wasserstoff reduziert (siehe Fig. 6). Anstelle der Karbide verbleiben an den Korngrenzen kleine Poren (Kohlenstoffgehalt vermindert auf 0,04 bis 0,07 Vol.-%) [19]. – Die Umhüllung so hergestellter Formkörper, d. h. die Herstellung von Brennelementen, wird demnächst behandelt werden [42].

Die Verfasser danken Herrn Dr. Nazare und Herrn Professor Thümmel für die Unterstützung dieser Arbeit.

(Eingegangen am 18. 12. 1970)

Literatur

- [1] Holden, A. N.: Dispersion Fuel Elements. New York: Gordon and Breach Science Publishers 1968
- [2] Lozier, D. E., D. E. Kizer: BMI-X-10 200 (1967)
- [3] Handbook of Metal Powders. New York: Reinhold Publishing Corporation 1966
- [4] White, D. W. et al.: TID-7546 Book 2 (1957)
- [5] Keller, D. L.: Nucleonics **19**, 45 (1961)
- [6] Bailey, W. J. et al.: Trans. A.N.S. **8**, 2 (1965)
- [7] Lambert, J. D. B.: Nuclear Energy, July/August (1967)
- [8] Weber, C. E.: Progress in Nuclear Energy, Series V, Metallurgy and Fuels. New York: McGraw Hill (1959)
- [9] Goslee, G. E.: Nucleonics **21**, 48 (1963)
- [10] Weir, J. R.: ORNL-2902 (1960)
- [11] Cunningham, J. E.: ORNL-P-2355 (1964)
- [12] Taylor, A. J.: ORNL-3645 (1964)
- [13] Keller, D. L. et al.: BMI-1765 (1966)
- [14] Keller, D. L. et al.: BMI-1771 (1966)
- [15] Graber, M. J. et al.: IN-1160 (1968)
- [16] Gibson, G. W.: IN-1131 (1967)
- [17] Lambert, J. D. B.: In High Temperature Nuclear Fuels, Metallurgical Society of the AIME **42**. New York: Gordon and Breach Science Publishers 1968
- [18] Lozier, D. E., D. E. Kizer: BMI-X-10 172 (1966)
- [19] Evans, J. P.: AERE-M-1314 (1965)
- [20] Dayton, R. W. et al.: BMI-1697 (1964)
- [21] Dayton, R. W. et al.: BMI-1487 (1960)
- [22] Lloyd, H.: New Nuclear Materials Including Non-Metallic Fuels 2. IAEA Conference in Prag (1.–5. July 1963)
- [23] Paprocki, S. J. et al.: BMI-1322 (1959)
- [24] Cherubini, J. H. et al.: CF-61-4-71 (1961)
- [25] Walter, J. H. et al.: NAA-SR-4641 (1960)
- [26] Frost, B. R. T.: 3. Genfer Konferenz **10**, (P 153) S. 171 (1965)
- [27] Megeff, S. I. et al.: SEP-175 (1955)
- [28] Dayton, R. W., C. R. Tipton: BMI-1259 (1958)
- [29] Pancer, G. P. et al.: BNL-10 521 (1966)
- [30] Keller, D. L.: BMI-1697 (1964)
- [31] Dayton, R. W.: BMI-1694 (1964)
- [32] Bockstiegel, G. et al.: Arch. Eisenhüttenw. **36** (1965)
- [33] Pritchard, W. C.: LAMS-2898 (1963)
- [34] Snajdr, E. A.: BNWL-269 (1963)
- [35] Cope, L. H.: Metallurgia **70**, (1964)
- [36] Meny, L. et al.: 4. Plansee Seminar (1961) und AERE-Trans. 883 (1961)
- [37] Reinstadler, R.: Z. f. Metallkunde **53** (1962)
- [38] Sands, R. L., J. H. Watkinson: Pow. Met. **5** (1960)
- [39] Wulff, J.: Powder Metallurgy. Am. Soc. Metals, Cleveland (1942)
- [40] Cunningham, J. E.: TID-7546 Book 1 (1957)
- [41] Cherubini, J. H., S. A. Rabin: ORNL-3160 (1961)
- [42] Föhl, C. A., S. Nazare, Atomkernenergie, im Druck, 1971

Technologie von UO_2 -/ PuO_2 -Stahl-Brennelementen

Von C. A. Föhl und S. Nazaré

Institut für Material- und Festkörperforschung, Kernforschungszentrum Karlsruhe

Zusammenfassung

Platten- und stabförmige umhüllte Brennelemente aus UO_2 -/ PuO_2 -Stahl-Dispersionen können mit der Bilderrahmenteknik, durch Strangpressen ($5,6\text{ mm } \phi$), Rundhämmern oder isostatisches Drucksintern hergestellt werden. Im vorliegenden Bericht werden die Daten dieser Verfahren systematisch zusammengestellt. Die Auswirkung der verschiedenen Einflußfaktoren wie z.B. Verformungsgrad, Walztemperatur, Strangpreßdruck oder Formänderungswiderstand auf die Qualität des Brennelementes werden erörtert. Eine kurze Beschreibung der Prüfmethode ist angeschlossen.

Abstract

Technology of UO_2 -/ PuO_2 -stainless steel fuel elements

Clad plate- and rod-type fuel elements of UO_2 -/ PuO_2 -stainless steel-dispersions can be prepared by using picture-frame-technique, co-extrusion ($5,6\text{ mm } \phi$), swaging or isostatic hot pressing. The relevant data of these methods are systematically evaluated. The influence of various parameters, e.g. degree of deformation, rolling temperature, extrusion pressure and resistance to deformation is dealt with. A short summary of the testing methods is also included.

EURATOM/INIS DESCRIPTORS

URANIUM DIOXIDE
 PLUTONIUM OXIDES
 STAINLESS STEELS
 CERMETS
 FABRICATION
 FUEL PLATES
 FUEL RODS
 FUEL CANS

DEFORMATION
 ROLLING
 TEMPERATURE
 SWAGING
 PRESSURE
 HOT PRESSING
 TESTING

1. Einleitung

Der mögliche Einsatz von UO_2 -/ PuO_2 -Stahl¹-Brennelementen in schnellen Hochflußreaktoren war der Anlaß, alle verfügbaren Herstellungsdaten solcher Elemente systematisch zu erfassen, nachdem diejenigen des Brennstoffes (UO_2 -/ PuO_2 -Stahl-Cermets) bereits ausführlich behandelt worden sind [74]. In diesem Bericht sind nur pulvermetallurgische Verfahren besprochen, die eine metallurgische Bindung zwischen Brennstoff und Hülle gewährleisten. Nachfolgend soll zuerst die Herstellung von platten- und diejenige von stabförmigen Brennelementen und schließlich ihre Prüfung dargestellt werden.

2. Herstellung von Brennelementplatten

Bei plattenförmigen Brennelementen wird die Hülle mit Hilfe der Bilderrahmenteknik aufgebracht [1–13]. In Fig. 1 ist eine Variante dieser Herstellungsmethode dargestellt [1]. Durch die Anwendung von kuguligen UO_2 -Partikeln und besonderen Mischverfahren (50 Vol.-% UO_2) können Plattenelemente mit relativ guter Spaltstoffverteilung hergestellt werden [14].

Beim Walzen von Brennelementplatten können Defekte wie Teilchenzertrümmerung (fragmentation) und Zeilenbildung (stringering) die Homogenität des Spaltstoffes stören. Bei der Teilchenzertrümmerung werden die ursprünglichen UO_2 -Partikel als feine Splitter in der Matrix verteilt. Durch Zeilenbildung dagegen werden die Teilchen lediglich in der Walz-

richtung gestreckt. Beide Defekte können zu lokalen Spaltstoffagglomerationen und damit zu Überhitzungsstellen im Element führen. Außerdem wird durch die Änderung der Teilchengemetrie (rund \rightarrow elliptisch) sowohl die Kerbwirkung erhöht als auch – durch die größere Oberfläche – der Austritt von Spaltprodukten begünstigt [15]. Durch Optimierung der Walzbedingungen werden solche Defekte weitgehend unterdrückt. Im einzelnen sind für die Qualität der Brennelementplatten folgende Herstellungsparameter von Bedeutung [2; 6; 16; 17]:

Hohe Festigkeit der eingelagerten UO_2 -Partikel führt zur geringsten Teilchenzertrümmerung. Die Festigkeit der Partikel ist von ihrer Porosität abhängig (z. B. UO_2 -Pulver: 74 bis $149\text{ }\mu\text{m } \phi$, 85% TD; vorgeschriebene Druckfestigkeit: 100 kp/mm^2 [18]).

Die Walztemperatur beeinflusst die Oberflächenqualität der Brennelementplatten (bis 900°C : glatte Oberfläche, über 1050°C : matte Oberfläche). Walzen bei höheren Temperaturen vermindert die Zeilenbildung, da dann der Verformungswiderstand der Stahlmatrix geringer ist, und somit

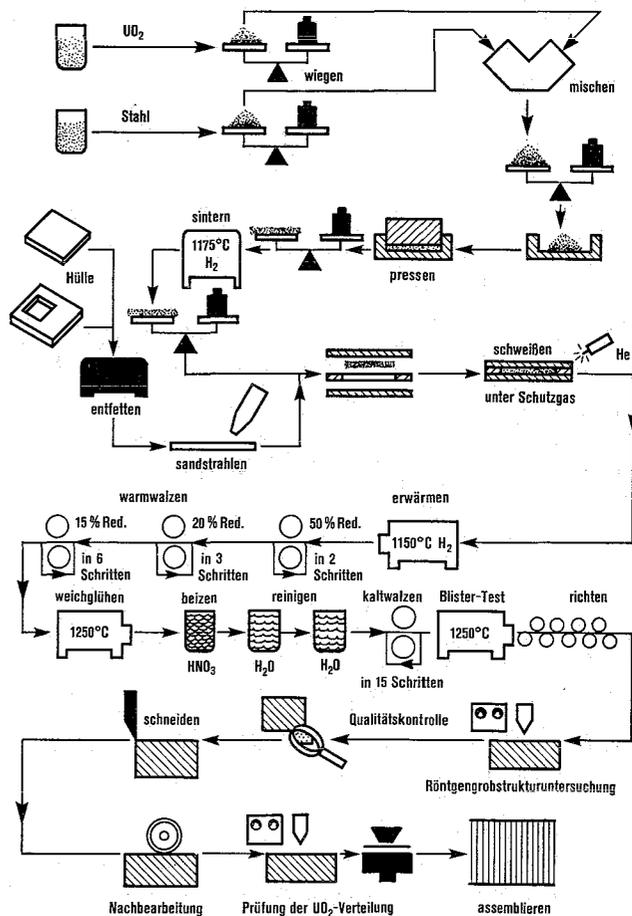


Fig. 1: Fertigungsablauf von plattenförmigen Brennelementen [1]

Fig. 1: Flow-schedule of the manufacture of plate-type fuel elements [1]

¹ Gemeint sind immer austenitische, rostfreie Stähle.

die eingelagerten UO_2 -Teilchen einer geringeren Druckbelastung ausgesetzt sind und weniger verformt werden. Auch die Teilchenzertrümmerung und die Rißbildung werden bei höheren Temperaturen ($> 1050^\circ\text{C}$) verringert. Die Dichte des Brennstoffes verändert sich kaum mit der Walztemperatur (zwischen 900 und 1250°C). Offensichtlich überwiegt bei der Verdichtung der Einfluß der Verformung gegenüber dem der Temperatur. Bei hohen Walztemperaturen ($> 900^\circ\text{C}$) wurde bei allen Proben eine gute metallurgische Bindung zwischen Brennstoff und Hülle festgestellt.

Eine hohe Gesamtverformung (etwa 80%) gewährleistet eine gute Bindung zwischen Brennstoff und Hülle – verursacht aber gleichzeitig Inhomogenitäten im Brennstoff. Bei sehr sauberen Kontaktflächen führt eine geringere Verformung (etwa 45% bei 1200°C) bereits zu einer festen Bindung zwischen Brennstoff und Hülle [16; 19]. Wählt man eine hohe Verformung pro Walzstich, so wirkt sich dies auf die Homogenität der Dispersion günstig aus [16].

Durch Kaltverformung entstehen Risse bzw. Poren in der Dispersion. Ihre Homogenität wird dadurch nachteilig beeinflusst. Andererseits wird aber zusätzlicher Raum für die Spaltprodukte geschaffen. Die Abhängigkeit der Dichte der Dispersion vom Kaltverformungsgrad zeigt Fig. 2. Unter der

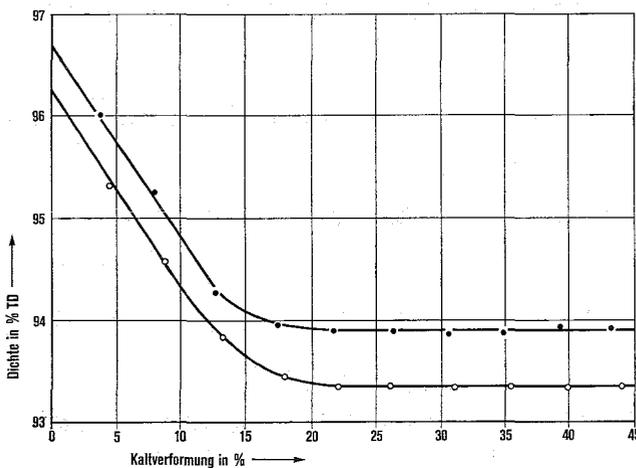


Fig. 2: Die Dichte zweier UO_2 -Stahl-Cermets (mit UO_2 -Partikeln unterschiedlicher Qualität) in Abhängigkeit vom Kaltverformungsgrad [2]. (Herstellungsdaten: 26,63 Vol.-% UO_2 -Stahl 347-Pulver, gepreßt mit $5,2 \text{ Mp/cm}^2$, bei 1250°C 90 min in trockenem Wasserstoff gesintert, wiedergepreßt mit $5,2 \text{ Mp/cm}^2$, warmgewalzt bei 1200°C , 85% Reduktion)

Fig. 2: The density of two UO_2 -SS-cermets (with UO_2 -particles of different quality) as a function of the degree of cold working [2]. (Data: 26,63 vol.-% UO_2 -347 SS-powder, cold pressed with $5,2 \text{ Mp/cm}^2$, sintered at 1250°C 90 min in dried hydrogen, coined with $5,2 \text{ Mp/cm}^2$, hot rolled at 1200°C with 85% reduction)

Annahme, daß die Dichte der Stahlmatrix konstant bleibt, läßt sich die tatsächliche Dichte der UO_2 -Partikel für jeden Verformungsgrad berechnen – ein wichtiger Punkt bei der Abschätzung des Verhaltens des Brennelementes unter Bestrahlung [2]. Die Kaltverformung ist möglicherweise eine Methode zur Erzielung bestimmter Porositäten im Brennstoff. Vergleichende Bestrahlungsversuche an relativ gleichmäßigen Dispersionen (geringe Zeilenbildung und Porosität) und an solchen mit stärkerer Zeilenbildung und Porosität haben gezeigt, daß die Porosität im Brennstoff einen Teil der Schwellung unter Bestrahlung auffangen kann (Fig. 3) [3]. Das bedeutet aber nicht, daß eine homogene Dispersion sich unter Bestrahlung ungünstig verhält. Es zeigt lediglich, daß die Porosität im Brennstoff das Schwellverhalten ent-

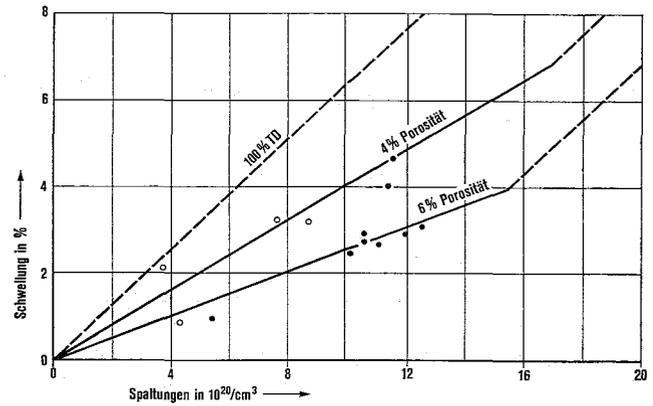


Fig. 3: Die Schwellung von bestrahlten Brennstoffplatten [3].
 ○: 32 Vol.-% UO_2 -Stahl 347, Walzreduktion 2 : 1, 89% TD, gleichmäßige Dispersion, kaum Dispergentzertrümmerung, 4% Porosität im UO_2 -Partikel
 ●: 30 Vol.-% UO_2 -Stahl 347, Walzreduktion 6 : 1, 82% TD, zertrümmerte UO_2 -Partikel, etwas Walztextur, 5,8–6,2% Porosität im UO_2 -Partikel

Fig. 3: The swelling of irradiated fuel-plates [3].
 ○: 32 vol.-% UO_2 -347 SS, roll-reduction 2 : 1, 89% TD, homogeneous dispersion, few damaged UO_2 -particles, 4% porosity in the UO_2 -particles
 ●: 30 vol.-% UO_2 -347 SS, roll-reduction 6 : 1, 82% TD, dispersion with stringering and fragmentation of the UO_2 -particles, 5,8–6,2% porosity in the UO_2 -particles

scheidend beeinflusst. Am günstigsten wäre demnach eine Kombination von »idealisierter« Struktur und porösem Spaltstoff.

Es wurde auch angestrebt, die Teilchenzertrümmerung und Zeilenbildung zu reduzieren, indem man beim Walzen mit einem geringeren Verformungsgrad (66% statt 82%) arbeitete, der jedoch noch ausreichend sein mußte, um eine metallurgische Bindung zwischen Brennstoff und Hülle sicherzustellen (siehe oben). Um dennoch die geforderten Enddimensionen (Länge \geq Durchmesser) zu erhalten, wurden durch Schlickerguß [20–24] oder Pulverwalzen [25] Dispersionen mit einem so hohen Länge/Durchmesser-Verhältnis hergestellt, daß sich ein hoher Verformungsgrad erübrigte.

3. Herstellung von stab- oder röhrenförmigen Brennelementen

Die Herstellung von zylindrischen Brennelementen mit metallurgischer Bindung zwischen Brennstoff und Hülle ist mit folgenden Verfahren erprobt worden:

- Kaltpressen des Cermetpulvers in Stahlhülsen und anschließendes Verdichten und Umformen durch Strangpressen;
- Kaltpressen des Cermetpulvers und pneumatische Hochenergieverdichtung der Preßlinge, Strangpressen mit Hülse und Rundhämmern auf Enddimensionen;
- Kaltpressen des Cermetpulvers, Sintern der Preßlinge und Rundhämmern in Kapseln;
- Isostatisches Heißpressen von Cermetpulver in Stahlhülsen, Strangpressen oder Rundhämmern;
- Kaltpressen und Sintern von Cermetpellets, Rundhämmern in Stahlhülsen.

Das Strangpressen kaltgepreßter Cermets ist sowohl für Stäbe als auch für Röhren geeignet [26–28]. Der Brennstoff (z.B. 30 Vol.-% UO_2 - bzw. PuO_2 -Stahl) wird zunächst in eine dünnwandige Stahlhülle gepreßt, die aus Festigkeitsgründen von einer kräftigen Matrize ummantelt ist (Preßdruck: etwa 7 Mp/cm^2 , Preßlingsdichte: etwa 65% TD). Nach Entgasung im Vakuum, wird die Kapsel durch Elektronenstrahlschweißen verschlossen.

Für den Strangpreßvorgang werden Bedingungen gewählt, die für die Herstellung von Stahlröhren üblich sind [29–32]. Der Preßbolzen wird auf die Strangpreßtemperatur (1200 bis 1300 °C) vorgewärmt [26; 33; 34]. Wenn die Probe ohne zusätzlichen Mantel stranggepreßt wird, ist die Ugine-Séjournet-Glasschmierung günstig. Wird jedoch mit einem Mantel gearbeitet (Material: Kupfer oder reines Eisen [35]), so ist eine Graphitschmierung ausreichend. Die Strangpreßgeschwindigkeit ist variabel (1 bis 7 m/s). Kleine Strangpreßgeschwindigkeiten wären für ein gleichmäßiges Gefüge der Dispersion günstig. In der Praxis wird allerdings eine relativ hohe Preßgeschwindigkeit gewählt, um die Abkühlung der Probe im Aufnehmer der Presse zu vermeiden. Die Aufnehmer können nämlich meistens wegen ihrer geringen Festigkeit nicht stark beheizt werden (etwa 600 °C).

Die Drücke, die für das Strangpressen notwendig sind, hängen vom Reduktionsverhältnis und über die Strangpreßkonstante von der gewählten Temperatur ab. Die Beziehung lautet [29]:

$$p = K \cdot \ln(R) \quad (1)$$

- p Strangpreßdruck,
- $K = f(T)$ temperaturabhängige Strangpreßkonstante,
- $R = S/s$ Reduktionsverhältnis,
- S Querschnittsfläche vor dem Strangpressen,
- s Querschnittsfläche nach dem Strangpressen

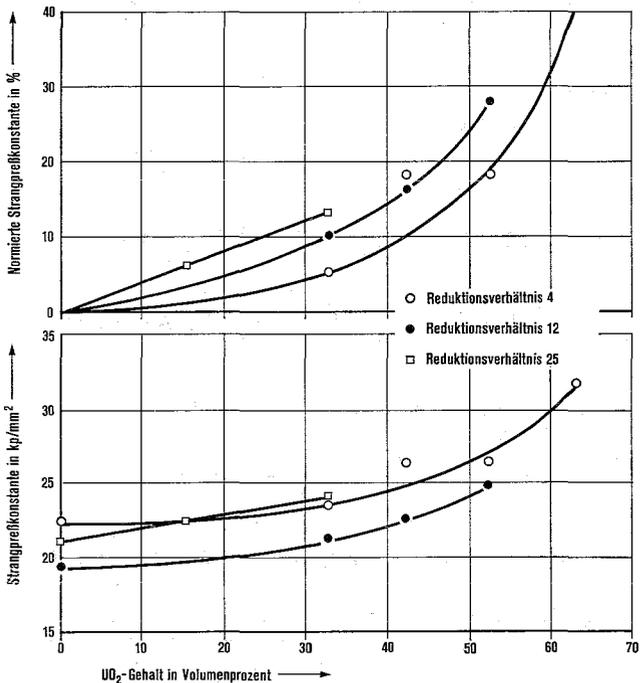


Fig. 4: Die Strangpreßkonstante von UO₂-Stahl CrNi 18/8-Preßbarren (vorverdichtet mit 7 Mp/cm² auf 65% TD) in Abhängigkeit von ihrem UO₂-Gehalt bei 1300 °C und bei verschiedenen Reduktionsverhältnissen [26]

Fig. 4: The extrusion constant of UO₂-SS (18% Cr, 8% Ni)-extrusion bars (pre-pressed with 7 Mp/cm² to 65% TD) as a function of the UO₂-concentration at 1300 °C with various reduction ratios [26]

Den Verlauf der Strangpreßkonstanten (bei 1300 °C) als Funktion der UO₂-Konzentration zeigt Fig. 4 für verschiedene Reduktionsverhältnisse [26]. Die geringe Zunahme der Preßkonstanten mit dem Reduktionsverhältnis kann durch Reibung bedingt sein [36; 37]. Die Strangpreßkonstante steigt naturgemäß mit dem UO₂-Anteil.

Die Temperaturabhängigkeit der Strangpreßkonstanten von verschiedenen Matrixmaterialien ist in Fig. 5 dargestellt [28].

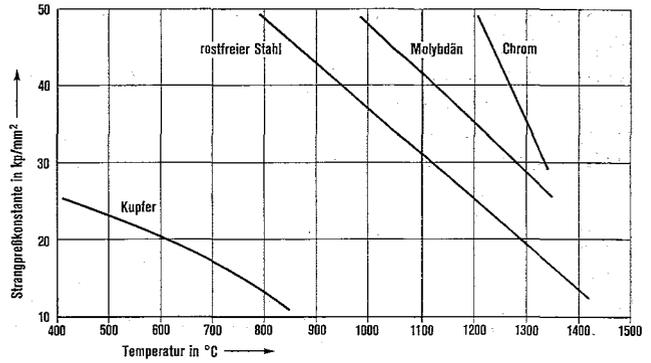


Fig. 5: Die Temperaturabhängigkeit der Strangpreßkonstanten von Kupfer, rostfreiem Stahl, Molybdän und Chrom [28]

Fig. 5: The extrusion constant of copper, stainless steel, molybdenum and chromium as functions of the temperature [28]

Daraus lassen sich optimale Strangpreßtemperaturen ermitteln, insbesondere dann, wenn Matrix und Hülle aus verschiedenen Materialien bestehen (z. B. Chrommatrix in Stahlhülle).

Der gemeinsame Strangpreßvorgang gelingt nur dann, wenn die Formänderungswiderstände (bzw. Duktilitäten) von Dispersion und Hüllmaterial gut angepaßt sind. Als Maß für den Formänderungswiderstand wird die Strangpreßkonstante angesehen [36; 38]. Bereits geringe Differenzen (etwa 25%) zwischen den Strangpreßkonstanten von Hülle und Dispersion führen zu massiven Defekten, wie Brüchen in der Dispersion bzw. im Hüllmaterial. Die normierten Strangpreßkonstanten (bezogen auf die Hülle) in Fig. 4 zeigen, daß gemeinsames Strangpressen nur bis zu einer bestimmten UO₂-Konzentration (etwa 50 Vol.-%) durchgeführt werden kann [26]. In der Praxis treten die ersten Anzeichen von Rißbildung in der Hülle oft schon früher auf (etwa bei 40 Vol.-% UO₂).

Die Defekte, die als Folge der unterschiedlichen Formänderungswiderstände von Brennstoff und Hülle auftreten können, sind schematisch in Fig. 6 dargestellt [37].

Während des Strangpressens wird zunächst der Brennstoff verdichtet und zwar so lange, bis die Formänderungsfestigkeit des Stopfens bzw. des Hüllmaterials erreicht ist. Danach findet das eigentliche gemeinsame Auspressen statt [39–41]. Dabei wird das überschüssige Material der Hülle in den oberen Teil des Preßbarrens gedrängt. Der Brennstoff wird mitgezogen, und es entstehen schwalbenschwanzartige

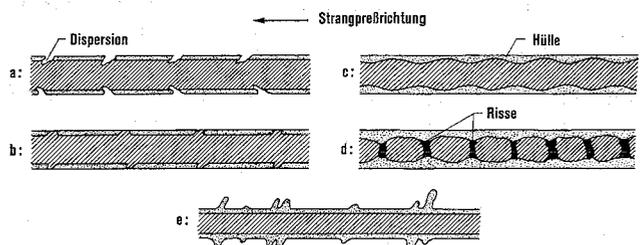


Fig. 6: Beispiele für Defekte stranggepreßter Brennstäbe bei unterschiedlicher Festigkeit von Dispersion und Hüllmaterial [37].

Hülle fester als Dispersion: a: Dispersion wenig duktil; b: Dispersion sehr duktil. Dispersion fester als Hülle: c: geringer Unterschied; d: großer Unterschied; e: Hülle sehr weich

Fig. 6: Examples of defects in coextruded fuel rods due to differences in strength of dispersion and cladding [37]. cladding strength higher: a: dispersion of low ductility; b: dispersion of high ductility. dispersion strength higher: c: small difference in strength; d: great difference in strength; e: cladding very soft

Brennstoffgeometrien am oberen Ende des Brennstabes (Fig. 7). Dieser Defekt läßt sich durch eine entsprechende Kegelgeometrie des Brennstoff-Endes im Preßbarren korrigieren. Auch am anderen Ende des Stabes tritt eine Brennstoffverdünnung auf (Fig. 8). Sie kann durch einen Kugelverschlußstopfen ausgeglichen werden [40].

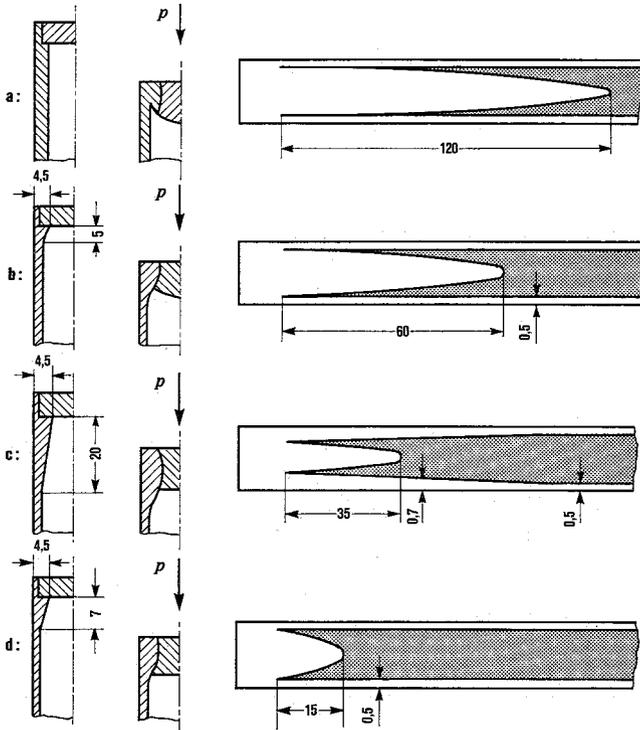


Fig. 7: Der Einfluß der Geometrie des oberen Teiles der Barrenhülle auf die geometrische Ausbildung des Brennstoffkernes bei 17,5 Vol.-% U_3O_8 -Al-Cermet [40]. a: Normalausführung; b, c: Verbesserungen; d: optimal ermittelte Ausführung

Fig. 7: The influence of the geometry in the upper part of the extrusion bar on the configuration of a 17,5 vol.-% U_3O_8 -Al-cermet core [40]. a: normal design; b, c: improved designs; d: optimal design

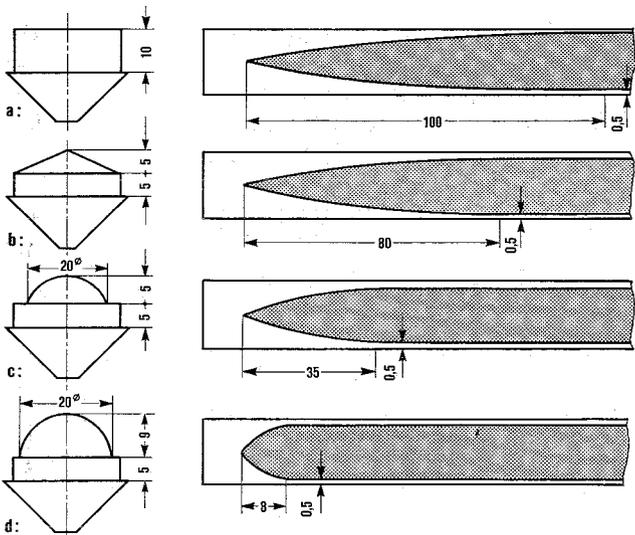


Fig. 8: Der Einfluß der Geometrie des unteren Verschlußstopfens auf die geometrische Ausbildung des Brennstoffkernes bei 17,5 Vol.-% U_3O_8 -Al-Cermet [40]. a: Normalausführung; b, c: Verbesserungen; d: optimal ermittelte Ausführung

Fig. 8: The influence of the geometry of the lower plug on the configuration of a 17,5 vol.-% U_3O_8 -Al-cermet core [40]. a: normal design; b, c: improved designs; d: optimal design

Unter anderem aus Korrosions- und Festigkeitsgründen wird eine konstante Stärke der Brennstabhülle gefordert. Die Gleichmäßigkeit der Hüllendicke hängt hauptsächlich vom geometrischen Aufbau des Preßbarrens ab. Im System UO_2 -Stahl wurden hierüber bisher keine systematischen Untersuchungen veröffentlicht. Versuche an U_3O_8 -Al-Dispersionen mit Al-Umhüllung [40; 41] gaben den Hinweis, daß durch eine konische Innenbohrung der Hülse (Fig. 9) eine gleichmäßige Wanddicke (z. B. $0,43 \pm 0,08$ mm, Gesamtlänge: 690 mm, Stabdurchmesser: 7,8 mm) erzielt werden kann. Neueste Ergebnisse beim Strangpressen von UO_2 -Stahl-Brennelementen (Abmessungen: $1000 \text{ mm} \times 5,6 \text{ mm } \phi$, Brennstoffdurchmesser: 5 mm, Hüllstärke: 0,3 mm) bestätigen, daß dieses Verfahren auch hier erfolgreich angewendet werden kann [73].

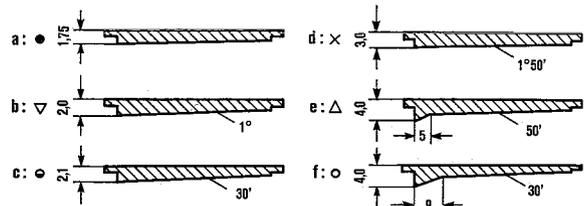
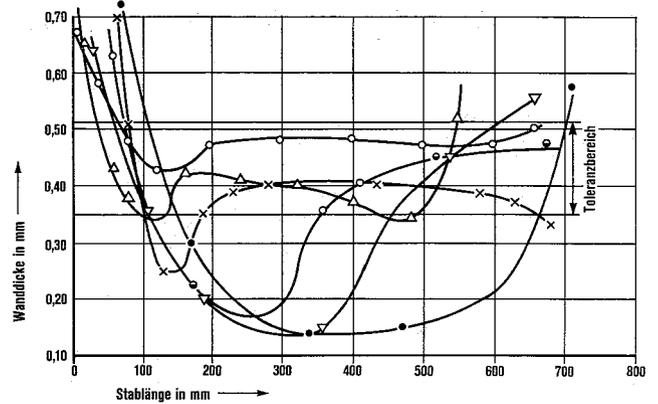


Fig. 9: Der Verlauf der Wandstärke längs des stranggepreßten Brennstabes bei geometrisch unterschiedlicher Ausführung der Hülle von 17,5 Vol.-% U_3O_8 -Al-Preßbarren [40]

Fig. 9: Variation of cladding thickness of co-extruded 17,5 vol.-% U_3O_8 -Al-Preßbarren as a function of the design of the cladding [40]

Das Strangpressen pneumatisch verdichteter Cermetpreßlinge dient, im Gegensatz zum ersten Verfahren, nicht gleichzeitig der Verdichtung und Umformung des Preßbarrens und der Erzeugung der gewünschten metallurgischen Bindung zwischen Brennstoff und Hülle. Hier wird das Strangpressen lediglich beim Umformen der bereits umhüllten und verdichteten Kapseln angewendet. Die metallurgische Bindung zwischen Brennstoff und Hülle wird schon vorher beim pneumatischen Verdichten erreicht. Dieses Herstellungsverfahren verläuft folgendermaßen (Fig. 10):

1. Kaltpressen der Pellets (Zusammensetzung: 30 Vol.-% UO_2 -Stahl 304 L, Preßlingsdichte: etwa 75% TD, Abmessungen: $12,5 \text{ mm} \times 17 \text{ mm } \phi$) [34; 42];
2. Je sechs Pellets in eine zylindrische Stahlkapsel (Wandstärke: 0,8 mm) stapeln, beidseitig poröse Stahlstopfen einschweißen;
3. Je sieben dieser Kapseln in eine Verdichtungsmatrix (Fig. 11) aus unlegiertem Stahl setzen;
4. Entgasen ($1200 \text{ }^\circ\text{C}$, 80 min);

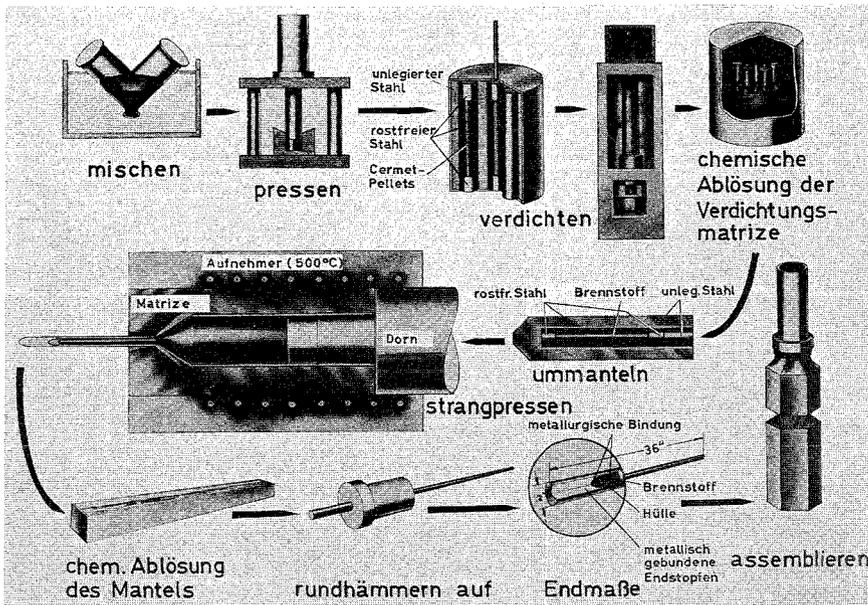


Fig. 10: Herstellungsschema von Brennstäben aus umhüllten und pneumatisch verdichteten Cermets (30 Vol.-% UO_2 -Stahl 304 L) [42]

Fig. 10: Flow schedule of clad and pneumatically impacted 30 vol.-% UO_2 -304 L SS-cermets [42]

5. Gemeinsame Verdichtung (Druck: 19,3 Mp/cm^2 , Temperatur: 1200 °C) der sieben Kapseln in der bei dieser Temperatur weichen Matrize durch einen pneumatisch beschleunigten Preßbolzen [43; 44];
6. Chemische Entfernung der Verdichtungsmatrix von den Preßlingen (Dichte: etwa 99% TD, Abmessungen: 100 mm \times 17,5 mm ϕ);
7. Jeden Preßling in einen Mantel aus unlegiertem Stahl oder Kupfer betten;
8. Strangpressen dieser Barren (Temperatur: 1200 °C bis 1250 °C, Graphitschmierung);
9. Chemische Entfernung des Stahl- bzw. Kupfermantels;
10. Rundhämmern der stranggepreßten Brennstäbe auf Enddimensionen (910 mm \times 5,23 mm ϕ , Schwankung der Hüllstärke über die Gesamtlänge: $\pm 25 \mu\text{m}$) [34; 35; 42–53].

Auch das *Kaltstrangpressen*, das in der keramischen Industrie breite Anwendung findet, wurde zur Herstellung von Brennelementstäben benutzt [54]. Die Pulvermischung (20 Vol.-% UO_2) wird durch Zugabe von Bindemittel (5 Gew.-% Fe_2O_3 und 1,5 Gew.-% einer 14%igen Lösung von Stärke in Wasser) plastifiziert und stranggepreßt. Nach einer Trocknung (50 °C) werden die Stäbe (etwa 7,9 mm ϕ) gesintert (Temperatur: 1350 °C, Dauer: 1 Stunde, Sinteratmosphäre: reiner Wasserstoff). Die Umhüllung erfolgt anschließend durch Rundhämmern (Temperatur: 1200 °C, Gesamtverformung: 60%, End-Brennstoffdurchmesser: etwa 4,5 mm). Die Bindung wird durch Diffusionsglühen (1200 °C, 4 Stunden) erreicht.

Eine Variante des pneumatischen Pressens stellt das *isostatische Heißpressen* dar. Diese Methode wird bevorzugt angewendet, um Cermets mit hohem keramischem Gehalt und idealisierter Struktur herzustellen [55]. Das Verfahren ist aber auch für die Herstellung von Dispersionen mit hohem Metallgehalt anwendbar. Die Dispersion wird in Form von Pellets oder als Pulver in entsprechende Hüllrohre gefüllt, evakuiert, mit Endstopfen verschlossen und einer Dichtigkeitsprüfung unterworfen. Das Heißpressen erfolgt in Gas-

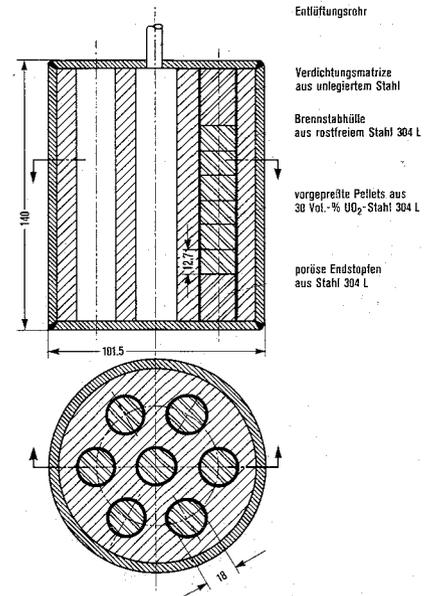


Fig. 11: Matrize für das pneumatische Verdichten von Pellets aus 30 Vol.-% UO_2 -Stahl 304 L [34; 42]

Fig. 11: Die für the pneumatic impactation of 30 vol.-% UO_2 -304 L SS-cermets [34; 42]

autoklaven (Druck: etwa 0,7 Mp/cm^2 , Temperatur: 1030 bis 1200 °C, erzielte Dichten: etwa 90% TD) [56–63]. Die auf diese Weise hergestellten Kapseln können durch Strangpressen oder Rundhämmern zu langen umhüllten Stäben umgeformt werden.

Eine weitere Herstellungsmethode von Stäben ist, kaltgepreßte und gesinterte Pellets in entsprechende Hüllrohre zu setzen und zusammen *rundzuhämmern* (Temperatur: 1000 bis 1300 °C, Verformung: etwa 30%). Der Rundhämmer-Vorgang, der sehr schnell abläuft (2 Sekunden), liefert zwar eine gute Bindung zwischen Brennstoff und Hülle, aber das Kornwachstum über die Grenzflächen muß durch eine längere Glühbehandlung gefördert werden [64].

4. Prüfung der Brennelemente

Nach ihrer Herstellung werden die Brennelemente einer umfassenden Qualitätsprüfung unterzogen, um sicherzustellen, daß während des Betriebes im Reaktor keine Schadensfälle eintreten [65]. Es werden zerstörungsfreie (Röntgengrobstruktur-, Wirbelstrom-, Ultraschallverfahren) und zerstörende Methoden (metallographische Gefügeanalyse) angewendet.

Die *Röntgengrobstrukturprüfung* ermöglicht die Kontrolle der Abmessungen der Dispersion im Brennelement. Unregelmäßigkeiten in der geometrischen Ausbildung des Brennstoffkernes, wie z. B. Verdickung an den Enden (dog boning), Verdünnung an den Enden (tapering bzw. fish-tailing) können lokal zu erhöhter Wärmeerzeugung (hot spots) führen und durch Überhitzung Brennelementschäden verursachen. Durch die photometrische Auswertung der Röntgengrobstrukturaufnahmen wird die Spaltstoffverteilung im Brennstoff ermittelt. Das Verfahren liefert allerdings keine quantitative Aussage. Es ermöglicht nur die Ermittlung von Grenzwerten für die Schwärzung. Durch eine Eichung mit Standardproben ist es aber möglich, jedem Schwärzungswert einen UO_2 -Gehalt zuzuordnen [66].

Zur Messung der Hüllstärke wird bevorzugt das *Wirbelstromverfahren* benutzt [67–69]. Sein Prinzip beruht auf der Tatsache, daß die elektrischen und magnetischen Eigenschaften

der Probe schon durch kleine Variationen der Hülldicke stark verändert werden. Durch Eichung mit entsprechenden Standards kann die Stärke der Hülle mit relativ hoher Genauigkeit ($\pm 25 \mu\text{m}$) vermessen werden.

Im *Ultraschallverfahren* wird die Bindung zwischen Brennstoff und Hülle geprüft. Sie ist für den Wärmetransport außerordentlich wichtig und kann grob durch den Blisterstest (1 Stunde glühen bei 1250°C [1; 13]) ermittelt werden. Dabei treten an Stellen ohne Bindung Blasen auf, die visuell erkannt werden können. Zerstörungsfrei lassen sich diese Stellen (etwa $3 \text{ mm } \phi$) mit dem Ultraschall-Durchstrahl-Verfahren erkennen [66].

Metallographische Untersuchungen ergänzen sinnvoll die zerstörungsfreien Prüfungen. Das Ausmaß der bereits besprochenen Endeffekte kann an metallographischen Schliften gemessen werden. Durch quantitative Gefügeanalyse mit automatisch arbeitenden Geräten [70; 71] oder Linearanalyse [72] läßt sich der Umfang der Teilchenzertrümmerung, Zeilenbildung und Agglomeration messen und über geeignete Parameter zahlenmäßig angeben. Schließlich können Abweichungen in der Hülldicke über die Länge des Stabes bzw. der Platte festgestellt werden.

Die Verfasser danken Herrn Professor Thümmeler für die Unterstützung der Arbeit.

(Eingegangen am 18. 12. 1970)

Literatur:

- [1] Holden, A. N.: Dispersion Fuel Elements. New York: Gordon and Breach Science Publishers 1968
- [2] Taylor, A. J.: ORNL-3645 (1964)
- [3] Graber, M. J. et al.: IN-1160 (1968)
- [4] Gibson, G. W.: IN-1131 (1967)
- [5] Keller, D. L.: BMI-1697 (1964)
- [6] Cherubini, J. H., S. A. Rabin: ORNL-3160 (1961)
- [7] De Boisblanc, D. R. et al.: IN-1048 (1967)
- [8] Keeler, J. R. et al.: BMI-904 (1954)
- [9] Keller, D. L., et al.: BMI-1529 (1961)
- [10] N. N.: MND-MPR-1580 (1958)
- [11] Paprocki, S. J. et al.: BMI-1282 (1958)
- [12] Keller, D. L.: BMI-1133 (1956)
- [13] Walter, J. H. et al.: NAA-SR-4641 (1960)
- [14] Lloyd, H.: New Nuclear Materials Including Non-Metallic Fuels 2, IAEA Conference, Prag, 1.-5. July 1963
- [15] Weir, J. R.: ORNL-2902 (1960)
- [16] Dayton, R. W. et al.: BMI-1697 (1964)
- [17] Cunningham, J. E. et al.: ORNL-2649 (1959)
- [18] Lozier, D. E., D. E. Kizer: BMI-X-10 172 (1966)
- [19] Keller, D. L.: Nucleonics 19, 45 (1961)
- [20] Comstock, G. J.: NYO-9035 (1959)
- [21] Comstock, G. J.: AECU-4410 (1959)
- [22] Comstock, G. J.: TID-11 628 (1960)
- [23] Comstock, G. J.: AECU-4255 (1959)
- [24] Comstock, G. J.: TID-6492 (1960)
- [25] Goslee, G. E.: Nucleonics 21, 48 (1963)
- [26] Meny, L. et al.: 4. Plansee-Seminar (1961) und AERE-Trans. 883 (1961)
- [27] Wright, W. J. et al.: Powder Met. N. 1/2 (1958)
- [28] Loewenstein, P.: 4. Plansee-Seminar (1961)
- [29] Pearson, C. E., R. N. Parkins: The Extrusion of Metals. London: Chapman and Hall 1961
- [30] Naden, J. R.: J. Iron and Steel Institute 193 (1959)
- [31] Cox, R. et al.: J. Iron and Steel Institute 194 (1960)
- [32] Haffner, E. K. L. et al.: J. Iron and Steel Institute 195 (1960)
- [33] Snajdr, E. A.: BNWL-269 (1963)
- [34] Shaw, C. H.: HW-81 603 (1964)
- [35] Albaugh, F. W. et al.: BNWL-CC-761 (1966)
- [36] Kaufmann, A. R. et al.: TID-7546 Book 1 (1958)
- [37] Nuclear Reactor Fuel Elements Metallurgy and Fabrication, ed. A. R. Kaufmann. New York: Interscience Publishers 1962
- [38] Kaufmann, A. R. et al.: NMI-TJ-8 (1957)
- [39] Kitti, J. et al.: Zweite Genfer Konferenz P/1585 (1958)
- [40] Steinkopff, H., L. Löffler: Kernenergie 6, (1963)
- [41] Ennerst, K. et al.: Atomwirtschaft 3, (1963)
- [42] Shaw, C. H., R. K. Robinson: BNWL-91 (1965)
- [43] Goldsmith, S.: BNWL-91 (1965)
- [44] Robinson, R. K.: HW-81 603 (1964)
- [45] Goldsmith, S.: BNWL-SA-415 (1965)
- [46] Robinson, R. K.: HW-81 600 (1964)
- [47] Goldsmith, S.: BNWL-150 (1965)
- [48] Robinson, R. K.: HW-81 984 (1964)
- [49] Goldsmith, S.: HW-76 303 (1963)
- [50] Brite, D. W.: HW-76 302 (1963)
- [51] Brite, D. W.: HW-76 301 (1963)
- [52] Berglund, C.: BNWL-381 (1967)
- [53] Robinson, R. K.: HW-81 600 (1964)
- [54] Snowman, H. G.: KAPL-1345 (1955)
- [55] Weimar, P. et al.: J. Nucl. Mat. 31, (1969)
- [56] Paprocki, S. J. et al.: BMI-1487 (1960)
- [57] Dayton, R. W., C. R. Tipton: BMI-1504 (1961)
- [58] Dayton, R. W., C. R. Tipton: BMI-1496 (1961)
- [59] Dayton, R. W., C. R. Tipton: BMI-1398 (1959)
- [60] Dayton, R. W., C. R. Tipton: BMI-1409 (1960)
- [61] Dayton, R. W., C. R. Tipton: BMI-1304 (1958)
- [62] Dayton, R. W., C. R. Tipton: BMI-1315 (1959)
- [63] Dayton, R. W., C. R. Tipton: BMI-1307 (1959)
- [64] Frost, B. R. T.: 3. Genfer Konferenz 10, (P 153) S. 171 (1965)
- [65] Ondracek, G.: Kerntechnik 3, H. 10, 446 (1961)
- [66] McClung, R. W.: ORNL-3221 (1962)
- [67] Allen, J. W. et al.: Am Soc. of Testing of Mat., Special Techn. Publ. No. 223, 201 (1958)
- [68] McMaster, R. C. (ed): Non Destructive Testing Handbook, Vol. II, New York: Ronald Press Comp. 1959
- [69] Richt, A. E.: ORNL-CF-59-3-33 (1959)
- [70] Ondracek, G.: KFK-845 (1969)
- [71] Konferenz über Charakterisierung von UO_2 ; TID-7637 (1962)
- [72] Cherubini, J. H. et al.: ORNL-TM-446 (1963)
- [73] Nazaré S., G. Ondracek, F. Thümmeler: Vortrag, 7. Planseeseminar, Reutte (1971)
- [74] Föhl, C. A., G. Ondracek: Atomkernenergie (ATKE) 17, 158 (1971)

Eigenschaften von UO_2 -/ PuO_2 -Stahl-Cermets

Von S. Nazaré und G. Ondracek

Institut für Material- und Festkörperforschung, Kernforschungszentrum Karlsruhe

Zusammenfassung

UO_2 -/ PuO_2 -Stahl-Cermets werden als möglicher Brennstoff für schnelle Hochflußreaktoren betrachtet. Für die optimale Auslegung des Brennelementes ist die Kenntnis bestimmter Eigenschaften von entscheidender Bedeutung. Im vorliegenden Bericht werden daher die thermischen und mechanischen Kenndaten von UO_2 -/ PuO_2 -Stahl-Cermets erfaßt und als Konzentrations- und Temperaturfunktionen erörtert. Im Schlußabschnitt wird außerdem das Bestrahlungsverhalten behandelt, soweit es bisher bekannt ist.

Abstract

Properties of UO_2 -/ PuO_2 -stainless steel-cermets

UO_2 -/ PuO_2 -stainless steel-cermets can be considered to be a potential fuel for fast flux test reactors. For the optimal design of the fuel element some important properties need to be evaluated. The paper deals with the thermal and mechanical properties as functions of concentration and temperature. The present state of knowledge of irradiation behaviour of these dispersions is also described.

EURATOM/INIS DESCRIPTORS

URANIUM DIOXIDE	THERMAL PROPERTIES
PLUTONIUM OXIDES	QUANTITY RATIO
STAINLESS STEELS	TEMPERATURE
CERMETS	RADIATION EFFECTS
MECHANICAL PROPERTIES	DISPERSIONS

1. Einleitung

UO_2 -/ PuO_2 -Stahl¹-Cermets werden als Brennstoff für geplante schnelle Hochflußreaktoren erwogen. Nach der Besprechung der Technologie solcher Cermets [21; 22] sollen hier nun ihre konzentrations- und temperaturabhängigen Eigenschaften [1; 2] behandelt werden, da sie für die Auslegung eines Brennelementes von grundlegender Bedeutung sind. Die Ermittlung dieser Eigenschaftsfunktionen unter Bestrahlung wäre für die Abschätzung des Betriebsverhaltens am genauesten, doch sind solche Daten nur sehr begrenzt verfügbar, da die direkte Messung wegen der großen Bestrahlungsdauer sehr langwierig ist. Eine vorsichtige Extrapolation von Eigenschaftswerten des unbestrahlten Brennstoffes auf den bestrahlten ist daher die nächstliegende Orientierungshilfe. Sie sollte bei Cermet-Brennstoffen insofern besonders berechtigt sein, da der Bestrahlungseinfluß in seiner technischen Wirkung auf die unmittelbare Umgebung der Spaltstoffpartikel beschränkt bleiben dürfte.

2. Wärmeleitfähigkeit

Die Messung der thermischen Leitfähigkeit wurde an warm- und kaltgepressten [3], an stranggepressten [4] und an isostatisch heißgepressten Proben (idealisiertes Gefüge) [5; 6] vor-

genommen. In Fig. 1 und 2 sind die gemessenen Werte für verschiedene Dispergenten-Konzentration in Abhängigkeit von der Temperatur dargestellt. Die Werte für idealisiertes Gefüge liegen deutlich höher als die einer normalen Dispersion gleicher prozentualer Zusammensetzung. Das liegt daran, daß ein idealisiertes Gefüge im Gegensatz zu einer

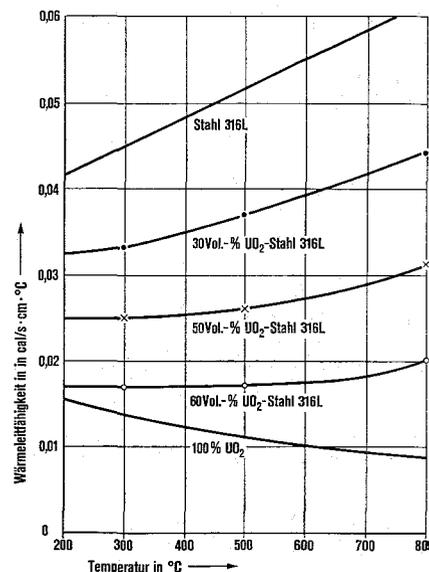


Fig. 1: Die Wärmeleitfähigkeit von UO_2 -Stahl 316 L-Cermets in Abhängigkeit von der Temperatur und der UO_2 -Konzentration (korrigiert auf 100% TD) [3; 7]

Fig. 1: The thermal conductivity of UO_2 -316 L SS-cermets as a function of temperature and UO_2 -concentration (corrected for 100% TD) [3; 7]

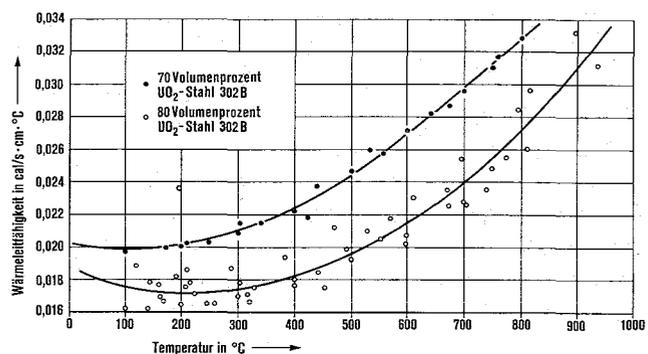


Fig. 2: Die Wärmeleitfähigkeit von isostatisch heißgepressten Pellets (95,3 bis 98,4% TD) mit idealisiertem Gefüge als Temperaturfunktion (korrigiert auf 100% TD) [5; 6]

Fig. 2: The thermal conductivity of isostatically hot pressed pellets (95,3 to 98,4% TD) with idealized structure as a function of temperature (corrected for 100% TD) [5; 6]

¹ Gemeint sind immer austenitische, rostfreie Stähle.

normalen Dispersion auch noch bei hohem keramischem Anteil ein durchgehendes Metallnetz aufweist. Außerdem können Unterschiede im stereometrischen Aufbau der Dispersion (Partikelgestalt, -orientierung und -verteilung) ihre Wärmeleitfähigkeit beeinflussen [8]. Aus den vorhandenen Daten läßt sich annähernd die Konzentrationsfunktion der Wärmeleitfähigkeit angeben. Sie ist für zwei verschiedene Qualitäten der Stahlmatrix (konstante Temperatur: 600 °C) in Fig. 3 aufgetragen.

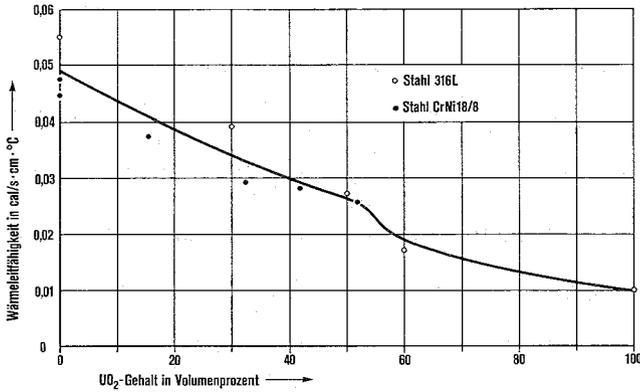


Fig. 3: Die Wärmeleitfähigkeit von UO₂-Stahl-Cermets bei 600 °C als Funktion der UO₂-Konzentration [3; 4]

Fig. 3: The thermal conductivity of UO₂-SS-cermets at 600 °C as a function of the UO₂-concentration [3; 4]

3. Thermische Ausdehnung

Die Konzentrationsfunktion des mittleren thermischen Ausdehnungskoeffizienten (20 bis 1000 °C) [3; 9] ist in Fig. 4 dargestellt. Der thermische Ausdehnungskoeffizient nimmt erwartungsgemäß mit steigendem UO₂-Anteil ab. Der Verlauf der Längenänderung bei einer 20 Vol.-% PuO₂-Stahl-Dispersion (Fig. 5) ergibt einen mittleren thermischen Ausdehnungskoeffizienten (25 bis 1000 °C) von 17,5/10⁶ °C und entspricht demjenigen von UO₂-Stahl-Dispersionen gleicher Konzentration [10].

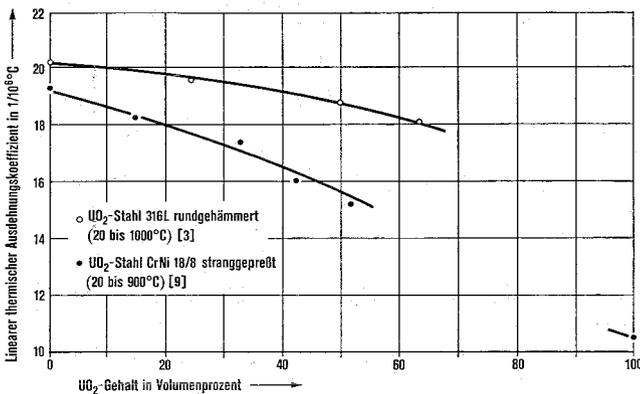


Fig. 4: Der mittlere lineare Wärmeausdehnungskoeffizient (20 bis 1000 °C) von UO₂-Stahl-Cermets als Funktion der UO₂-Konzentration

Fig. 4: The mean linear thermal expansion coefficient (20 to 1000 °C) of UO₂-SS-cermets as a function of the UO₂-concentration

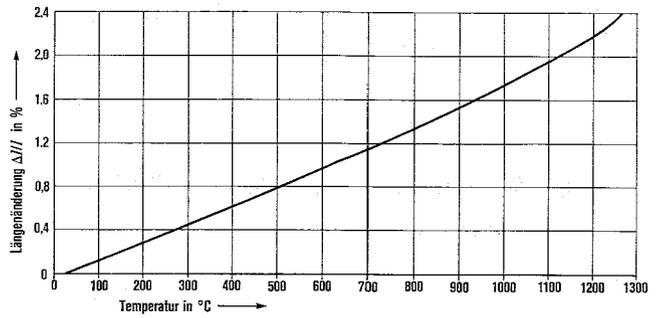


Fig. 5: Die Längenänderung eines pneumatisch verdichteten (96,9% TD) 20 Vol.-% PuO₂-Stahl 304-Cermets infolge Temperaturanstiegs [10]

Fig. 5: The thermal expansion of a pneumatically compressed (96,9% TD) 20 vol.-% PuO₂-304 SS-cermet [10]

4. Elastizitätsmodul

Den Verlauf des E-Moduls in Abhängigkeit von der UO₂-Konzentration zeigt Fig. 6. Statt der absoluten wurden normierte Werte aufgetragen, d. h. die gemessenen E-Moduli wurden auf den der Matrix bezogen [11]. Der E-Modul fällt mit steigendem UO₂-Gehalt.

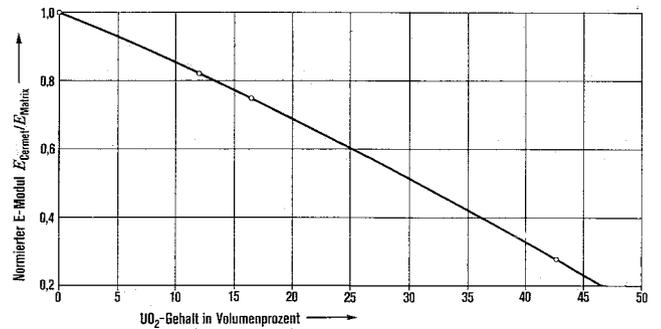


Fig. 6: Der Elastizitätsmodul von kaltgepreßten (6,2 Mp/cm²) und gesinterten (3 h bei 1350 °C) UO₂-Stahl 316 L-Pellets bezogen auf den der Matrix in Abhängigkeit von der UO₂-Konzentration [11]

Fig. 6: The relative Young's modulus E_{cermet}/E_{matrix} of pressed (6,2 Mp/cm²) and sintered (3 h at 1350 °C) UO₂-316 L SS-pellets as a function of the UO₂-concentration [11]

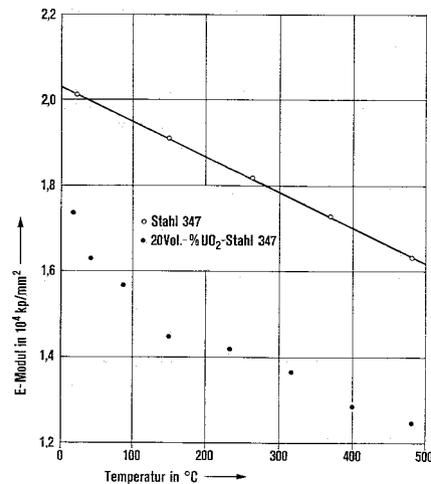


Fig. 7: Der Elastizitätsmodul eines 20 Vol.-% UO₂-Stahl 347-Cermets bei steigender Temperatur [12]

Fig. 7: Young's modulus of a 20 vol.-% UO₂-347 SS-cermet as a function of temperature [12]

Die Temperaturabhängigkeit des E-Moduls einer 20 Vol.-% UO₂-Stahl-Dispersion [12] zeigt Fig. 7. Der E-Modul nimmt mit steigender Temperatur annähernd linear ab.

5. Streckgrenze und Zugfestigkeit

Die Zugfestigkeit von UO₂-Stahl-Dispersionen als Konzentrationsfunktion zeigt Fig. 8. Die gemessenen Werte wurden auf die Festigkeit der Matrix bezogen. Theoretisch läßt sich eine Beziehung ableiten, wenn man annimmt, daß sich der kugelige Dispergent als Pore verhält und die Belastung nur von der Matrix getragen wird. Für eine einfache kubische Packung des Dispergenten ergibt sich [18]:

$$\frac{\sigma_B \text{ Cermet}}{\sigma_B \text{ Matrix}} = 1 - 1,209 V_D^{2/3} \quad (1)$$

Berücksichtigt man auch die Kerbwirkung, die als Folge der Einlagerung auftritt, so erhält man [11]:

$$\frac{\sigma_B \text{ Cermet}}{\sigma_B \text{ Matrix}} = \frac{1 - 1,209 V_D^{2/3}}{1 + 0,437 V_D + 2,41 V_D^{5/3}} \quad (2)$$

(σ_B = Zugfestigkeit, V_D = Volumenanteil des Dispergenten)

Die meisten gemessenen Werte der Zugfestigkeit von Dispersionen liegen in dem Bereich, der durch die Gleichungen (1) und (2) begrenzt wird.

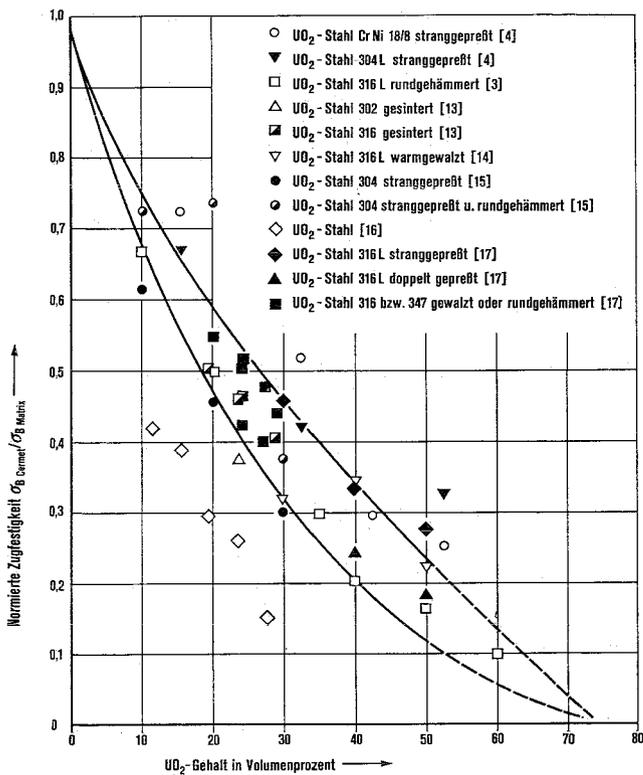


Fig. 8: Die Zugfestigkeit verschiedener UO₂-Stahl-Cermets bezogen auf die der jeweiligen Matrix als Funktion des UO₂-Gehaltes
 Fig. 8: The relative ultimate tensile strength $\sigma_B \text{ cermet} / \sigma_B \text{ matrix}$ of different UO₂-SS-cermets as a function of the UO₂-concentration

Den Einfluß der Temperatur auf die Zugfestigkeit zeigt Fig. 9. Die Zugfestigkeit nimmt erwartungsgemäß mit steigender Temperatur ab [3].

Einen ähnlichen Verlauf zeigt auch die Streckgrenze (Fig. 10) [3].

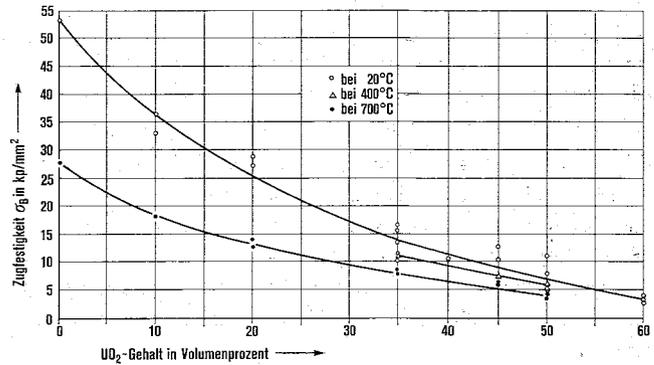


Fig. 9: Die Zugfestigkeit σ_B von rundgehämmerten UO₂-Stahl 316 L-Cermets in Abhängigkeit vom Dispergentengehalt bei verschiedenen Temperaturen [3]

Fig. 9: The ultimate tensile strength of swaged UO₂-316 L SS-cermets as a function of the UO₂-concentration at different temperatures [3]

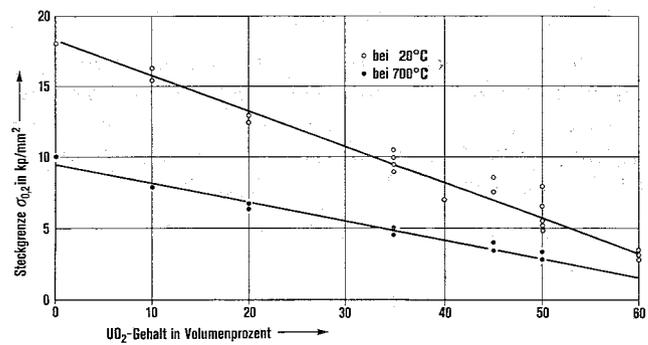


Fig. 10: Die Streckgrenze $\sigma_{0,2}$ von rundgehämmerten UO₂-Stahl 316 L-Cermets in Abhängigkeit vom Dispergentengehalt bei verschiedenen Temperaturen [3]

Fig. 10: The 0.2% proof strength of swaged UO₂-316 L SS-cermets as a function of the UO₂-concentration at different temperatures [3]

6. Bestrahlungsverhalten

Das Bestrahlungsverhalten von UO₂-Stahl-Dispersionen wurde gesondert behandelt [19]. In Fig. 11 [20] sind die bisher im thermischen Fluß durchgeführten Bestrahlungsuntersu-

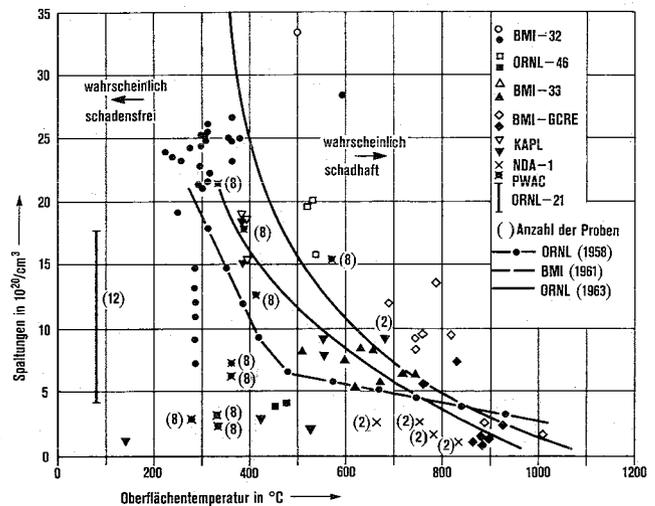


Fig. 11: Die Stabilität von UO₂-Stahl-Brennelementen unter Bestrahlung [20]. Offene Symbole: Brennelemente mit Bestrahlungsschäden. Geschlossene Symbole: Brennelemente ohne Schäden

Fig. 11: The irradiation-stability of UO₂-SS-fuel elements [20]; open symbols: Unstable samples; filled symbols: Stable samples

chungen zusammengestellt. Gezeigt ist der Zusammenhang zwischen Oberflächentemperatur und Abbrand.

Die ohne größere Schäden erreichten Abbrände (z. B. $8 \cdot 10^{20}$ f/cm³ bei 650 °C oder $18 \cdot 10^{20}$ f/cm³ bei 450 °C) können eventuell durch höhere Festigkeit der Matrix und des Hüllmaterials sowie durch größere Porosität im Spaltstoff noch erhöht werden. Untersuchungen des Bestrahlungsverhaltens von UO₂-Stahl-Brennstäben im schnellen Fluß stehen noch aus.

(Eingegangen am 18. 12. 1970)

Die Daten über das Bestrahlungsverhalten wurden von Herrn Dipl.-Ing. H. Zimmermann zusammengestellt. Die Verfasser bedanken sich hiermit besonders für diese Unterstützung. Außerdem danken sie Herrn Professor Thümmler für die kritische Durchsicht des Manuskriptes.

Literatur

- [1] Farkas, M. S. (Ed): BMI-X-455 (1967)
- [2] Robertshaw, F. C.: GEMP-719 (1969)
- [3] Arthur, G., J. A. Coulson: J. Nucl. Mat. **13** (1964)
- [4] Meny, L. et al.: New Nuclear Materials Including Non-Metallic Fuels, Vol. II. Wien: IAEA 1963
- [5] Paprocki, S. J. et al.: BMI-1487 (1960)
- [6] Paprocki, S. J. et al.: BMI-1377 (1959)
- [7] Thermal Conductivity of Uranium-Dioxide, Wien: IAEA 1966
- [8] Nazaré, S., G. Ondracek, F. Thümmler: KFK 1236 (1970)
- [9] Meny, L. et al.: 4. Plansee Seminar (1961) und AERE-Trans. 883 (1961)
- [10] Hinman, C. A., R. P. Nelson: BNWL-198 (1965)
- [11] McAdam, G. D.: Pow. Met. **10** (1959)
- [12] Venard, J. T., R. W. Swindeman: ORNL-3313 (1962)
- [13] Keller, D. L.: in Reactor Handbook I, 2nd Ed., Chapt. 13 (1960)
- [14] Lloyd, H.: New Nuclear Materials Including Non-Metallic Fuels **2**, IAEA Conference in Prag (1.-5. July 1963)
- [15] Albaugh, F. W. et al.: BNWL-CC-761 (1966)
- [16] Dickerson, R. F. (Ed): BMI-APDA-643 (1958)
- [17] Cope, L. H.: Metallurgia **72** (1965)
- [18] Eudier, M.: Pow. Met. **9** (1962)
- [19] Zimmermann, H.: persönliche Mitteilung (1970)
- [20] Thurber, W. C. et al.: ORNL-3709 (1964)
- [21] Föhl, C. A., G. Ondracek: Pulvermetallurgische Herstellung von UO₂-PuO₂-Stahl-Formkörpern. Atomkernenergie **17**, 158 (1971)
- [22] Föhl, C. A., S. Nazaré: Technologie von UO₂-PuO₂-Stahl-Brennelementen. Atomkernenergie **17**, 245 (1971)