

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM**

**KARLSRUHE**

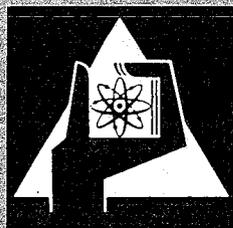
Juni 1972

KFK 1520

Institut für Material- und Festkörperforschung  
Projekt Schneller Brüter

Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung des  
Bestrahlungsexperimentes Mol 8A

H. Herrmann, H. Hoffmann, D. Geithoff



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Juni 1972

KFK 1520

Institut für Material- und Festkörperforschung

Projekt Schneller Brüter

Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung des Bestrahlungs-  
experimentes Mol 8A

---

von

H. Herrmann, H. Hoffmann, D. Geithoff

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe



## KURZFASSUNG

Das Bestrahlungsexperiment Mol 8A beinhaltet die Bestrahlung von 2 Brennstabprüflingen im BR 2. Mittels Cd-Abschirmung wird ein schneller Fluß am Ort der Prüflinge erzeugt. Letztere bestanden aus  $(U,Pu)O_2$ -Brennstoff in Tablettenform und einem Hüllrohr aus austenitischem Edelstahl. Bei mittleren Stableistungen von 400 bis 500 W/cm und Hüllaußentemperaturen von maximal  $650^{\circ}C$  wurde der Zielabbrand von 50 000 MWd/t Schwere Atome erreicht.

In diesem KFK-Bericht werden die Versuchsziele, die Auslegung, die Konstruktion und Spezifikation der Prüflinge, die Probenherstellung, die Bestrahlungsgeschichte und die gesamte Nachbestrahlungsuntersuchung dokumentarisch zusammengestellt.

Da die Nachbestrahlungsuntersuchungen in beschnittener Form durchgeführt wurden, ist dieses Bestrahlungsexperiment als Leistungsfähigkeitstest eingestuft worden. Die maximalen Durchmessererweiterungen der Prüflinge betragen 0,5 % und 0,25 % (für  $\phi t = 7 \cdot 10^{21} \text{ n cm}^{-2}$  und  $10^{22} \text{ n cm}^{-2}$ ;  $E > 0,1 \text{ MeV}$ ), der korrosive Abtrag der Hülle (im Bereich des Abbrandmaximums) liegt mit ca. 30  $\mu\text{m}$  im Bereich des Tolerierbaren.

## A B S T R A C T

The irradiation experiment Mol 8A consisted of the irradiation of 2 pins in the BR 2 reactor. All thermal neutrons were absorbed with a Cd-green in order to produce a fast neutron irradiation. The pins consisted of (U,Pu)<sub>2</sub>O<sub>2</sub>-pellets and of cladding out of austenitic steel. The burnup of 50,000 MWd/t heavy atoms was reached with a rod power of 400 - 500 W/cm and a cladding outertemperature of maximum 650°C.

This paper reports the aim of the experiments, the pin design, the construction and specification of the pins, the preparation of the specimens, the irradiation history and the whole postirradiation examination in a documentary form.

Since the postirradiation examination were done in a shortened form, this irradiation experiment was classified as a performance test. The maximum diameter increase of the pins was 0.25 % and 0.5 % ( $\phi t \approx 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup> and  $7 \cdot 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> respectively;  $E > 0.1$  MeV). The corrosion attack of the cladding (in the region of the maximum of the burnup) was 30  $\mu$ m and this value lies within the specification.

<u>Inhalt</u>	Seite
1. Einführung	1
2. Aufgabenstellung und Versuchsziel	2
3. Auslegung der Versuchsgruppe	4
4. Konstruktion der Prüflinge und Spezifikationen	4
4.1 Aufbau der Brennstäbe	4
4.2 Brennstoffspezifikationen	5
4.3 Spezifikation für die Hülle	7
4.4 Brennstabspezifikationen	8
5. Herstellung der Brennstäbe	11
5.1 Ausgangspulver	11
5.2 Tablettenherstellung	12
5.3 Nachweis der Brennstoffeigenschaften	13
5.4 Hüll- und Strukturmaterial	15
5.5 Hüllrohrprüfung	16
5.6 Herstellung der Stäbe	16
5.7 Prüfungen an den fertigen Stäben	19
6. Bestrahlungseinrichtung	22
7. Ablauf der Bestrahlung	22
7.1 Reaktorzyklen	27
7.2 Temperatur, Stableistung und Abbrand	27
8. Neutronenphysikalische Berechnung der maximalen Stableistung, des maximalen Abbrandes, des Flußspektrums, der radialen Leistungsdichteverteilung und des Leistungsdichtespektrums	36
8.1 Rechenmethode	36
8.2 Maximale Stableistung und maximaler Abbrand	37
8.3 Das mittlere Flußspektrum, das mittlere Leistungsdichtespektrum und die radiale Leistungsdichteverteilung im Brennstoff	40

	Seite
9. Transport und Demontage der bestrahlten Prüflinge	40
10. Zerstörungsfreie Nachuntersuchung	44
10.1 Visuelle Kontrolle der NaK-Kapseln und der Prüflinge	44
10.2 Äußere Vermessung	44
10.3 Innere Vermessung	49
10.4 $\gamma$ -Profile und $\gamma$ -Spektren	49
11. Zerstörende Nachuntersuchung	58
11.1 Keramografie	58
11.2 Radiochemische Abbrandbestimmung	61
12. Schlußfolgerungen	64
Literatur	65

## 1. Einführung

Im Rahmen der Forschungs- und Entwicklungsarbeiten auf dem Gebiet der Brennelemente für Schnelle Brutreaktoren wurden vom Kernforschungszentrum Karlsruhe Bestrahlungsexperimente konzipiert, die im "schnellen" Fluß des belgischen Forschungsreaktors BR 2 durchgeführt werden. Der schnelle Neutronenfluß wird durch Absorption der thermischen Neutronen in einem Cd-Schirm um die eingesetzten Brennstabproben erzeugt. Die Bestrahlungsexperimente werden, gemäß der Kühlung der Bestrahlungsproben, in Kapsel- (hier erfolgt die Kühlung über stagnierendes NaK) und Loop-Experimente (hier erfolgt die Kühlung über strömendes Na) eingeteilt. Die nachfolgende Tabelle gibt eine Übersicht über die geplanten bzw. schon durchgeführten (U,Pu) $O_2$ -Bestrahlungen im BR 2:

Bestrahlungsexperiment	Versuchseinrichtung	Art des Experiments	Anz. der Brennstabproben	Brennstoff
Mol 7A Mol 7B	Na-Loop	Leistungsfähigkeitstest Leistungsfähigkeitstest	7 19	(U,Pu) $O_2$
Mol 8A Mol 8B Mol 8C Mol 8D	Kapselversuchseinsatz	Leistungsfähigkeitstest Spaltgasdruckmessung Parametertest Zentraltemperatur-Messung	2 2 10 12	(U,Pu) $O_2$

In diesem Bericht werden alle Einzelheiten des Bestrahlungsexperimentes Mol 8A, wie Aufgabenstellung, Auslegung, Spezifikation, Prüflingsherstellung, Bestrahlungsablauf, zerstörende und zerstörungsfreie Nachuntersuchung dokumentarisch erfaßt. Der Zusammenstellung liegt eine Vielzahl von Notizen, Protokollen und Berichten zugrunde, die sich auf mehrere Jahre verteilen. Folgende Tabelle vermittelt eine Übersicht über den zeitlichen Verlauf des Experimentes und die zuständigen Stellen bzw. hauptverantwortlichen Personen für die Teilarbeiten:

Zeitraum	Teilarbeit	Institution und Hauptbeteiligte
1967	Vorüberlegungen und Versuchsauslegung	IAR, Gerken, Karsten
1968	Bestrahlungskapseln	Technologie d.CEN, von der Hardt
1968	Spezifikation	IAR, Gerken, Karsten
1968	Herstellung der Prüflinge	IMF, Dippel
1968/69	Organisation der Bestrahlung und Betreuung	Technologie d.CEN, von der Hardt
1968/69	Bestrahlung im BR 2	Technologie d.CEN, von der Hardt, Abteilung Reaktorbetrieb BR 2
1971	Organisation der Nachuntersuchung und Betreuung	IMF, Geithoff
1971	Zerstörungsfreie Nachuntersuchung	RB/Z, Scheeder, Enderlein
1971	Spaltgasuntersuchungen	RB/CuM, Gräbner
1971	Keramografie in den Heißen Zellen	Rb/CuM, Pejasa, Hellriegel
1971	Abbrandbestimmungen	IRCH, Wertenbach
1971	Auswertung der $\gamma$ -Spektren	IMF, Smailos
1971/72	Zusammenfassung und Dokumentation der Ergebnisse	IMF, Herrmann, Hoffmann, Geithoff

## 2. Aufgabenstellung und Versuchsziel

Unter dem Namen "Bestrahlungsexperiment Mol 8A" wurden zwei stabförmige Prüflinge mit  $(U,Pu)O_2$ -Brennstoff in Tablettenform im BR 2 bestrahlt. Sowohl für die Auslegung der Prüflinge (siehe Kap. 3) als auch für die Bestrahlungsbedingungen wurde eine Simulation echter Schnell-Brüter-Verhältnisse angestrebt: Ein Cd-Schirm um den Prüfling herum sollte die thermischen Neutronen absorbieren und dadurch ein schnelles Neutronenspektrum hervorrufen. Die wesentlichen Unterschiede zu den Schnellbrüter-Brennstäben sind folgende:

- Die Länge des Prüflings beträgt nur ca.  $1/3$  der Länge des SNR-300-Stabes.
- Dem Brennstabprüfling fehlt die untere Brutstoffzone.

- Die Wärmeübertragung nach außen geschieht durch stagnierendes NaK.
- Das Gasplenum befindet sich im oberen Teil des Prüflings.

Bei der Auslegung und Spezifikation dieses Bestrahlungsexperimentes wurden folgende Aufgaben umrissen:

- Es sollen Mischoxid-Proben unter simulierten Schnellbrüterbedingungen bis zu einem mittleren Abbrand von ca. 50 000 MWd/t Schwere Atome bestrahlt werden.
- Die Bestrahlung wird erstmals in einem schnellen Fluß durchgeführt.
- Es wird ein Kapseltyp mit stagnierendem NaK erprobt.
- Die experimentellen Erfahrungen dienen der Vorbereitung von Bestrahlungen bis zu einem Zielabbrand von ca. 100 000 MWd/t Schwere Atome.

Das Bestrahlungsexperiment muß die primären Fragen

- (1) bleiben die Stabprüflinge bis ca. 50 000 MWd/t Schwere Atome,
- (2) bleiben die Stabprüflinge bis zum Zielabbrand von 100000 MWd/t Schwere Atome intakt

klären. Frage 1 läßt sich schon während der Bestrahlungszeit eindeutig klären. Zur Beantwortung der Frage 2 müssen über die Nachbestrahlungsuntersuchungen folgende Detailfragen geklärt und extrapoliert werden:

- Korrosiver Angriff der Hülle
- Spaltproduktbildung und Spaltgasfreisetzung
- Umstrukturierung des Brennstoffes
- Integrales Schwellen des Brennstoffes und der Hülle
- Kriechaufweitung der Hülle

### 3. Auslegung der Versuchsgruppe

Das Bestrahlungsexperiment Mol 8A beinhaltet die Bestrahlung zweier Teststäbe im "schnellen Fluß" des BR 2. Die Bestrahlungspositionen der Kapseln vom Typ "FAFNIR" waren normale Brennelement-Positionen des BR 2; eine Cd-Hülle in der FAFNIR-Kapsel absorbierte die thermischen Neutronen, so daß am Ort des Brennstabes ein schnelles Neutronenspektrum herrschte. Die Auslegungsdaten für die Brennstoffzusammensetzung, -form und -dichte, das Hüllmaterial, die Brennstababmessungen, die Stabileistung, die Hüllaußentemperatur und den Abbrand sind repräsentativ für den Na-gekühlten Schnellen Brutreaktor [1]:

- Brennstoffzusammensetzung:  $(U, Pu)O_2$   
Pu/U+Pu = 20 Gew.-%  
U-235/U = 93,183 Gew.-%
- Brennstoff-Form: Tabletten, Zylindermantel geschliffen
- Brennstoff-Dichte:  $84 \pm 2,2$  % th.D.
- Brutstoff-Dichte:  $95 \pm 2,2$  % th.D.
- Hüllmaterial: X8CrNiMoVNb 1613 (Werkstoff-Nr. 1.4988)
- Brennstababmessungen:  $6,0 \pm 0,04$  mm Hüllaußendurchmesser  
 $5,24 \pm 0,025$  mm Hüllinnendurchmesser  
 $5,1 \pm 0,05$  mm Tablettendurchmesser
- Stabileistung: 510 W/cm (maximal)  
400 W/cm (achsial gemittelt)
- Hüllaußentemperatur:  $700^\circ C$  (maximal)
- angestrebter mittlerer Abbrand: ca. 50.000 MWd/t

### 4. Konstruktion der Prüflinge und Spezifikationen

Die Gesamtkonzeption der Brennstäbe sowie die Spezifikationen für Brennstoff, Hülle und kompletten Stab werden in diesem Kapitel dargelegt. Als Unterlage dient eine betriebsinterne Notiz [1].

#### 4.1 Aufbau der Brennstäbe

Aus Abb. 1 ist der prinzipielle Aufbau eines Brennstabes ersichtlich. Die Gesamtlänge beträgt 840 mm, der Außendurchmesser des Hüllrohres 6,0 mm. Die innere und äußere Geometrie ergibt sich wie folgt:

Oberer Endstopfen	20 mm
Spaltgasraum	170 mm
Brustoffsäule	120 mm
Spaltstoffsäule	500 mm
2 Isoliertabletten	10 mm
Unterer Endstopfen	20 mm
Gesamtlänge	<u>840 mm</u>

Der Sinterstahlfilter im Stopfen soll verhindern, daß Brennstoffstaub in den Spaltgasraum eindringt und die Spaltgase kontaminiert. Die Feder im Plenum dient der Transportsicherung vor der Bestrahlung.

Der obere Endstopfen ist an zwei gegenüberliegenden Stellen abgeflacht; mittels Schlagstempel werden hier spezifische Markierungen, die die Art der Versuchsgruppe und die Nummer des Brennstabes beinhalten, z.B. 8A-1, eingeschlagen.

#### 4.2 Brennstoffspezifikationen

##### 4.2.1 Chemische Zusammensetzung:

Der Brennstoff soll aus einem Gemisch von  $UO_2$  und  $PuO_2$  bestehen. Der Pu-Anteil wird mit  $20 \pm 1$  Gewichtsprozent, die Urananreicherung mit  $93,2 \pm 0,2$  Gewichtsprozent im U-Anteil und das O/M-Verhältnis mit  $1,98 \pm 0,02$  spezifiziert.

Verunreinigungen sind bis maximal 2500 ppm zulässig; für einige Elemente gelten folgende Höchstwerte:

Verunreinigung	Grenzwert in ppm
C	150
N	100
F	50
H <sub>2</sub> O	100
Cl	50

#### 4.2.2 Isotopenzusammensetzung:

Die Isotopenzusammensetzung des Pu ist wie folgt in Gew.-% spezifiziert:

Pu-239	$90,90 \pm 0,2$
Pu-240	$8,15 \pm 0,15$
Pu-241	$0,83 \pm 0,05$
Pu-242	$0,04 \pm 0,005$

#### 4.2.3 Homogenität im Mischbrennstoff:

Eine möglichst einheitliche Homogenität sollte bei der Mischung der Komponenten erreicht werden. Die  $\text{PuO}_2$ -Partikelgröße wird mit  $\leq 0,15$  mm gefordert.

#### 4.2.4 Brennstoff-Form:

Gemäß spezifizierter Zusammensetzung wird der Brennstoff durch mechanisches Mischen und anschließenden Preß- und Sintervorgang in Tablettenform hergestellt. Die Mantelflächen werden spitzenlos auf das geforderte Maß geschliffen.

#### 4.2.5 Tablettengeometrie:

Die Tablettengeometrie wird wie folgt festgelegt:

Tablettendurchmesser	$5,1 \pm 0,05$ mm
Tablettenhöhe	5 - 8 mm

#### 4.2.6 Tablettendichte:

Die Tablettendichte soll sein, für

den Spaltstoff:	$84 \pm 2,2$ % th.D.
den Isolier- u. Brutstoff:	$95 \pm 2,2$ % th.D.

#### 4.2.7 Oberflächenbeschaffenheit:

Beim Schleifen der Mantelflächen sind

Kantenabplatzungen	$\leq 0,3$ mm
Flächenabplatzungen	bis zu einem max. Durchm. von 2 mm
Haarrisse	bis 2 mm Länge und 0,1 mm Breite zulässig.

#### 4.2.8 Untersuchungen und Prüfungen am Brennstoff:

Um vergleichbare Aussagen über das Bestrahlungsverhalten von Kernbrennstoffen im Rahmen einer Testreihe machen zu können, sind eine ganze Anzahl von Untersuchungen am Brennstoff notwendig. Hierzu gehören sowohl die Untersuchungen an den fertigen Tabletten wie auch am Ausgangsmaterial. Es soll untersucht werden auf:

- |                             |   |                           |
|-----------------------------|---|---------------------------|
| - Chemische Zusammensetzung | } | am Ausgangsmaterial       |
| - BET-Oberfläche            |   |                           |
| - Isotopenzusammensetzung   |   |                           |
| - Stöchiometrie             |   |                           |
| - Mischungsverhältnis       |   |                           |
| - Chemische Zusammensetzung | } | an den fertigen Tabletten |
| - Stöchiometrie             |   |                           |
| - Dichte                    |   |                           |
| - Geometrie                 |   |                           |
| - Gewicht                   |   |                           |
| - Säulenlänge               |   |                           |
| - Keramografie              |   |                           |
| - Autoradiografie           |   |                           |

#### 4.3 Spezifikationen für die Hülle

##### 4.3.1 Werkstoff und chemische Zusammensetzung:

Für die Hüllrohre und die beiden Endstopfen ist der austenitische Edelstahl X8CrNiMoVNb 1613 (Werkstoff-Nr. 1.4988) vorgesehen. Er soll 10 - 20 % kaltverformt sein und eine Wärmebehandlung (40 h; 750°C) erfahren haben. Die Richtanalyse des Stahles ist:

Element	Gew.-%
C	≤ 0,1
Si	0,3 - 0,6
Mn	1,0 - 1,5
Cr	15,5 - 17,5
Ni	12,5 - 14,5
Mo	1,1 - 1,5
V	0,6 - 0,85
N <sub>2</sub>	0,1
Nb - Ta	≤ 1,2
P	≤ 0,02
S	≤ 0,02
Fe	Rest

#### 4.3.2 Hüllrohrmaße:

Die Hüllrohrmaße sind:

Durchmesser, außen:	$6,00 \pm 0,04$ mm
Durchmesser, innen:	$5,240 \pm 0,025$ mm
Wandstärke:	$0,38 \pm 0,03$ mm
Geradheit:	1:1500, bezogen auf jeweils 10cm Länge
Ovalität:	innerhalb der Durchmesser- toleranzen

#### 4.3.3 Materialbeschaffenheit:

Die Materialfehler lassen sich in oberflächliche und innere Fehler trennen:

Rauhigkeit:	$\leq 2$ $\mu\text{m}$
Oberflächenfehler:	$\leq 20$ $\mu\text{m}$
Innere Fehler:	$\leq 10$ % der Wandstärke
Einschlüsse:	$\leq 0,05$ mm oder $10^{-3}$ mm <sup>2</sup>

#### 4.3.4 Hüllrohrprüfungen:

Materialspezifische Eignungstests müssen beim Rohrhersteller durchgeführt und durch Zeugnisse belegt werden.

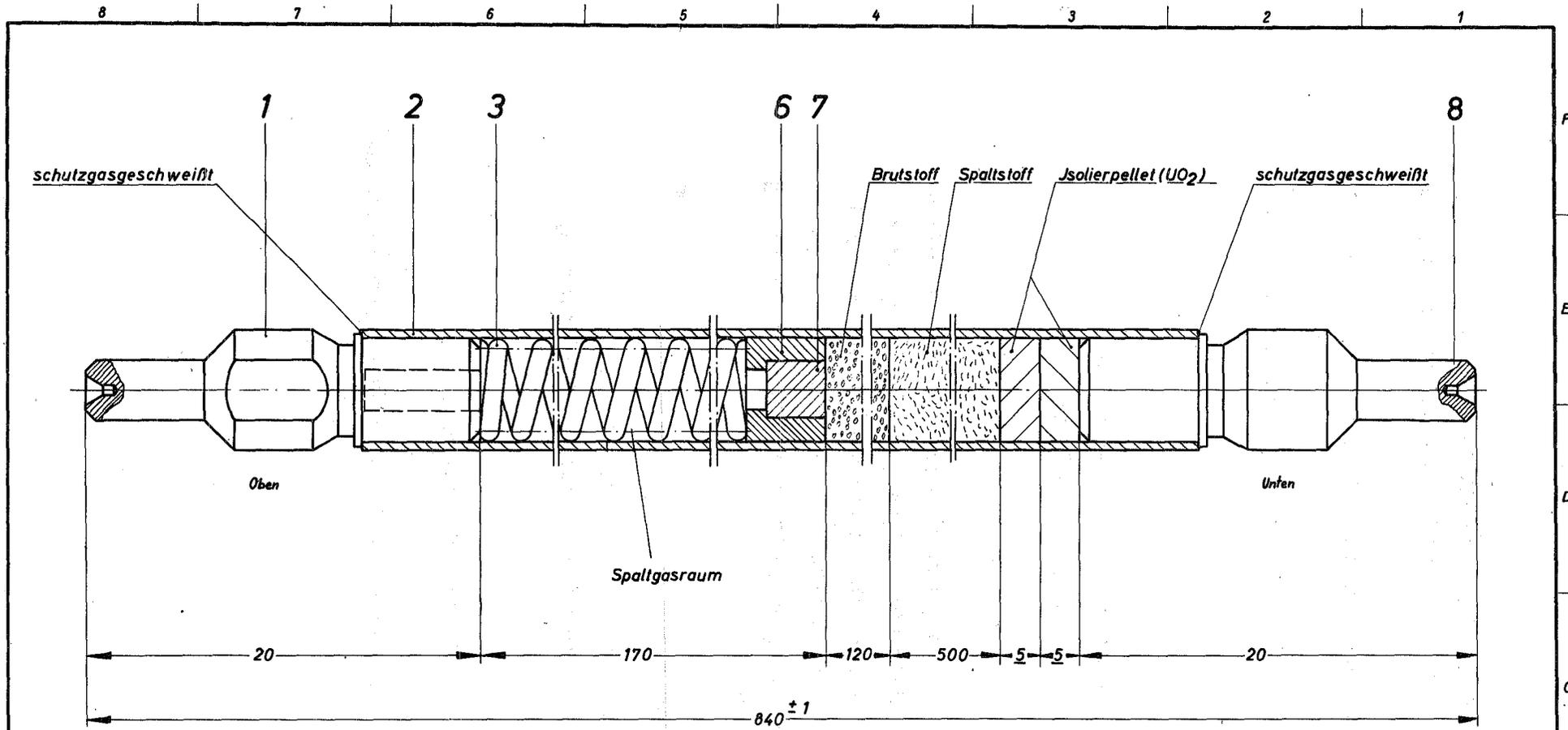
Die Prüfungen beinhalten u.a. folgende Sachgebiete:

- Materialzusammensetzung
- Abmessungen und Ovalitäten
- Oberflächenbeschaffenheit und Materialfehler
- Mechanische Eigenschaften

#### 4.4 Brennstabspezifikationen

##### 4.4.1 Fertigung:

Die metallischen Einzelteile sind gemäß Abb. 1 (Zeichnung Nr. TA2K-16-07-3-2799a) zu fertigen. Es gelten die angegebenen Maße und Toleranzen.



8	1	Unterer Endstopfen	4988	6 <sup>#</sup> × 20	TA2K-16-07-4-2806			
7	1	Sinterstahlfilter	CrNi-Stahl	28 <sup>#</sup> × 3	Zulieferteil			
6	1	Stopfen	4988	5 <sup>#</sup> × 4	TA2K-16-07-4-2805			
3	1	Druckfeder	4310	5 <sup>#</sup> × 46,5	TA2K-16-07-4-2802			
2	1	Hüllrohr	4988	6 <sup>#</sup> × 0,38 × Ø12	TA2K-16-07-4-2801			
1	1	Oberer Endstopfen	4988	6 <sup>#</sup> × 20	TA2K-16-07-4-2800			
Teil	Stück	Benennung	Werkstoff	Abmessung	Zeichngs.-Nr. Norm	Bemerkung		
Oberflächenzeichen		~ ▽ ▽▽ ▽▽▽ ▽▽▽▽	Freimaßtoleranz	bis 6	über 30	über 100	über 300	über 1000
Rauhtiefe max. in µ		1000 40 10 4 1,6		± 0,1	± 0,2	± 0,3	± 0,5	± 0,8
1967	Tag	Name	Werkstoff	Gesellschaft für Kernforschung m. b. H.		Zugeh. Zeichng.		
gez.	12.10.	<i>[Signature]</i>		7500 Karlsruhe		Ersatz für		
gepr.		<i>[Signature]</i>		Postfach 947		Ersetzt durch		
ges.						Zeichnungs-Nr.		
Maßstab	Benennung		Brennstab Mol 8 A		TA2K-16-07-4-2799a			

Abb. 1

Paßmaß	Abmaß

Buchstabe	Kommt vor	Änderung	Tag	Name

4.3.68  
Ka.

#### 4.4.2 Innere Geometrie:

- Die Länge der Spaltstoffsäule beträgt  $500 \pm 5$  mm
- Die Länge der Tablettensäule (Spaltstoff-und Brutstoffsäule) beträgt  $620 \pm 5$  mm
- Die Tablettensäulen sollen durch Tabletten einheitlicher Dichte aufgebaut werden.
- Auf die Tablettensäule ist eine Feder zur Transportsicherung zu setzen.

#### 4.4.3 Äußere Geometrie:

- Die gesamte Länge des Stabes beträgt  $840 \pm 1$  mm
- Der Außendurchmesser beträgt  $6,00 \pm 0,04$  mm.

#### 4.4.4 Füllung und Verschluß:

Zunächst wird der untere Endstopfen mit der Hülle verschweißt und danach die Füllung der Stäbe mit geeigneter Vorrichtung unter Helium-Atmosphäre vorgenommen. Abschließend wird der obere Endstopfen unter Schutzgas verschweißt. Die Schweißnahtgüte muß vor der endgültigen Verschweißung durch Probeschweißungen am Originalmaterial nachgewiesen werden.

#### 4.4.5 Prüfungen am fertigen Brennstab:

Es sind folgende Prüfungen vorgeschrieben:

Maßkontrolle (Länge, Durchmesser, Ovalität, Durchbiegung)

Gewichtskontrolle

He-Lecktest

Röntgenprüfung des Gesamtstabes einschließlich der

Schweißnähte

Test auf Oberflächenkontamination (maximal  $22 \alpha$ -Zerfälle/min $\cdot$ cm<sup>2</sup>)

## 5. Herstellung der Brennstäbe

An der Fertigung und Prüfung von Zubehörteilen, Tabletten sowie des gesamten Brennstabes waren verschiedene Arbeitsgruppen aus mehreren Instituten und Industriefirmen beteiligt. So wurden beispielsweise die Hüllrohre als Halbzeug von der Firma Mannesmann geliefert, von der Firma Nukem zerstörungsfrei geprüft und in den Werkstätten der GfK auf das spezifizierte Maß geschnitten. Bei der GfK wurden auch die Kleinteile hergestellt und geprüft und die Endmontage vorgenommen. Das von der Firma Nukem bezogene oxidische Ausgangspulver wurde in den Laboratorien des IMF/LB zu Tablettenbrennstoff weiterverarbeitet. Es wurden 4 Brennstäbe gefertigt, von denen allerdings nur zwei mit den Bezeichnungen Mol 8A-1 und Mol 8A-5 zur Bestrahlung gelangten.

Es wird nachfolgend ein ausführlicher Auszug aus dem IMF-Fertigungsbericht Nr. 18/1968 [2] gegeben und die Prüfungen an den Einzelkomponenten und Endprodukten beschrieben.

### 5.1 Ausgangspulver:

Als oxidische Ausgangspulver standen zur Verfügung:

- a)  $UO_2$  mit 93 % angereichertem Uran, konvertiert von der Fa. Nukem aus  $UF_6$ , welches von der USAEC stammt,
- b)  $PuO_2$  mit nominell 7,7 % Pu-240, oxalatgefällt, aus der Charge CO-26-6-8 der Lieferung der USAEC vom Juni 1966.

Die genaue Isotopenzusammensetzung war:

- a) für  $UO_2$ : Der U-235-Gehalt laut Angabe des Lieferanten (USAEC/Nukem) betrug 93,183 Gew.-%.
- b) für  $PuO_2$ :

Isotop	Messung in Hanford (USA)	Messung in Karlsruhe
Pu-239	90,845	90,850
Pu-240	8,301	8,240
Pu-241	0,831	0,867
Pu-242	0,040	0,044

Die chemischen Verunreinigungen (in ppm) waren im einzelnen:

	UO <sub>2</sub>	PuO <sub>2</sub>
Ag	0,7	nicht analysiert
B	0,18	10
C	40	-
Ca	20	170
Cd	0,07	-
Cl	3	-
Cr	210	35
Cu	3,0	5
F	8,0	-
Fe	145	85
Mg	0,5	15
Mn	-	25
Mo	1,0	5
N	3,0	-
Ni	330	30
Pb	1,0	30

Zur Verringerung der spezifischen Oberfläche wurden die Ausgangspulver kalziniert: Das UO<sub>2</sub>-Pulver wurde 2 h lang bei 1250°C unter Ar-Atmosphäre (mit 5 % H<sub>2</sub>) und das PuO<sub>2</sub>-Pulver 2 h lang bei 1100°C unter CO<sub>2</sub>-Atmosphäre geglüht. Die sinterfähigen Pulver wiesen folgende Eigenschaften auf:

Pulver	BET-Oberfläche ( m <sup>2</sup> /g)	O/Me-Verhältnis	max. Teilchengröße (mm)
UO <sub>2</sub> -Brennstoff	1,93	2,00	0,063
PuO <sub>2</sub> -Brennstoff	1,05	1,98	0,032
UO <sub>2</sub> -Brutstoff	5,16	2,04	0,063

## 5.2 Tablettenherstellung

### 5.2.1 Herstellung der Brennstofftabletten:

Die kalzinierten Ausgangspulver, d.h. 448 g UO<sub>2</sub>-Pulver und 112 g PuO<sub>2</sub>-Pulver, wurden in einem Lödige-Mischer in einer Charge 2 h lang mechanisch gemischt und dann unter Zusatz von

1,2 Gew.-% Polyvinylalkohol in wässriger Lösung und 1,0 Gew.-% Stearinsäure in alkoholischer Lösung im Lödige-Mischer granuliert. Nach dem Trocknen bei ca. 50°C wurde das Granulat durch ein Sieb mit 0,25 mm Maschenweite gestrichen. Das Pulver wurde nun mit 0,25 - 0,35 t/cm<sup>2</sup> Preßdruck zu Grünlingen verpreßt und diese anschließend in einem N<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>-Gemisch (8 % H<sub>2</sub>) bei 1570°C 2 h lang maßgesintert.

Zur Charakterisierung der Brennstoffstruktur wurde von einer Tablette ein keramografischer Schliff und eine  $\alpha$ -Autoradiografie angefertigt (Abb. 2). Die schwarzen Stellen sind Brennstoffporen, die hellen Inseln sind PuO<sub>2</sub>-Partikel. Letztere sind gleichmäßig über den gesamten Querschnitt verteilt und lassen somit ausreichende Homogenität erkennen.

#### 5.2.2 Herstellung der Brutstoff-Tabletten:

Der Herstellungsgang ist analog dem Verfahren bei den Brennstofftabletten. Als Ausgangspulver wurde natürliches unkalziniertes UO<sub>2</sub> verwendet; dieses wurde auf einem Sieb der Maschenweite 0,063 mm abgesiebt. Das Granulieren, Trocknen, Pressen und Sintern erfolgte im Prinzip wie bei den Brennstofftabletten. Allerdings war die Sintertemperatur 1600°C.

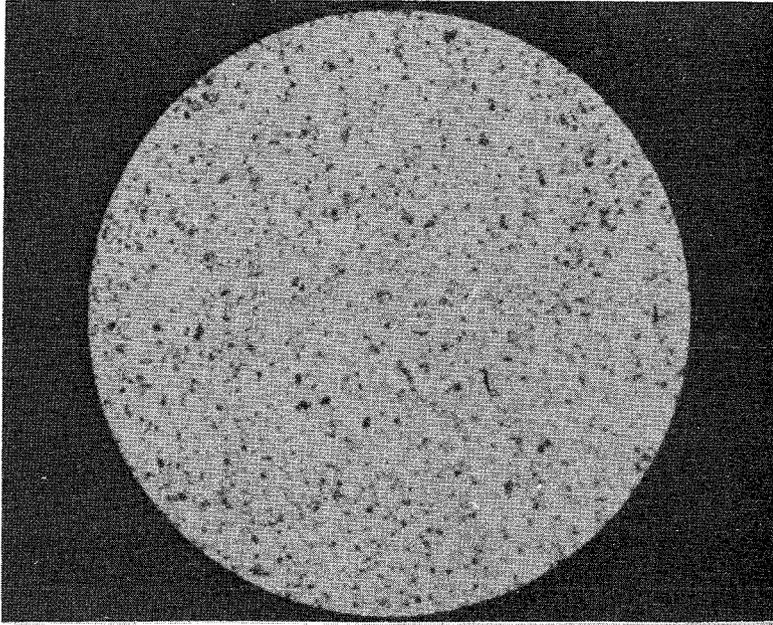
### 5.3 Nachweis der Brennstoffeigenschaften:

#### 5.3.1 Pu-Anreicherung:

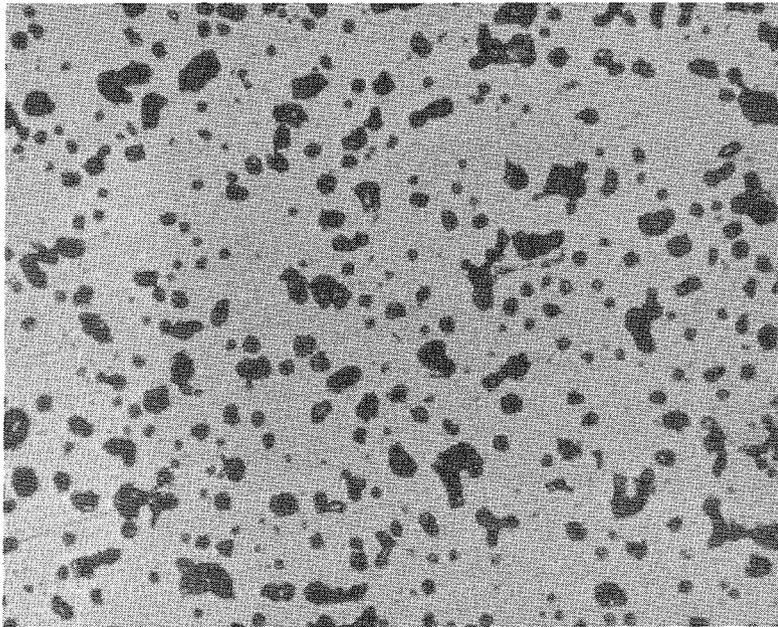
Die chemischen Analysen an den Brennstofftabletten ergaben für den Pu-Anteil (  $\frac{\text{Pu}}{\text{U} + \text{Pu}}$  ) einen Mittelwert von 19,28 Gew.-%.

#### 5.3.2 Chemische Reinheit:

Die chemischen Verunreinigungen wurden ebenfalls an einigen Tabletten ermittelt; sie blieben in der Summe unter dem geforderten Wert von 2500 ppm.



Autoradiografie



Keramografie

**Mol-8A**  
**Unbestrahlter Brennstoff**

**Abb. 2**

Verunreinigung	Wert in ppm
Ag	5
Al	400
B	1,2
C	72,1
Ca	130
Cd	7,0
Cr	130
Cu	3
Fe	300
Mg	40
Mn	150
Mo	80
Na	50
Ni	75
Pb	2
Si	240
Sn	5
V	2
Zn	< 5

#### 5.4 Hüll- und Strukturmaterial

Von der Firma Mannesmann wurden nahtlos gezogene Rohre und Vollstabmaterial als Halbzeug, bestehend aus dem austenitischen Edelstahl X8CrNiMoVNb (Werkstoff-Nr. 1.4988) bezogen.

Die Abmessungen waren:

Rohre:	6,00 mm Außendurchmesser
	0,38 mm Wandstärke
Vollmaterial:	8,00 mm Durchmesser

Von diesem Material wurden nach Abb. 1 in den Werkstätten der GfK die Fertigteile und aus einer anderen Lieferung des gleichen Materials die Druckfedern gefertigt. Der Sinterstahlfilter (ein Zulieferteil aus CrNi-Stahl) wurde in den Stopfen eingebaut.

## 5.5 Hüllrohrprüfung

Die Hüllrohre wurden bei der Firma Nukem mit Ultraschall auf Quer- und Längsfehler und Wandstärke geprüft.

Der Außendurchmesser wurde mit einem mechanischen Taster und der Innendurchmesser kontinuierlich mit einer pneumatischen Prüfanlage gemessen.

In Tabelle 1 sind die ermittelten geometrischen Abmessungen sowie die Hüllrohrfehler angegeben.

Aus dieser Tabelle ist ersichtlich, daß die spezifizierten Werte durchwegs eingehalten werden konnten. Schwankungen im Durchmesser und in der Wandstärke sind herstellungsbedingt und liegen noch im Bereich der Toleranzen. Außerdem ist die Zuordnung der Hüllrohrnummern zu den Brennstabnummern gegeben.

## 5.6 Herstellung der Stäbe

### 5.6.1 Auswahl der Tabletten:

Die Vermessung und Dichtebestimmung erfolgte nur an jeder 5-ten Brennstofftablette. Für die theoretische Dichte des Brennstoffgemisches wurden  $10,985 \text{ g/cm}^3$ , für den Brutstoff  $10,96 \text{ g/cm}^3$  zugrundegelegt. Sowohl die Brennstoffdichte als auch der Tablettendurchmesser entsprachen nicht bei allen Tabletten der Spezifikation. Wegen Materialmangels kamen aber alle Tabletten zum Einsatz. Im Stab 8A-5 wurden alle Tabletten mit höherer Dichte zusammengefaßt.

### 5.6.2 Tablettensäulen:

Jede Tablettensäule enthält 20 Brutstoff- und 2 Isoliertabletten. Stab Nr. 1 enthält 90, Stab Nr. 5 89 Brennstofftabletten (siehe Tab. 2 und 3). Die Nummern der Tabletten laufen von oben nach unten, d.h. über der obersten Brutstoff-Tablette mit der Nr. 1 ist der Stopfen mit der Druckfeder.

Die Gesamthöhen der Tablettensäulen wurden außerhalb der Hüllrohre in einer besonderen Vorrichtung durch Aneinanderreihen der Tabletten bestimmt. Diese Werte und die Materialdaten der Säulen sind in den

Tabelle 1 Geometrische Abmessungen und Fehler der Hüllrohre

Hüllrohr-Nr.		25	23
Querfehleranzeige	( $\mu$ )	0	0
Längsfehleranzeige	( $\mu$ )	0	ca. 2
Wandstärke	(mm)	0,37 - 0,40	0,36 - 0,40
Innendurchmesser	(mm)	5,21 - 5,23	5,22 - 5,24
Außendurchmesser	(mm)	5,98 - 6,03	6,01 - 6,04
Brennstab-Nr.		8A-1	8A-5

Tabelle 2 Tablettensäule für Stab 8A-1

	Lage der geprüften Tabletten	T a b l e t t e n d a t e n			
		Gewicht (g)	Durchm. (mm)	Höhe (mm)	Materialdichte (% th.D.)
Brutstoff	9	1,3316	5,055	6,27	96,5
3 Tabl./5,00 mm	14	1,3292	5,06	6,25	96,5
17 Tabl./6,25 mm	19	1,3280	5,07	6,245	96,1
Brennstoff 90 Tabletten	5	1,0534	5,03	5,68	85,0
	10	1,0538	5,08	5,65	83,8
	15	1,0424	5,07	5,62	83,7
	20	1,0604	5,08	5,71	83,5
	25	1,0796	5,065	5,69	85,8
	30	1,0455	5,03	5,545	84,0
	35	1,0566	5,08	5,69	83,4
	40	1,0552	5,05	5,61	85,5
	45	1,0478	5,08	5,66	83,2
	50	1,0400	5,09	5,63	82,7
	55	1,0430	5,09	5,63	83,0
	60	1,0444	5,095	5,645	82,7
	65	1,0437	5,05	5,56	85,3
	70	1,0626	5,035	5,66	85,8
	75	1,0776	5,075	5,65	85,9
	80	1,0418	5,045	5,55	85,5
	85	1,0533	5,09	5,69	82,9
	90	1,0518	5,03	5,65	85,3
Isolierung	1	1,0573	5,062	4,93	96,8
2 Tabletten	2	1,0435	5,062	4,92	96,8

Tabelle 3 Tablettensäule für Stab 8A-5

	Lage der geprüften Tabletten	T a b l e t t e n d a t e n			
		Gewicht (g)	Durchm. (mm)	Höhe (mm)	Materialdichte (% th.D.)
Brutstoff	7	1,3130	5,06	6,26	95,2
2 Tabl./5,00 mm	12	1,3610	5,09	6,33	96,4
18 Tabl./6,25 mm	17	1,3260	5,05	6,26	96,5
Brennstoff 89 Tabletten	5	1,0564	5,045	5,58	86,2
	10	1,0583	5,035	5,615	86,1
	15	1,0489	5,04	5,55	86,2
	20	1,0800	5,05	5,64	87,0
	25	1,0717	5,07	5,545	86,3
	30	1,0747	5,07	5,63	86,0
	35	1,0527	5,03	5,555	86,9
	40	1,0683	5,04	5,585	87,3
	45	1,0971	5,065	5,65	87,8
	50	1,0650	5,045	5,575	87,0
	55	1,0647	5,055	5,58	86,5
	60	1,0700	5,04	5,605	88,0
	65	1,0732	5,075	5,60	86,2
	70	1,0739	5,075	5,615	86,0
	75	1,0820	5,05	5,58	88,1
80	1,0497	5,03	5,555	86,5	
85	1,0569	5,035	5,56	86,6	
Isolierung	1	1,0435	5,062	4,90	96,7
2 Tabletten	2	1,0450	5,062	4,91	96,7

Tabellen 4 und 5 zusammengestellt. Genauere Werte für die Tabletten-säulenlängen liefern die Röntgendurchleuchtungen in Kap. 10.3. Der Mittelwert der Brennstoffdichte liegt innerhalb der gestellten Toleranzen.

### 5.6.3 Einfüllen und Verschweißen der Prüflinge:

Nach dem Einschweißen der unteren Endstopfen wurden die Tabletten einzeln durch eine am offenen Rohrende angebrachte Vorrichtung in die Hüllrohre geschoben. Danach wurde der Metalleinsatz mit Sinterstahlfilter und Druckfeder eingeführt und die beiden Brennstäbe evakuiert und mit He geflutet. Das Verschweißen des oberen Endstopfens bildete den abschließenden Arbeitsgang.

### 5.7 Prüfungen an den fertigen Stäben

Die Prüfung sowohl der abwischbaren wie auch der punktförmig fixierten Kontamination führte zu einem befriedigenden Ergebnis: Die Wischtests waren ohne Befund, lediglich die Schweißnähte der oberen Endstopfen zeigten geringe punktförmig fixierte Aktivitäten ( $< 10 \alpha\text{-Zerfälle/min} \cdot \text{cm}^2$ ).

Die Röntgenprüfung der Schweißnähte ergab eine einwandfreie Qualität; auch wurde die Dichtheit der verschlossenen Stäbe nachgewiesen.

Das Gewicht, die Gesamtlänge und der Durchmesser an verschiedenen Stellen des Prüflings wurden bestimmt. Das Prüfprotokoll ist in Tab. 6 wiedergegeben. Gleichzeitig wurden in den heißen Zellen mit einer Rundlaufmeßbank Wendelschriebe zur Bestimmung der Außendurchmesser und Ovalitäten angefertigt (s. auch Kap. 10.2 u. Abb. 20). An den fertigen Stäben wurden auch Röntgendurchleuchtungen vorgenommen. Diese liefern die tatsächlichen Tabletten-säulenlängen und sind in Kap. 10.3 zusammengestellt.

Tabelle 4 Gesamtwerte für Brutstoff und Isolierung

Brennstab Nr.	B r u t s t o f f				I s o l i e r t a b l e t t e n			
	Gewicht (g)	Höhe (mm)	Mittlerer Durchmesser (mm)	Mittlere Dichte (% th.D.)	Gewicht (g)	Höhe (mm)	Mittlerer Durchmesser (mm)	Mittlere Dichte (% th.D. )
8A-1	26,54	ca.120	5,062	96,4	2,10	9,9	5,062	96,7
8A-5	25,90	120,6	5,066	97,2	2,09	9,8	5,062	96,6

Tabelle 5 Gesamtwerte für die Brennstoffsäulen

Brennstab Nr.	Gewicht UO <sub>2</sub> -PuO <sub>2</sub> (g)	Höhe der Säule (mm)	Mittlerer Durchmesser (mm)	Mittlere Dichte (% th.D.)	Gehalt an Pu (g)	Gehalt an U-235 (g)
8A-1	95,30	ca. 508	5,064	86,1	16,81	66,59
8A-5	94,70	499,4	5,050	86,74	16,71	66,17

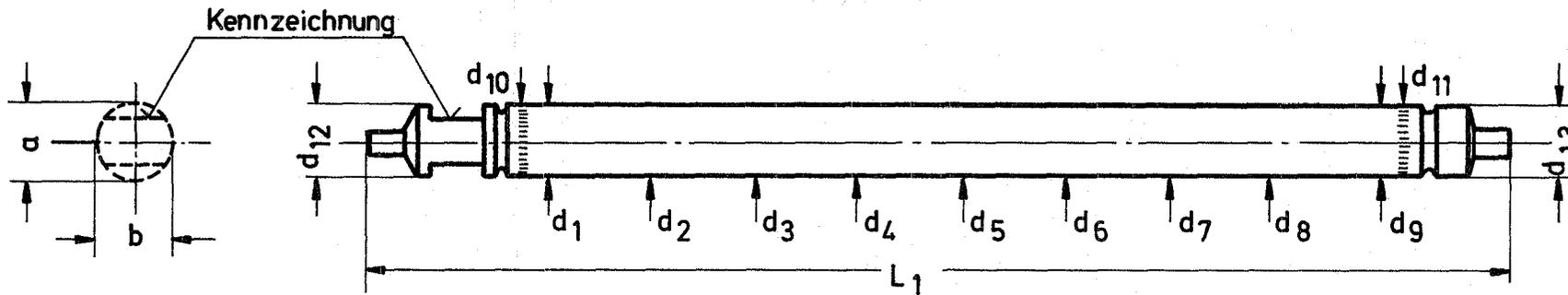


Tabelle 6 Prüfprotokoll der fertigen Brennstabprüflinge

Stab-Nr.	Gewicht (g)	Länge $L_1$ (mm)	Meßebene	Durchmesser mit Mikrometerschraube gemessen (mm)										
				$d_1$	$d_2$	$d_3$	$d_4$	$d_5$	$d_6$	$d_7$	$d_8$	$d_9$	$d_{12}$	$d_{13}$
Mol 8A-1	175,08	839,7	a	6,003	6,009	6,002	6,002	5,997	5,999	5,995	5,993	5,993	-	6,005
			b	5,998	6,003	6,000	6,002	6,000	6,000	5,996	5,995	5,998	5,997	6,005
Mol 8A-5	175,39	840,0	a	6,020	6,020	6,020	6,022	6,018	6,017	6,019	6,018	6,022	-	6,011
			b	6,020	6,021	6,021	6,019	6,017	6,019	6,021	6,020	6,022	6,016	6,012

## 6. Bestrahlungseinrichtung

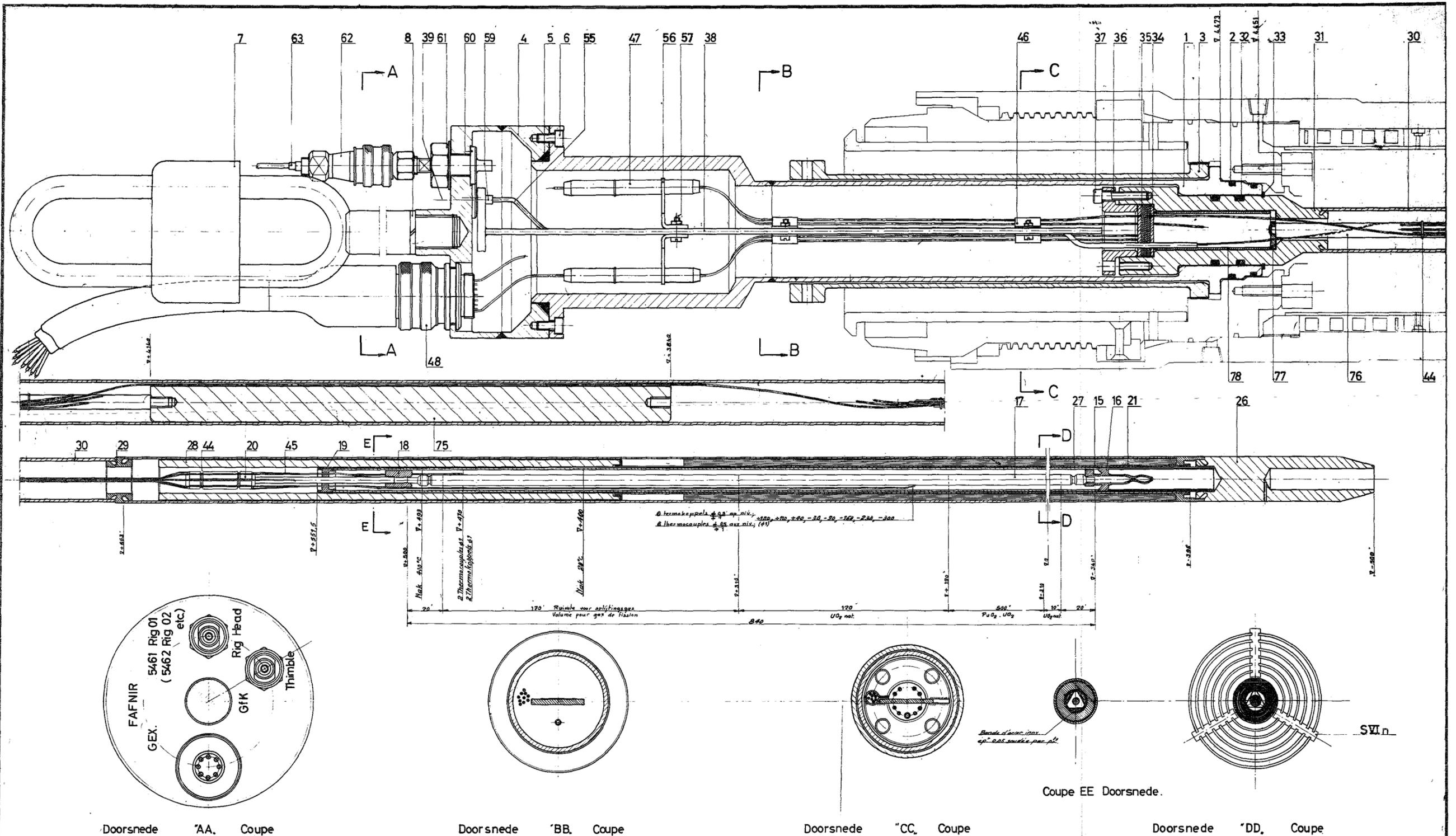
Die Brennstabprüflinge Mol 8A-1 und Mol 8A-5 gelangten in den sogenannten FAFNIR-Kapseln (siehe Abb. 3) in verschiedenen Kanälen des BR 2 zum Einsatz. Die Gesamthöhe des Versuchseinsatzes beträgt ca. 5,7 m; in Abb. 3 sind verschiedene Querschnitte eingezeichnet, die den allgemeinen Aufbau erkennen lassen.

10 Thermoelemente aus Chromel-Alumel (Außendurchmesser 0,5 mm in der Meßzone, sonst 1 mm) wurden mittels Laschen an verschiedenen Stellen des Prüflings angepunktet und gasdicht durch den oberen Stopfen des Versuchseinsatzes geführt; 8 Thermoelemente waren für die Oberflächentemperaturen des Hüllrohres im Bereich der Brennstoffzone und 2 für den oberen Spaltgasraum vorgesehen.

Die Bestrahlung der Kapseln erfolgte in den Kanälen F-46, F-254, F-314, F-346, D-120 und D-240 des BR 2; dies sind Positionen in ringförmigen Brennelementen, die in Abb. 4 besonders gekennzeichnet sind. Abb. 5 zeigt den Querschnitt durch solch ein BE mit eingeschobener FAFNIR-Kapsel. Im Zentrum befindet sich der Brennstab, der wiederum in einem oben und unten verschweißten Stahlrohr sitzt. Diese Kapsel ist mit der eutektischen NaK-Legierung (22 % Na, 78 % K) angefüllt. Über diese Kapsel ist der Cd-Schirm (4 % Ag) in "Sandwich"-Bauart geschoben: 2 konzentrische Edelstahlrohre umschließen die Cd-Schicht. Zwischen "Sandwich" und Kapsel befindet sich ein kalter Gasspalt.

## 7. Ablauf der Bestrahlung

Die in Mol fertigmontierten und instrumentierten Bestrahlungskapseln gelangten in der Periode 17/68 erstmals zur Bestrahlung. Der Versuchsablauf wurde von der Arbeitsgruppe Mol betreut, die auch für die monatlich erscheinenden Protokolle verantwortlich war [3, 4]. In diesen Protokollen wurden die pro Zyklus auftretenden Bestrahlungsdaten wie Meßstellentemperatur, Bestrahlungszeit, Reaktorleistung, Bestrahlungsposition,  $\gamma$ -Heizung, Stableistung und Abbrand festgehalten. Außerdem wurden unplanmäßige Reaktorschaltungen und Ausfälle der Thermoelemente protokolliert.



Doorsnede "AA. Coupe

Doorsnede "BB. Coupe

Doorsnede "CC. Coupe

Doorsnede "DD. Coupe

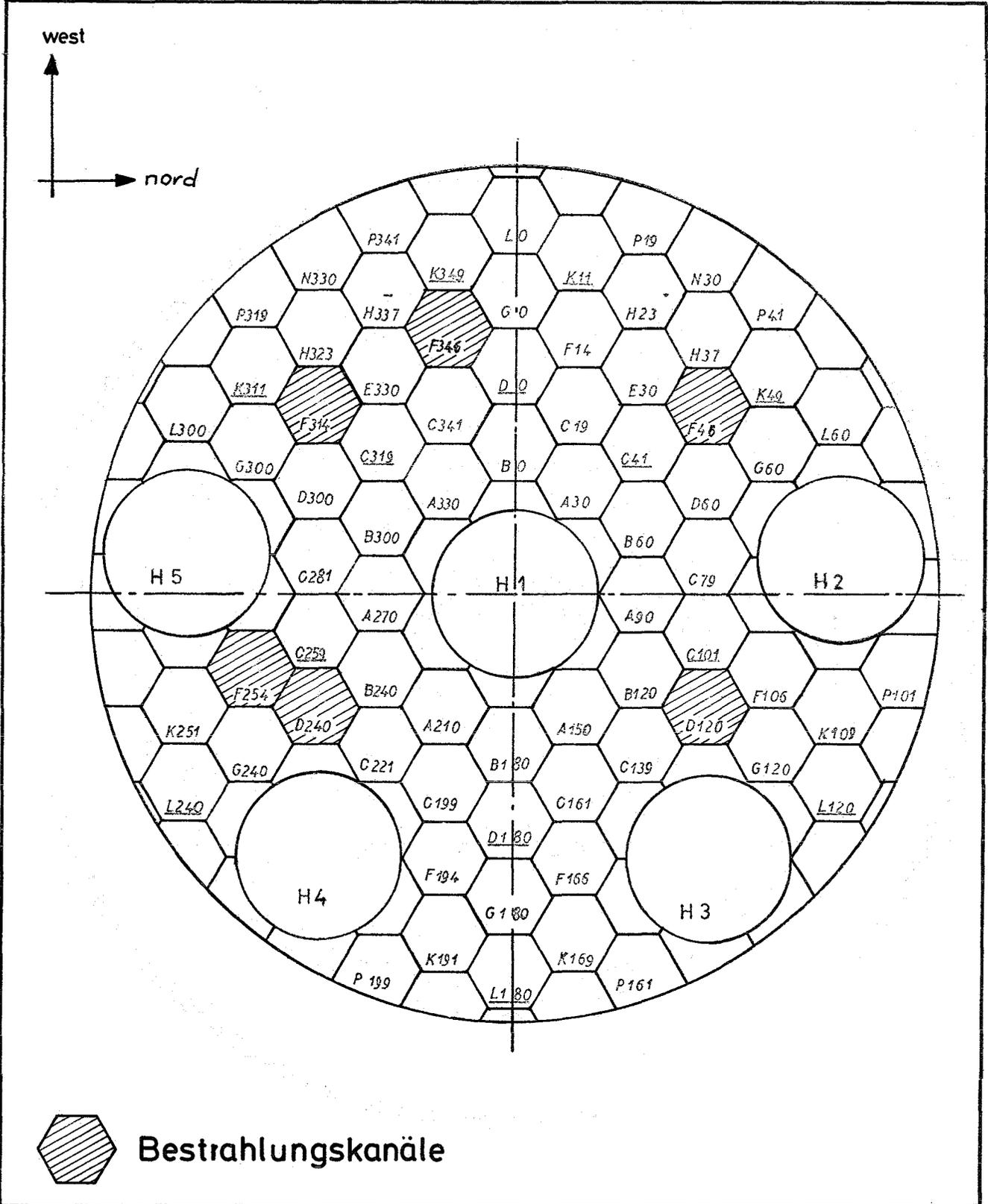
Voor stuklijst zie plannen: N 22452 7/2 2/2  
 Pouromenclature voir plans: N 22452 7/2 2/2

N°	Dénomination	Benaming	Q	Mat.	Obs.
Etat de surface : <input type="checkbox"/> Cotes non tolérancées <input type="checkbox"/> Cotes sans tolérances					
Atworkingsgraad : <input type="checkbox"/> Misen zonder toléransie <input type="checkbox"/> Misen met toléransie					
GROUPE D'EXPLOITATION DU RÉACTEUR BR 2 ET DE SES INSTALLATIONS CONNEXES			GROEP VOOR EXPLOITATIE VAN DE REAKTOR BR 2 EN ZIJN BIJHORENDE INSTALLATIES		
Service - Dienst : Tech.st.			Dossier : 715460		
Dessiné - Gevraagd : <i>Baachseel</i>			dst. : 12.10.1967		
Vérif. - Swinnen J.			dst. : 16.10.67		
Approb. - <i>A. de V. H. de V.</i>			dst. : 17.10.67		
Echelle : 1/1			N° GEX 23		
BESTRALING VAN EEN BRANDSTOFNAALD. Samenstelling IRRADIATION D'UNE AIGUILLE DE COMBUSTIBLE. Ensemble.					

Abb. 3 Bestrahlungskapsel „FAFNIR“

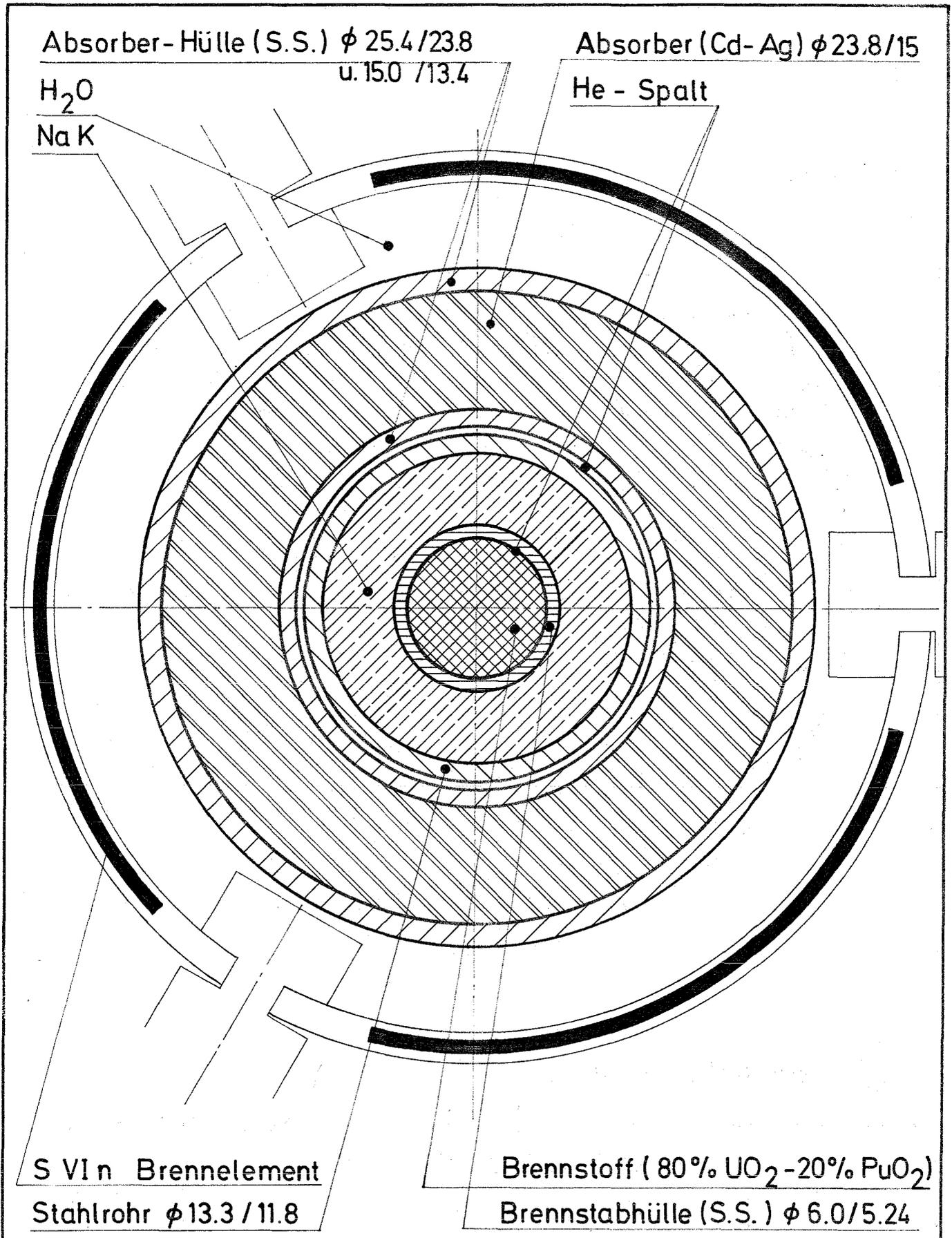
11-10-67	Mod. position des thermocouples	1/1
4-8-68	Modif. cap. 19 - Ajout coupe EE - Changé niveau de	1/1
7-2-68	Abscherming	1/1
11.11.67	Verbetring volgens oord	1/1
Ind. dst.	Modifications - Wijzigingen	Par. Appr.





Brennelementpositionen der  
Stäbe 1 u. 5 im BR - 2

Abb. 4



Querschnitt v. Brennelement  
u. Bestrahlungskapsel

Abb. 5

## 7.1 Reaktorzyklen

Die beiden Versuchseinsätze wurden unterschiedlich lange im BR 2 bestrahlt: Stab 1 über 20 Zyklen, Stab 5 über 14 Zyklen. Obwohl alle Thermoelemente nacheinander bei beiden Einsätzen ausgefallen waren, entschloß man sich doch zur Weiterbestrahlung bis zum Versuchsziel.

Im folgenden wird für beide Einsätze eine tabellarische Übersicht bezüglich der Zyklusdauer, der Position, der Stabileistung und des Abbrandes gegeben (Tab. 7 und 8). Die Stabileistung und der Abbrand wurden nicht aus den TE-Messungen bestimmt, sondern wurden auf neutronenphysikalischem Wege errechnet (s. Kap. 8).

Innerhalb der Zyklen auftretende unplanmäßige Schnellabschaltungen des Reaktors wurden in der Aufstellung nicht berücksichtigt.

## 7.2 Temperatur, Stabileistung und Abbrand

Die am Brennelement-Hüllrohr befestigten Thermoelemente messen annähernd die Hülloberflächentemperatur. Der Unterschied zwischen Meßstelle und Hüllaußentemperatur beträgt je nach Temperaturhöhe zwischen 4 und 12°C.

Infolge von Korrosionserscheinungen, deren Ursachen in Kap. 9 aufgezeigt werden, fielen die Thermoelemente nacheinander für die Temperaturmessung aus. Es sind in den Abb. 6 und 7 die Hüllaußentemperaturen für jeweils 3 Meßstellen aufgetragen. Die Mittelwerte aller gemessenen Hülloberflächentemperaturen sind in den Abb. 8 und 9 wiedergegeben. Obwohl diese Temperaturmessungen mit Vorbehalt zu betrachten sind, wurden aus den vorhandenen Temperaturverläufen die Stabileistungen bestimmt. (Abb. 10 und 11). Zur Abbrandberechnung wurden diese Messungen jedoch nicht herangezogen.

Die Umrechnung der Meßstellentemperaturen auf Hüllaußentemperaturen und Stabileistungen erfolgte grafisch [5].

Maximale Stabileistungs- und Abbrandwerte der einzelnen Zyklen, die über neutronenphysikalische Rechenmethoden ermittelt wurden, finden sich in den Tabellen 7 und 8 und den Abb. 12 und 13 (siehe hierzu Kap. 8).

Tabelle 7 Bestrahlungsablauf für den Stab Mol 8A-1  
 (Stableistung und Abbrand wurden aus neutronenphysikalischen  
 Rechnungen ermittelt)

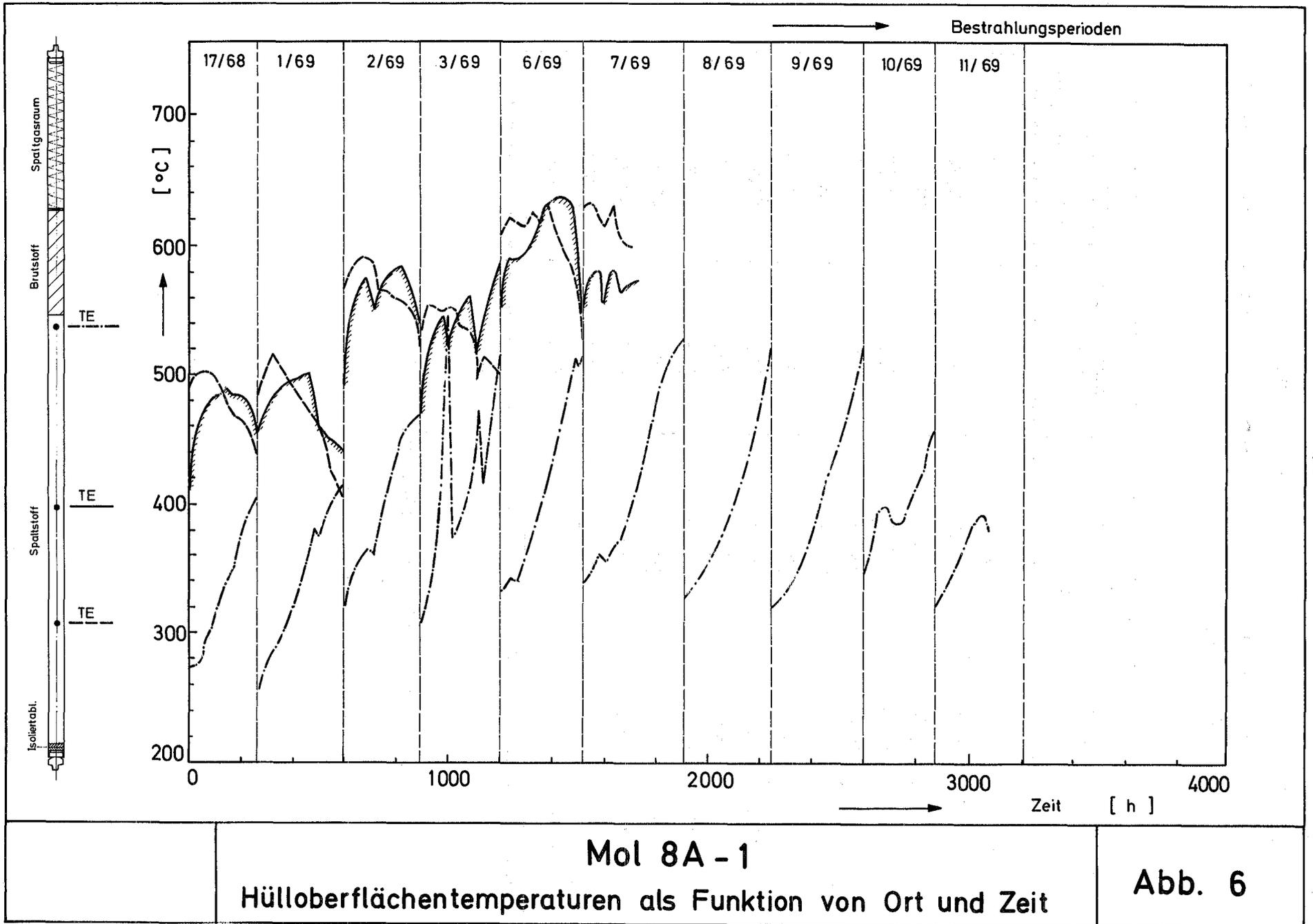
Zyklus	Position	Bestrahlungs- zeit ( $\geq 80\% N_F$ )* ( h )	Stableistung (W/cm)	Abbrand am Ende des Zyklus (MWd/t <sub>Schw.Atome</sub> )
17/68	F46	260,0	420	2750
1/69	F46	333,5	445	6460
2/69	F46	294,0	445	9720
3/69	F46-F346	312,5	420-395	13010
6/69	F346	342,5	450	16860
7/69	F346	367,5	450	21000
8/69	F346	336,5	450	24780
9/69	F346	351,5	450	28730
10/69	F346	281,5	450	31900
11/69	F346	437,3	450	36810
12/69	F346	321,7	480	40650
13/69	F346	332,5	450	44380
14/69	F346	441,5	450	49340
15/69	F346	318,0	410	52600
16/69	F254	372,7	465	56930
1/70	F254	352,9	445	60840
2/70	F254	348,6	445	64700
3/70	F254	312,9	445	68170
4/70	F254	281,5	445	71280
6/70	F346	310,8	450	74760

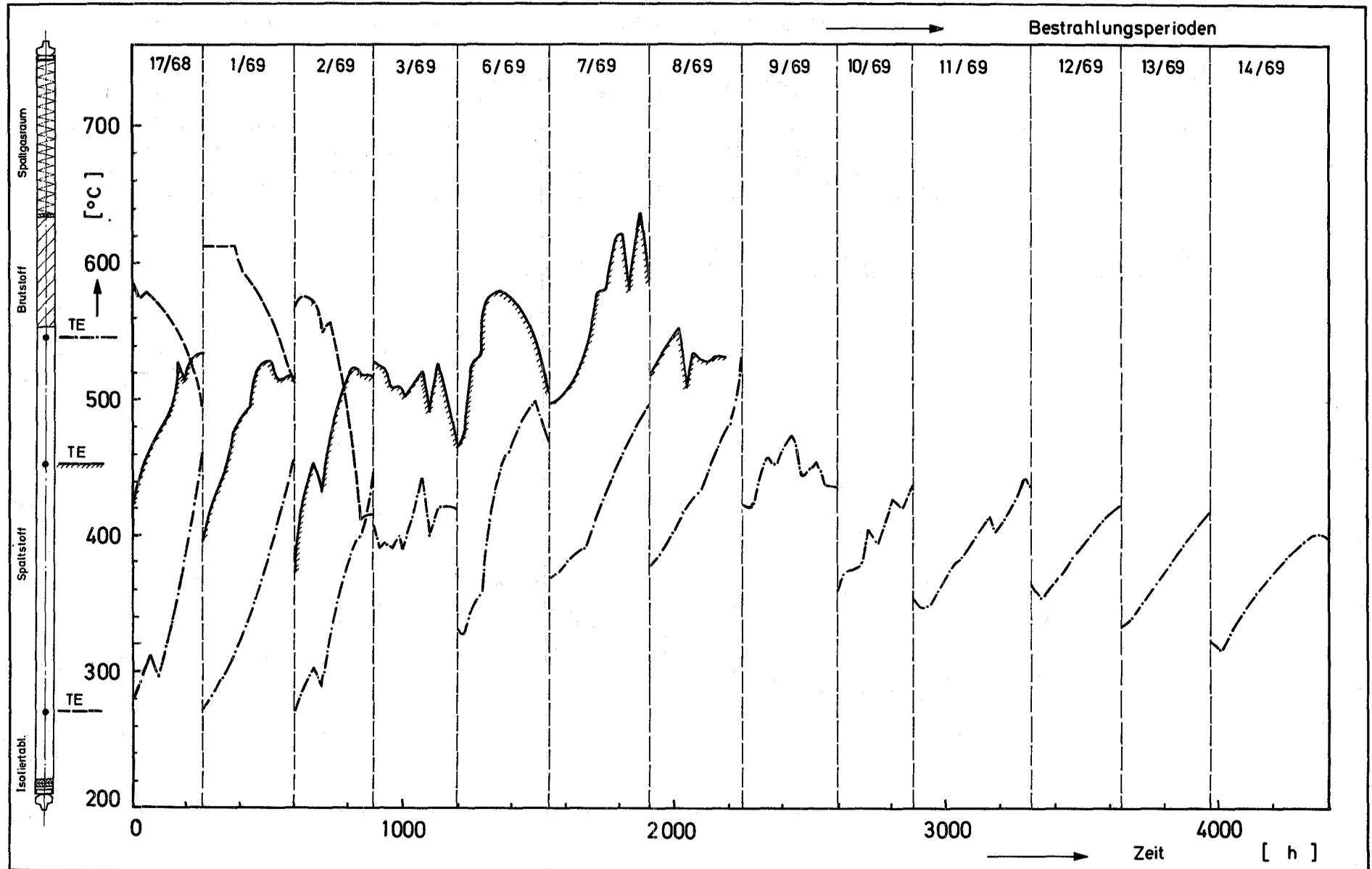
\*)  $100\% N_F \cong 67$  MW totale Reaktorleistung

Tabelle 8 Bestrahlungsablauf für den Stab Mol 8A-5  
 (Stableistung und Abbrand wurden aus neutronenphysikalischen  
 Rechnungen ermittelt)

Zyklus	Position	Bestrahlungs- zeit ( $\geq 80 \% N_F$ )* ( h )	Stableistung (W/cm)	Abbrand am Ende des Zyklus (MWd/t <sub>Schw.Atome</sub> )
17/68	F314	260,0	450	2920
1/69	F346	333,5	455	6720
2/69	F346	294,0	455	10060
3/69	F254	312,5	395	13150
6/69	D240	342,5	545	17810
7/69	D240	367,5	590	22810
8/69	D240	336,5	545	27390
9/69	D240	351,5	545	32170
10/69	D240	281,5	545	36000
11/69	D240	437,3	545	41950
12/69	D240	321,7	520	46150
13/69	D120	332,5	545	50670
14/69	D120	441,5	490	56070
15/69	D120	318,0	515	60200

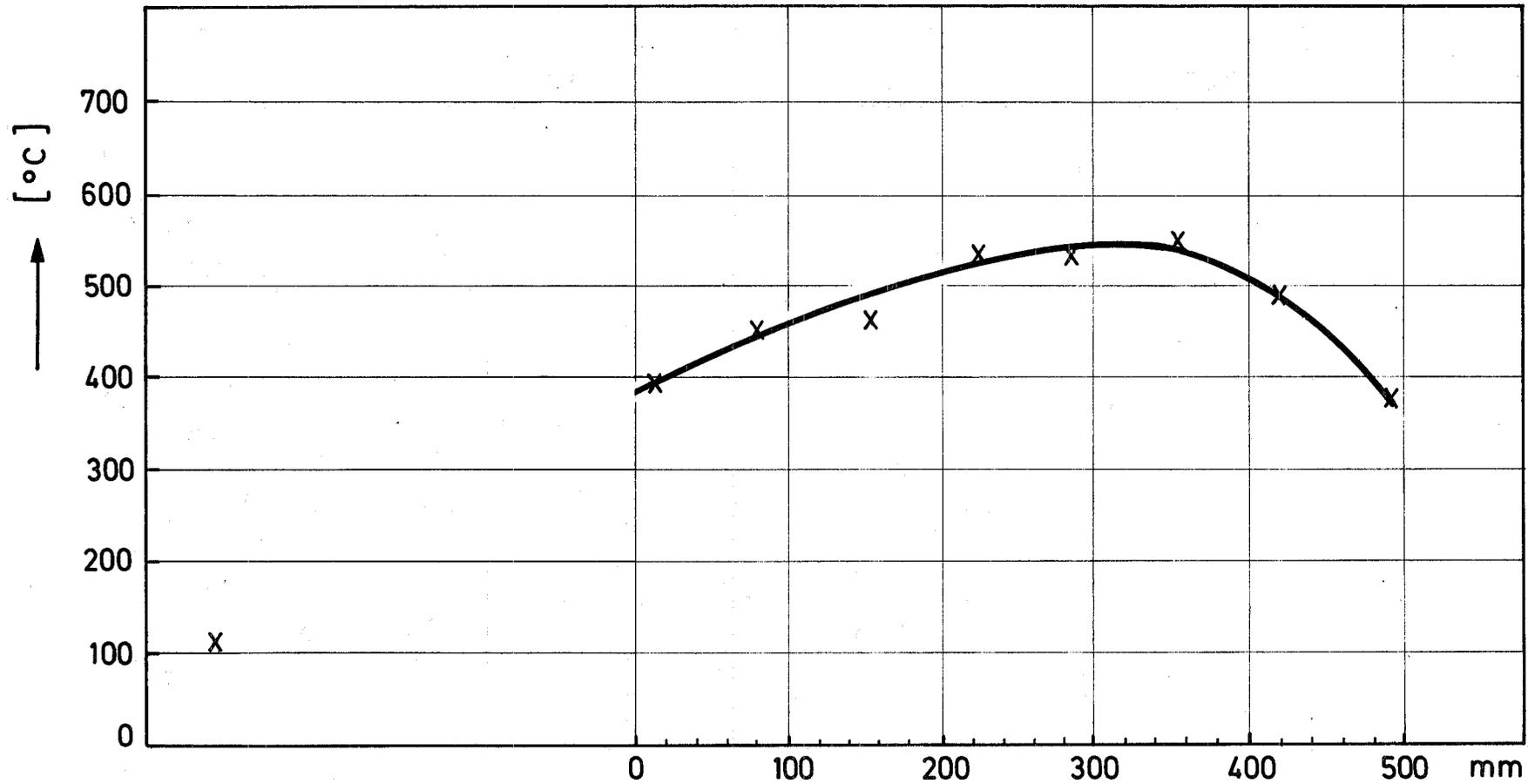
\*)  $100 \% N_F \approx 67 \text{ MW}$  totale Reaktorleistung





Mol 8A-5  
 Hülloberflächentemperaturen als Funktion von Ort und Zeit

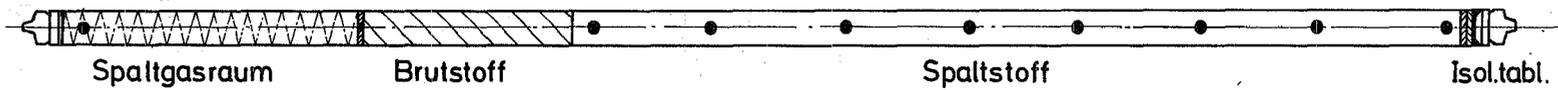
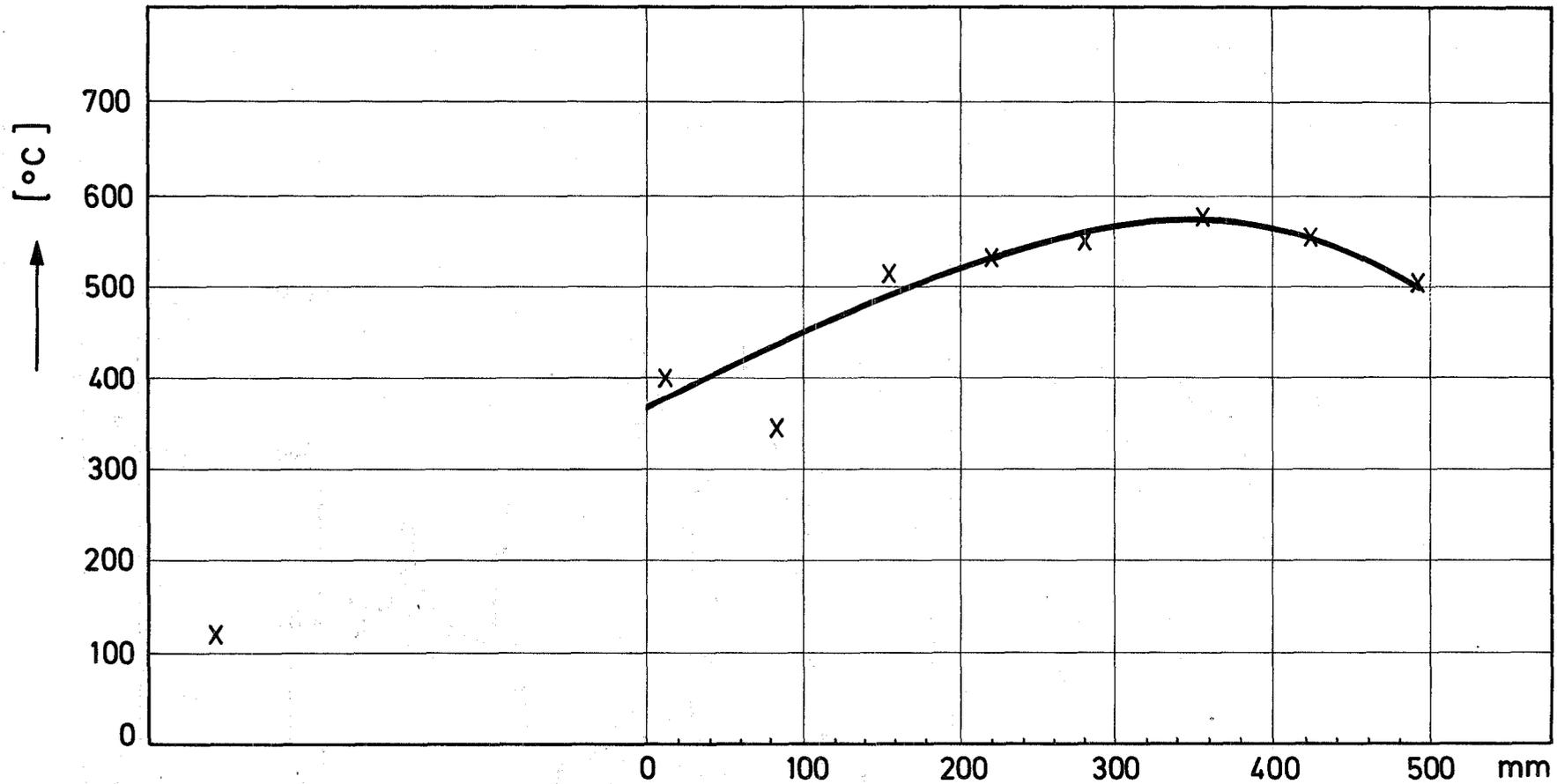
Abb. 7



Mol-8A Stab.-Nr. 1

Mittelwerte der Hülloberflächentemperaturen

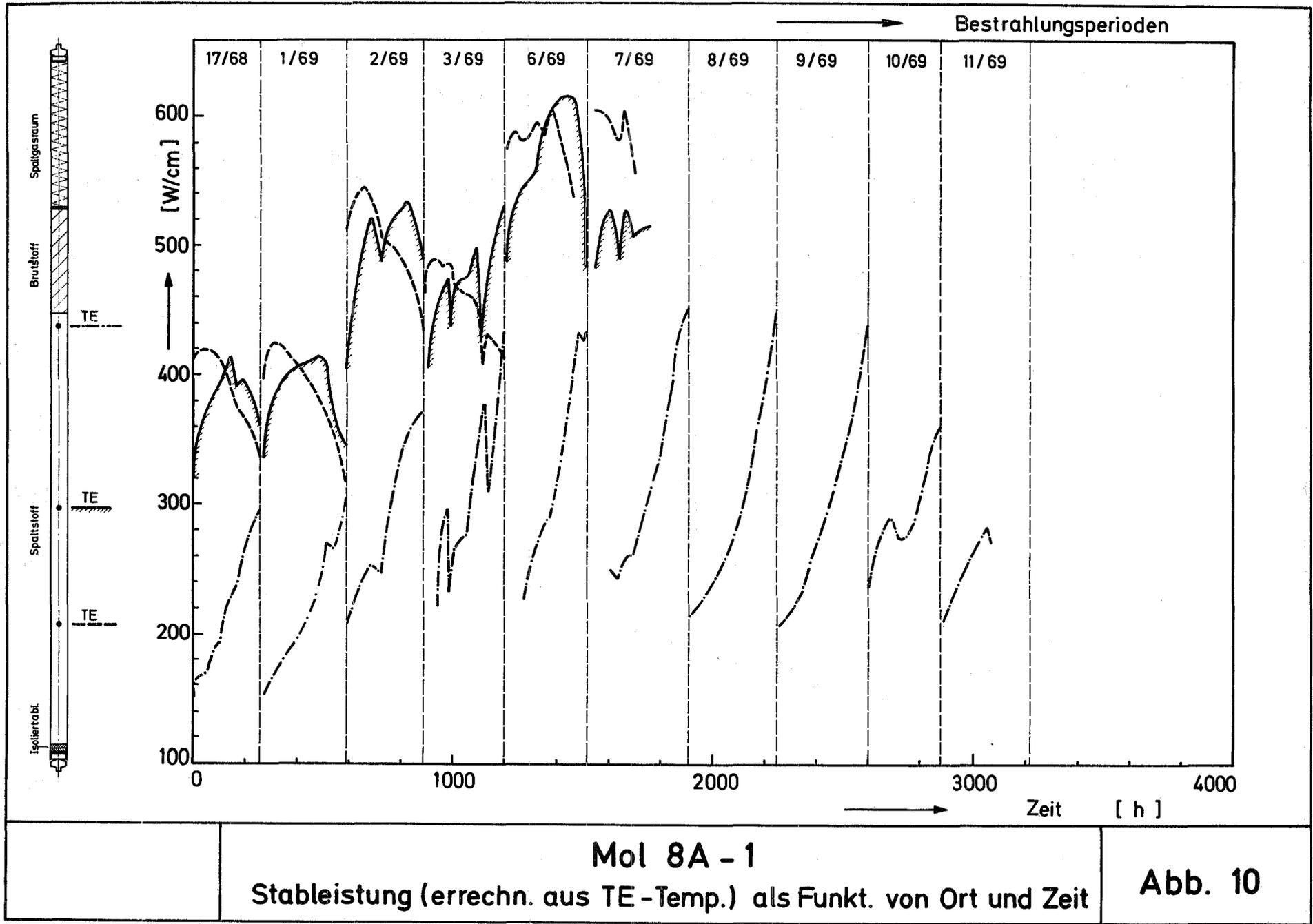
Abb. 8



Mol - 8A Stab-Nr. 5

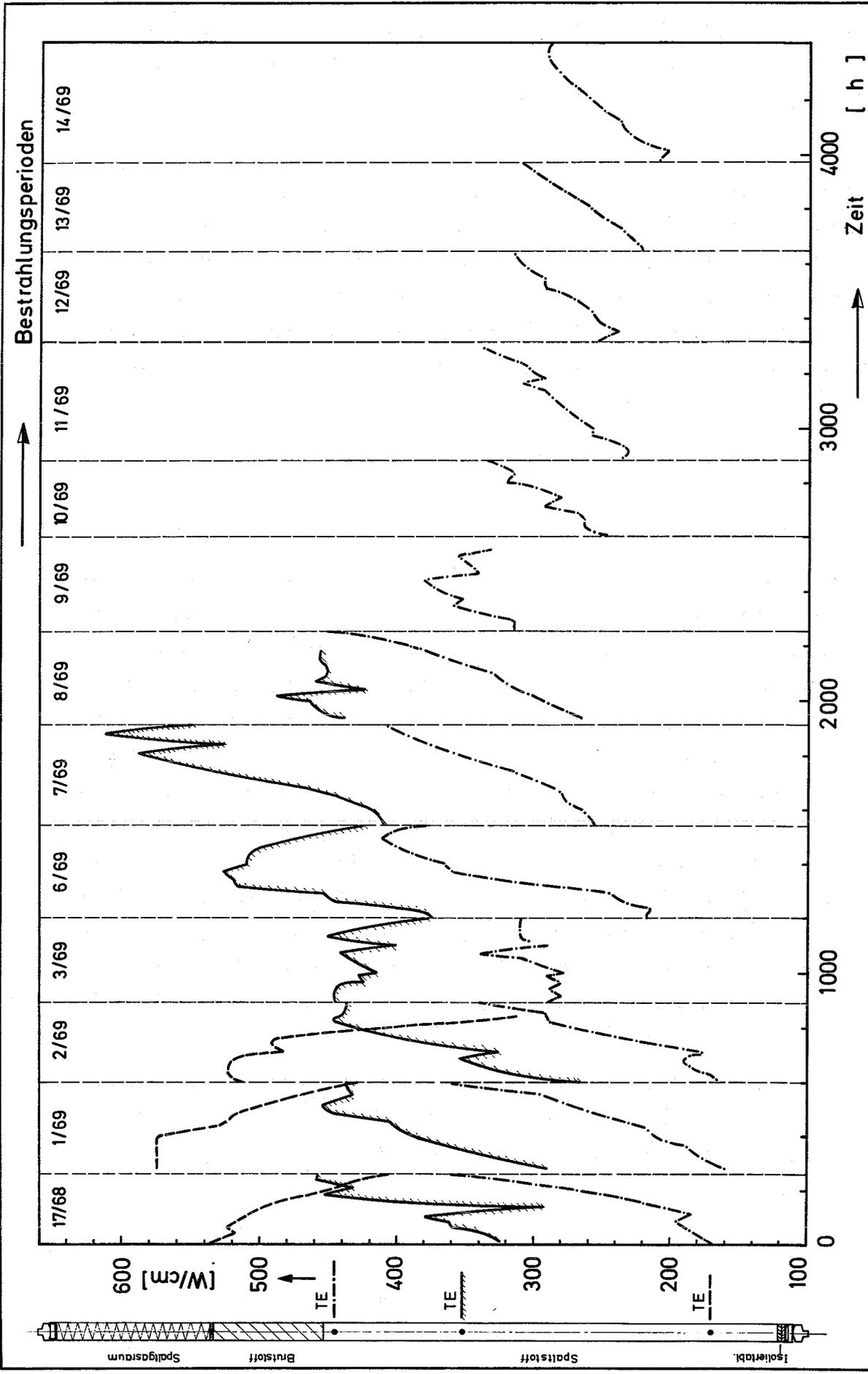
Mittelwerte der Hülloberflächentemperaturen

Abb. 9



Mol 8A - 1  
 Stableistung (errechn. aus TE-Temp.) als Funkt. von Ort und Zeit

Abb. 10



Mol 8A - 5  
Stableistung (errechn. aus TE -Temp.) als Funkt. von Ort und Zeit

Abb. 11

## 8. Neutronenphysikalische Berechnung der maximalen Stableistung, des maximalen Abbrandes, des Flußspektrums, der radialen Leistungsdichteverteilung und des Leistungsdichtespektrums

Bei diesem Bestrahlungsexperiment wurden keine Flußmessungen innerhalb des Cd-Schirmes vorgenommen. Auch sind die an den Kapseln montierten Thermoelemente nacheinander ausgefallen, so daß eine experimentelle Bestimmung der Stableistung während der gesamten Bestrahlungszeit nicht möglich war. Aus diesem Grunde ist man auf die theoretischen Vorausberechnungen, die ihren Niederschlag in den Notizen [6, 7, 8] und den Technical Notes [3, 4] finden, angewiesen.

### 8.1 Rechenmethode

Dem Kapitel 6 ist zu entnehmen, daß die FAFNIR-Kapseln in außermittigen Kanälen (F- und D-Kanäle, s. Abb. 4) bestrahlt wurden. Ein auf dieser Position befindliches S VIn-Brennelement ist ein ringförmiges Brennelement, welches speziell für Kapselbestrahlungen konstruiert ist (Abb. 5). Das Innere dieses Brennelementes wird mit der FAFNIR-Kapsel aufgefüllt. Die 6 Nachbarelemente waren von Bestrahlungsposition zu Bestrahlungsposition verschieden, so daß die Berechnungen für verschiedene Element-Konfigurationen durchgeführt wurden. Bei allen Berechnungen, die mit dem Programm GMS II [9] ausgeführt wurden, wurde angenommen, daß sich die FAFNIR-Kapsel zentral in einem idealisierten Reaktor befand. Eine weitere Annahme war, daß die Brennelemente des Reaktors frisch waren, was offensichtlich nicht zutrifft: Bei den einzelnen Bestrahlungszyklen betrug der Abbrand dieser Elemente zwischen 20 und 40 %.

Der eindimensionale Code verlangt Zylindergeometrie, d.h. das Gitter des BR 2 wird durch konzentrische zylindrische Zellen ersetzt, in denen die Teilchenzahldichten der einzelnen Elemente verschmiert werden.

Für alle Berechnungen wurde der ungestörte thermische Fluß in den F- und D-Kanälen zur Normierung benötigt; dieser Wert wurde rechnerisch, durch Austausch der FAFNIR-Kapsel gegen einen Be-Stopfen zu  $3 \cdot 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>sec ermittelt.

## 8.2 Maximale Stableistung und maximaler Abbrand

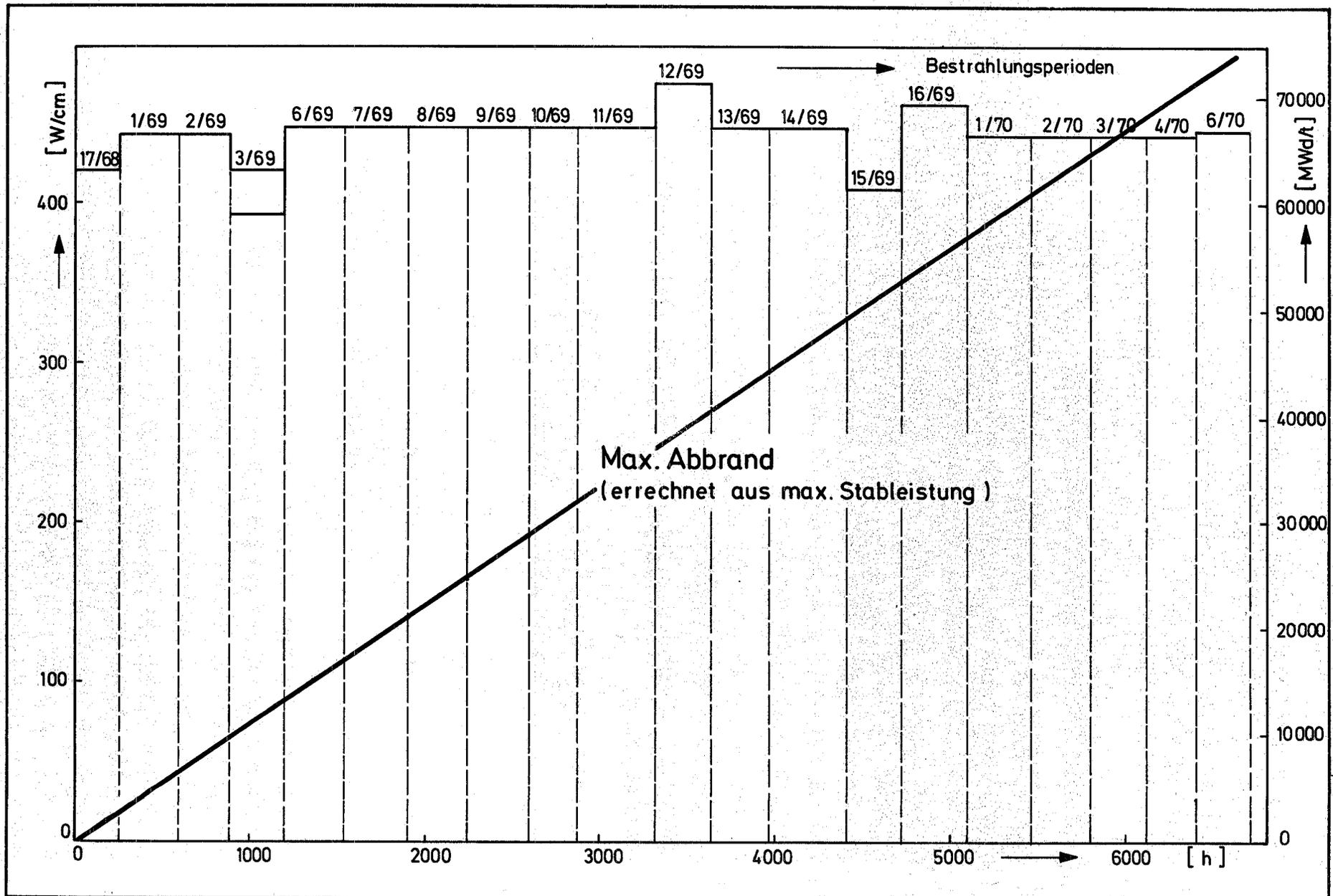
Die maximale, das ist die zu Beginn eines jeden Zyklus herrschende, Stableistung wurde für jeden Zyklus errechnet. Das oben beschriebene Programm liefert zwischen der maximalen Stableistung und dem ungestörten maximalen thermischen Fluß folgenden Zusammenhang, der linear interpoliert wird:  $\phi_{\text{max.therm.}} = 3 \cdot 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>sec  $\Delta \chi = 395$  W/cm. Für jede Bestrahlungsposition wurde nun der ungestörte maximale thermische Fluß experimentell ermittelt und die maximale Stableistung aus obigem linearen Zusammenhang gewonnen.

Die Abb. 12 und 13 geben für beide Stäbe die so errechneten maximalen Stableistungen der einzelnen Zyklen wieder. Weiterhin ist der maximale Abbrand in Mwd/t<sub>schwere Atome</sub> angegeben, der nach folgender Formel errechnet wurde:

$$A \left( \frac{\text{Mwd}}{t_{\text{Schwere Atome}}} \right) = \frac{\chi \text{ (W/cm)} \cdot t \text{ (d)}}{\rho_{\text{Schmier}} \text{ (g/cm}^2\text{)} \cdot F \text{ (cm}^2\text{)} \cdot f}$$

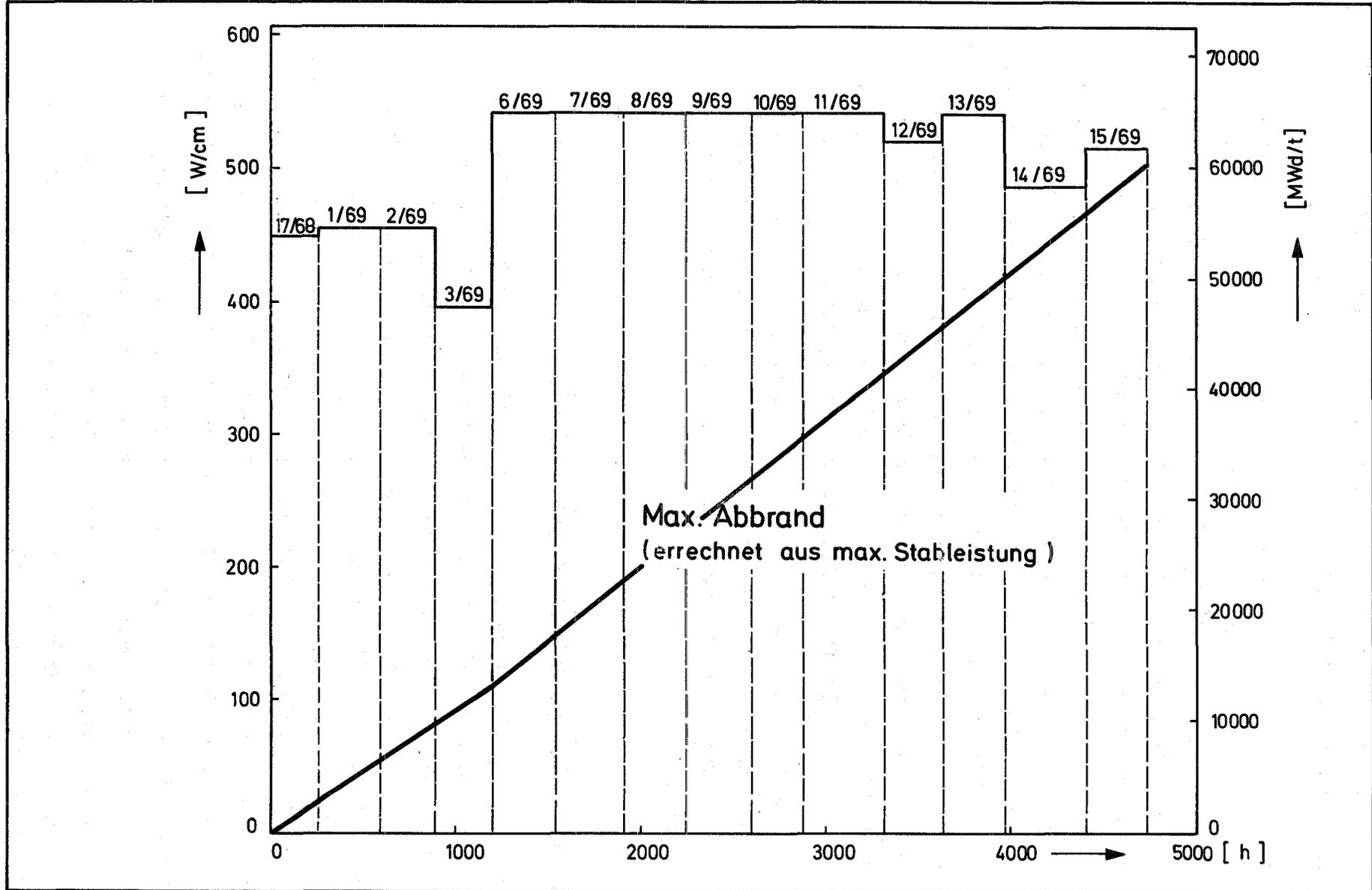
- wobei  $\chi$  = Stableistung  
 $t$  = Bestrahlungszeit  
 $\rho_{\text{Schmier}}$  = Schmierdichte des Mischoxids  
 $f$  = Umrechnungsfaktor der Mischoxid-Dichte auf Metall-Dichte = 0,88  
 $F$  =  $\pi \cdot r_{\text{Hi}}^2$

Als rückgewinnbare Energie pro Spaltung U-235 wird  $(200 \pm 5)$  MeV und pro Spaltung Pu-239  $(205 \pm 6)$  MeV angenommen. Diese Werte gelten in den angenommenen Fehlerbreiten für den gesamten Reaktor; die rückgewinnbare Energie pro Spaltung in der Kapsel ist nicht bekannt. In Ermangelung dieser Werte werden die reaktorspezifischen zugrundegelegt und mit einem mittleren Wert von 201 MeV gerechnet; dieser ergibt sich mit der in Kap. 11.2 getroffenen Annahme, daß 19,6 % der Spaltungen auf die Spaltung von Pu-239-Atomen zurückzuführen sind.



**Maximale Stableistung Mol 8A-1**  
 Errechnet aus dem maximalen ungestörten therm. Neutronenfluß

**Abb. 12**



**Maximale Stableistung Mol 8A-5**  
 Errechnet aus dem maximalen ungestörten therm. Neutronenfluß

**Abb. 13**

### 8.3 Das mittlere Flußspektrum, das mittlere Leistungsdichtespektrum und die radiale Leistungsdichtevertelung im Brennstoff

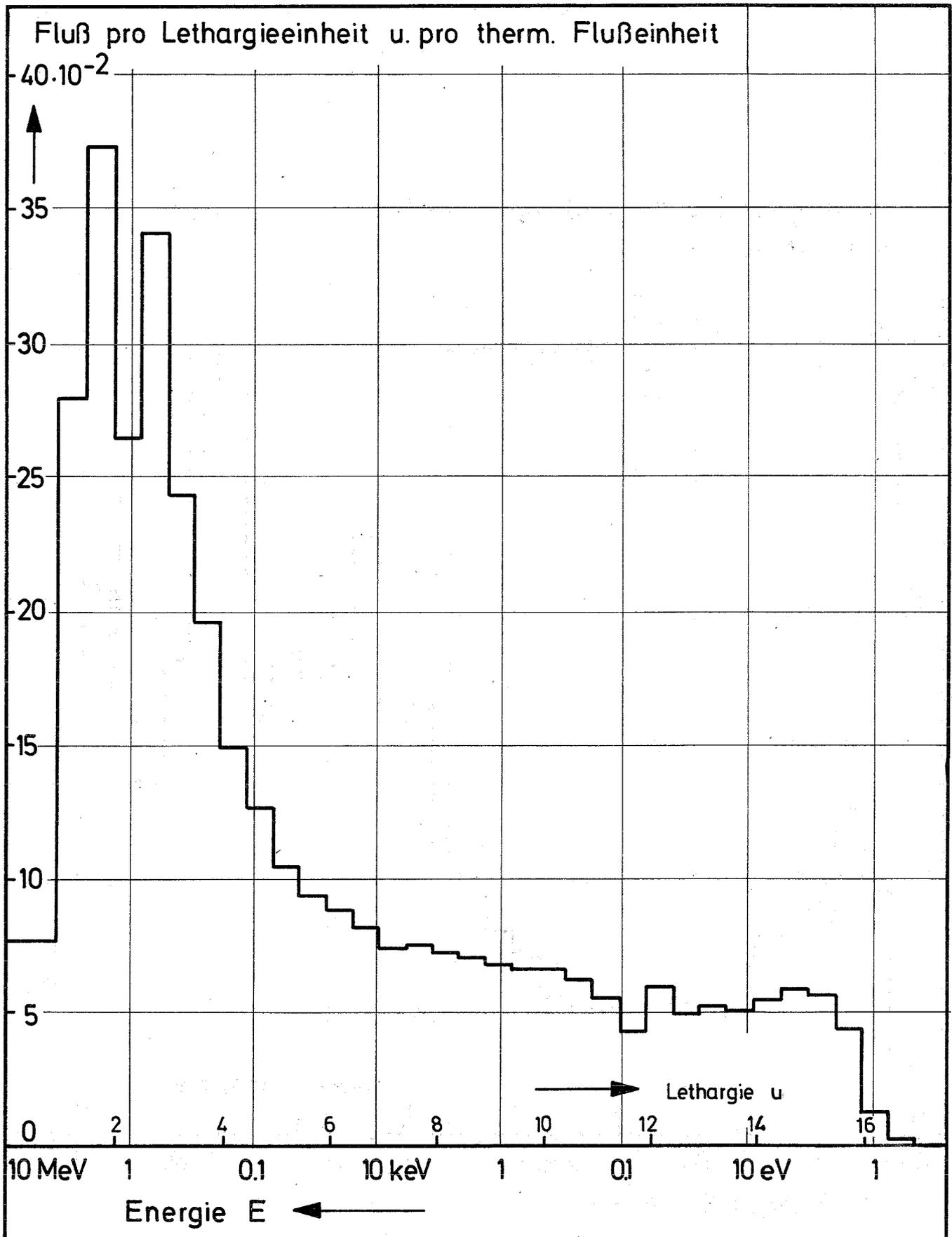
Für alle Verteilungen wurde ein maximaler ungestörter thermischer Neutronenfluß (FAFNIR-Kapsel substituiert durch einen Be-Stopfen im S VIN-BE) von  $3 \cdot 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>sec als Normierung benutzt. Das über den Brennstoff-Querschnitt gemittelte n-Flußspektrum (Abb. 14) ist ein schnelles Spektrum, dessen Maximum bei ca. 1 MeV liegt. Die Cd-Hülle absorbiert die thermischen Neutronen, d.h. das thermische Spektrum ist bei 0,683 eV, der Absorptionskonstante des Cd, abgeschnitten. Abb. 15 gibt die Leistungsdichtevertelung wieder, welche gleichbedeutend mit der Spaltungsdichtevertelung ist. Der Anteil der Spaltungen, hervorgerufen durch epithermische Neutronen, ist dominierend, er verhält sich zu dem der Schnellspaltung wie 3:1. Wir haben es also trotz schnellen Flußspektrums innerhalb der Cd-Hülle mit einem vorwiegend epithermischen Spaltdichtespektrum zu tun.

Die radiale Leistungsdichtevertelung im Brennstoff ist aus Abb. 16 zu entnehmen. Vom Hüllinnenrand bis zum Brennstoffzentrum ist ein Leistungsdichteabfall von ca. 8,5 % (bezogen auf den Randwert) zu verzeichnen.

### 9. Transport und Demontage der bestrahlten Prüflinge

Nach einer ca. vierteljährigen Abklingzeit wurden die bestrahlten Brennstäbe mit den verschlossenen NaK-Kapseln nach Karlsruhe transportiert und dort einer Nachuntersuchung unterzogen. Die mit NaK gefüllten Kapseln wurden angebohrt und die abgesaugten Gase gaschromatografisch analysiert: Beide Kapseln enthielten ungewöhnlich große Mengen O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> und Co; auch wurde Kr, Luft und C-14 nachgewiesen. Diese Verunreinigungen lassen darauf schließen, daß bereits beim Einfüllen des NaK die geforderte reine Ar-Atmosphäre über dem NaK-Spiegel nicht bestand, bzw. daß das NaK nicht den Reinheitsforderungen genügte. Das Wegkorrodieren der TE dürfte hierin seine Ursache gehabt haben.

Es wurden weitere Löcher in die Kapseln gebohrt und das NaK mit Propanol herausgelöst. Die Kapseloberteile wurden anschließend mit je einem Rollschnitt unterhalb der oberen Prüflingszentrierung abgetrennt, so daß die instrumentierten Brennstäbe herausgezogen werden konnten. Die Kapselinnenwände wurden zur optischen Begutachtung axial getrennt.



Mittleres Neutronenfluß-  
spektrum im Brennstoff

Abb. 14

Leistungsdichte pro Lethargieeinheit  
normiert zu:

$$\sum_{i=1}^{40} p(u)_i \cdot \Delta u_i = 1$$

15 · 10<sup>-2</sup>



10

5



Lethargie u

0

2

4

6

8

10

12

14

16

10 MeV

1

0.1

10 keV

1

0.1

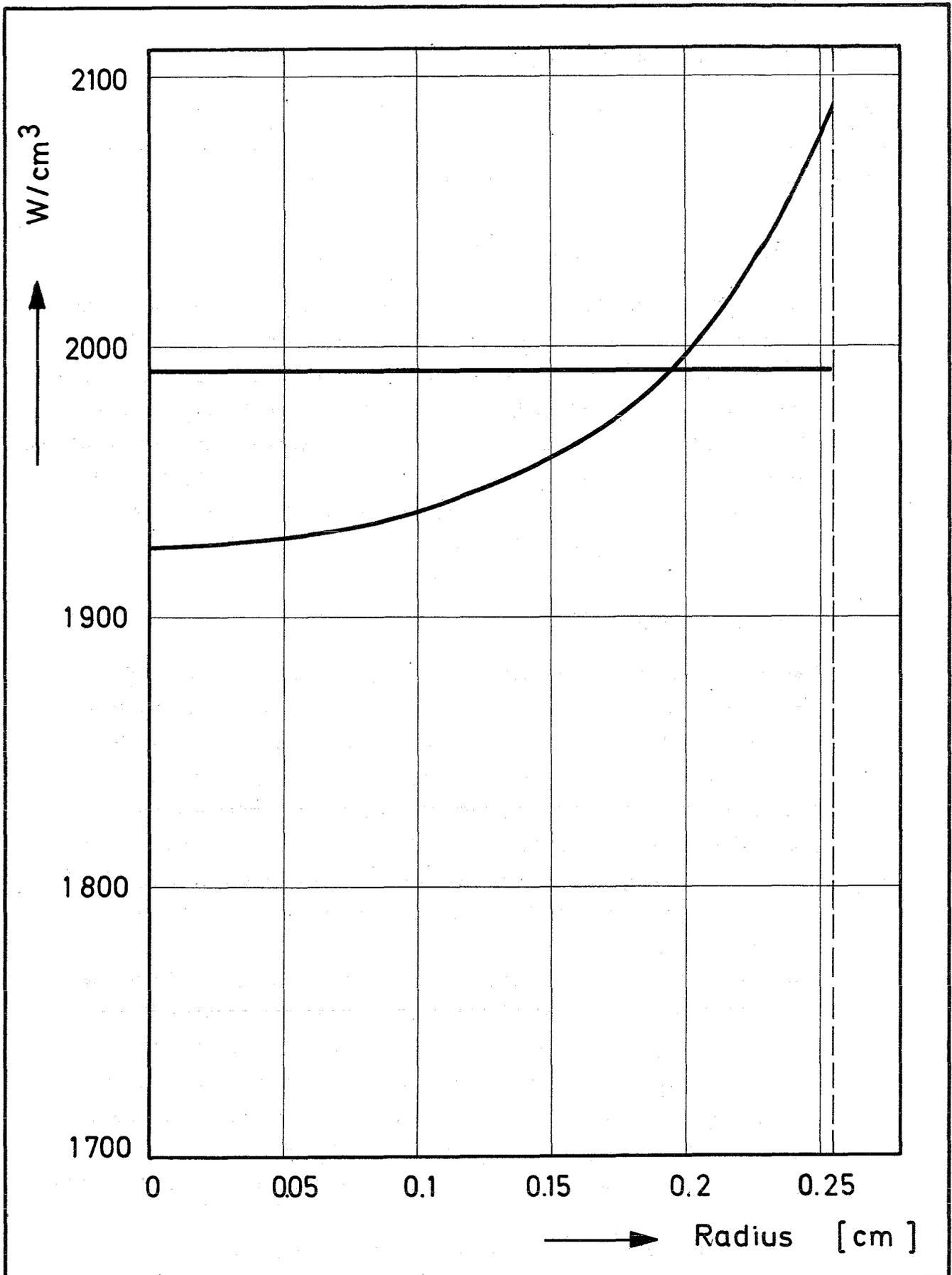
10 eV

1

Energie E ←

Mittleres Leistungsdichte-  
spektrum im Brennstoff

Abb. 15



Radiale Leistungsdichte-  
verteilung im Brennstoff

Abb. 16

## 10. Zerstörungsfreie Nachuntersuchung

Nach der Demontage wurde zunächst eine zerstörungsfreie Prüfung an den NaK-Kapseln und den Prüflingen vorgenommen. Sie beschränkte sich auf die äußere und innere Vermessung und die visuelle Kontrolle.

### 10.1 Visuelle Kontrolle der NaK-Kapseln und der Prüflinge

Die Innenwände der NaK-Kapseln weisen ausgeprägte Schleifspuren auf (s. Abb. 17). Die Mantelflächen der Prüflinge erscheinen im Brennstoffbereich mattgrau und aufgeraut und in der Zone des Spaltgasraumes silberglänzend, auch sind in Stabmitte zahlreiche Schleifspuren vorhanden (Abb. 18). Die TE sind zum größten Teil wegkorrodiert; sie sind entweder abgebrochen oder flachgedrückt; vielfach ist der Mantel aufgespalten, so daß die Thermodrähte frei liegen. Abb. 19 gibt einen typischen Befund wieder.

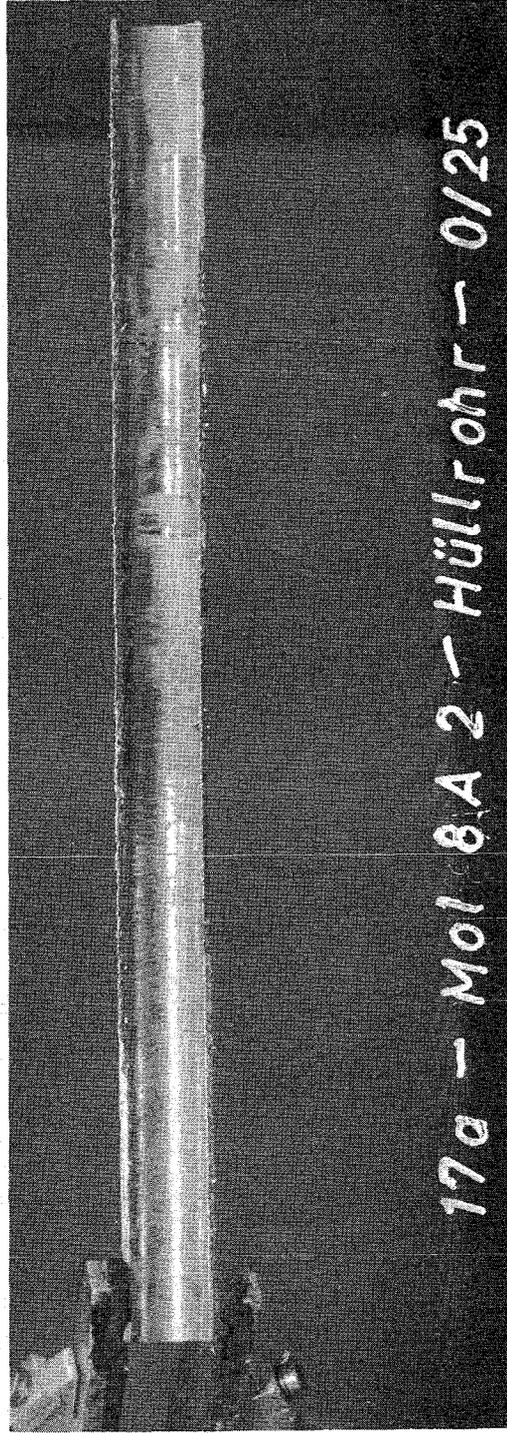
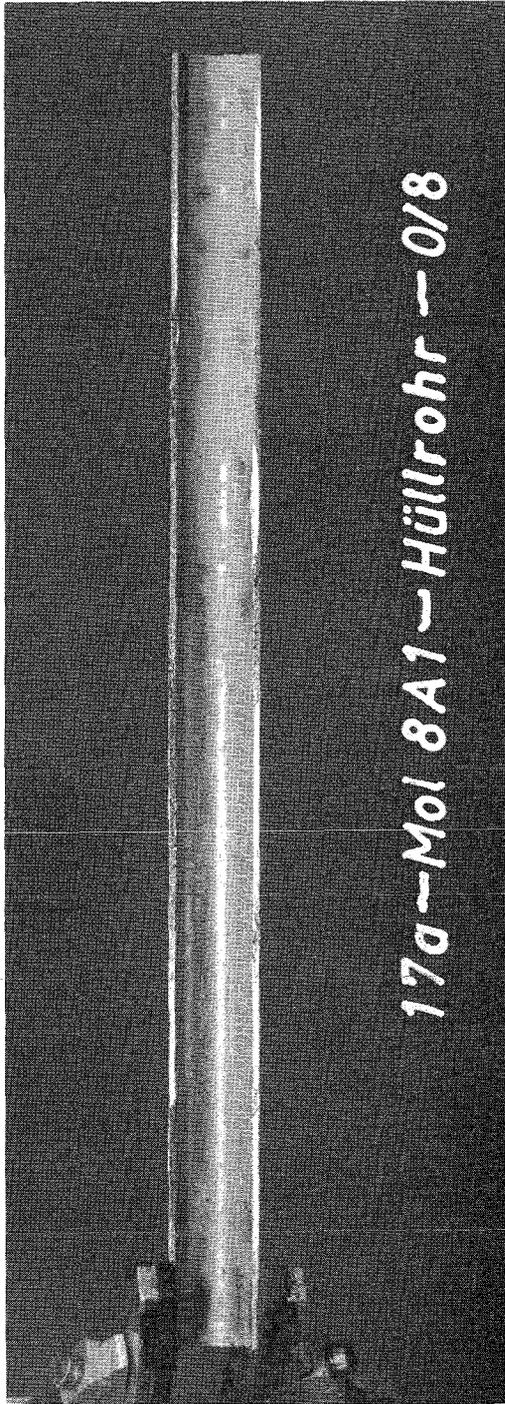
### 10.2 Äußere Vermessung

Sowohl vor als auch nach der Bestrahlung wurden auf einer Meßbank "Wendelschriebe", das sind Durchmesserschriebe, die auch Aussagen über die Ovalität des Stabes zulassen, angefertigt. In Abb. 20 sind die Meßwerte für beide Stäbe zusammengestellt. Abgebildet ist der mittlere Durchmesser vor der Bestrahlung und die Maximal- und Minimalwerte nach der Bestrahlung. Den mittleren Durchmesser nach der Bestrahlung kann man durch einfache Mittelung der Maximal- und Minimalwerte bilden. Die Differenz der Maximal- und Minimalwerte ergibt die Ovalität.

Geht man davon aus, daß keine Nullpunktverschiebung der Meßgeräte stattgefunden hat, so zeigen beide Stäbe über die gesamte Länge nach der Bestrahlung eine Durchmesseraufweitung. Die Maximalwerte, sowohl der Ovalitäten als auch der Durchmesseraufweitung, liegen im Bereich der Brennstoffzone. Die maximale Durchmesserzunahme beträgt beim Stab Nr. 1 0,25 %, beim Stab Nr. 5 0,5 %.

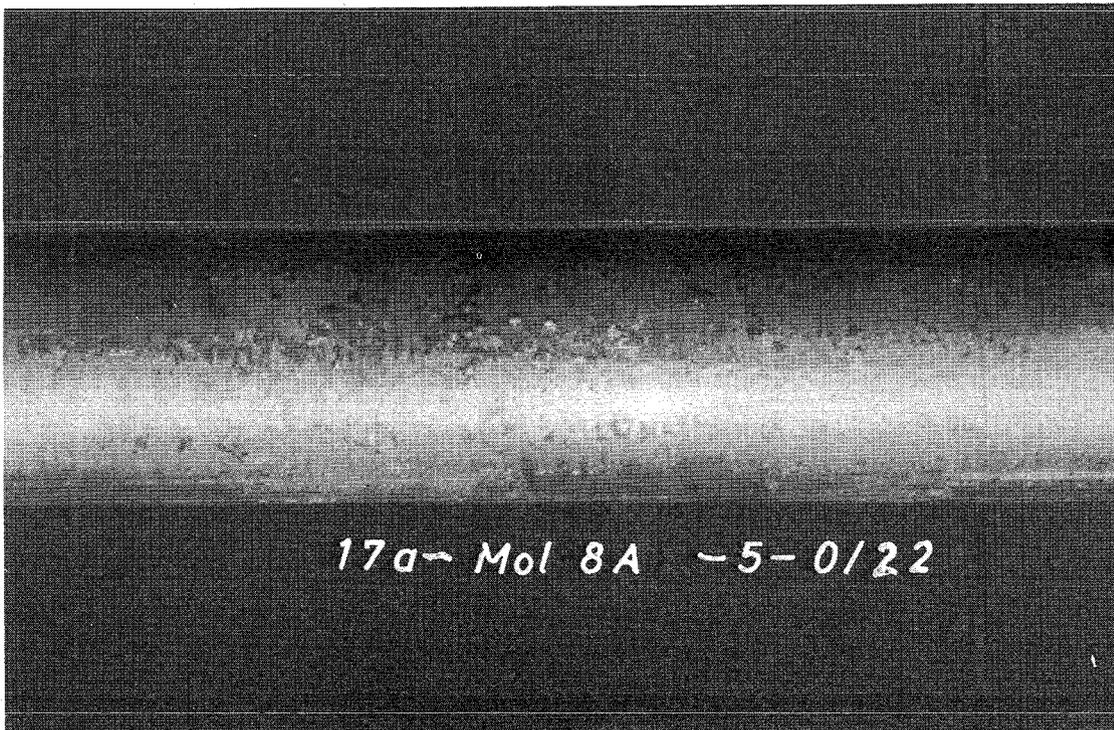
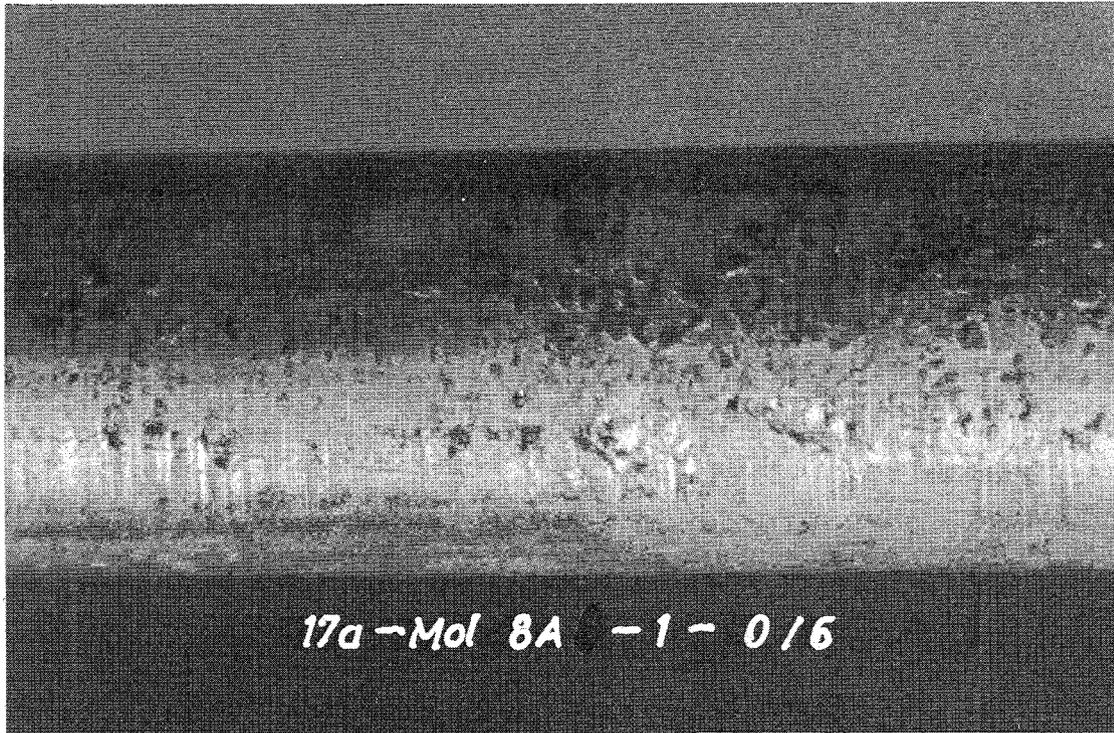
Die Messung der Länge und Durchbiegung der Prüflinge ergab folgende Werte:

	<u>Stab 8A-1</u>	<u>Stab 8A-5</u>
Länge	839,9 mm	840,1 mm
Durchbiegung	6 mm	8 mm



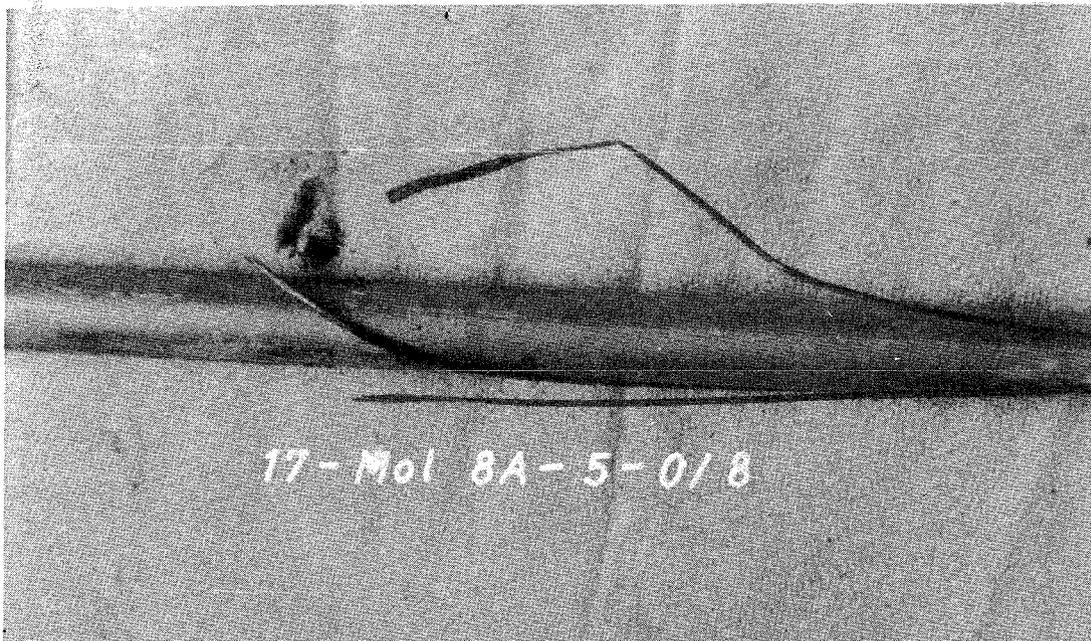
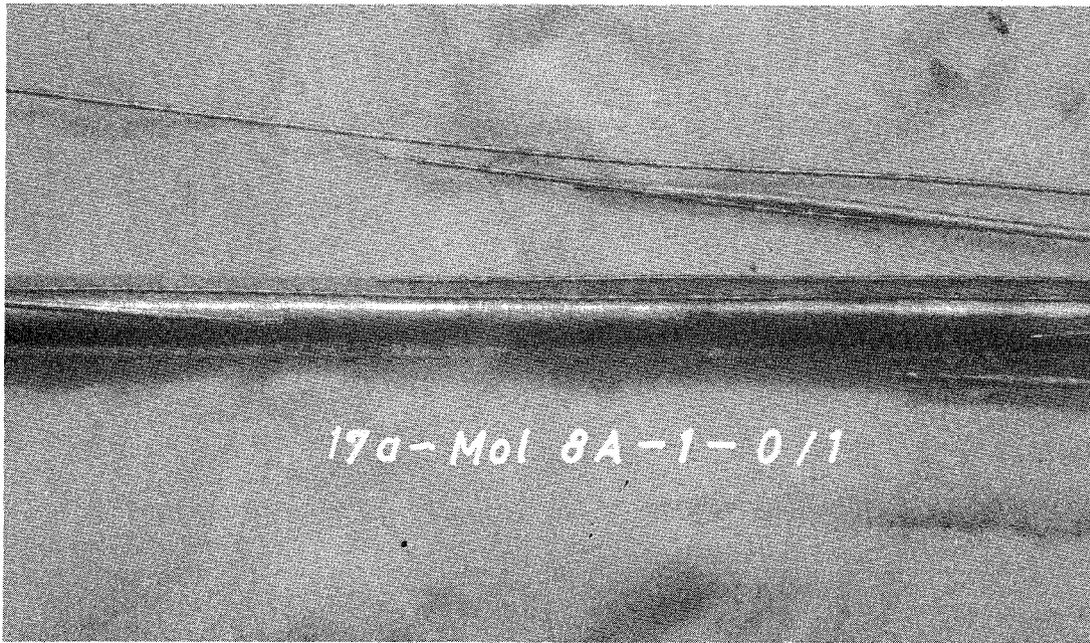
Kapselinnenansicht

Abb. 17



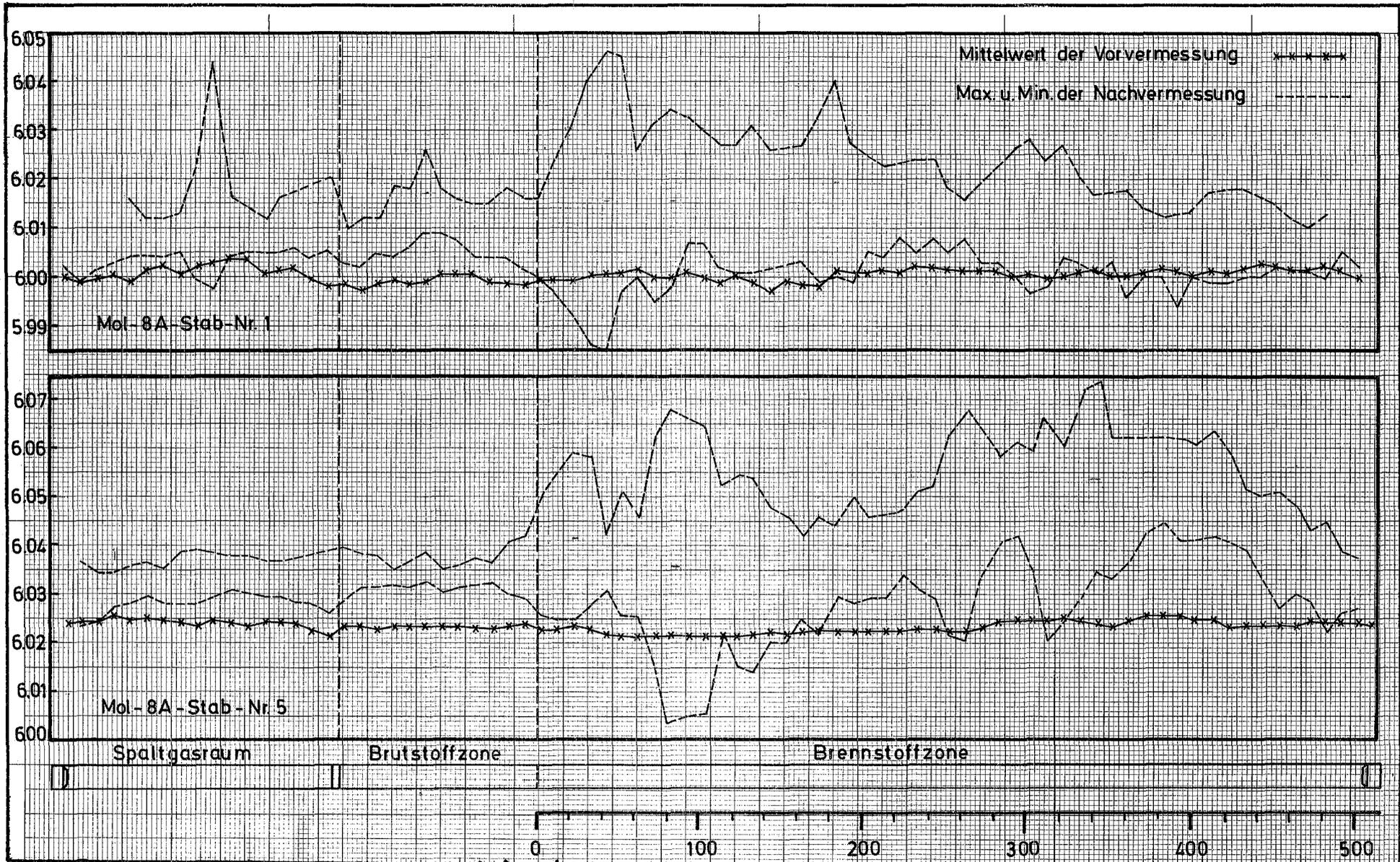
Hüllrohraussenansicht

Abb. 18



Thermoelementbruchstellen

Abb. 19



-8tr-

Mol-8A - Experiment  
 Vermessung der Stabdurchmesser

Abb. 20

### 10.3 Innere Vermessung

Mit einer 400 keV Röntgenbildröhre wurden sowohl Um- als auch Durchstrahlungsaufnahmen hergestellt (Abb. 21 und 22). Aus ihnen kann man den Verlauf des Zentralkanals, die Tablettenstöße sowie radiale und axiale Risse erkennen. Der Zentralkanal ist bei beiden Stäben ziemlich gleichmäßig ausgebildet; er wird zu den Säulenenden hin etwas dünner.

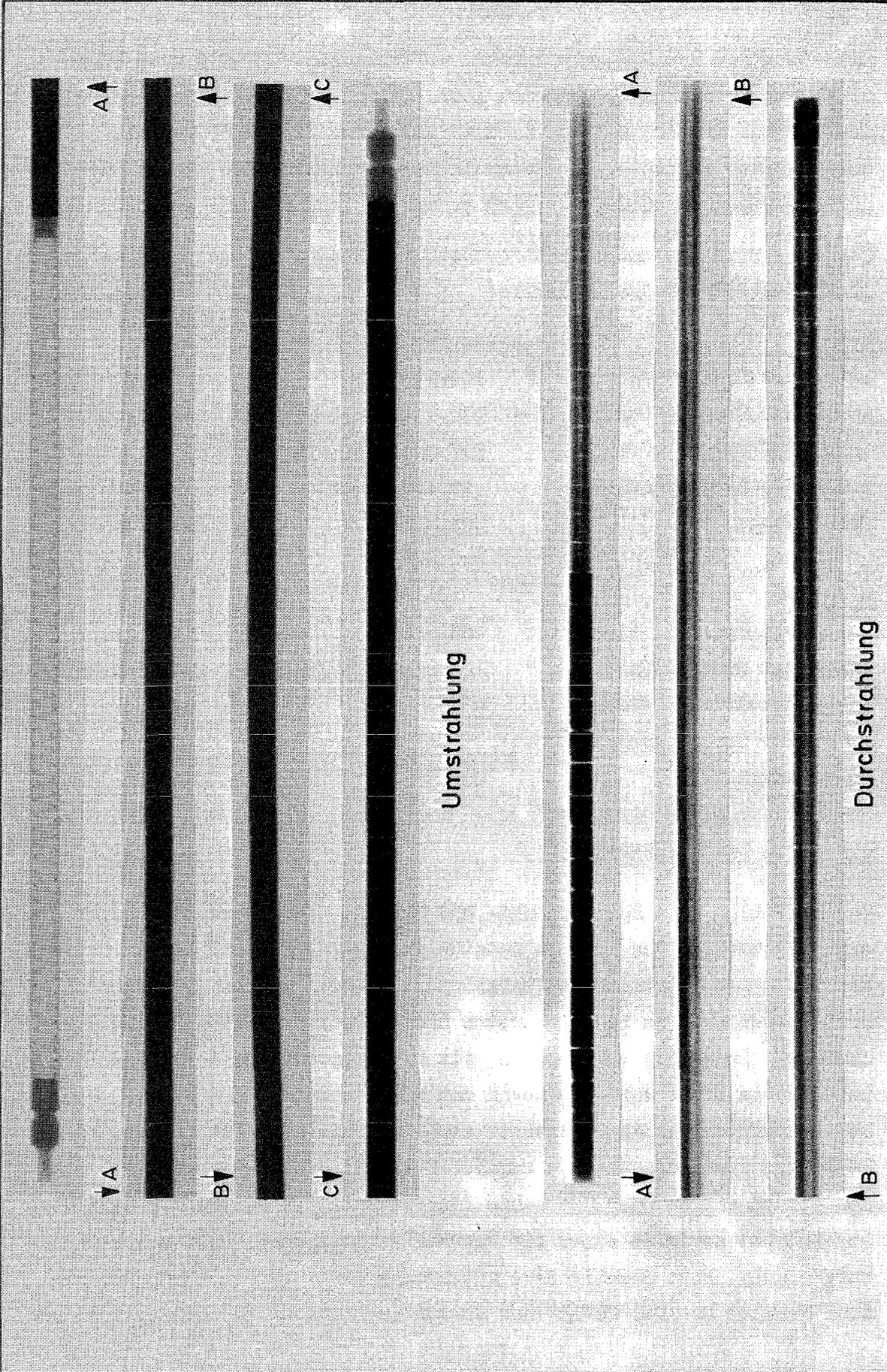
Die Auswertung anhand der Röntgenbilder vor und nach der Bestrahlung ergab folgende innere Geometrie:

<u>Mol 8A-1</u>	unbestrahlt	bestrahlt
Länge des Spaltgasraumes	164,2 mm	164,3 mm
Länge der Brutstoffsäule	120,1 mm	118,9 mm
Länge der Brennstoffsäule	507,5 mm	509,2 mm
Länge der Isoliertabletten	<u>10,1 mm</u>	<u>9,5 mm</u>
Gesamtlänge	801,9 mm	801,9 mm

<u>Mol 8A-5</u>		
Länge des Spaltgasraumes	168,1 mm	167,4 mm
Länge der Brutstoffsäule	121,2 mm	120,7 mm
Länge der Brennstoffsäule	501,3 mm	503,1 mm
Länge der Isoliertabletten	<u>10,1 mm</u>	<u>9,5 mm</u>
Gesamtlänge	800,7	800,7

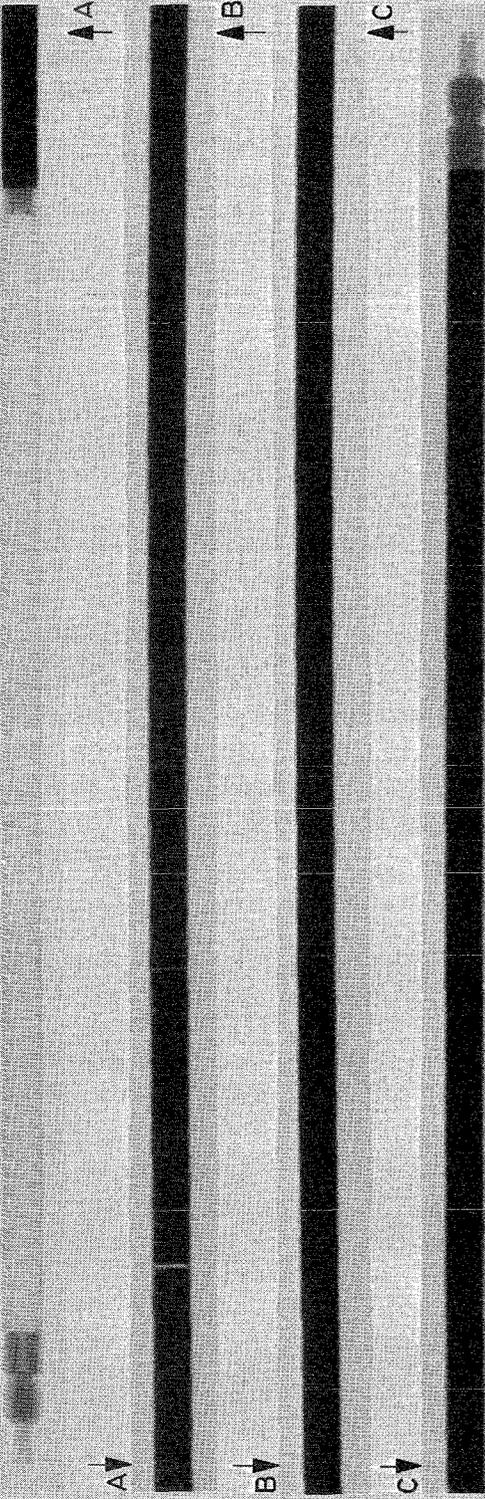
### 10.4 $\gamma$ -Profile und $\gamma$ -Spektren

Zur Ermittlung von Spaltprodukt- und Brennstoffumlagerungen und um eine Abschätzung des axialen Leistungsverlaufes zu ermöglichen, wurden die Stäbe  $\gamma$ -spektrometrisch untersucht. Hierbei wurden jeweils zwei Profile und zwar im Energiebereich 690 - 780 keV (Zr/Nb 95) und 400 - 1700 keV (integral) aufgenommen. Als Detektor diente ein GeLi-Halbleiter. Die Stäbe wurden während der Messung rotierend an einem Schlitzkollimator von 0,5 mm Spaltweite vorbeigeführt. Die Abbildungen 23 und 24 zeigen die gemessenen  $\gamma$ -Profile. Zusätzlich wurden an auffallenden Positionen entlang der Stabachse (in den Spektren als Punkte A, B usw. bezeichnet) sowie an einem als "normal" angesehenen Punkt  $\gamma$ -Spektren aufgenommen. Eine quantitative Auswertung der Spektren wurde für die drei Nuklide Cs-134, Cs-137 und Ru-106 vorgenommen. In den Abb. 25 und

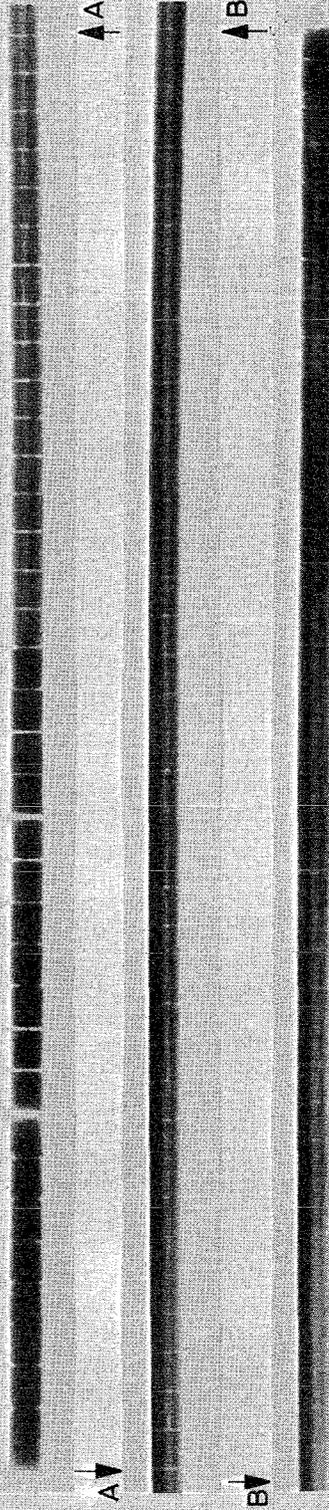


Mol - 8 A - Stab - Nr. 1

Abb. 21



Umstrahlung



Durchstrahlung

Mol - 8A - Stab - Nr. 5

Abb. 22

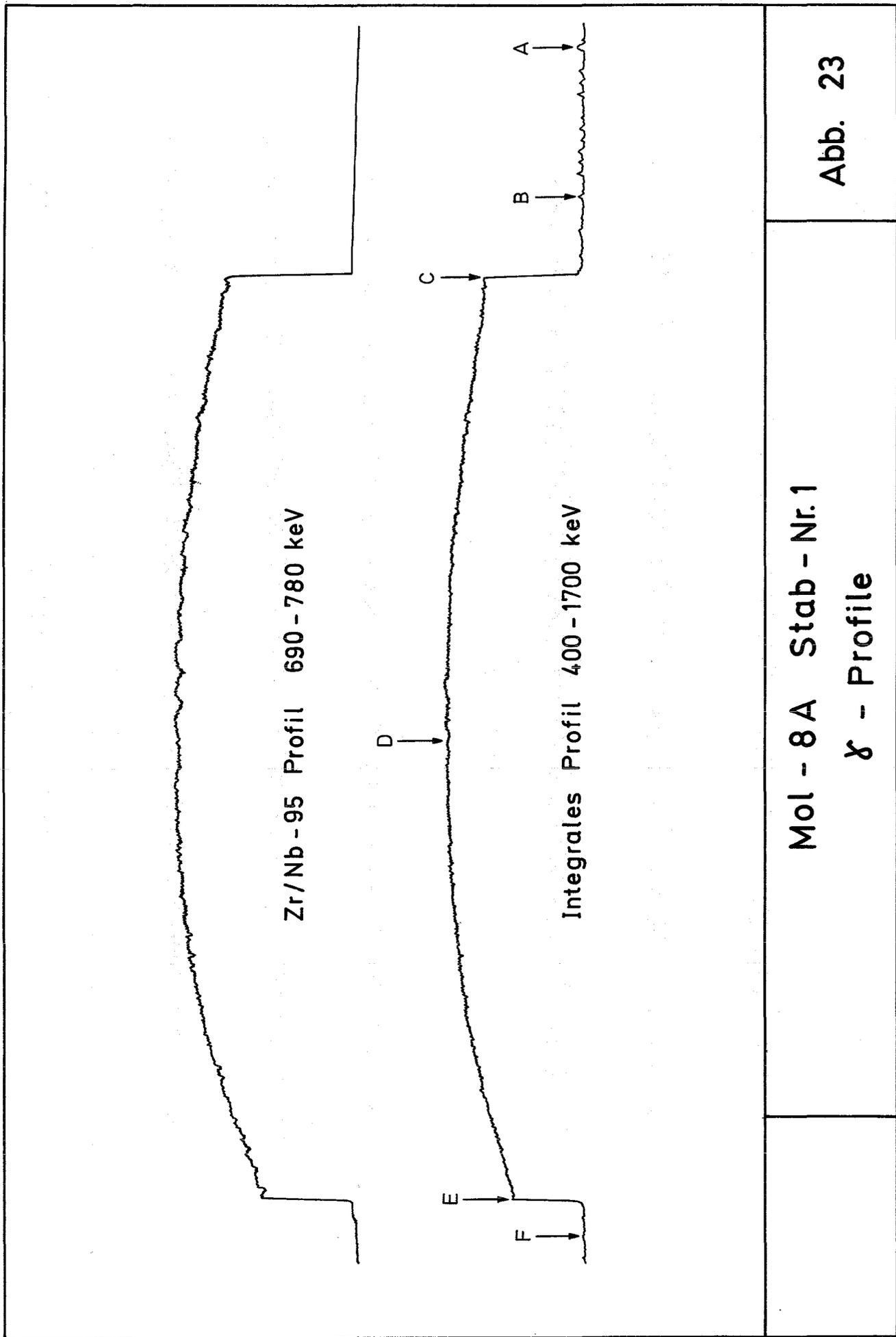
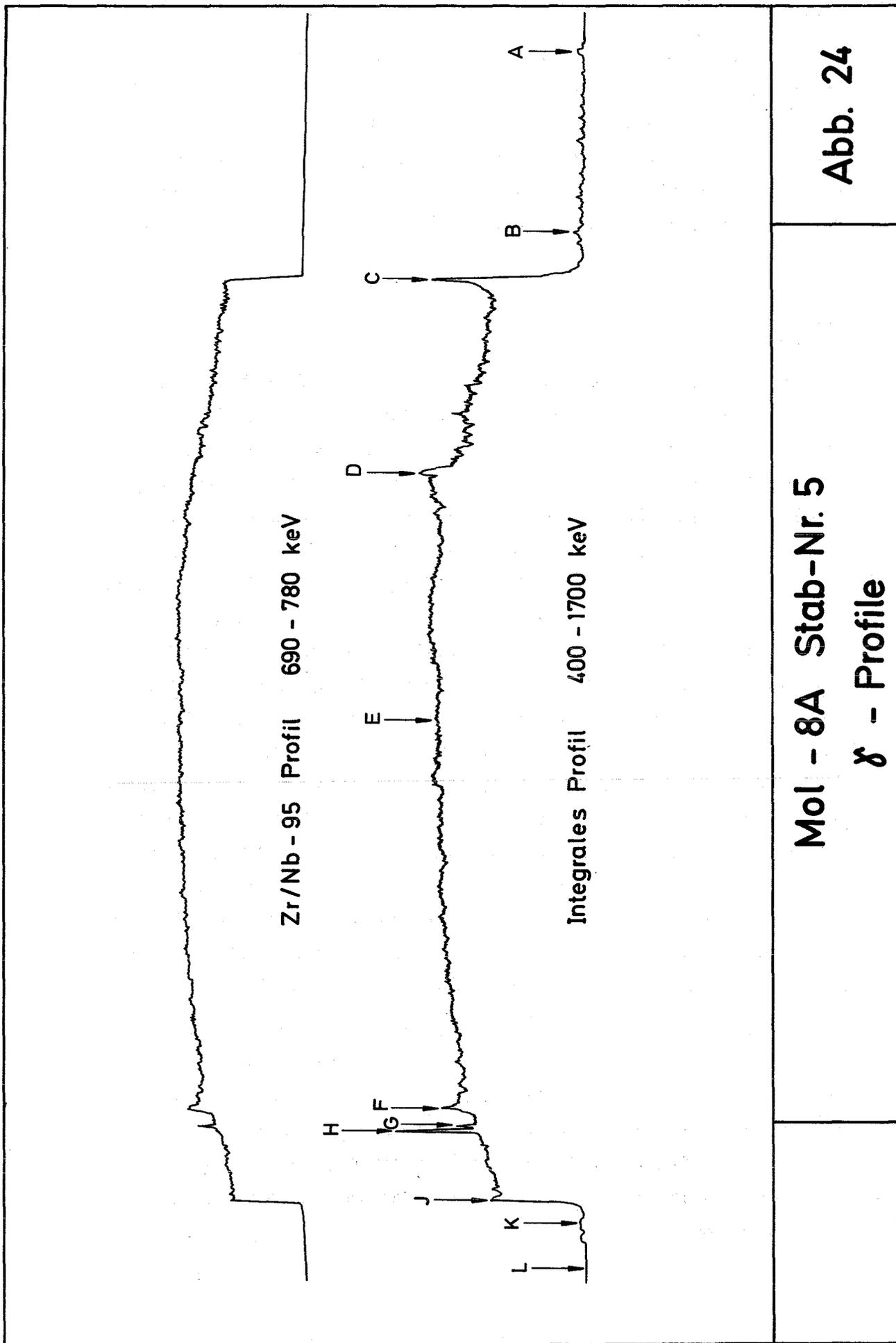


Abb. 23

Mol - 8 A Stab - Nr. 1  
 $\gamma$  - Profile



Mol - 8A Stab-Nr. 5

$\gamma$  - Profile

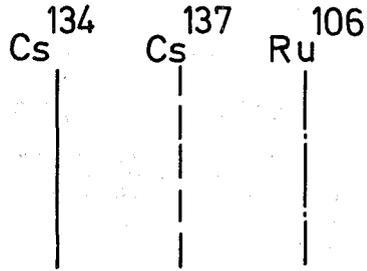
Abb. 24

26 sind die ermittelten Aktivitäten für die Einzelnuclide an den Stabpositionen aufgetragen. Die Meßwerte wurden jeweils auf die Spaltproduktaktivitäten in einem als normal betrachteten Brennstoffsäulenabschnitt bezogen. In Stab Nr. 1 liegt dieser bei Punkt D, in Stab Nr. 5 bei Punkt E. Beide Stäbe zeigen in den  $\gamma$ -Profilen und  $\gamma$ -Spektren ein sehr unterschiedliches Bild. In der folgenden Analyse der Meßergebnisse soll daher jeder Stab für sich besprochen werden.

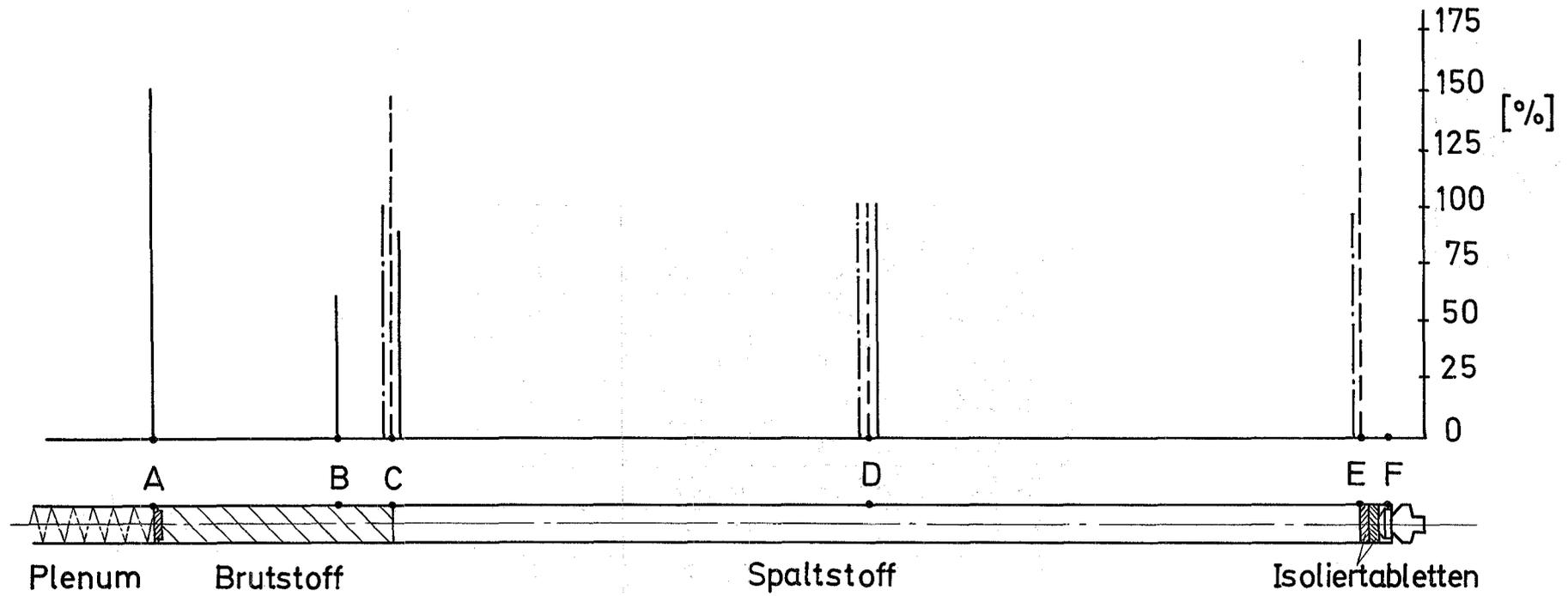
### Stab Nr. 1

Beide  $\gamma$ -Profile zeigen ein Maximum etwa in Stabmitte und ein Absinken der Aktivität zu den Stabenden hin. Den Kurvenverläufen sind keine ausgeprägten Aktivitätsspitzen überlagert. Am unteren Stabende geht die Aktivität in beiden Profilen auf ca. 55 % der Maximalaktivität zurück. Am oberen Säulenende liegt die Endaktivität beim Zr/Nb-95-Profil höher (75 % der Maximalaktivität) als beim integralen Profil (65% der Maximalaktivität). Dieser Unterschied läßt sich durch den zeitlichen Verlauf der Stableistung innerhalb der Bestrahlungszyklen erklären. Wie in Abb. 10 ersichtlich, steigt zum Ende eines jeden Bestrahlungszyklus die Stableistung im oberen Säulenende an, was zu einer vermehrten Bildung von Zr/Nb-95 in diesem Abschnitt führte. Zeitlich früher gebildetes Zr/Nb-95 im unteren Stababschnitt ist durch radioaktiven Zerfall bereits in seiner Aktivität abgeschwächt. Aufgrund dieser Verzerrung kann das Zr/Nb-95-Profil für die Ermittlung des mittleren axialen Leistungsverlaufes nicht herangezogen werden. Im integralen Profil ist der beschriebene Effekt durch die Anwesenheit mehrerer langlebiger Spaltprodukte abgeschwächt, so daß in erster Näherung das Profil mit dem über die gesamte Bestrahlungszeit gemittelten axialen Leistungsverlauf identisch ist.

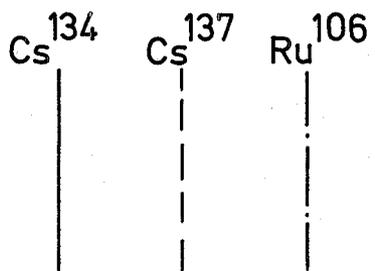
Die Spaltproduktverteilung (Abb. 25) zeigt für Cs-137 nur eine geringfügige Anreicherung an beiden Enden der Brennstoffsäulen. Eine bemerkenswerte Cs-134-Aktivität konnte dagegen zwischen den Bruttostofftabletten sowie im Sinterstahlfilter zum Spaltgasraum hin gemessen werden. Sie ist auf die Wanderung des Xe-133 und die anschließende Aktivierung seines radioaktiven Zerfallproduktes Cs-133 zurückzuführen.



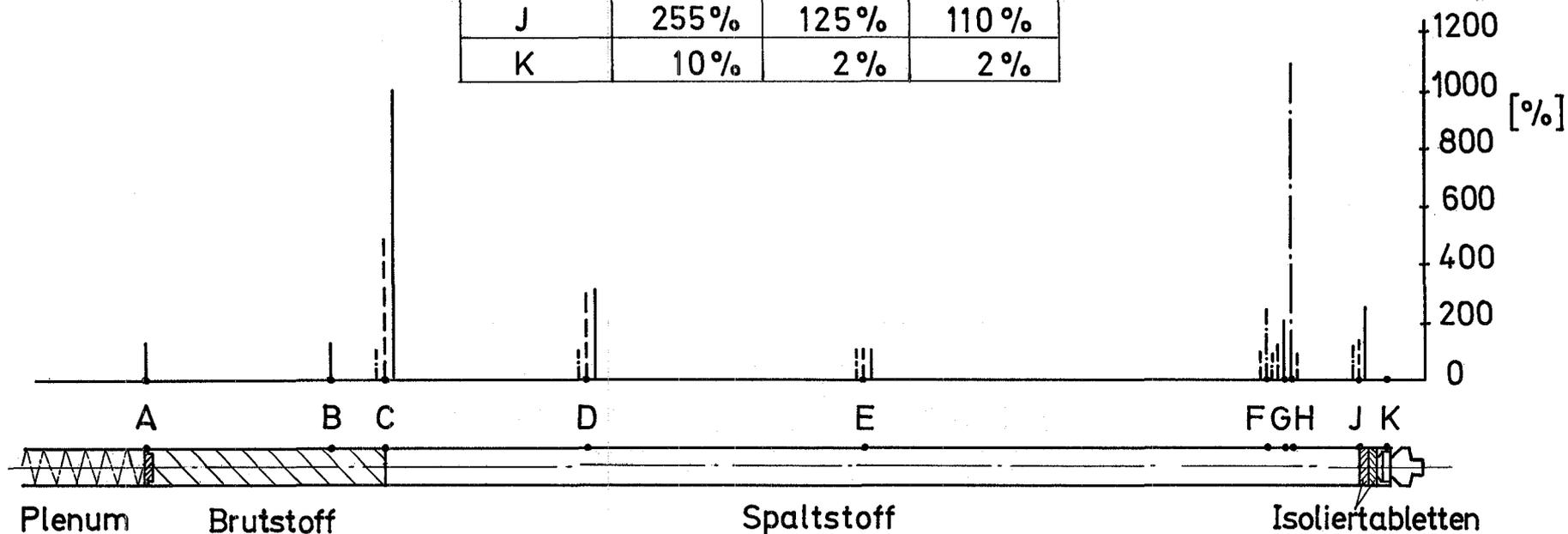
Nuklid	Cs <sup>134</sup>	Cs <sup>137</sup>	Ru <sup>106</sup>
γ-Energie	600 keV	662 keV	510 keV
A	151 %	—	—
B	61 %	4 %	4 %
C	90 %	148 %	100 %
D	100 %	100 %	100 %
E	—	168 %	96 %
F	—	—	—



Mol 8A - 1  
 Auswertung der γ - Spektren  
 Abb. 25



Nuklid	Cs <sup>134</sup>	Cs <sup>137</sup>	Ru <sup>106</sup>
γ-Energie	600 keV	662 keV	510 keV
A	138%	—	—
B	138%	15%	4%
C	1000%	493%	71%
D	320%	310%	84%
<b>E</b>	<b>100%</b>	<b>100%</b>	<b>100%</b>
F	—	91%	211%
G	200%	108%	79%
H	—	89%	1100%
J	255%	125%	110%
K	10%	2%	2%



-56-

	<p>Mol 8 A - 5</p> <p>Auswertung der γ - Spektren</p>	<p>Abb. 26</p>
--	---	----------------

Stab Nr. 5

Das Zr/Nb-95-Profil zeigt ähnlichen Verlauf wie das des Stabes Nr. 1; nur im unteren Stabdrittel sind dem Profil Aktivitätsspitzen überlagert, die auf Ru-106-Anreicherungen zurückzuführen sind. Die Aktivität fällt zu den Stabenden auf ca. 60 % der Maximalaktivität ab.

Für die Eignung der Kurve zur Bestimmung des über die gesamte Bestrahlungszeit gemittelten axialen Leistungsverlaufes gilt das bei Stab Nr. 1 Gesagte.

Das integrale Profil ist mit Ausnahme des Säulenmittelabschnittes unregelmäßig. Stark ausgeprägte Aktivitätsspitzen am oberen Brennstoffsäulenende und im unteren Drittel der Säule sowie Aktivitätssenken am oberen Stabende deuten auf Spaltprodukt- und Brennstoffumlagerungen hin. Die Auswertung der Spaltprodukt-Spektren (Abb. 26) ergab folgendes Bild: Cs-134 findet sich in großer Menge am oberen Säulenende und, wie bei Stab Nr. 1, in geringer Menge am unteren Säulenden zwischen den Brutstofftabletten sowie im Sinterstahlfilter zum Spaltgasraum. Bemerkenswert ist ferner eine starke Anreicherung (Punkt D) mitten in der Brennstoffsäule.

Für das Cs-137 findet sich eine starke Anreicherung nur am oberen Säulenabschluß und im oberen Bereich der Brennstoffsäule. Die dem Cs-134 entsprechende Anreicherung am unteren Ende fehlt. Gemäß dem Mechanismus der Cs-Wanderung findet sich auch praktisch kein Cs-137 im Bereich der Brutstoffsäule sowie im Sinterstahlstopfen.

Starke Ru-106-Aktivitäten wurden im unteren Bereich der Brennstoffsäule in der Form von zwei Spitzen festgestellt. Die lokale Ru-106-Aktivität war hier bis zu zehnmal größer als der Normalwert. Derartige Ansammlungen deuten auf Brennstoffüberhitzung hin. Da die Stäbe nicht keramografisch untersucht wurden, konnte dem Phänomen nicht weiter nachgegangen werden.

## 11. Zerstörende Nachuntersuchung

Aussagen über Veränderungen des Brennstoffes während der Bestrahlung können nur durch eine zerstörende Nachuntersuchung gemacht werden. Keramografische Schliffbilder und radiochemische Abbrandbestimmungen sind ein geeignetes Mittel dazu.

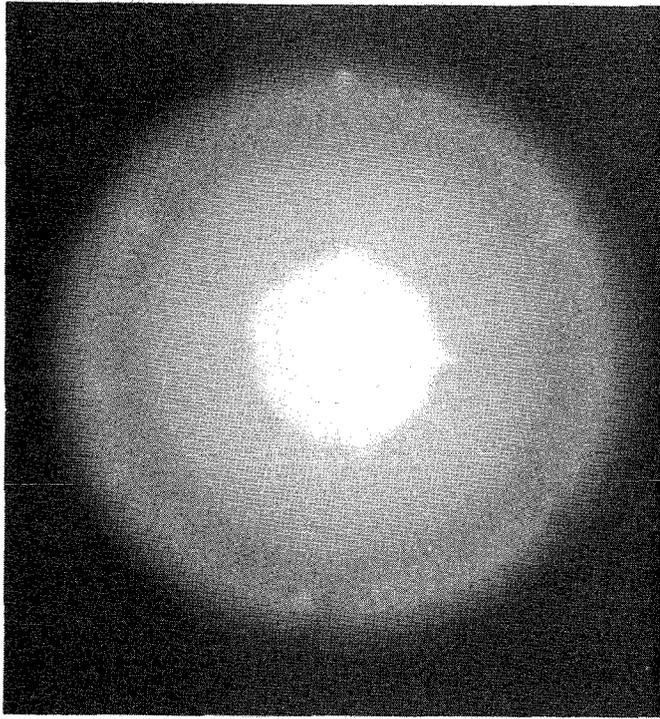
### 11.1 Keramografie

Schliffbilder wurden nur von einer Probe des Stabes Nr.5 im Bereich des Abbrandmaximums angefertigt (genaue Position: 217 mm vom unteren Stabende).

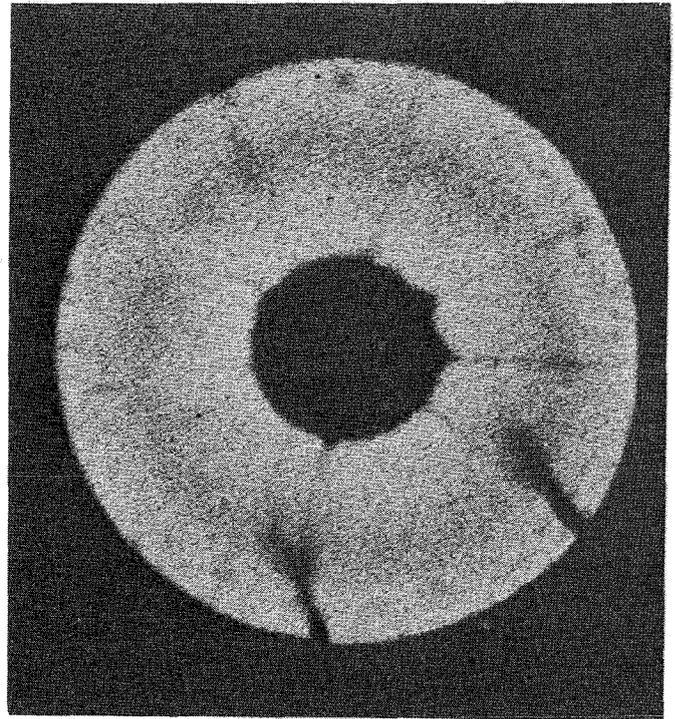
Die Abb. 27 und 28 zeigen eine Übersichtsaufnahme, eine  $\alpha$ - und eine  $\beta$ - $\gamma$ -Autoradiografie, eine Panoramaaufnahme (dies ist ein Brennstoffausschnitt von der Hülle bis zum Zentralkanal) und eine Detailaufnahme, die den korrosiven Angriff der Hülle wiedergibt. Man erkennt einen ovalen Zentralkanal, der entsprechend der Ovalität der Hülle ausgebildet ist. Den Brennstoff durchziehen tangentiale und radiale Risse, die eine Folge des Abkühlvorganges sind, wobei sich die tangentialen Risse durch das Ankleben der äußeren Brennstoffzone an der Hülle ausbildeten. Der Ringspalt zwischen Brennstoff und Hülle ist mit Korrosionsprodukten angefüllt und die Hülle ist durch den Angriff ca. 30  $\mu\text{m}$  dünner geworden. Die Korrosionsprodukte sind z.T. in die äußeren radialen Risse (diese müssen sich also während der Bestrahlung ausgebildet haben) eingedrungen. Die äußerste Brennstoffzone ist stark verdichtet. Im Brennstoff selbst liegen metallische Spaltprodukteinlagerungen (= helle Flecken) vor, die einen Durchmesser bis zu 8  $\mu\text{m}$  erreichen.

Die  $\alpha$ -Autoradiografie, die die Pu-Verteilung widerspiegelt, zeigt im Bereich der kleinen Stengelkörner eine Zone der Pu-Abreicherung (= dunkle Ringzone). Die  $\beta$ - $\gamma$ -Autoradiografie, die die Spaltproduktverteilung widerspiegelt, gibt für den Bereich des gerichteten Kornwachstums eine Abreicherung an. Beide Aufnahmen zeigen im Ringspalt keine Aktivitäten.

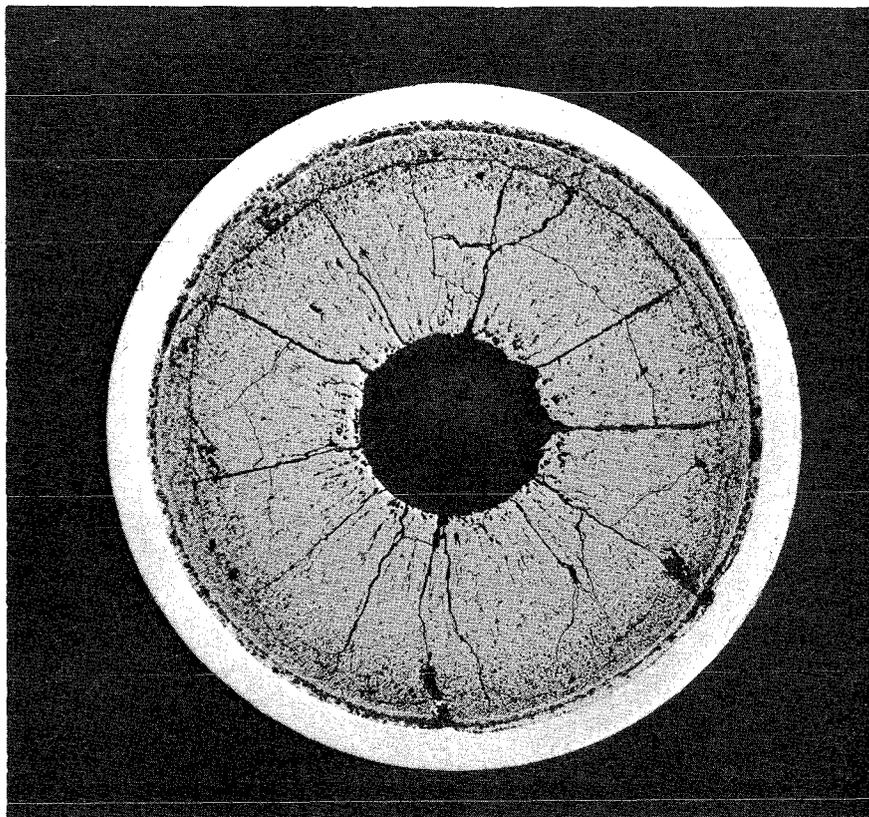
Der Zentralkanal hat einen mittleren Radius von 0,82 mm, die anderen Strukturzonen folgende Abmessungen:



$\beta - \delta$  - Autoradiografie



$\alpha$  - Autoradiografie

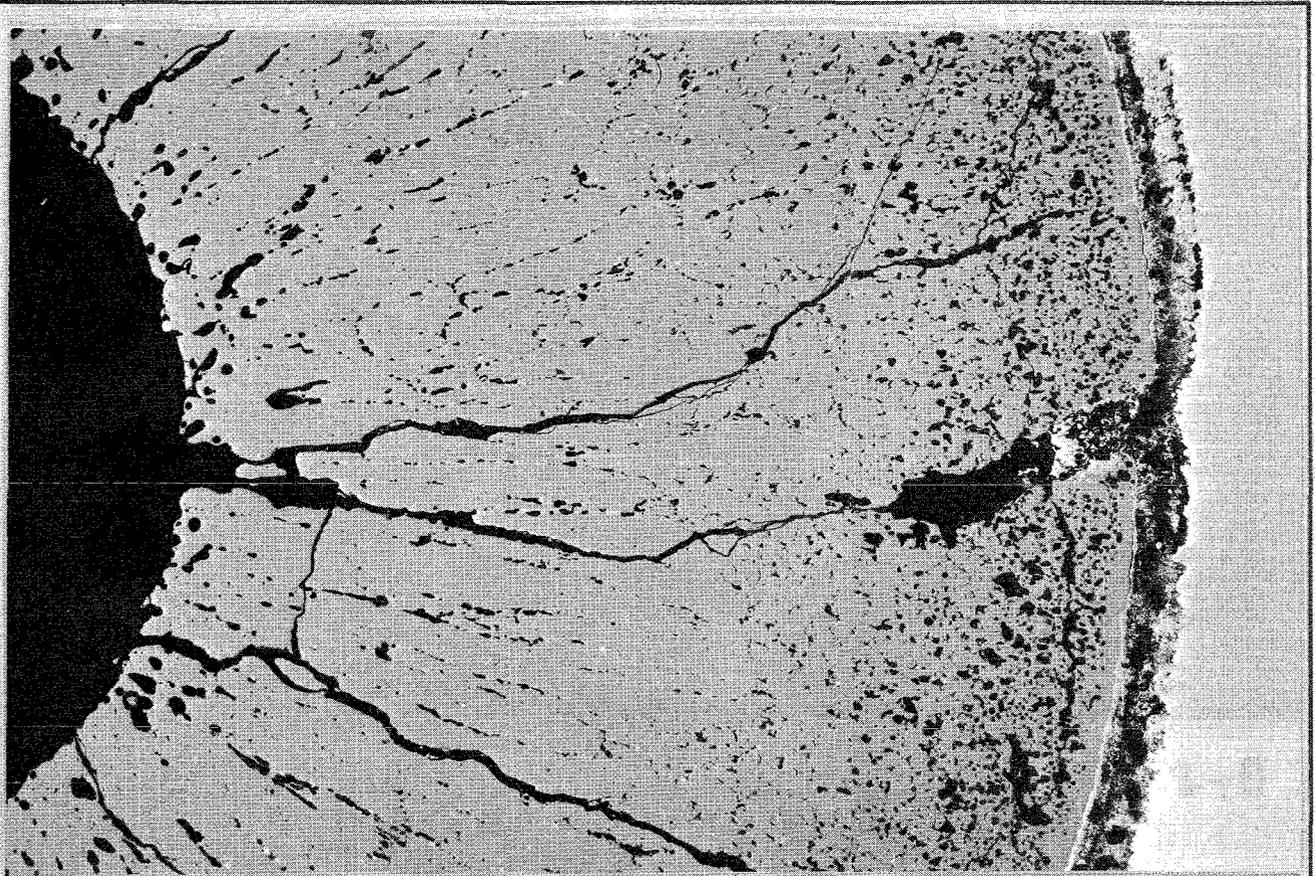


Querschnittsaufnahme

1mm

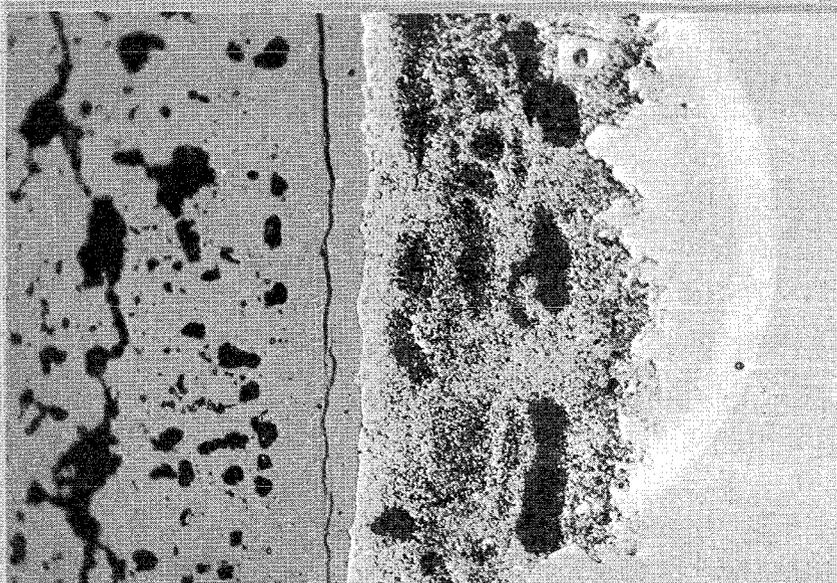
Mol 8A - 5  
Keramo -und Autoradiografie

Abb. 27



Panoramaaufnahme

0.1 mm



Detailaufnahme

0.02 mm

Mol 8A - 5

Keram. Detailaufnahmen

Abb. 28

rekristallisierter Bereich:	2,45 mm (äußerer Radius)
Bereich gerichteten Kornwachstums:	1,95 mm ( " " )
Bereich der Säulenkristalle:	1,70 mm ( " " )

## 11.2 Radiochemische Abbrandbestimmung

Durch Ausfall der Thermoelemente konnte der Abbrand nicht über die Hüllaußentemperaturen bestimmt werden. Da die auf neutronenphysikalischem Wege errechneten Abbrandwerte relativ unsicher sind, wurden noch radiochemische Bestimmungsmethoden herangezogen: Die massenspektrometrische Bestimmung des stabilen Isotops Nd-148 und die  $\gamma$ -spektrometrische Bestimmung des  $\beta$ -inaktiven Isotops Ce-144.

Den Brennstoffsäulen von Mol 8A-1 und Mol 8A-5 wurden je eine Probe in der Nähe des Abbrandmaximums entnommen und nach beiden Methoden analysiert. Da weder gemessene Reaktionszahlen für die spaltbaren Isotope noch eine mittlere kumulative Spaltausbeute für Ce-144 und Nd-148 für das epithermisch-schnelle Spaltungsdichtespektrum vorliegen, werden folgende Näherungen eingeführt:

- Als Spaltquelle werden nur U-235 und Pu-239 angenommen.
- Die Reaktionszahlen (bzw. Spaltzahlen) werden neutronenphysikalisch berechnet (siehe hierzu Abb. 15). Der Anteil der Spaltungen, hervorgerufen durch thermische Neutronen ( $< 1\%$ ), wird vernachlässigt; der Anteil der Schnellspaltung beträgt ca. 25 %; die epithermischen Neutronen verursachen 75 % der Spaltungen.
- Da sich das Verhältnis  $\text{Pu-239}/(\text{U-235} + \text{Pu-239})$  während der Bestrahlung nur unwesentlich ändert, wird gefolgert, daß dieses Verhältnis auch für die Zahl der Reaktionen gilt. Der Anteil der Pu-239-Spaltung beträgt somit 19,6 %.
- In der Literatur finden sich nur kumulative Spaltausbeuten für Neutronen folgender Energien: 0,025 eV; 1 MeV; 14 MeV; kontinuierliches Energiespektrum von 0 - 17 MeV, mit einer wahrscheinlichsten Energie von 0,75 MeV (Spaltspektrum). Da keine Literaturwerte für kumulative Spaltausbeuten von Ce-144 und Nd-148 bei der Spaltung von U-235 und Pu-239 mit epithermischen Neutronen existieren, werden die epithermischen und schnellen Reaktionen als Reaktionen mit Neutronen eines Spaltspektrums betrachtet. (Tab.9)

Tabelle 9 Kumulative Spaltausbeuten des Ce-144 und Nd-148 bei der Spaltung von U-235 und Pu-239 [10]

Spaltbares Isotop	Spaltprodukt	Neutronenenergie				19,6 % Pu-239 80,4 % U-235
		0,025 eV	1 MeV	14 MeV	Spaltspektrum	
U-235	Nd-148	1,66	-	1,4	1,75	1,743 (Nd)
	Ce-144	5,40	-	3,3	5,15	
Pu-239	Nd-148	1,68	1,75	1,80	1,71	4,767 (Ce)
	Ce-144	3,79	4,30	3,75	3,20	

Tabelle 10 Vergleich der Abbrandwerte (MWd/t<sub>Schwere Atome</sub>)

Stab	berechnete Maximalwerte	gemessene Werte *)		gemessene Maximalwerte **)		gemessene Mittelwerte **)	
		Nd-148	Ce-144	Nd-148	Ce-144	Nd-148	Ce-144
Mol 8A-1	74800	67800	71000	67800	71000	59500	62300
Mol 8A-5	60200	53600	59000	56100	61500	48600	53300

\*) Mol 8A-1 : 276 mm von der gezeichneten Seite; Mol 8A-5 : 229 mm von der gezeichneten Seite

\*\*) ermittelt aus den geeichten  $\gamma$ -Scans

Der Fehler, bedingt durch die Annahme, daß alle Reaktionen durch Neutronen eines Spaltspektrums hervorgerufen werden, ist nicht abschätzbar, da keine kumulativen Ausbeutewerte für epithermische Neutronen existieren. Ein eventuell auftretender Fehler durch falsche Abschätzung eines Spaltbeitrages von thermischen Neutronen ist für Nd-148 gering, da die Ausbeuten für thermische und schnelle Neutronen wenig differieren; das gleiche gilt für die Beiträge der Spaltung von Uran und Plutonium. Für Ce hingegen können diese Fehler sehr groß sein, so daß der Ce -Wert nur als Vergleichswert betrachtet wird.

Der Abbrand errechnet sich aus der Zahl der Spaltungen dividiert durch die Zahl der ursprünglich vorhandenen spaltbaren Isotope; letztere wird für beide Methoden über die Röntgenfluoreszenzanalyse nach der Bestrahlung ermittelt, so daß sich für den massenspektrometrisch ermittelten Abbrandwert eine Gesamtunsicherheit von ca.  $\pm 3\%$  ergibt. Die Unsicherheit der Ce-144-Methode liegt bei ca.  $\pm 5\%$ , ohne Berücksichtigung obiger grober Wichtung. Die erhöhte Ungenauigkeit ist hier auf die verschiedenen Zeitkorrekturen und den Eichstandard zurückzuführen. Es wurde, wie schon in Kap. 8.2 angeführt, eine rückgewinnbare mittlere Energie pro Spaltung Uran-235 und Pu-239 von 201 MeV zugrundegelegt. Somit ergab sich folgende Umrechnung:

$$1 \text{ Atom-\%}-\text{Abbrand} \triangleq 9550 \text{ MWd/t}_{\text{Schwere Atome}}$$

(hier für alle Atome mit  $M > 231$ )

In Tabelle 10 sind die gemessenen und errechneten Abbrandwerte miteinander verglichen. Die nach Kap. 8.2 errechneten Abbrandwerte sind Werte, die zu Beginn der Bestrahlungszyklen existieren. Da der Fluß mit fortschreitender Bestrahlungsdauer abklingt, sind dies Maximalwerte.

Die gemessenen Werte gelten für die folgenden Stabpositionen:

Mol 8A-1: 276 mm von der gezeichneten Seite  
Mol 8A-5: 229 mm von der gezeichneten Seite

Unter der Annahme, daß das integrale  $\gamma$ -Scanning der beiden Stäbe den relativen Abbrand, gemittelt über die gesamte Bestrahlungszeit, richtig wiedergibt, wurden die beiden Scans mit den experimentell ermittelten Werten eingeeicht. Somit war es möglich, die über die Achse gemittelten und die maximalen Abbrände zu bestimmen. Obwohl die experimentellen und berechneten Maximalwerte definitionsgemäß verschieden sind, sind sie in 1. Näherung miteinander vergleichbar. Tabelle 10 bestätigt dies.

## 12. Schlußfolgerungen

Die in Kap. 2 aufgestellten Versuchsziele wurden im wesentlichen erreicht:

- Beide Prüflinge sind intakt geblieben, d.h. der mittlere Zielabbrand von 50 000 MWd/t Schwere Atome wurde erreicht.
- Der verwendete Kapseltyp hat sich mit Einschränkungen bewährt. Alle montierten Thermoelemente sind ausgefallen. Die Korrosion der Thermoelemente dürfte auf einen Lufteinbruch beim Einfüllen der NaK-Legierung zurückzuführen sein.
- Die Durchmesservergrößerung der Prüflinge von maximal 0,25 % (für Stab Nr. 1) und 0,5 % (für Stab Nr. 5) ist als Kriechdehnung der Hülle interpretierbar, da eine Schwelldehnung für Neutronendosen von  $\phi t \approx 10^{22} \text{ n cm}^{-2}$  und  $7 \cdot 10^{21} \text{ n cm}^{-2}$  [11] keine Rolle spielt. Nach [12] darf die Kriechdehnung der Hülle maximal 0,2 % betragen. Da keine systematischen keramografischen Nachuntersuchungen durchgeführt wurden, läßt sich keine Aussage treffen, ob die Überschreitung der 0,2%-Grenze zu Hüllrohrschäden führt.
- Der korrosive Abtrag der Hülle betrug im Bereich des Abbrandmaximums 30  $\mu\text{m}$ . Dieser Betrag liegt nach [12] im Bereich des Tolerierbaren.
- Die Autoradiografien zeigen konzentrische Kreise von Spaltprodukt- und Pu-Anreicherung.

Da bei diesem Bestrahlungsexperiment alle TE ausgefallen sind, wurden die Nachbestrahlungsuntersuchungen stark beschnitten. Der Ausfall der TE recht-

fertigt diese Beschneidung jedoch keinesfalls: mit der massenspektrometrischen Bestimmung des Nd-148 besitzt man ein Verfahren den Abbrand zu ermitteln, welches um Faktoren ( $> 2$ ) genauere Ergebnisse liefert, als dasjenige über die Temperaturmessung an definierter Stelle in der Kapsel. Eine Nacheichung der vorhandenen  $\gamma$ -Profile liefert den absoluten axialen Verlauf des Abbrandes (mit einer Unsicherheit von ca.  $\pm 5\%$ ) aus dem man auch die integrale Stableistung rückrechnen kann.

Die Schwerpunktsuntersuchungen an den Bestrahlungsproben der Experimente Mol 7A, DFR-304 und DFR-350 haben die des Bestrahlungsexperimentes Mol 8A stark beschnitten. Als Leistungsfähigkeitstest jedoch hat das Experiment Mol 8A seinen Sinn und Zweck erfüllt.

Literatur:

- [1] Gerken, A., Karsten, G.: Spezifikation des Brennstabes für die FAFNIR-Kapsel-Bestrahlung im BR 2 in Mol (unveröffentlicht)
  
- [2] Dippel, Th., Kummerer, K., Triemer, K.H.: Herstellung Pu-haltiger Brennstäbe für die FAFNIR-Kapsel-Bestrahlungsversuche im BR 2 (unveröffentlicht)
  
- [3] Von der Hardt, P.: Technical Notes  
NT. 71/5461/02/PvdH bis NT.71/5461/04/PvdH  
NT. 71/5462/02/PvdH bis NT.71/5462/04/PvdH
  
- [4] Van Looy, J.: Technical Notes  
NT. 71/5461/05/JvL bis NT.71/5461/17/JvL  
NT. 71/5462/05/JvL bis NT.71/5461/17/JvL

- [5] Van Looy, J.: Technical Notes  
NT.71/5460/10/JvL, NT.71/5720/07/JvL, Februar 1970  
NT.71/5460/08/JvL, September 1969
- [6] De Raedt, Ch.: Reactor Study, Theoretical Calculations Pertinent  
to the FAFNIR Capsule in BR 2
- [7] Debreue, J.: Reactor Study, BR 2 Experimental Programme.  
JD/eu 61-206/69-14/C
- [8] Von der Hardt, P.: BR 2 Irradiation of Fuel Pins in Liquid Metal  
Rigs. RD.71/0101 C/03/PvdH
- [9] Gratton, C.P., Smith, P.E.: GMS I-A generalized multigroup system  
of calculations using the IBM 7030 (STRETCH) computer.  
AEE Winfrieth Rep. AEEW-M 458, Febr. 1965
- [10] Hofmann, P.: Spaltproduktausbeuten bei der Spaltung von U-235,  
U-238, Pu-239 und Pu-241 mit Neutronen verschiedener Energien.  
KFK-Ext.-Bericht 6-70/2 (1970)
- [11] Böhm, H.: Die Porenbildung in metallischen Werkstoffen durch  
Neutronenbestrahlung. KFK-Bericht Nr. 838 (1968)
- [12] Kummerer, K.: Die Oxidbrennstäbe der Schnellbrüter-Prototyp-  
Kraftwerke (unveröffentlicht)