KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

Oktober 1972

Projekt Schneller Brüter

2. Vierteljahresbericht 1972



GESELLSCHAFT FUR KERNFORSCHUNG M.B.H.

KFK 1272/2 EUR 4847 d

KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

September 1972

KFK 1272/2 EUR 4847 d

Projekt Schneller Brüter

2. Vierteljahresbericht 1972

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

Der vorliegende 2. Vierteljahresbericht 1972 beschreibt Arbeiten am Projekt Schneller Brüter, die von Instituten der GfK in Karlsruhe durchgeführt worden sind.

Dieser Bericht wurde zusammengestellt von R. Hüper.

and the second second

Inhaltsübersicht +)

- 112. Brennstabentwicklung
- 113. Materialuntersuchung und -entwicklung
- 114. Korrosionsversuche und Kühlmittelanalysen
- 121. Physikalische Experimente
- 122. Reaktortheorie
- 123. Sicherheit schneller Reaktoren
- 124. Instrumentierung und Signalverarbeitung zur Kernüberwachung
- 125. Auswirkung von Reaktorstörfällen auf die Umwelt; Aktivitätsfreisetzung
- 126. Natrium-Technologie-Versuche
- 127. Thermo- und hydrodynamische Versuche in Gas und Dampf
- 128. Entwurfsstudien zu gas- und dampfgekühlten Brutreaktoren
- 129. Entwurfsstudien zu natriumgekühlten Brutreaktoren

+) Teilprojekte mit den zugehörigen PSB-Basisprogramm-Nummern.

Die Seiten sind innerhalb jedes Teilprojektes durchnumeriert.

Zum Druck eingereicht im September 1972

112 BRENNSTAB-ENTWICKLUNG

1120 Brennstabmodelltheorie

Anwendung des SATURN 1-Rechenprogrammes

(H. Elbel, IMF; H. Fiedler, AEG)

Das Rechenprogramm SATURN wurde in der zur Zeit vorliegenden Version la auf verschiedene Probleme sowohl bei der Nachuntersuchung von Bestrahlungsexperimenten als auch bei der Auslegung neuer Experimente und der Überprüfung von Brennstabentwürfen angewendet. Ergebnisse zu Parameterstudien aus dem letztgenannten Gebiet sollen im folgenden kurz skizziert werden.

Für den Schnellen Brutreaktor ist als Hochleistungsbrennstoff der Zukunft möglicherweise ein Brennstoff auf Karbidbasis vorgesehen. Anhand der bisher bekannten Materialdaten wurden Vorabrechnungen für einen Brennstabentwurf durchgeführt, die erste grobe Aussagen über einige Aspekte des "in-pile"-Verhaltens ermöglichen. Untersucht wurde der Einfluß, den die konkurrierenden Effekte Kriechen und thermische Ausdehnung beim Anfahren und Kriechen und Schwellen bei Betrieb mit konstanter Leistung haben.

Den Rechnungen lag im wesentlichen der Brennstabentwurf der Fa. AEG $\begin{bmatrix} 1 \\ -1 \end{bmatrix}$ zugrunde, mit der Ausnahme, daß im Brennstoff ein Zentralkanal angenommen wurde. Die verwendeten Daten und Materialeigenschaften sind in der Tabelle 1 zusammengefaßt. Es wurde vorausgesetzt, daß das strahleninduzierte Kriechen des Karbids um den Faktor 1/10 geringer ist als das des Oxids.

Die wichtigsten Ergebnisse der Parameterstudie sind in den Abbildungen 1 bis 3 dargestellt. Sie zeigen, daß beim Anfahren auf die nominelle Stableistung von 1200 W/cm infolge des geringen Kriechvermögens des Karbids sehr hohe thermische Spannungen auftreten (Abb. 1), die zum Aufreißen der Brennstofftablette führen würden. Eine Änderung der Anfahrgeschwindigkeit hat innerhalb des betrachteten Zeitraums keinen großen Einfluß auf die Höhe des Spannungswertes.

Das wegen der Natrium-Bindung sehr niedrige Temperaturniveau im Brennstoff hat zur Folge, daß neben dem strahleninduzierten Kriechen das thermische Kriechen noch kaum eine Rolle spielt (Abb. 2), soweit beide Phänomene gegenwärtig bekannt sind. Das führt u.a. dazu, daß die Volumenvergrößerung des Brennstoffes aufgrund des temperaturabhängigen Anteils der Schwellverformung ohne ins Gewicht fallende Selbstbehinderung durch die äußeren Zonen des ungerissenen Brennstoffs voll nach außen wirksam wird, falls kein Kriechen in die Poren auftritt. Anhand der Veränderung des Zentralkanalradius ist dieser Vorgang in Abb. 3 dargestellt. Die untere Kurve gibt die bei einer temperaturunabhängigen Schwellrate von 1 %/10 MWd/kg Me zu erwartende minimale Vergrößerung des Zentralkanals wieder. Die darüberliegende Kurve zeigt die bei der angenommenen Temperaturabhängigkeit der Schwellrate zu erwartende Zentralkanalaufweitung. Da das Schwellverhalten des Karbids noch weitgehend ungeklärt ist, wurde eine weitere Rechnung mit einer pessimistischen starken Schwellrate durchgeführt, deren Ergebnis ebenfalls in Abb. 3 dargestellt ist.

Weiter wurden im Rahmen einer Studie zur Vergleichbarkeit des Dampfund Gas-gekühlten Schnellen Brüters (DSB, GSB) erste Rechnungen zur Brennstabauslegung für den DSB-Brennstab durchgeführt. Die Rechnungen betreffen das Brennstabverhalten über Bestrahlungszeiten bis zu maximal 20.000 h, welche Abbränden von nahe 100 MWd/kg Me entsprechen.

Die den Rechnungen zugrundeliegenden Brennstab-Auslegungsdaten sind in Tabelle 2 zusammengestellt; neben dem unter Nr. 3 angegebenen vorläufigen Stabkonzept der Fa. AEG wurden weitere Stabvarianten mit größerer Hüllwandstärke (0,4 mm), verschiedenen Spaltweiten (75, 100, 125 μ radial) und Tablettendichten (90, 92 % th. D.) untersucht. Die wichtigsten Ergebnisse waren folgende:

- Das Konzept mit einer Hüllwandstärke von 0,3 mm erscheint wegen der zu erwartenden chemischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle nicht realisierbar. Wie die bisherigen Erfahrungen zeigen, muß man unter den geforderten Bedingungen (Standzeit, Stableistung, Hülltemperatur) einen Korrosionsabtrag auf der Kühlmittelseite von ca. 40 μ und eine Reaktionsschicht auf der Hüllinnenseite von etwa 100 μ Stärke in Rechnung setzen, was eine unzulässige Schwächung der Hülle bedeuten würde. Aus diesem Grunde wurden den weiteren Rechnungen Hüllwandstärken von 0,4 mm zugrundegelegt.
- Bei einer radialen Spaltweite von 75 μ sind im Verlaufe der Bestrahlungszeit erhebliche mechanische Wechselwirkungen zwischen Brennstoff und Hülle zu erwarten. Diese können jedoch durch eine Vergrößerung der Spaltweite auf 100 μ radial wesentlich herabgesetzt werden.

Literatur

- [1] F. Amon, G. Lill, G. Tischer, W. Uhde et al. "Referenzstudie über einen Na-gekühlten Karbid-Hochleistungsbrüter" AEG-E3-1883 (1971)
- [2] H.E. Schmidt "Die Wärmeleitfähigkeit unbestrahlter keramischer Kernbrennstoffe" Beitrag in KFK-Bericht 1400, S. 227-245 (1971)

[3] D. Vollath "Mechanische Eigenschaften karbidischer Kernbrennstoffe" Beitrag in KFK-Bericht 1111 (1969)

- [4] R. Mendez-Penaloza NAA-SR-8538
- [5_7] N.M. Killey, E. King, H.J. Hedger "Creep of U - and (U,Pu) - Monocarbides in Compression" AERE-R 6486 (1970)
- [6] H.J. Hedger, persönliche Mitteilung an D. Vollath, IMF
- [7] D. Brucklacher, persönliche Mitteilung an D. Vollath, IMF

Betr. Anwendungen von Saturn 1 vgl. auch 1121.6, 1122.1 und 1285.

Hülldaten:		÷		
Material	Werksto	ff-Nr. 1.498	38	
Außenradius	3,53 un	d 3, 78 mm		
Wandstärke	0,25 un	d 0,50 mm		
Brennstoffdaten:				
Tablettenaußenradius	3,28 mm	l		
Tabletteninnenradius	1,00 mm			
Tablettendichte	98 % th	.D. (U,Pu)C		
	$S_{\rm th} = 1$	3,6 g/cm ²		
Wärmeleitfähigkeit	0,16 W/	em ^o C	nach 🖉	2_7
E-Modul	19000 k	p/mm ²	nach /	3.7
Poisson-Zahl	0,34			-
thermische Ausdehnung	0	`		
$\alpha = 0,1004 \cdot 10^{-4} + 0,11$	7·10 ⁻⁰ ·T (°c)	nach 🖉	4_7
schwache und starke Schwellrate			r	1
	T	$(V/V)_{schw}$	(V/V) _{st}	
	(°C)	(in %/10	MWd/kg)	
	20	1,0	2,0	
	800	1,0	2,0	
	1200	1,5	3,5	
	2000	2,5	6,5	
	Zwischenw	erte linear	interpolie	 rt
	_		•	
Kriechverhalten (nach $25, 6, 7)$		69000		
$\dot{\boldsymbol{\epsilon}} = a \cdot c \cdot \frac{\boldsymbol{\chi}}{2} \boldsymbol{\sigma} (kp/mm^2) + 2.3 \cdot 10^{-2}$	σ ^{1,8} (MN/m ²)e ^{RT} 4	F	
ra ri	• •		- 1420	00
:	+ 1,1•1	0 ⁻¹ 0 ⁴ , ² (MN/	/m ⁻)e ^{RT}	
	mit o	- 1 /110-8		
		= 1,4 10	/ 0 = 0,4	
Betriebsbedingungen:				
Stableistung	1200 W/	em		
Hüllaußentemperatur	650 [°] C	0		
Wärmeübergangszahlen	ll W/cn l W/cn	n ^{2 o} C bei Na n ^{2 o} C bei He	-Bindung -Bindung	

Tabelle 1: Materialdaten für die Parameterstudien zum Karbid-Brennstab

Tabelle²: SATURN-Rechnungen zur Auslegung von Brennstäben für den dampfgekühlten schnellen Brüter (DSB) (Eingabedaten)

lfd. Nr.	Abbrand A (MWd/kg)	Betriebs- zeit t _v (Vollastt.	Stableistung X) (W/cm)	Hülloberfl Temp. T _{Ha} ([°] C)	Differenz- druck p _i -p _a (at)	Radialspalt S _{rad} (µ)	Hüllwand- stärke d _H (mm)	Tabletten- dichte (% th.D.)	Schmier- dichte r _S (% th.D.)	therm. Zyklen
1	80	20.000	345	630	-	75	0,3	90	86,2	5
2	100		420	630	_	75	0,3	90	86,2	-
3	100			680	20	75	0,3	90	86,2	5
4	100					75	0,4	90	86,1	5
5	100					100	0,4	90	84,8	5
6	100					100	0,4	92	86,7	5
7	100					125	0,4	90	83,5	5
8	100			•	•	125	0,4	92	85,4	5

- Tablettendurchmesser
- Hüllinnendurchmesser
- Hüllaußendurchmesser
- Brennstoff
- Thermische Zyklen

6,85; 6,65; 6,6 ; 6,55 mm

- 7,0; 6,8 mm
- 7,6 mm
- U02/15 Gew.-% Pu02

Anfahrzeit 10 h, Dauerbetrieb 4000 h, Abkühlzeit 10, h Abschaltzeit 10 h

10 h [kp/mm²] 90 -20 h 40 h 80 Brennstoffaußenrand 70 60 50 Tangentialspannung am 40 30 20 A 10 0 200 0 20 40 60 80 100 [h] Einsatzzeit Abb.1 Tangentialspannung am Brennstoffaußenrand in Abhängigkeit von der Anfahrgeschwindigkeit bei Na-Bindung



112-7



1121 Oxidischer Brennstoff - Laboruntersuchungen

1121.0 Herstellung im Labormaßstab

1. Herstellung von Brennstoff- und Isoliertabletten für die Versuchsgruppe Mol-8D im BR 2

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

Ziel der Versuchsgruppe 8D im BR 2 ist die Messung der Temperatur im Zentralkanal des Brennstoffs. Dazu mußten Brennstofftabletten bzw. auch einige Isoliertabletten mit axialer Bohrung hergestellt werden. Die Tablettenherstellung wurde nach den üblichen Verfahren abgewickelt. Die axiale Bohrung wurde im ungesinterten Zustand der Tabletten ausgebohrt. Das in $\int 1_{-}^{-1}$ beschriebene und dafür eingesetzte Haltewerkzeug für die Tabletten war mit dem Ziel einfacherer und schneller Handhabung gemäß $\int 2_{-}^{-2}$ verbessert worden. Die Höhe der Tabletten und der Durchmesser der Bohrungen wurden auf Maß gesintert, der Außendurchmesser durch Schleifen auf der spitzenlosen Rundschleifmaschine eingestellt.

Die Tabelle 3 zeigt die Brennstofftabletten und die Isoliertabletten eines Prüflings. Der Sollwert für den Außendurchmesser ist $6,887 \pm 0,01$ mm, für den Innendurchmesser $3,0 \pm 0,05$ mm, für die Länge der Tablettensäule 70 ± 1 mm und für die Dichte $85 \pm 2,0$ % mit der Maßgabe, daß die Dichtewerte einer Tablettensäule möglichst wenig streuen.

Literatur

<u>「</u>27

 $\int 17$ Th. Dippel, E. Günther Atomwirtschaft XVI, Nr. 8-9, Seite 431 f, (1971)

R. Scherwinsky persönliche Mitteilung

Tabelle 3: Brennstoff- und Isoliertabletten

	Gewicht (g)	Höhe (mm)	Außen- durchmesser (mm)	Innen- durchmesser (mm)	Dichte (% th.D.)
Obere Isolier- Tablette	1,2725	4,430	6,701	3,0	93,19
	2,4860 2,4577 2,4680	8,808 8,725 8,766	6,842 6,886 6,892	3,0 3,0 3,0	84,97 84,98 84,76
Brennstoff- Tabletten	2,4829 2,4821 2,4886 2,4940 2,5018	8,799 8,782 8,815 8, 849 8,891	6,888 6,893 6,891 6,887 6,882	3,0 3,0 3,0 3,0 3,0	85,07 85,06 85,02 85,00 85,01
Untere Isolier- Tablette	2,9506	8,025	6,709		94,90
Mittel- bzw. Gesamtwerte der Brennstoffdaten	19 , 8611	70,435	6,889	3,0	84,98

<u>2.</u>	Her	stellu	ing de	<u>er Brenn</u>	sto	fftabletten	für	die V	ersu	chsgruppe	<u>5 im</u>	He-Loop
des	FR	2	(Th.	Dippel,	R.	Hanselmann,	н.	Nagel	, M.	Wittmann,	IMF)

Diese Versuchsgruppe dient zur Untersuchung des Schwelldruckes und des instationären Verhaltens von Mischoxid-Brennstäben. Dafür waren insgesamt ca. 300 Tabletten in vier verschiedenen Sorten herzustellen. Die Sorten unterscheiden sich einmal in der Tablettendichte zu $85 \% \pm 2 \%$ th.D. bzw. 93 $\% \pm 2 \%$ th.D., zum andern im Plutoniumgehalt. Dieser betrug 6 % bzw. 18 %. Der Tablettendurchmesser war einheitlich auf $6,15 \pm 0,01$ mm, die Länge der Tablettensäule 40 ± 1 mm spezifiziert worden.Jede Tablettensäule enthielt 5 Tabletten mit ca. 8 mm Höhe. Hinsichtlich der Dichtewerte der einzelnen Tabletten wurden die Tablettensäulen so zusammengestellt, daß möglichst geringe Streuungen auftraten. Die Herstellung selbst folgte dem üblichen Verfahren.

Die folgende Tabelle zeigt zwei typische Tablettensäulen.

93 % th.D.				·
Nr.	Gewicht (g)	Höhe (mm)	Durchmesser (mm)	% th.D.
1	2,2072	7,961	6,148	84,98
2	2,2194	7,987	6,151	85,09
3	2,2114	7,969	6,150	85,00
4	2,2098	7,975	6,146	84,99
5	2,2180	7,984	6,153	85,01
Gesamt-bzw. Mittelwerte	11,0658	39,876	6,150	85,01
85 % th.D.			-	
1	2,4420	8,063	6,154	92,65
2	2,4829	8,188	6,154	92,76
3	2,4590	8,122	6,155	92,59
4	2,4375	8,088	6,142	92,55
5	2,4308	8,068	6,140	92,59
Gesamt-bzw. Mittelwerte	12,2522	40,529	6,149	92,63

Tabelle 4

3. <u>Weiterentwicklung der Herstellungstechnik von Tabletten</u> (Sinterstudien)

Einschränkung der Sinterfähigkeit (Desaktivierung) von Oxidbrennstoff (H. Pollanz, A. Gutu, IMF)

Einführung

Zur Herstellung von gesinterten Proben mit niedriger Dichte werden meistens die sinteraktiven Ausgangspulver durch Glühen unter Schutzgas vorbehandelt (desaktiviert). Dadurch verkleinert sich unter anderem ihre spezifische Oberfläche, ohne daß es zum Sintern kommt. Auch bei Pulverpreßkörpern,welche bereits in der Aufheizphase infolge der vorhandenen Kontakte beträchtlich sintern, kann die Sinterfähigkeit reduziert werden, indem Oberflächen- und Gitteraktivität vor dem Erreichen der Sintertemperatur abgebaut werden. Demnach müßte es möglich sein, bestimmte Sinterdichten mit einem Ausgangspulver dadurch zu erzielen, daß der Temperatur-Zeit-Verlauf beim Aufheizen und die Schutzgaszusammensetzung definiert variiert werden. In einem begrenzten Dichtebereich sollten sich dann die Glühbehandlung der Pulver, die Kontrolle der spezifischen Oberfläche und teilweise die Neueinstellung der Preßparameter erübrigen.

Ziel der vorliegenden Untersuchungen ist es, die Möglichkeiten der Herstellung von Tabletten mit niedrigen Dichten aus nur einem hochdicht sinternden Ausgangspulver durch Sinterversuche im Dilatometer zu studieren. Hierzu wurde das Gerät so ergänzt, daß neben Versuchen in verschiedenen Schutzgasatmosphären und in Vakuum definierte H₂O-Gehalte im ppm-Bereich eingestellt werden können. Bis Ende 1972 soll das Gerät in eine Spezialbox eingebaut sein, in welcher dann auch plutoniumhaltige Sinterproben untersucht werden können. Tabelle 5 gibt den relativen Sinterweg ΔS und die Sinterdichte Sin Prozent der theoretischen Dichte in Abhängigkeit von verschiedenen Aufheizraten und Haltestufen an. Die Proben wurden in allen Fällen bei 1700°C 2 Stunden isotherm gesintert. Die Preßkörper wurden im Fall a) während des Aufheizens im Vakuum entwachst, im Fall b) und c) jedoch in einem getrennten Zyklus bei 750°C in CO₂ (Ausnahme: Versuch mit 500°C/2 h Haltestufe).

Die Versuche unter Hochvakuum (a und b) zeigen, daß der relative Sinterweg umso kleiner wird, je langsamer aufgeheizt wird. Das bedeutet, daß ein Desaktivierungseffekt vorhanden ist. Aus den Versuchen unter Argon-Wasserstoff dagegen kann geschlossen werden, daß die Reaktion des UO_2 mit der Schutzgasatmosphäre bei bestimmten Haltetemperaturen für die Desaktivierung von entscheidender Bedeutung ist. Variationen in der Sinterdichte um 5 bis 7 % th.D. sind demnach möglich. Durch kleinere Aufheizraten oder längere Haltestufen im Temperaturbereich zwischen 800 und 1200° C können möglicherweise noch größere Dichteunterschiede erzielt werden. Ähnliches ist bei der Verwendung von H₂O-freiem Schutzgas zu erwarten. Diese Unterschiede sollten bei gleit- und bindemittelfrei gepreßten Tabletten noch deutlicher ausgeprägt sein.

Tabelle 5Relativer Sinterweg und Sinterdichte bei einer konstanten Sintertemperatur
von 1700°C und 2 Stunden Sinterzeit

	Sinterweg ΔQ / Sinterdichte S in % th.D.			
Aufheizrate in ^O C/min	a) beim Aufheizen entwachst; Hochvakuum	b) in getrenntem Zyklus entwachst; Hochvakuum	c) in getrenntem Zyklus entwachst; Argon/5 % H ₂ ; 15 + 20 vpm H ₂ 0	
30	37,6 / 86,7	-	41,7 / 93,9	
30°/min; Haltestufe 1250°/1 h	37,1 / 85,7	-	38,0 / 94,6	
30 [°] /min; Haltestufe 950 [°] /l h	39,8 / 88,7	-	-	
15	-		-	
7,5	36,4 / 85,3	39,8 / 93,1	41,8 / 94,6	
7,5 [°] /min; Haltestufe 500 [°] /2 h		-	35,8 / 82,8	
3	35,1 / 84,1	35,7 / 89,5	43,1 / 94,4	
1,5	-	-	-	
0,75	-	34,4 / 89,2	-	

1121.1 Technologische Eigenschaften von Mischoxid

Erholung von abgeschrecktem und bestrahltem überstöchiometrischem <u>Urandioxid</u> (A. Orians, D. Vollath, IMF)

1. Abgeschreckte Proben

Die Abb. 4 zeigt eine Auftragung des Logarithmus der elektrischen Leitfähigkeit einer von 700° C abgeschreckten $U0_{2+x}$ -Probe gegen die inverse absolute Temperatur (lno - 1/T-Kurve). Der Stöchiometriefehler x war bei dieser Probe etwa 0,02. Man sieht bei etwa 400°C die bereits bekannte Erholungsstufe, der eine weitere wesentlich kräftigere folgt. Im Temperaturbereich zwischen 150°C und etwa 300°C finden wir zusätzlich eine weitere Erholungsstufe, die bei genauer Betrachtung in drei Teilstufen zerlegt werden kann. Abb. 5 zeigt eine Vergrößerung dieses Ausschnittes der Erholungskurve. In diesem Bild ist zusätzlich noch die Ableitung $d(ln\sigma) / d(l/T)$ eingezeichnet. Das Auftreten von drei Erholungsstufen kommt in diesem so definierten differentiellen Erholungsspektrum besonders deutlich zum Ausdruck. In Abb. 6 sind Erholungskurven von drei Proben mit unterschiedlichem Sauerstoffüberschuß eingezeichnet. Man sieht, daß mit steigendem Sauerstoffüberschuß der Probe der Erholungseffekt in dieser Stufe zunimmt. Gleichzeitig erkennt man auch, daß mit steigendem Sauerstoffüberschuß die Trennung der drei einzelnen Erholungsstufen schlechter wird. Von dieser schlechter werdenden Auflösung ist besonders die sehr schwache erste Stufe betroffen. Unabhängig von der Größe des Sauerstoffüberschusses gilt, daß der größte Erholungseffekt in der zweiten Teilreaktion zu finden ist, während die erste Teilreaktion die mit dem geringsten Erholungseffekt ist. Die Maxima dieser drei Teilreaktionen liegen bei den Temperaturen 223, 188, 156°C (bei einer linearen Aufheizgeschwindigkeit von 1°/min). Aus dem Vergleich der Lage dieser Erholungsmaxima bei verschiedenen Aufheizgeschwindigkeiten kann man die Aktivierungsenergie der einzelnen Erholungsprozesse abschätzen. Tabelle 6 gibt eine Zusammenfassung dieser gefundenen Werte.

Tabelle 6

Erholungstemperatur (°C)	223	188	156
Aktivierungsenergie (kcal/mol)	23+)	21,7 <u>+</u> 2	20+)

+) diese Werte sind unsicher !

Die Erholungsstufe, die im Bereich von 400°C gefunden wurde, folgt den gleichen phänomenologischen Gesetzen wie bei den stöchiometrischen und unterstöchiometrischen Proben. Der Anteil der Erholung, der in dieser Stufe stattfindet, nimmt mit steigendem Sauerstoffüberschuß ab. Bei einem Sauerstoffüberschuß von etwa 0,05 verschwindet diese Erholungsstufe ganz. Die Abb. 7 zeigt einen Ausschnitt aus dem lno-1/T-Diagramm, das den Temperaturbereich zwischen 350 und 700°C umfaßt. Zusätzlich ist in dieses Bild noch das differentielle Erholungsspektrum eingezeichnet. Man sieht, daß auch hier vor dem Absinken der elektrischen Leitfähigkeit eine leichte Erhöhung derselben eintritt. Besonders deutlich kommt dies im differentiellen Erholungsspektrum zum Ausdruck, in dem sich dieser Ordnungsvorgang durch ein Minimum auszeichnet.

Die folgende Erholungsstufe hat ein Maximum bei etwa 600° C. Der Erholungsanteil in dieser Stufe nimmt mit steigendem Sauerstoffüberschuß zu. Bei sehr hohem Sauerstoffüberschuß (x > 0,1) ist diese Erholungsstufe jedoch nicht sehr deutlich ausgeprägt. Für diese Erholungsstufe wurde eine Aktivierungsenergie von 75 ± 10 kcal gefunden.

2. Bestrahlte Proben

Die Abb. \$ zeigt die Erholungskurve einer überstöchlometrischen Probe, die einer schnellen Fluenz von $2,8 \cdot 10^{15}$ Neutronen ausgesetzt war. Der Stöchlometriefehler x war etwa 10^{-3} . Der Sauerstoffüberschuß war so klein, daß der überschüssige Sauerstoff bei Raumtemperatur noch in Lösung war. In Abb. \$ sieht man neben der charakteristischen 400° C-Erholungsstufe eine weitere bei 240[°]C. Diese Stufe liegt bei einer deutlich höheren Temperatur als die drei Erholungsstufen, die bei den abgeschreckten überstöchiometrischen Proben gefunden wurden.

Die 400° C-Erholungsstufe zeigt, auch bei der geringsten Dosis von 2,8·10¹⁴ schnellen Neutr/cm², nicht die erste Teilreaktion bei der die Streuung an den geladenen Fehlstellen vermindert wird. Eine ähnliche geringe Dosisabhängigkeit ist auch bei der 240°C-Erholungsstufe zu beobachten. Die Abb. 9 zeigt eine Gegenüberstellung der Erholungskurven einer Probe, die eine Minute bei einem schnellen Neutronenfluß von 4,7·10¹² s⁻¹cm⁻² bestrahlt wurde, mit einer Probe, die unter den gleichen Bedingungen zwanzig Minuten lang bestrahlt wurde. Außer einer Verschiebung im absoluten Niveau der elektrischen Leitfähigkeit ist zwischen diesen beiden Kurven kein wesentlicher Unterschied zu beobachten.

Es fällt aber deutlich auf, daß auch bei dieser Erholungsstufe vor dem Abfall der elektrischen Leitfähigkeit eine leichte Erhöhung auftritt. Auch hier wird dies mit einer Verminderung der Ladungsträgerstreuung zu erklären sein.

Die folgende Tabelle gibt die Lage der beiden Erholungsmaxima, bezogen auf eine Aufheizgeschwindigkeit von l⁰/min, und die berechneten Aktivierungsenergien wieder.

Tabelle 7

Erholungstemperatur	(°C)	200	238	
Aktivierungsenergie	(kcal/mol)	19,5	24,4	

Veröffentlichung:

D. Vollath Erholungsvorgänge im Sauerstoffteilgitter von abgeschrecktem und neutronenbestrahltem Urandioxid KFK 1621, Juli 1972



<u>Abb. 4</u> Einfluß der Erholung auf die elektrische Leitfähigkeit von UO_{2,02} nach Abschrecken von 700[°]C



<u>Abb.5</u> Einfluß der Ausscheidung von U_4O_9 auf die elektrische Leitfähigkeit von $UO_{2,02}$. Unten im Bild ist der Verlauf der ersten Ableitung der Leitfähigkeitskurve eingetragen (Erholungsspektrum)



<u>Abb. 6</u> Einfluß der Ausscheidung von U₄0₉ auf den Verlauf der elektrischen Leitfähigkeit von U0_{2+x} in Abhängigkeit von Sauerstoffüberschuß (Aufheizgeschwindigkeit 1[°]/min)



Abb. 7 Verlauf der elektrischen Leitfähigkeit und des Erholungsspektrums von UO_{2,02} nach Abschrecken von 700°C im Temperaturbereich zwischen 300 und 700°C



Abb. 8 Verlauf der elektrischen Leitfähigkeit von bestrahltem ^{UO}_{2,001} im Temperaturbereich bis 500[°]C nach einer schnellen Neutronendosis von 2,8 · 10¹⁵ n/cm²



Abb. 9 Einfluß der Wiederherstellung der Nahordnung in UO_{2,001} auf den Verlauf der elektrischen Leitfähigkeit in Abhängigkeit von der schnellen Neutronendosis

1. <u>Herstellung von Mischoxid-Fissium-Proben für out-of-pile Verträglich-</u> keitsuntersuchungen

(Th. Dippel, E. Günther, P. Hofmann, H. Metzger, IMF)

Im Rahmen der Verträglichkeitsuntersuchungen an oxidischem Mischbrennstoff mit Hüllwerkstoffen wurden außerhalb des Reaktors das Verhalten von UO $_{
m 2}/$ 30%-Pu02-Gemischen verschiedener Stöchiometrie mit Fissiumzusatz untersucht. Neben den chemischen Wechselwirkungen zwischen dem teilsimulierten Abbrandsystem und dem Hüllmaterial sollte auch die Wirkung von lokalen Sauerstoffgettern wie Zr, Ti und Nb untersucht werden (vgl. Beiträge Nr. 2, 3 und 4). Nb kam in Form dünner Folien (25 μm) zwischen dem Brennstoff und Hüllmaterial und Zr und Ti in Form von Pellets zum Einsatz. Die Zr- und Ti-Pellets hatten keinen direkten Kontakt mit dem Brennstoff. Dazu waren eine Anzahl Proben herzustellen. Aus dem zur Verfügung stehenden Ausgangspulver (Tabelle 8) verschiedener Stöchiometrie wurden zunächst drei Pulvermischungen hergestellt (Tabelle 9) und in diese Mischungen dann die verschiedenen Fissiumzusätze eingemischt (Tabellen 9 und 10). Abgewogene Mengen dieser Mischungen wurden in kleine Stahlbehälter eingepreßt und diese Behälter mit einem konischen Stopfen gasdicht verschlossen (Kaltverschweißung). Dies geschah ebenfalls durch Einpressen. Diese Stahlbehälter bestanden aus dem zu untersuchenden Hüllmaterial, Werkstoff-Nr. 1.4988. Alle diese Arbeiten wurden unter reinstem Helium ausgeführt. Die Handschuhbox war dazu mit der Gasreinigungsanlage der Fa. Leybold-Heraeus verbunden worden.

Die so vorbereiteten Proben wurden aus der Heliumbox ausgeschleust und nach der üblichen Brennstabfülltechnik in die äußeren Stahlhülsen eingeschoben. Diese wurden ebenfalls mit Stahlstopfen verschlossen, die zur Abdichtung an der Unterseite gegen eine scharfe Kante verschraubt wurden (Abb. 10). Die außen kontaminationsfreien Proben wurden abschließend in evakuierte Quarzampullen eingeschmolzen und in diesem Zustand 1000 Stunden bei 700 °C bzw. 800 °C geglüht. Diese Glühung ist bereits ausgeführt.

Tabelle 8

Pulver	Stöchiometrie
υ0 ₂	2,30
UO2 geglüht	2,03
PuO2	2,00
"Pu203"	1,71

Tabelle 9

Stöchiometrie	Fissiumzusatz simulierter Abbrand 10 und 20 At 🌾
1,96	Cs, Cs+CsJ+Te, -
1,99	Cs, Cs+CsJ+Te, -
2,08	Cs, Cs+CsJ+Te, Cs+CsJ+Te+Mo

Cs wurde in flüssiger Form dem Kernbrennstoff-Spaltproduktgemisch zugefügt (nach dem Verpressen des Pulvers).

Tabelle 10

Spaltprodukteinwaagen pro 1 g (U, Pu)0 ₂ (g)				
Spaltpredult	simulierter Abbrand			
Spartprodukt	10 At %	20 At %		
Cs	0,0039	0,0088		
CsJ	0,0087	0,0196		
Те	0,0052	0,0118		
Мо	0,0121	0,0273		

Abb. 10	Probe für Verträglichkeitsuntersuchung 1 Äußere Kapsel 2 Zu untersuchendes Hüllmaterial 3 Brennstoff - Fissium – Gemisch

2. Herstellung vollsimulierter Abbrandsysteme

(P. Hofmann, O. Götzmann, IMF)

Es wurden die ersten Proben von vollsimulierten Abbrandsystemen mit UO₂ hergestellt, um das Reaktionsverhalten gegenüber verschiedenen Hüllmaterialien im Vergleich zu den teilsimulierten Systemen festzustellen. Im "vollsimulierten Abbrandsystem" sind nahezu alle während der Kernspaltung gebildeten Spaltprodukte dem Kernbrennstoff in oxidischer oder elementarer Form zugegeben (Tabelle 11). Als gegenüber dem Hüllmaterial reaktive Spaltprodukte werden jedoch nur die Elemente Cs, J, Te und Se betrachtet, weshalb mit dieser Gruppe getrennte Untersuchungen durchgeführt werden ("teilsimuliertes Abbrandsystem"). Aufgrund thermodynamischer Abschätzungen sollten beide simulierten Systeme das gleiche Reaktionsverhalten gegenüber der Hülle zeigen. Der simulierte Abbrand beträgt 10 und 20 At.-Z.

Vor dem Einsatz des vollsimulierten Abbrandsystems wurden die Mischungen (ohne die leicht flüchtigen Spaltprodukte) bei 1500 ^oC/16 h und 1700 ^oC/12 h unter Argon homogenisiert. Bei diesen Bedingungen wurde kein vollständiges Gleichgewicht erreicht (außer dem gewünschten Sauerstoffpotential), was aber für die Verträglichkeitsuntersuchungen auch nicht notwendig ist. Nach der Homogenisierung wurden die Proben gemahlen. Dann wurden erst die leicht flüchtigen Spaltprodukte J (in Form von CsJ), Te und Se hinzugefügt. Cs wurde dem verpressten Pulver in flüssiger Form zugegeben. Das gewünschte O/M-Verhältnis des Brennstoffes wurde durch die Ausgangsstöchiometrie des Oxidbrennstoffes und die Form der eingesetzten Spaltprodukte (metallisch oder oxidisch) eingestellt.

Mikrosonden- und Röntgen-Untersuchungen der homogenisierten Kernbrennstoff-Spaltprodukt-Mischungen zeigten, daß sich Nd₂O₃ im UO₂ löst. CeO₂ liegt dagegen hauptsächlich in Verbindung mit ZrO₂ und Ba-Oxid vor (Ba- und Ce-Zirkonate). Pd wird in Verbindung mit Ru und etwas Mo beobachtet. Der überwiegende Teil des Mo scheint nach den Mikrosonden-Aufnahmen frei, d.h. ungebunden vorzuliegen. Zwischen den bei 1500 und 1700 ^OC homogenisierten Proben ist kein wesentlicher Unterschied festzustellen.

112-27

Tabelle 11: Simulierte Spaltprodukte

Angabe der Einwaagen pro 1 g UO_2 für den reinen Metallanteil in g.

Simulierte Spaltprodukte	eingesetzte Form	Metallanteil pro 1g UO ₂	
		Abbrand 10 At%	20 At%
Ba(Sr)	Ba02	0,0056	0,0125
Мо	Мо	0,0121	0,0273
Ru(Rh,Ag)	Ru	0,0133	0,0299
Pd	Pd	0,0041	0,0093
Ce(La)	Ce0 ₂	0,0133	0,0299
Nd(Pr,Pm,Sm,Eu)	Nd 203	0,0134	0,0302
Zr	Zr,Zr0 ₂	0.0075	0,0170
Te	Te	0,0052	0,0118
Se	Se	0,0001	0,0002
J(Br)	CsJ	0,0087	0,0196
Cs(Rb)	Cs	0,0039	0,0088

Elemente mit ähnlichem chemischen Verhalten werden durch das Element repräsentiert, das entsprechend der Spaltproduktausbeute in grösserer Konzentration vorliegt.
<u>Möglichkeiten zur Reduzierung der chemischen Wechselwirkungen von Oxid-</u> brennstoffen und Spaltprodukten mit dem Hüllmaterial durch lokale Getter (P. Hofmann, O. Götzmann, IMF)

Wie bereits beschrieben wurde (KFK-Ber. 1272/1), ist es möglich, die chemischen Wechselwirkungen von überstöchiometrischem UO2 und von reaktiven Spaltprodukten (Cs, Te und Se) mit dem Hüllmaterial durch geeignete Getter zu verringern oder sogar zu verhindern. Neben der Anbringung des Getters an der Phasengrenze Kernbrennstoff-Hüllmaterial (Beschichtung der Innenseite des Hüllrohres oder der Brennstoffpellets) ist auch die lokale Anbringung eines Getters im Brennstab denkbar. Der lokale Getter hat dabei die Aufgabe, das Sauerstoffpotential im Brennstab nicht über einen kritischen Wert hinaus ansteigen zu lassen, um Oxidationsreaktionen mit dem Hüllmaterial zu verhindern. Die lokale Anbringung des Getters (Metallpellets aus Zr oder Ti zwischen Brennstoff und Brutstoff) hat den Vorteil, daß sie relativ einfach und vergleichsweise billig ist. Als Nachteil steht dem gegenüber, daß die Wirkung des lokalen Getters geringer ist als die das Getters an der Phasengrenze. Der lokale Getter bewirkt nur eine Sauerstoffpotentialerniedrigung im Brennstab, während die reaktiven Spaltprodukte wie Te und Se nicht abgebunden werden. Da das Sauerstoffpotential im Brennstab jedoch die kritische Größe hinsichtlich der Verträglichkeit zwischen dem abgebrannten Brennstoff und der Stahlhülle darstellt (durch Cs beschleunigte Oxidation der Hülle oberhalb eines kritischen O/M-Verhältnisses im Brennstoff), sollte auch der lokale Getter eine deutliche Verbesserung des Verträglichkeitsverhaltens zur Folge haben. Dies wurde deshalb in Versuchen mit lokalen Gettern und Getterfolien studiert.

Ergebnisse:

Lokale Getter:

Erste Versuche mit lokal angebrachten Gettern aus Zr und Ti zeigten gute Ergebnisse. Versuche mit UO_{2.08} und UO_{2.3} bei 700 und 800 ^oC/500 h ergaben keine chemischen Wechselwirkungen (Oxidation) mit der Hülle aus nichtrostendem austenitischem Stahl. Zwischen dem Brennstoff und dem Getterpellet war eine Stahlscheibe angebracht, um den direkten Kontakt zwischen beiden zu vermeiden (Abb. 11 oben). Die Sauerstoffabbindung erfolgte über die Gasphase. Chemische Analysen der Zr-Getter nach der Glühung bei 700 und 800 ^oC zeigen eine nahezu vollständige Aufoxidation des Zr zu ZrO₂. Die prinzipielle Wirkung von Zr als Sauerstoffgetter, ohne daß Zr mit der zu reduzierenden Substanz in Kontakt steht, wurde in Glühversuchen mit $UO_{2.1}$ und Zr studiert. Das $UO_{2.1}$ und das Zr waren während der Glühung räumlich getrennt in verschiedenen Behältern. Bereits ab 700 °C/15 h wird das $UO_{2.1}$ durch das Zr über die Gasphase reduziert. Bei 1000 °C/15 h verlief die Reduktion vollständig zum $UO_{2.00}$. Die Reduktion wurde im Hochvakuum und unter Argon durchgeführt; die Reduktionswirkung ist im Hochvakuum besser.

Getterfolien zwischen Brennstoff und Hülle:

Hier war zwischen dem Brennstoff und der Hülle eine Folie aus Nb (25 oder 50 µm dick) angebracht (Abb. 11 unten). Versuche mit $UO_{2.08}$ und $UO_{2.3}$ ließen bei 800 °C nach 500 h keine Oxidationsreaktionen mit der Hülle erkennen (Abb. 12). Auf den Schliffbildaufnahmen erkennt man deutlich die teilweise oxidierte Nb-Folie. Nb erniedrigt - wie erwartet - ausreichend das Sauerstoffpotential im Brennstoff, um die Oxidation der Stahlhülle (1.4988) zu verhindern. Weitere Versuche mit UO_{2+x} in Gegenwart von Spaltprodukten sollen auch die Getterwirkung gegenüber Spaltprodukten zeigen.

4. Volumenvergrösserung bei der Oxidation von lokalen Gettern (P. Hofmann, O. Götzmann, IMF)

Als lokale Sauerstoffgetter im Brennstab kommen hauptsächlich Zr und Ti wegen ihrer hohen Sauerstoffaffinität in Betracht. Oxidationsversuche mit Zr und Ti an Luft bei Temperaturen zwischen 300 und 900 ^OC haben gezeigt, daß die Geschwindigkeit der Oxidation beim Zr deutlich größer ist als beim Ti. Als geeigneter Getter wird deshalb besonders Zr betrachtet. Der Sauerstoffgetter soll in Form von Pellets zwischen dem Brenn- und Brutstoff angebracht werden.

Bei der Oxidation von Zr zu ZrO₂ (monoklin) findet eine Volumenzunahme von ca. 58% statt, die bei der Ausgangsdichte der Getterpellets berücksichtigt werden muß. Es ist nun wichtig, zu wissen, welche maximale ZrO₂-Enddichte das Hüllrohr aus rostfreiem Stahl 1.4988 zuläßt, ohne daß es zu einer Aufweitung des Rohres durch das ZrO₂ während der Oxidation kommt. Als Zr-Getter standen ca. 57% dichte Pellets zur Verfügung, die durch Pressen und anschließendes Sintern unter Hochvakuum bei 800 °C/0,5 h hergestellt wurden. Unabhängig von der Grünlingsdichte betrug die Enddichte der Zr-Pellets stets 57% der theoretischen Dichte.

Oxidationsversuche mit Zr

Oxidationsversuche mit Zr-Pellets in Hüllrohren, die zu berechneten Enddichten des ZrO_2 von 40 bis 100% führten bzw. führen sollten, ergaben, daß es bei Enddichten des ZrO_2 oberhalb von 50% stets zu Hüllrohrschäden kam. Die Zr-Pellets (57% TD) wurden in 25 - 30 mm lange Hüllrohre aus 1.4988 der Abmessungen 6 mm x 0,4 mm und 8 mm x 0,45 mm eingebracht (Abb. 13). Das erforderliche Leervolumen war in Form von Poren der Zr-Pellets oder radialer und axialer Spalten vorhanden. Die kurzen Hüllrohrabschnitte wurden mit Endkappen aus rostfreiem Stahl 1.4988 in einer Elektronenschweißanlage verschlossen. Eine Verschlußkappe besitzt eine Bohrung von 1 mm Ø, die den Zutritt von Sauerstoff ermöglicht. Die Proben wurden bei Temperaturen zwischen 300 und 900 ^OC bis zur vollständigen Oxidation an Luft geglüht. In bestimmten Abständen wurde der Oxidationsgrad der Proben durch Wägung ermittelt; gleichzeitig wurde der Durchmesser der Hüllrohre festgestellt.

Die Untersuchungen ergaben, daß eine deutliche nachweisbare Oxidation des Zr erst oberhalb 400 °C stattfindet. Bei 300 und 400 °C ist selbst an Luft die Oxidationsgeschwindigkeit zu klein. Oberhalb 500 °C läuft die vollständige Oxidation des Zr zu ZrO₂ in einigen Stunden ab. Bei ZrO₂-Enddichten ab 55% aufwärts kam es stets zum Aufreissen der Hüllrohre. Bei 50% und darunter war kein Schaden festzustellen. Die maximale Durchmesser-Zunahme betrug bei diesen Proben etwa 0,4 - 0,5%.

Massives Zr wurde erst oberhalb 800 [°]C vollständig in ZrO₂ umgewandelt. Unterhalb 800 [°]C bilden sich oxidische Schutzschichten auf dem Zr, und der weitere Oxidationsverlauf wird dadurch gehemmt. So war bei 700 [°]C nach 600 h nur eine geringfügige Oberflächenoxidation zu beobachten.

Als vorläufige Ergebnisse der Untersuchungen über die Volumenvergrößerung bei der Oxidation von Zr kann man festhalten:

- 1. Die maximal zulässige Enddichte des $2rO_2$ liegt bei ca. 50%. Bei dieser Dichte beträgt die Hüllrohraufweitung etwa 0,4 ÷ 0,5% (sowohl für 6 mm x 0,4 mm als auch für 8 mm x 0,45 mm-Rohr).
- 2. Die optimale Oxidationstemperatur liegt für Zr-Pellets oberhalb 500 °C, für massives Zr oberhalb 800 °C.

Unter Berücksichtigung der obigen vorläufigen Ergebnisse lässt sich für einen SNR-300-Brennstab die erforderliche Zr-Gettermenge und damit die notwendige Stablänge berechnen:

Hüllrohr:1.4988, 6 mm x 0,4 mmBrennstoff:180,5 g (U,Pu)02Ausgangsstöchiom.:0/M = 1.98 (1.96)Max. Abbrand:9 At.-%Max. zulässiges 0/M-Verhältnis des Brenn-stoffes während derBestrahlung:0/M = 1.99

Eine O/M-Erhöhung des Brennstoffes über 1.99 sollte vermieden werden, um die gefährliche, vom Sauerstoffpotential abhängige Cs-Reaktion mit dem Hüllmaterial zu verhindern.

Aufgrund dieser Daten ergibt sich - je nach der Ausgangsstöchiometrie des Brennstoffes - eine Zr-Gettermenge von 1,65 g (f. 0/M = 1.96) bis 2.17 g (f. 0/M = 1.98). Bei einer ZrO₂-Enddichte von 50% TD benötigt man dafür eine Zr-Presslingslänge von 4,0 bis 5,2 cm.

Sollte ein Stützrohr zwischen dem Brennstoff und Brutstoff erforderlich sein (Getterpatrone), um axiale Verschiebungen zu vermeiden, so verringert sich das verfügbare Leervolumen, und es ist dann eine größere Stablänge für die Unterbringung des Getters notwendig (Abb. 14). Bei einem Stützrohr der Abmessungen 5 mm x 0,25 mm und einer $2rO_2$ -Enddichte von 50% vergrößert sich die Stablänge auf 5,1 cm bis 6,6 cm.

Veröffentlichung:

O. Götzmann, P. Hofmann "Untersuchungen mit simulierten Spaltprodukten und UO₂ zum Verträglichkeitsverhalten von Brennstäben" KFK 1619, Juli 1972









1.4988 + U0 _{2.08}		800 [°] C / 500 h
Nb-Folie: 25 µm	20 µm	}{



1.4988 + U0_{2.30} 800⁰ċ/500 h Nb-Folie: 50 µm 20 µm ⊨−−−−4

Abb.12: Wirkung von Nb-Folien zwischen Brennstoff und Hüllmaterial als Sauerstoffgetter



Abb.13: Versuchsanordnung für die Oxidationsversuche mit Zr-Pellets in Hüllrohren aus 1.4988



Abb.14: Zr-Getterpatrone in einem Stabrohr aus 1.4988

<u>Thermodynamische Eigenschaften von Technetiumdioxid</u> (H. Kleykamp, IMF)

Das Sauerstoffpotential von Technetiumdioxid im Gleichgewicht mit seinem Metall liegt aufgrund von rohen Abschätzungen im Bereich des Sauerstoffpotentials im einphasigen Gebiet des Uran-Plutonium-Dioxids, so daß man im abgebrannten Brennstab eine Aufoxidation des Spaltprodukts Technetium erwarten könnte, wenn nicht dessen Aktivität durch Bildung einer intermetallischen Phase mit anderen Spaltprodukten abgesenkt würde. Um genauere Werte für die Stabilität des Technetiumdioxids zu erhalten, wurde die freie Bildungsenthalpie von Oxiden der 4d- und 5d-Elemente bestimmt, die dem Technetium im Periodensystem benachbart sind.

Die durch Messung elektromotorischer Kräfte an galvanischen Festkörperketten gewonnene Bildungsenthalpie und -entropie der Oxide weisen sowohl in den Gruppen als auch in den Reihen des Periodischen Systems einen typischen Gang auf, so daß die thermodynamischen Daten des Technetiumdioxids durch Interpolation mit geringem Fehler angegeben werden können. Zur Berechnung wurden eigene Messungen an den Oxiden RuO_2 [1,2], Rh_2O_3 [3], PdO [4], ReO_2 [5], OsO_2 [6] und IrO_2 [7] sowie neuere Ergebnisse über MoO_2 [8,9], RuO_2 [10] und WO_2 [8] verwendet. Die freie Bildungsenthalpie (in cal/mol O_2) der genannten Oxide beträgt:

^f ∆G°⟨MoO ₂ ⟩	=	-142480-9,718.T.logT	+74,49•T	(298-2000	K)
$^{f}\Delta G^{o}\langle RuO_{2}\rangle$	=	- 74220-9,465•I•log	T+70,94•T	(298 - 1853	K)
$f \Delta G^{\circ} \langle \frac{2}{3} Rh_2 O_3 \rangle$	=	- 71000	+51,0 •T	(298 - 1398	K)
$^{f}\Delta G^{\circ}\langle 2Pd0\rangle$	=	- 59320-12,51.T.log	T+90,0°T	(298 - 1146	K)
$^{f}\Delta G^{o} \langle WO_{2} \rangle$	=	-142330-8,447.T.log	T+70,32•T	(298 - 2000	K)
$^{\mathrm{f}}\Delta \mathrm{G}^{\mathrm{o}}$ (ReO_{2})	=	-107570-5,16.T.logT	+61,40°T	(298 - 1300	K)

$${}^{f}\Delta G^{\circ} \langle 0s0_{2} \rangle = -69800 +42,5.T$$
 (298-1200 K)
 ${}^{f}\Delta G^{\circ} \langle Ir0_{2} \rangle = -57600-3,56\cdotT\cdot \log T+52,4\cdot T$ (298-1397 K)

Aus den zwischen 900 und 1100 K experimentell gewonnenen Ergebnissen erhält man durch Interpolation für Technetiumdioxid bei 1000 K die Werte ${}^{f}\Delta H_{1000}^{o}\langle \operatorname{TcO}_{2}\rangle = -106,5 \text{ kcal/mol und } {}^{f}\Delta S_{1000}^{o}\langle \operatorname{TcO}_{2}\rangle$ = -41,0 cal/K·mol.

Bei Raumtemperatur ergibt sich ${}^{f}\Delta H_{298}^{o} \langle \text{TcO}_{2} \rangle = -110 \pm 3 \text{ kcal/mol}$ und $S_{298}^{o} \langle \text{TcO}_{2} \rangle = 11,7 \pm 1,0 \text{ cal/K-mol}$ und zwischen 298 und 1500 K ${}^{f}\Delta G_{T}^{o} \langle \text{TcO}_{2} \rangle = -109000 + 42,0 \cdot \text{T} \text{ [cal/mol]}$. Technetiumdioxid zersetzt sich peritektisch oberhalb 1500 K.

Literatur

[1]	H. Kleykamp, Z. physik. Chem. NF 66 (1969) 131
[2]	J.I. Franco, H. Kleykamp, unveröffentlicht
[3]	H. Kleykamp, Z. physik. Chem. NF 67 (1969) 277
[4]	H. Kleykamp, Z. physik. Chem. NF 71 (1970) 142
[5]	J.I. Franco, H. Kleykamp, Ber. Bunsenges. 75 (1971) 934
[6]	J.I. Franco, H. Kleykamp, Ber. Bunsenges. 76 (1972) 691
[7]	H. Kleykamp, L.J. Paneth, J. Inorg. Nucl. Chem. im Druck
[8]	E.G. King, W.W. Weller, A.U. Christensen, BMRI-5664 (1960)
[9]	R.A. Rapp, Trans. Met. Soc. AIME 227 (1963) 371
[10]	D.R. Fredrickson, M.G. Chasanov, J. Chem. Eng. Data 17 (1972) 21

Veröffentlichung:

Vg1. <u>/</u>6_7

1121.4 Mikrosondenuntersuchungen

Nachbestrahlungsuntersuchungen mit der Mikrosonde am Trefoil DFR 304 (H. Kleykamp, H.-D. Gottschalg, G. Halm, IMF)

Mit der abgeschirmten Cameca-Mikrosonde wurden die Nachbestrahlungsuntersuchungen am Trefoil DFR 304 fortgesetzt (Brennstoff Pu_{0,2} $U_{0,8}O_2$ mit 93% U²³⁵ im Uran, Hüllmaterial Stahl 1.4988, schneller Fluß). Die Analyse der Probe 1 am unteren, heißen Ende des Stabs G 1 (Abbrand etwa 4,7%,für Endstableistung berechnete Hüllinnentemperatur 610[°]) bezog sich auf die bisher nicht beobachtete Zentralkanalschmelze und die Reaktionen mit dem Hüllmaterial.

Mit der Mikrosonde konnten in der Zentralkanalschmelze mindestens vier Phasen identifiziert werden (Abb. 15): Weisse dendritische Ausscheidungen, die nur Spaltstoff enthalten. Die "Matrix", in der zwei Phasen, eine hellgraue und eine dunkelgraue, unterschieden werden können; in beiden Fällen handelt es sich um Ba-Mo-Nb-Oxide verschiedener Zusammensetzung. In der "Matrix" ist weiterhin die wohlbekannte metallische Phase eingelagert, die die Elemente Mo, Tc, Ru und Rh enthält.

Die Analyse des bis zu 80 µm tiefen Hüllmaterialangriffs (Abb. 16) ergibt an der Grenze zum Brennstoff eine Fe-Ni-Schicht, der sich eine chromreiche, dann eine chromarme Schicht anschließt. An der Grenze zum unbeschädigten Hüllmaterial wurden Einschlüsse aus Caesium-Chromat, -Molybdat und -Manganat beobachtet. Die Caesium-Konzentration steigt an der Reaktionsfront an der Grenze zum unbeschädigten Hüllmaterial stark an, ein durch dieses Spaltprodukt induzierter oxidierender Korngrenzenangriff des Hüllmaterials konnte gezeigt werden. 11**2-**40



Abb. 16

Abb. 15

1121.6 Spezielle Auswertungsmethoden für bestrahlte Proben

1. Strukturanalyse des bestrahlten Brennstoffes

/durchgeführt an Brennstabproben des Bestrahlungsexperimentes Mol-7A/ (H. Hoffmann, IMF)

Für die Untersuchungen wurde aus dem 7-Stab-Bündel der innere Stab (Stab Nr. 1) und, stellvertretend für alle äußeren, Stab Nr. 3 herangezogen. Den Brennstäben wurden 4 (Stab Nr. 1) bzw. 3 (Stab Nr. 3) Proben entnommen und für die spezielle Nachuntersuchung präpariert. Die Strukturanalyse umfaßte die Ermittlung der radialen Rißvolumenverteilung (durch Ausmessen der Risse an geeigneten fotografischen Abzügen) und der radialen Porositätsverteilung (durch elektronische Auswertung von "Panoramaaufnahmen" mit dem Gefügebildanalysator). Beide Methoden zusammen erlauben eine genaue Durchführung der Leervolumenbilanz, d.h. einen Vergleich des Gesamtleervolumens vor und nach der Bestrahlung.

Sowohl die Riß- als auch die Porenvolumenverteilung wurde mit dem Rechenprogramm SATURN $\int 1_{-}^{-1}$ ermittelt. Der Wanderung der Sinterporen lag das Verdampfungs-Kondensations-Modell und die von Nichols aufgestellte Geschwindigkeitsrelation zugrunde. Überschritt die Änderung des Temperaturgradienten die vorgegebene untere Schranke von 5°C/h und war die mittlere Temperatur der Brennstoffzone, die aufreißen konnte, kleiner als eine vorgegebene Grenztemperatur von 1000°C, so riß der Brennstoff auf. Die Rißfläche selbst wurde durch Vergleich der Brennstoff-Ringelement-Flächen vor und nach der Ausdehnung berechnet. Es wurde nicht berücksichtigt:

- die zyklische Bestrahlungsgeschichte,
- das Schwellen des Brennstoffes durch gasförmige und feste Spaltprodukte,
- die Veränderung der Wärmedurchgangszahl im Spalt durch sich bildendes Spaltgas.

Abb. 17 zeigt eine typische Rißvolumenverteilung (Treppenkurve) und den errechneten Verlauf. Man erkennt deutlich 2 verschiedene Rißtypen: den radialen Abkühlungsrißtyp, der von innen nach außen verläuft, und den



P

während der Bestrahlung bestehenden Rißtyp in der Außenzone, Beide Typen superponiert ergeben den dargestellten Verlauf. Zwischen Experiment und Theorie ergab sich bezüglich der Tendenz recht gute Übereinstimmung: von außen nach innen steigt das Rißvolumen ein wenig an, fällt zu einem Minimum hin ab, um dann zum Zentralkanal hin wieder stetig anzusteigen. Im Rahmen der Fehler ergab sich bezüglich der Absolutwerte eine Übereinstimmung für das Außenrißvolumen und für die Außenrißtiefen (Abb. 18). In dieser Darstellung sind die Werte (r_-R), wobei r = Außenradius des Brennstoffes und R = Rißtiefe der äußeren Risse ist, aufgetragen. Für die errechneten Werte wurde der Tangentenschnittpunkt und für den experimentellen Vergleichswert der Wendepunkt der durch die Treppenkurve hindurchgelegten Ersatzkurve herangezogen. Abb. 18 zeigt für den Radius (r_-R) einen linearen Zusammenhang mit der Stableistung. Abb. 19 läßt ebenso zwischen Außenrißvolumen und Stableistung einen linearen Zusammenhang erkennen; dies gilt nur für die rechnerischen Werte, da die statistischen Schwankungen der Meßwerte zu groß sind.

Abb. 20 gibt eine typische Porenvolumenverteilung wieder. Gegenüber den Kurzzeitbestrahlungen, die zwischen Experiment und Theorie eine recht gute Übereinstimmung zeigten (1), ergeben sich hier gravierende Diskrepanzen. Diese sind aber nicht auf eine unkorrekte Geschwindigkeitsrelation, oder ein falsches Transportmodell der Poren zurückzuführen, sondern auf andersartige Effekte, die mit der Porenwanderung nichts zu tun haben:

- Die Diskrepanz der Zentralkanalradien läßt sich durch axialen Materialtransport im Bereich des Zentralkanals (über Verdampfung-Kondensation) erklären; dies wird durch Abb. 21 bestätigt. Die Leervolumenbilanz zeigt für diesen Stababschnitt eine Zunahme des Gesamtleervolumens nach der Bestrahlung, welches sich in der Vergrößerung des Zentralkanals bemerkbar macht.
- Im Bereich der Stengelkornzone zeigt das Experiment einen Porositätsanstieg, der durch die Rechnung nicht verifiziert wird. Dies dürfte durch die Bildung von Spaltgasblasen und deren Wanderung zum Zentralkanal zu erklären sein.



112-44





Abb. 21 Gesamtleervolumina vor und nach der Bestrahlung für Prüflingsproben von 10 mm Höhe

 In der Außenzone ist sogar das ursprüngliche Porenvolumen, in dieser Zone dargestellt durch die errechnete Kurve, abgebaut.
 Dies kann man durch Kriechen des Brennstoffes in die Poren dieser "kalten" Zone deuten. Abgeschätzte Schwellraten dieses Effektes liegen zwischen 0,6 und 0,9 % / % Abbrand.

Abb.21 gibt die Leervolumenbilanz wieder; sie enthält das diametrale Spalt-, das Zentralkanal-, das Riß- und Porenvolumen vor (horizontales Streuband) und nach (konvex gekrümmtes Streuband) der Bestrahlung. Während der Bestrahlung ergab sich eine Leervolumenumverteilung, deren Endverteilung mit der Stableistung in linearem Zusammenhang zu stehen scheint. Im Bereich der höchsten Zentraltemperaturen (ungefähr in der Stabmitte) hat sich das Gesamtleervolumen vergrößert, an den Enden verkleinert bzw. nicht geändert.

Zur Deutung der Gesamtleervolumenzunahme und deren Umverteilung müssen mehrere Mechanismen herangezogen werden:

- a) Leervolumengewinn
 - Bildung von Spaltgasblasen
 - Auffüllung des diametralen Spaltvolumens durch das Gasplenum
- b) Leervolumenumverteilung
 - Poren- bzw. Blasenwanderung
 - Axiale Materialtransporte im Bereich des Zentralkanals über Verdampfung und Kondensation
 - Transport des diametralen Spaltvolumens zum Zentralkanal
 - α) über das Gasschwellen
 - B) durch spontanes Ausheilen der gebildeten Risse
 - γ) durch Abtransport der Risse über Linsenblasen

 Brennstabnachbestrahlungsuntersuchungen von UO₂-PuO₂-Gefügen Versuchsgruppe FR 2-4a (G. Ondracek, IMF)

Die Untersuchungen zur Leervolumenanalyse von bestrahlten Brennstäben sollen Aussagen über das Verhalten von Brennelementen ermöglichen und gehören damit zu den Grundlagen für die Brennstabmodelltheorie / 1_7. Die technisch wichtigen Fragen lassen sich in den folgenden Problemkreisen zusammenfassen:

- Zu welchem Anteil steht das Spaltvolumen zwischen Brennstoff und Hülle für die Brennstoffschwellung zur Verfügung?
- 2. Zu welchem Anteil und bis zu welchem Abbrand ist das Sinterporenvolumen für den schwellenden Brennstoff zugänglich?
- 3. Steht das mit steigendem Abbrand zunehmend in den Zentralkanal verlagerte Leervolumen zur Kompensation der Brennstoffschwellung bei höherem Abbrand zur Verfügung?
- 4. Welche Veränderung der Wärmeleitfähigkeit und damit des Temperaturgradienten im Brennstoff sind durch Leervolumenverlagerung zu erwarten?
- 5. Welche Mechanismen liegen der Kinetik der Leervolumenverlagerung zugrunde?

Die zur Beantwortung dieser Fragen erforderlichen Messungen betreffen das Spalt-, Poren-, Riss-und Zentralkanalvolumen und ihre Zuordnung zum Abbrand. Gemessen wurden im vergangenen Quartal die Poren- und Rissvolumina an bestrahlten Gefügen der Versuchsgruppe FR 2-4a $\frac{1}{2}$. Die Messungen sollten insbesondere zur Beantwortung der Zielfragen 2 bis 4 beitragen. Zum Messverfahren und zur Zielfrage 5 liegen bereits Berichte vor $\frac{1}{3}$ bis 5 $\frac{1}{7}$, (1).

Zur vierten oben gefragten Zielsetzung ist zu erwähnen, daß die Porenverteilung das Verhalten des Elementes mitbestimmen wird. Im Betrieb wird das durch Spaltgase erzeugte Porenvolumen im heißen Bereich des Brennstoffs kontinuierlich zum Zentralkanal abwandern. In den kälteren Außenzonen des Brennstoffs dagegen dürfte die Porosität bei hohem Abbrand zunehmen. Eine verschlechterte Wärmeleitfähigkeit wäre die Folge. Dies wiederum würde den Temperaturgradienten verändern und damit die Gefügezonen, wie den rekristallisierten Bereich, den Bereich mit gerichtetem Kornwachstum und denjenigen mit

Stengelkristallen. Es ist beispielsweise möglich, daß durch Aufheizung des Brennstoffes die Stengelkristalle bis an den Rand des Brennstoffes wachsen $/\overline{6}$ $\overline{/}$. Ob unter solchen Bedingungen Brennstoffbereiche schmelzen, ist eine Frage, die über die Nachbestrahlungsuntersuchungen hinaus in das Gebiet der Reaktorsicherheit hineinreicht. - Die nach hohem Abbrand in den Poren der Außenzonen eingeschlossenen Spaltgase werden so lange Schwelleffekte verursachen, bis die Porosität hoch genug ist, um von einer diskontinuierlichen Porenanordnung zur kontinuierlichen Porenagglomeration überzugehen. In diesen Überlegungen liegt der Sinn der Ermittlung von Porenverteilungen im Brennstoff, wie sie hier vorgenommen wurden. Die Ermittlung absoluter Werte der Porenvolumina mit hoher Genauigkeit ist bislang vor allem durch Unsicherheiten in der Präparation und der mikroskopischen Aufnahmetechnik nicht sichergestellt. So wurde bereits festgestellt, daß unterschiedliche Poliermittel und die Polierdauer merklichen Einfluß auf den Absolutbetrag der Schliffporosität haben $\underline{/}3$, 7 $\overline{/}$. Hinzu kommt, daß das bisher verwendete Vibrationspolieren höhere Porositäten im Schliffbild hinterlässt, als das - bisher nicht benutzte - Polieren auf rotierender Scheibe. Auch die Verwendung von Papieren verschiedener Gradation im fotografischen Wiedergabeprozess spielt hier eine Rolle. Außerdem macht sich die unterschiedliche Verschleißfestigkeit von Hülle und Brennstoff am Spalt mehrfach nachteilig bemerkbar. Die Außenzone des Brennstoffs erreicht oft nicht die gleiche Schliffqualität, ist leicht ungleichmäßig poliert und erscheint infolge der Randverzeichnungen niedrig vergrößernder Objekte dunkel. Die dadurch vorgetäuschte "Porosität" ist im allgemeinen unecht. Diese Fehlerquellen wurden durch demonstrative Beispiele belegt / 2 7.

Aus diesen Gründen sind alle bisher mitgeteilten Absolutwerte zur Porosität systematisch fehlerbehaftet. Um sie mindestens teilweise zu kompensieren, wurden bei der Untersuchung der Versuchsgruppe FR 2-4a die für die verschiedenen Brennstoffbereiche im Schliff ermittelten Porositäten normiert. Es wurde ihr Verhältnis zur mittleren integralen Porosität des Schliffes gebildet. In Abb. 22 sind die normierten Porositäten für die verschiedenen Messbereiche über die Messbereichsposition im Schliff aufgetragen. Der Hüllinnenradius der Brennstabproben betrug 3,2 mm; die Messbereichsfolge war nach innen durch den Zentralkanal begrenzt. Die Streubreite bei den einzelnen Positionen ist sehr groß und nicht abbrandzugeordnet; d.h. daß aus den bisherigen Ergebnissen keine hinreichend sichere Aussage über die Porositätsverteilung in Abhängigkeit von Ort und Abbrand gegeben werden kann. Die vorn angeschnittene Frage, ob bei höherem Abbrand die Porosität in der kälteren Außenzone wächst, bleibt daher vorläufig weiterhin offen.

Jetzt laufende Messungen betreffen das Zentralkanalvolumen. Seiner Genauigkeit kommt insofern besondere Bedeutung zu, als einen entscheidenden Gesichtspunkt der quantitativen Leervolumenanalyse das Verhältnis des Zentralkanalvolumens zu den sonstigen Leervolumenanteilen bildet. Die bisher erfolgte Ermittlung des Zentralkanalvolumens aus Messungen an Schliffbildern aber ist mit einem Fehler von mehr als \pm 30% behaftet, da die Ungenauigkeit für den Zentralkanaldurchmesser bei derartigen Messungen bereits \pm 15% beträgt <u>/</u>8_7.

Literatur zu 1121.6:

- <u>/</u>1_7 F. Depisch, H. Elbel, H. Kämpf Die Behandlung des mechanischen und thermischen Verhaltens von Brennstäben in SATURN 1 KFK-Bericht 1477 (1971)
- [²_7 G. Ondracek, K. Spieler unveröffentlichte Arbeit
- [3]7 H. Hoffmann, W. Hellriegel, K. Spieler Radiale Porenverteilung im bestrahlten Brennstoff in G. Ondracek Quantitative Bildanalyse mit elektronischen Bildanalysatoren KFK-Ext. Bericht 6/71-3, S. 81, 1971
- [4_7] H. Hoffmann, W. Hellriegel Spezielle Auswertemethoden bestrahlter Brennstoffproben KFK 1271/4, S. 112-20, 1972
- <u>/</u>5_/ H. Hoffmann Die Wanderung der Herstellungsporen KFK-1400, S. 161, 1971

- [6_7] A. Gerken
 persönliche Mitteilung, 1972
- [7]7 H. Enderlein, H. Hellriegel, R. Pejcsa Metallographische Präparation von hochaktiven keramischen Kernbrennstoffen KFK-Nachrichten, 3. Jg., 2/71, S. 26, 1971
- /8_7 W. Dienst

Leervolumenverlagerung in UO₂-PuO₂-Brennstäben unter Bestrahlung (Versuchsgruppen FR 2-4a und Mol - 7A) UnveröfftL Bericht, 1972, und KFK-Bericht 1272/1, S. 112-23, 1972

Veröffentlichung zu 1121.6:

H. Hoffmann, W. Hellriegel
 Radiale Porenverteilung kurzzeitig bestrahlter Brennstab Prüflinge
 Atomwirtschaft-Atomtechnik Nr. 6, S. 317, 1972



112-52

1122 <u>Bestrahlungsexperimente - Oxid</u> (Parametertests)

1. Bestrahlungsexperimente im FR 2 (Oxidbestrahlungen)

(D. Freund, IMF)

Übersicht

Nach Ablauf der Bestrahlung von Testbrennstäben mit UO₂/PuO₂-Brennstoff der Kapselversuchsgruppe 5b wird eine Darstellung der bisher im FR 2 durchgeführten Bestrahlungsexperimente im Rahmen des Entwicklungsprogrammes des SNR-300 gegeben. Sie enthält neben den Aufgaben und Zielen der einzelnen Kapsel- und Loop-Versuchsgruppen die wichtigsten Einzelheiten der Auslegung, Spezifikation und Herstellung der einzelnen Prüflinge, der Bestrahlungseinrichtungen sowie des Bestrahlungsablaufes und der Nachuntersuchungen, soweit diese bisher durchgeführt wurden, und die in der folgenden Übersicht zusammengefaßt sind.

	Versuchs- Anzah gruppe Prüfl		Brennstab				Betriebsbedingungen			
		Anzani Prüflinge	Material	Form	Dichte (%th.D.)	Anreicherung (Gew%)	Hülle (Abm.)	Hülltem. ^T Ha max.([°] C)	Stableistung X (W/cm)	Abbrand Ā (Mwd/kg)
	l	24	002,002-Mo	Tabl., Pulver	91 85	12,5 U-235	1.4550 12 x 1,0	375 - 480	370 - 480	0 - 8,1
	2	31	U02, U02-Ce02	Tabl., Pulver	92, 77, 85	2, 3.4 V-235	1.4541 (10x0,7) 1.4988 (12x1)	340 - 510	300 - 500	0,3 - 19
	3	34	U02 U02-Ce02	Tabl., Pulver	92 85	11,5 U-235	CrN1Nb 2025 (7,4x0,5) 1.4988 (7,4x0,5)	412 -588	487 - 754	5,6 - 86
Bestrahlungskapseln	4a.	28	002-Pu02	Tabl.	92 85	15	1.4988 (7,4x0,5)	425 - 600	512 - 701	10,3 - 85,2
	4b	35	002-Pu02	Tabl., Pulver	84, 90 80	20	1.4988 (6x0,38)	445 - 800	424 - 770	9,7 - 110
	4c	12	002-Pu02	Tabl.	93	20	1.4970 1.4981 1.4981/Bor (6x0.38)	510 - 827	323 - 666	45 - 54
	5a	9	^{U0} 2-Pu02	Tabl.	84, 87 90, 93	19,5	1.4988 (7x0,4)	598 - 756	500 - 657	5,8 - 49,4
	5b	18	002-Pu02	Tabl.	86	35	1.4988 (4,7x0,3	394 - 515	411 - 553	24,7 - 117
FR 2 - He - Loop	1	11	υο ₂	Tabl., Pulver	81 86	4,2 7,8 U-235	1.4541 (10x0,7)	400 - 520	460 - 655	(5a - 24a)
	2	43	UO2	Tabl., Pulver	88-93 85	7,5 V-235	1.4988 (12x1)	440 - 580	370 -1000	(lo min - 10 d)
	2 Z	13	00 ₂	Tabl., Pulver	91 86	4,2 7,8 U-235	1.4541 (10x0,7)	460 - 550	500 - 715	(2d - 17d)
	3	34	^{UO} 2-PuO2	Tabl.	83 90	11,5	1.4988 (10x0,7)	425 - 500	400 -1000	(4h - 29d)

Nach den einführenden Versuchsgruppen 1 und 2, die in der Hauptsache zur Entwicklung einer Na- bzw. NaK-PbBi-Doppelkapsel führten, wurden in der Versuchsgruppe 3 Brennstabprüflinge mit UO_2 - und UO_2 -CeO₂-Brennstoff als Vorstufe zu UO_2 -PuO₂-Mischbrennstoff bestrahlt. Hierbei zeigte es sich, daß CeO₂ aufgrund seiner physikalisch-chemischen Eigenschaften keine geeignete PuO₂-Simulation darstellt. Die folgenden Bestrahlungsgruppen enthalten sämtlich UO_2 -PuO₂-Brennstoff. Die Ergebnisse dieser Experimente, deren Nachuntersuchung und Auswertung in vollem Gange ist, zeigen, abgesehen von wenigen Brennstabdefekten, deren Ursache in den meisten Fällen im Fehlverhalten der Bestrahlungskapseln zu suchen ist, ein sicheres Funktionieren der Prüflinge bis zu sehr hohen Abbränden.

Die Kurzzeitbestrahlungen in den sog. Loop-Versuchsgruppen, die in der Bestrahlungsvorrichtung des FR 2-Helium-Kreislaufes durchgeführt wurden, gestatten Aussagen über die zeitlichen Brennstoffstrukturänderungen sowie über das Verhalten von Brennstabprüflingen bei zyklischer Bestrahlung und bei sehr hohen Stableistungen. Die zyklische Bestrahlung führt bei den in der Loop-Versuchsgruppe 2Z spezifizierten Prüflingen zu keinen wesentlichen Dimensionsänderungen, ebenso bleiben Prüflinge der Versuchsgruppe 2 und 3, die bei Stableistungen bis zu 1000 W/cm bestrahlt wurden und bei denen zentrales Schmelzen beobachtet wurde, intakt.

Anwendung des Rechenprogramms SATURN 1

Die quantitative Beschreibung des Verhaltens von Brennstäben unter Bestrahlung ist Ziel der modelltheoretischen Untersuchungen. Mit Hilfe des Rechenprogramms SATURN 1 wurde die Lebensgeschichte einiger Prüflinge der Kapselversuchsgruppe 4a nachvollzogen. Die Rechnungen zeigen, daß der größte Anteil des Zentralkanals bei Bestrahlung mit Stableistungen > 450 W/cm entsteht, während bei Stableistungen um 300 W/cm die Porenwanderung auf Grund des flachen Temperaturprofils nur einen sehr geringen Beitrag selbst über längere Zeiten liefert. Der Vergleich zwischen rechnerisch und experimentell (keramografische Nachuntersuchung) ermittelter Materialstruktur zeigt für Prüflinge mit einfacher und kurzer Bestrahlungsgeschichte völlige Übereinstimmung, während bei Prüflingen mit komplizierterem Bestrahlungsablauf Abweichungen bis 30 % auftreten, welche im wesentlichen im Einfluß des Wärmeübergangs bei Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle auf die Temperaturverteilung zu suchen sind. Weitere Untersuchungen zu diesem Problem werden durchgeführt.

Brennstabauslegung und Bestrahlungsexperimente

Die aus den bisherigen Bestrahlungsexperimenten gewonnenen Erkenntnisse führen zu der Annahme, daß chemische Wechselwirkungen zwischen Brennstoff und Hülle infolge Stöchiometrieverschiebung und Spaltprodukttransport als lebensbegrenzende Faktoren der Oxidbrennstäbe anzusehen sind. Zu diesem Problemkreis sind Arbeiten zur Auslegung und Spezifikation zweier Bestrahlungsexperimente im FR 2 (<u>Kapselversuchsgruppe 8</u>) und ER 2 (<u>Versuchsgruppe</u> <u>Mol-16</u>) aufgenommen worden. Neben der Untersuchung unterschiedlicher Stöchiometrien und Sauerstoffgetter an Kurzproben in einem Bestrahlungseinsatz (Mol-16), einem "integrierten Stöchiometrieexperiment", sollen in der Versuchsgruppe 8 im FR 2 Brennstäbe ebenfalls unterschiedlicher Stöchiometrien mit jedoch ca. 500 mm Brennstoffsäule zur Untersuchung axialer Transporterscheinungen bestrahlt werden.

Die Messung der Brennstoffzentraltemperatur oxidischen Mischbrennstoffs als Funktion der Zeit bzw. des Abbrandes ist Aufgabe der Bestrahlungsexperimente im Rahmen der Versuchsgruppe Mol-8D im ER 2. Die Auslegungsrechnungen hierzu werden erstmals mit dem Rechenprogramm SATURN 1 durchgeführt.

Neben diesen Arbeiten zur Auslegung von Brennstabprüflingen für Bestrahlungsexperimente liegen weitere Aktivitäten in Anwendungen von SATURN 1 bezüglich des Brennstabverhaltens von gas- und dampfgekühlten schnellen Reaktoren im Rahmen einer Studie zur Vergleichbarkeit dieser beiden Reaktortypen. (Teilprojekt128)

Veröffentlichungen:

- (1)D. Freund: Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der Oxidbrennstabproben im FR 2, KFK 1376, Mai 1972
- (2)D. Freund, Th. Dippel, K. Kummerer: Das Verhalten von UO₂/PuO₂-Brennstabprüflingen unter Bestrahlung im thermischen Fluß bis zu sehr hohen Abbränden, Vortrag gehalten auf der Reaktortagung Hamburg, ll. - 14. April 1972

2. Untersuchungen zum Kriechen und Schwellen

Einfluss von Druck und Temperatur auf das bestrahlungsinduzierte Kriechen von UO₂ (D. Brucklacher, IMF)

Zur Untersuchung des Kriechverhaltens von keramischen Kernbrennstoffen unter Neutronenbestrahlung wurde vom CEA, Grenoble, im Auftrage der GfK die Kriechkapsel vom Typ Confluent entwickelt / 1_7. Die erste Kapsel (Mol 12/A1) wurde im Herbst 1970 im BR 2 getestet. Der Versuch diente der Erprobung des Längenmeßsystems, das mit elektromagnetischen Mikrowellen und einem Hohlraumresonator, dessen Länge durch die Probenverformung verändert wird, arbeitet. Sowohl für das Meßsystem als auch für das Druckbelastungssystem konnte die Funktionsfähigkeit nachgewiesen werden.

Zur Messung der bestrahlungsinduzierten Kriechgeschwindigkeit von hochdichtem UO₂ wurde seit August 1971 die Kapsel Mol 12/A2 bestrahlt. Sie wurde wegen einer Störung im Meßsystem nach ca. 5000 h reiner Betriebszeit Anfang August 1972 ausgebaut. Bis zu diesem Zeitpunkt wurde in der Probe ein Abbrand von ca. 8,5% erreicht. Es ist noch nicht geklärt, ob die Störung am Meßsystem behoben und die Kapsel weiterbestrahlt werden kann. Der folgende Zwischenbericht stellt eine kurze Zusammenfassung der wichtigsten bisher mit diesem Experiment erhaltenen Ergebnisse dar.

Bestrahlt wurde in einer Stapelanordnung aus Brennstoff- und Mo-Scheibchen stöchiometrisches UO₂ mit 96 ± 1% der theoretischen Dichte und einer Korngröße von 10 µm bei wechselnden Versuchsbedingungen. Die Temperatur wurde durch Austausch des Gases (He, Ne, N₂) im Spalt der thermischen Barriere der Kapsel bei konstanter Spaltungsrate im Bereich zwischen 250 und 500 °C variiert. Die Probe wurde axial mit Drücken von 0,1 bis 4 kp/mm² belastet. Die Uran-Spaltungsrate betrug 6×10^{-9} Spaltungen/Uranatom·s bis zu einem Uran-Abbrand von ca. 2,5% und nahm mit höherem Abbrand auf ca. 3,5 x 10^{-9} Spaltungen/Uranatom·s ab. Die Versuchsbedingungen wurden jeweils nach 100 - 250 h geändert.

Abb. 23 zeigt die im Abbrandbereich von 0,25 bis 2,5% bei verschiedenen Temperaturen gemessenen Längenänderungsgeschwindigkeiten in Abhängigkeit von der axialen Druckspannung. Die positiven $\mathfrak{dl}/\mathfrak{dt}$ -Werte bei tiefen Temperaturen und bei niedrigen σ -Werten sind auf die Spaltproduktschwellung des UO₂ zurückzuführen. Die aufgetragenen Meßpunkte stellen die stationären Verformungsgeschwindigkeiten für die einzelnen Versuchsbedingungen dar. Sie wurden für den Abschnitt der Meßkurven ermittelt, bei dem die durch Lastwechsel hervorgerufene elastische Nachwirkung nicht mehr zu einer sich mit der Zeit ändernden Verformungsgeschwindigkeit führt. In Abb. 24 ist die eigentliche stationäre Kriechgeschwindigkeit für verschiedene Spannungen über 1/T aufgetragen. Die Werte für die Kriechgeschwindigkeit ergaben sich als Differenz aus der linearen Schwellgeschwindigkeit von UO₂ durch Einlagerung von Spaltprodukten bei Nullspannung und der tatsächlich gemessenen Längenänderungsgeschwindigkeit. In Abb. 24 sind außerdem die spannungsnormierten stationären Kriechgeschwindigkeiten eingezeichnet.

Die Lage der Meßpunkte in Abb. 23 und Abb. 24 zeigt, daß die bestrahlungsinduzierte Kriechgeschwindigkeit linear von der Spannung abhängt und mit steigender Temperatur steigt. Die Zunahme ist jedoch gering im Vergleich zum Anstieg der rein thermisch bedingten Kriechgeschwindigkeit mit abnehmendem 1/T bei hohen Temperaturen. Die für die bestrahlungsinduzierte Kriechgeschwindigkeit errechnete Aktivierungsenergie von nur 5,2 Kcal/mol deutet darauf hin, daß die Temperaturabhängigkeit von der Wanderung von Gitterfehlern bei der Ausheilung in stark gestörten Gitterbereichen herrühren dürfte.

Die bestrahlungsinduzierte Kriechgeschwindigkeit $\tilde{\epsilon}^{*}$ in UO₂ kann bei hohen Abbränden zwischen 0,25 und 2,5% für den untersuchten Temperaturbereich bis 500 ^OC durch die Beziehung

 $\frac{-5200}{RT}$ $\varepsilon^{*} = (0,56/kp \text{ mm}^{-2}) \text{ e } \cdot \sigma \cdot R$

wiedergegeben werden, wenn σ die Spannung und R die Uran-Spaltungsrate in Spaltungen pro Uranatom und Zeiteinheit ist. Die näherungsweise Proportionalität zwischen Spaltungsrate und Kriechgeschwindigkeit wurde in früheren Experimenten nachgewiesen.

Bei Abbränden oberhalb 3 bis 4% erhöht sich der Spannungsexponent für die bestrahlungsinduzierte Kriechgeschwindigkeit von n = 1 auf n = 1,5. Der Wert für die Aktivierungsenergie wird niedriger. Es scheint ein anderer Kriechmechanismus vorzuliegen. Bei Abbränden zwischen 5,5 und 8.5% wurden keine weiteren Änderungen der Kriechgeschwindigkeit beobachtet.

Literatur

[1]/ D. Brucklacher, W. Dienst Einfluß von Druck und Neutronenfluß auf das Kriechen des Brennstoffes KFK 1271/4, S. 112-24, 1972





 <u>Chemische Reaktion zwischen Brennstoff und Hülle in der Versuchs-</u> gruppe FR 2 - 4a (O. Götzmann, P. Hofmann, IMF)

In dieser Versuchsreihe sollte das Bestrahlungsverhalten in Abhängigkeit vom Abbrand und der Tablettendichte untersucht werden. Die Abbrandwerte lagen zwischen 10 und 90 MWd/kg; die Tablettendichten betrugen 85 und 92% TD.

Der Hüllangriff hing deutlich von den (berechneten) Hüllwandtemperaturen der Stäbe ab. Starker Angriff konnte immer dann beobachtet werden, wenn über längere Zeit die Hüllwandtemperatur über 500 °C lag (Abb. 25, 26). Die Hülltemperaturen haben sehr wahrscheinlich 600 °C kaum überschritten. Unterhalb 500 °C ist kein nennenswerter Angriff erfolgt. Ein deutlicher Einfluss des Abbrandes auf den Hüllangriff ist nicht festgestellt worden. Auch die Tablettendichte war ohne Einfluss auf das Verträglichkeitsverhalten mit der Hülle.

Vergleicht man die Hüllreaktionen der Prüflinge dieser Versuchsgruppe mit denen von DFR 304 und von Mol 7A⁺⁾, dann hat man den Eindruck, daß die Temperaturangaben für FR 2-4a etwas zu tief liegen. Die hier stellenweise beobachteten Hüllangriffstiefen würden besser in das bisher gewonnene Bild der Verträglichkeit Brennstoff/Hülle passen, wenn die dazugehörigen Hüllmaterialtemperaturen um etwa 50 °C höher lägen.

+) P. Hofmann, O. Götzmann KFK 1272/1, S. 112-29



Abb. 25: Hüllangriff im Stab B 10 des KVE 33 (oberer Brennstoffbereich) max.Hüllinnentemperatur 575⁰C



200 x

Abb. 26: Hüllangriff im Stab 4 A 8 des KVE 36 (oberer Brennstoffbereich) max. Hüllinnentemperatur 560°C

Brennstofftransport unter Uran/Plutonium-Entmischung (W. Dienst, IMF)

Bei der Nachuntersuchung von bestrahlten Oxidbrennstoffstäben wird unter anderem die Verlagerung des Leervolumens in den Brennstäben (ursprünglich im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle sowie in den Brennstoffporen) während der Bestrahlung sorgfältig analysiert. Der ermittelten Leervolumenverlagerung entspricht ein gegenläufiger Brennstofftransport. Es darf nicht übersehen werden, daß sich dabei neben dem Transport des (U,Pu)0₂-Mischoxides auch eine U/Pu-Entmischung ergibt.

Deren Erscheinung wird in der Säulenkristallzone am Rande des Zentralkanals bestrahlter $(U,Pu)0_2$ -Brennstäbe regelmäßig beobachtet $\int 1_2 \overline{7}$. Die U/Pu-Entmischung in $(U,Pu)0_2$ -Proben unter der Einwirkung eines steilen Temperaturgradienten wurde auch in Laborversuchen nachgewiesen und durch einen Verdampfungs-Kondensationsmechanismus gedeutet $\int 2_2 \overline{7}$. Hier soll in Ergänzung des vorigen Vierteljahresberichtes $\int 3_2 \overline{7}$ auf Transportvorgänge unter U/Pu-Entmischung hingewiesen werden, die - im Gegensatz zur Porenwanderung in der Säulenkristallzone um den Zentralkanal - nur gelegentlich beobachtet werden. Sie werden in der äußeren Brennstoffzone und am Brennstoffrand sowie im Zentralkanal über größere Entfernungen in axialer Richtung wirksam. Zu diesen Vorgängen gehört auch das Schmelzen, Ablaufen und Erstarren von Brennstoff im zentralen Bereich überhitzter Brennstäbe.

Besondere, d.h. von der "normalen" Porenwanderung in der Säulenkristallzone verschiedene Brennstofftransportvorgänge wurden vor allem in bestrahlten UO_2 -PuO_2-Brennstäben der Kapsel-Versuchsgruppe FR 2-4a (Pu/U+Pu = 15%, O/M = 1,99) sowie in dem unter Überhitzung beschädigten UO_2 -PuO_2-Brennstab Mol-7A-4 aus dem 7-Stab-Bündel Mol-7A (Pu/U+Pu = 20%, O/M = 1,99) nachgewiesen. Der Nachweis stützte sich in erster Linie auf die in α -autoradiographischen Bildern erkennbaren Pu-Anreicherungen bzw. -Abreicherungen. Die bisher untersuchten bestrahlten Brennstäbe der Stabbündel-Einsätze Mol-7A (bis auf den Stab Mol-7A-4), DFR-304 und DFR-350 zeigten dagegen nur die gewöhnliche

<u>/</u>3_7 D. Geithoff, KFK 1272/1, 1972, S. 112-19 bis 23

^{/1}_7 H. Huber, H. Kleykamp, KFK 1324, 1971

^{/2}_7 M. Bober, G. Schumacher, C. Sari, KFK 1271/1, 1971, S. 112-7 bis 13

Pu-Anreicherung in der Umgebung des Zentralkanals. Die im folgenden dargestellten Brennstofftransportvorgänge unter U/Pu-Entmischung scheinen demnach überwiegend durch Besonderheiten der Kapselbestrahlungen im thermischen Neutronenfluss bedingt gewesen zu sein.

Radialer Transport in der äußeren Brennstoffzone

Bei sehr hoher Brennstofftemperatur tritt in der äußeren Brennstoffzone durch Verdampfungs-Kondensations-Vorgänge in Poren, die in Richtung des Temperaturgradienten wandern, eine ähnliche U/Pu-Entmischung ein, wie sie gewöhnlich in der Umgebung des Zentralkanals beobachtet wird. Abb. 27 zeigt im Randbereich der Brennstoffsäule den hoch verdichteten Saum, der durch den Kondensationsvorgang entstanden ist. Abb. 28 läßt erkennen, daß dieser Saum stark Pu-verarmt ist. Demnach erfolgte eine selektive Verdampfung des Oxidbrennstoffes mit erhöhtem U-Gehalt. Durch die Verdichtung des Brennstoffes am Rande ist innen eine sehr poröse Zone entstanden (Abb. 27). Eine hoch verdichtete Pu-verarmte Schicht kann auch durch Verdampfung und Kondensation des Brennstoffes an den einander gegenüberliegenden Grenzflächen von Rissen entstehen, die quer zum Temperaturgradienten verlaufen.

Transport entlang des Brennstoffumfanges

Bei ungleichmäßiger Temperaturverteilung entlang des Brennstoffumfanges erfolgt anscheinend auch ein peripherer Verdampfungs-Kondensations-Transport im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle. In Abb. 29 sind Bereiche, in denen Brennstoff durch Verdampfung abgebaut oder durch Kondensation angelagert worden sind, durch starke Pu-Anreicherung bzw. Pu-Verarmung erkennbar. Abb. 30 zeigt die zugehörige Gefügestruktur, in der sich der Pu-verarmte Kondensationsbereich (vor allem links oben) durch besonders geringe Porosität abhebt, soweit er nicht noch in der Randzone im Aufbau begriffen ist. Ein entsprechender Brennstofftransport über kleine Entfernungen am Brennstoffumfang kann nachweisbar zum Verschluß der breiten Risse in der äußeren Brennstoffzone führen.
Axialer Transport im Zentralkanal

Wenn an der Zentralkanaloberfläche eines Brennstabes ein Temperaturgradient in axialer Richtung besteht, kann durch Verdampfung und Kondensation ein Brennstofftransport entlang des Zentralkanals erfolgen. Bei den FR 2-4a-Bestrahlungen im thermischen Neutronenfluss war mit Leistungsspitzen und demzufolge mit Brennstofftemperaturspitzen an den Brennstabenden zu rechnen. Demnach könnte dort eine Erweiterung des Zentralkanals durch Brennstoffverdampfung erwartet werden, der eine Verengung in einem kälteren Abschnitt gegenübersteht. Dieser Erwartung entspricht der"Flaschenhals" des Zentralkanals in Abb. 27 und 28. Er war - z.T. viel stärker ausgeprägt - in mehreren Brennstäben der Versuchsgruppe FR 2-4a sowohl an oberen als auch an unteren Stabenden zu finden.

Ein Brennstofftransport entlang des Zentralkanals kann auch durch das Ablaufen einer Brennstoffschmelze von der Zentralkanaloberfläche erfolgen. Selbstverständlich ist dabei nur eine Materialverlagerung von oben nach unten möglich. Auch in diesem Fall tritt bei hinreichend schneller Erstarrung der ablaufenden Schmelze eine U/Pu-Entmischung auf, weil sich zu Beginn aus der $(U,Pu)O_2$ -Schmelze Pu-verarmte Mischkristalle bilden. Abb. 31 zeigt das Erstarrungsgefüge des vorübergehend geschmolzenen Brennstoffes im Brennstab Mol-7A-4. Die zugehörige α -Autoradiographie in Abb. 32 läßt den Pu-verarmten, zuerst erstarrten Anteil (an die Brennstoffrandzone angrenzender dunkler Saum in der linken Bildhälfte) und die Pu-angereicherte, später erstarrte Restschmelze (im zentralen Bereich und im rechten, während der Bestrahlung unteren Teil des Stababschnittes) erkennen.

Im Falle einer länger andauernden Überhitzung sammelt sich die Brennstoffschmelze am unteren Ende des Zentralkanals und führt dort zu einer zusätzlichen Steigerung der spezifischen Stableistung. Es scheint dann zu einer verstärkten U/Pu-Entmischung durch Brennstoffverdampfung aus der Schmelze zu kommen. Der mit selektiv erhöhtem U-Gehalt verdampfte Brennstoff kondensiert sich in einem kälteren Bereich des Zentralkanals oberhalb der Schmelze. Im $\sqrt{3}$ zeigten die dortigen Abbildungen 9 und 10 einen entsprechenden Effekt.

Eine Analyse der dargestellten Brennstofftransportvorgänge müßte vor allem die Frage beantworten, ob sie durch die U/Pu-Entmischung eine Selbstverstärkung ergeben können, die zur Bildung von Heißstellen (hot spots) an der Hülle und im Brennstoff führt.



Abb. 27: Axialer Längsschnitt vom oberen Ende der Brennstabprobe 38-4A/20 aus der Versuchsgruppe FR 2 - 4a (Vergr. 15x)



Abb. 28: a-autoradiographische Abbildung der Pu-Konzentrationsverteilung in Abb. 27



Abb. 29: α-autoradiographische Abbildung der Pu-Konzentrationsverteilung in einem Querschnitt in der Mitte der Brennstabprobe 41-4A/23 aus der Versuchsgruppe FR 2-4a



Abb. 30: Brennstoffgefügebild zu Abb. 29



Abb. 31: Erstarrungsgefüge von vorübergehend geschmolzenem Brennstoff in einem axialen Längsschnitt aus dem mittleren Bereich (dicht unterhalb der Schadenstelle) des Brennstabs Mol – 7A – 4 aus der Versuchsgruppe Mol-7A (Vergr. 15x)





1123 Abbrandbestrahlungen im schnellen Fluß

Experiment DFR-435 (D. Geithoff, IMF)

Die Dounreay-Folgebestrahlungen der DFR-435-Serie wurden mit dem DFR-Bestrahlungszyklus 71 abgeschlossen. Zur Bestrahlung gelangten insgesamt 8 Stäbe aus dem Bündel-Experiment DFR-350. In 5 Trefoils wurden die Stäbe in wechselnder Zusammenstellung in der Zeit vom 12.2.71 bis 22.2.72 bestrahlt, wobei die Einzelstäbe unterschiedliche Abbrände erzielten. Im Laufe der Bestrahlung fielen schließlich 5 der 8 anfänglich eingesetzten Stäbe durch Hüllrohrschäden aus. Das folgende Schema zeigt die erreichten Abbrandstufen mit den zugehörigen Stabanzahlen und Stab-Bezeichnungen.



Bereits nach dem ersten Zyklus fielen zwei Stäbe aus Als Schadensursache ist ein DFR-spezifischer Effekt, das sog. "gas blanketting" anzusehen, bei dem Gasblasen im Kühlmittel zu einer Hüllrohrüberhitzung mit darauffolgendem Stabriß führen. - Bei vier Stäben ist die Weiterbestrahlung zu einem Abbrand von 8,3 % erfolgreich gewesen. Erst danach haben sich beim Trefoil 435/7 Schäden gezeigt, die höchstwahrscheinlich das Ende der Lebensdauer dieser Stäbe signalisieren.

In Abb. 34 sind die Schadenstellen an den drei Stäben zu sehen. Es handelt sich jeweils um zwei Hüllrohrrisse, von denen der eine am unteren Ende im Bereich höchster Kühlmitteltemperatur, der andere im mittleren Säulenabschnitt unterhalb der maximalen Stableistungsebene aufgetreten ist. Alle Risse lagen im Trefoil nach innen zu gekehrt, so daß bei der visuellen Inspektion des Dreierbündels zunächst kein Defekt erkennbar war. Besonders ungewöhnlich war die Form der meisten Schäden. Die Stäbe schienen wie mit einem Messer aufgeschlitzt zu sein. Diese Beobachtung, verbunden mit der Tatsache, daß bei Stab G 16 beide Schlitze auf einer Längslinie angeordnet waren, ließ die Vermutung aufkommen, daß von außen dem Stab zugefügte Beschädigungen (Längsriefen bei Zwischenuntersuchungen oder Zusammenbau des Trefoils) mit auslösend für den Schaden waren.

In der Röntgendurchleuchtung (s. Abb. 35) zeigt sich, daß erhebliche Mengen von Brennstoff durch den Hüllrohrriß ausgetreten waren. Der vermißte Brennstoff wurde in einem Sieb (catchpot) unterhalb der Stäbe in Form von groben Stücken wiedergefunden. Bei einer visuellen Inspektion war zu sehen, daß über das in den Röntgenaufnahmen erkennbare Maß hinaus beinahe der gesamte Brennstoff stellenweise fehlte. Durch den Riß war die gegenüberliegende Innenseite der Hülle zu sehen. Eine Erklärung des Mechanismus der Brennstoffaustragung, die hier erstmals beobachtet worden war, steht noch aus. Die Stäbe werden zur Zeit störungsfrei weiter untersucht.





<u>y-spektrometrische Analyse des Brennstab-Bündels DFR-350</u> (E. Smailos, D. Geithoff, IMF)

Im Zuge der zerstörungsfreien Nachuntersuchung an den Brennstäben des Bestrahlungsexperiments DFR-350 wurde das Phänomen der Cäsium-Wanderung verfolgt. Hohe Aktivitätsspitzen in den integralen γ -Profilen der Brennstäbe weisen darauf hin, daß es zu einer starken Umlagerung der Spaltprodukte gekommen ist. Die γ -spektrometrische Analyse dieser Aktivitätsspitzen hat gezeigt, daß es sich um Anreicherungen von Cs¹³⁴, Cs¹³⁷ und Ru¹⁰⁶ handelt.

Anreicherungen von Cs¹³⁴ und Cs¹³⁷ waren sowohl innerhalb als auch außerhalb der Brennstoffsäule zu finden. Abb. 36 zeigt, daß innerhalb der Brennstoffsäule bei allen Brennstäben, die sich während der Bestrahlung in der Innenzone des rautenförmigen Bündels befunden haben, eine starke Anreicherung von Cs^{134} und Cs^{137} im oberen Bereich der Brennstoffsäule (Kühlmitteleintritt) vorliegt; dagegen besitzen die Brennstäbe, die während der Bestrahlung in den Aussenpositionen des Bündels gestanden haben, bis auf zwei Ausnahmen (G 4 und G 36) starke Anreicherungen von Cs¹³⁴ und Cs¹³⁷ im unteren Bereich der Brennstoffsäule (Kühlmittelaustritt). Die Außenstäbe des Bündels sind an ihrem Umfang ungleichmäßig gekühlt. Am Kühlmittelaustritt ergeben sich mitunter über den Umfang Temperaturunterschiede von über 100 °C. Vergleicht man die Aufheizspanne, die sich als Differenz von Kühlmitteleintrittstemperatur und der jeweiligen (maximal, mittel, minimal) Austrittstemperatur ergibt, mit den Cs-Anreicherungen an den Brennstoffsäulenenden, so ergibt sich folgendes Bild: Sowohl die inneren als auch die beiden äußeren Brennstäbe G 4 und G 36, die ihre maximale Cs-Anreicherung im oberen Bereich der Brennstoffsäule haben, zeigen eine minimale Aufheizspanne höher als 270 °C und haben somit einen größeren axialen Temperaturgradienten zwischen Eintritt (230 °C) und Austritt des Kühlmittels als die übrigen äußeren Brennstäbe mit einer minimalen Aufheizspanne niedriger als 270 °C.

Daraus läßt sich schließen, daß die unterschiedlichen axialen Temperaturgradienten zwischen Ein- und Austritt des Kühlmittels bei den verschiedenen Brennstäben eine Ursache für die ortswechselnde Cs-Anreicherung sind. Bei den Brennstäben mit einem größeren axialen Temperaturgradienten, d.h. bei den inneren Brennstäben und den beiden äußeren G 4 und G 36, wanderte das Cs zur kälteren Zone (oberer Bereich der Brennstoffsäule) und kondensierte dort, während bei einem kleineren Temperaturgradienten sich das Cs in der Brennstoffsäule verteilte, und zwar aus reaktionskinetischen Gründen mit der maximalen Anreicherung im heißen Bereich der Brennstoffsäule.

Über die Form, in der das Spaltcäsium im Brennstoff des Bündels DFR-350 vorliegt, läßt sich sagen, daß es zumindest im heißen Bereich der Brennstoffsäule wahrscheinlich in gebundener Form vorhanden ist, z.B. als Chromat (Cs $\underset{x yz}{cr_{yz}}$), da dort die Temperatur und das Sauerstoffangebot genügend groß sind (O/M = 2,0; mittl. Abbrand ca. 5,15 At.-%), und es somit zu Wechselwirkungen von Cs und Brennstoff mit der Hülle kommen kann.

Außerhalb der Brennstoffsäule waren Cs¹³⁴ und Cs¹³⁷ zwischen der Isoliertablette und dem unteren Endstopfen stark angereichert. Weitere Cs-Anreicherungen fanden sich am Radon-Monitor. Bei den starken Cs-Anreicherungen am Radon-Monitor zeigte die γ -spektrometrische Analyse, daß es sich um fast reines Cs¹³⁴ handelt, das vermutlich als Xe¹³³ gewandert und später durch ß-Zerfall in Cäsium übergegangen ist.

Veröffentlichung zu 1123:

E. Smailos, D. Geithoff Die axiale Verteilung einiger Spaltnuklide in Brennstäben des Bestrahlungsexperimentes DFR-350 KFK 1648, August 1972



1124 Brennstäbe mit karbidischem bzw. nitridischem Brennstoff

1124.1 Verfahrens- und Geräteentwicklung

Ein neues Verfahren zur Herstellung reiner Urankarbide und Urannitride als Kernbrennstoffe für Schnelle Brutreaktoren (H. Wedemeyer, A.S. Alim, IMF)

Angestrebt wird die reproduzierbare Herstellung möglichst gut definierter Urankarbide, -nitride und -karbonitride unter technologischen Aspekten. Dabei sollen die Karbide bzw. Nitride möglichst einphasig sein, d.h. keine Verunreinigungen an Urandikarbid oder -sesquikarbid bzw. Urandioxid enthalten. Geringe Verunreinigungen an Sauerstoff sind im karbidischen und an gebundenem Kohlenstoff im nitridischen Brennstoff tolerierbar. Entsprechende Bedingungen sollen für die Karbonitride gelten.

Die bisherige Technologie zur Herstellung der Hochleistungsbrennstoffe ist durch zwei Verfahren gekennzeichnet (Abb. 37):

- <u>Ex-Metall-Verfahren</u>. Die Gewinnung der Hochleistungsbrennstoffe aus metallischem Uran führt zu sehr reinen Produkten, ist aber wirtschaftlich nicht tragbar, da die Gewinnung und Verarbeitung des Metalles zu teuer sind.
- <u>ADU/AUC-Verfahren</u>. Die Gewinnung der Hochleistungsbrennstoffe durch karbothermische Reduktion im dynamischen Vakuum oder unter strömendem Stickstoff von überstöchiometrischem Urandioxid wird in technologischem Maßstab erprobt, führt bisher aber nicht zu reproduzierbar reinen Produkten <u>/</u>1_7.

Entgegen den bisherigen technologischen Möglichkeiten gewährt die als <u>Oxalat-Verfahren</u> bezeichnete neue Herstellungsmethode die reproduzierbare Gewinnung reiner karbidischer und nitridischer Kernbrennstoffe (Abb. 38).

Durch thermische Zersetzung des Uranyloxalats in Wasserstoff-Atmosphäre wird ein sehr reaktionsfähiges, stöchiometrisches Urandioxid gewonnen, das zur karbothermischen Reduktion besonders geeignet ist /2, 3/. Zur Herstellung des Uranmonokarbids bzw. -mononitrides wird Uranyloxalat mit Kohlenstoff im Molverhältnis 1:3 bzw. 1:2 durch einen kurzen Mahlvorgang homogen gemischt und zu Tabletten verpreßt. Im Reaktionsofen wird zunächst bei Temperaturen oberhalb 600 °C das Oxalat unter strömendem Wasserstoff zersetzt und unmittelbar anschließend die karbothermische Reduktion zur



Abb. 37: Blockschema zur Technologie der Hochleistungsbrennstoffe



Abb. 38: Blockschema zum Oxalat-Verfahren

Herstellung des Uranmonokarbids im dynamischen Vakuum bei 1250 - 1300 $^{\circ}$ C bzw. zur Herstellung des Uranmononitrids in strömendem Stickstoff oberhalb 1500 $^{\circ}$ C (z.B. 1750 - 1800 $^{\circ}$ C) durchgeführt. Die Reaktionen sind jeweils nach etwa 3 - 4 Stunden beendet. Da das bei diesen Temperaturen gewonnene Karbid schwach pyrophor ist, wurde anschließend eine Entaktivierungsglühung bei etwa 1600 $^{\circ}$ C/0,5 Std. durchgeführt (Abb. 39 - 40).

Die röntgenographischen und metallographischen Analysen ergaben jeweils einphasige Reaktionsprodukte. Die chemischen Analysen der nichtmetallischen Verunreinigungen ergaben im Durchschnitt beim Karbid 2000 - 2500 ppm Sauerstoff und 200 -400 ppm Stickstoff bzw. beim Nitrid 800 - 1500 ppm Sauerstoff und < 100 - 250 ppm Kohlenstoff. Beim nitridischen Brennstoff wurde freier Kohlenstoff gelegentlich in Anteilen von < 100 ppm nachgewiesen.

Die wichtigsten Vorteile dieses Oxalat-Verfahrens bestehen gegenüber dem ADU/AUC-Verfahren erstens in der Verwendung eines äußerst reaktionsfähigen Urandioxids und zweitens in dem Verzicht auf eine analytische Sauerstoffbestimmung zur Herstellung der benötigten Oxid/Kohlenstoff-Mischung. Entgegen dem ADU/AUC-Verfahren wird nach dem Oxalat-Verfahren das Urandioxid erst im Reaktionsofen durch die thermische Zersetzung des Uranyloxalats gewonnen. Dieses äußerst reaktionsfähige Urandioxid bedingt gegenüber dem ADU/AUC-Verfahren schon bei niedrigeren Temperaturen einen vollständigen Reaktionsumsatz. Im Hinblick auf die Herstellung von Plutoniumkarbid könnte hierdurch der bisherige Plutoniumverlust bei der Herstellung wesentlich eingeschränkt werden. Durch die Verwendung von Uranyloxalat als Ausgangsmaterial entfällt die bei dem ADU/AUC-Verfahren notwendige analytische Sauerstoffbestimmung, da hier durch die Verwendung einer rein daltonidischen Verbindung der molare Gehalt an Urandioxid definiert vorliegt. Überdies enthält das überstöchiometrische Ausgangsprodukt an seiner Oberfläche stets dünne Deckschichten von Oxiden höheren Sauerstoffgehalts (z.B. U₂0₇), die nicht nur unter Bildung von Kohlenmonoxid zum Karbid, sondern auch unter Bildung von Kohlendioxid reagieren. Aus diesen Gründen ist die reproduzierbare Herstellung stöchiometrischer Urankarbide bzw. -nitride nach dem ADU/AUC-Verfahren grundsätzlich in Frage zu stellen, was nach dem Oxalat-Verfahren, wie gezeigt werden konnte, zweifelsfrei möglich ist.



Abb.39 Uranyloxalat/Kohlenstoff-Preßling





Abb.40 Uranmonokarbid , geätzt , 500x Ausreagierter Uranyloxalat/Kohlenstoff-Preßling

Die Herstellung des Uranyloxalats erfolgt analog der ADU/AUC-Gewinnung durch Fällen mit Oxalsäure aus salpetersaurer UO_2^{2+} -Lösung. Die Löslichkeit des Uranyloxalat-trihydrats in Wasser beträgt bei 14 °C: 8 g/l, bei 100 °C: 33 g/l $\angle 4$.7. Die Löslichkeit von AUC $(2(NH_4)_2CO_3 \cdot UO_2CO_3 \cdot 2 H_2O)$ beträgt bei 19 °C: 58 g/l, in heißem Wasser tritt Zersetzung ein $\angle 4$.7. Das ADU ist in Wasser praktisch unlöslich; es neigt aber zur Bildung kolloidaler Lösungen $\angle 5$.7. Die für die angegebenen Salze geltenden Löslichkeiten können durch Bildung von Anionen-Komplexen deutlich erhöht werden. Nach $\angle 6$.7 existiert aber im System $UO_2C_2O_4-H_2C_2O_4-H_2O$ bei 15 °C neben der Oxalsäure nur das Uranyloxalat-trihydrat als Bodenkörper. Die in der Literatur angegebenen Daten sind z.T. sehr alt und werden in Weiterführung der Arbeit überprüft.

Die bisherigen Versuche erstrecken sich auf Chargenmengen von etwa 10 g. In weiteren Versuchen soll die Herstellung von Urankarbonitriden erprobt werden. Bei den anschließenden Sinterversuchen soll das Verfahren an größeren Chargenmengen (200 - 300 g) hinsichtlich der Reproduzierbarkeit der Phasenreinheit und der erzielbaren Tablettendichten überprüft werden.

Das beschriebene Verfahren ist in analoger Weise auf die Gewinnung der entsprechenden Plutonium-Verbindungen übertragbar. Von den bekannten Oxalaten des III-, IV- und VI-wertigen Plutoniums $(Pu_2(C_2O_4)_3 \cdot xH_2O, Pu(C_2O_4)_2 \cdot 6 H_2O, PuO_2C_2O_4 \cdot 3 H_2O)$ scheint das PlutoniumIIIoxalat am geeignetsten zu sein, da sich das PlutoniumIV-oxalat nur schwer ausfällen läßt und das Plutonyloxalat sich bereits bei 180 °C explosionsartig zersetzt $/_7_7$. Der Mechanismus der Oxalatzersetzung scheint jedoch hinsichtlich der verschiedenen Zwischenprodukte noch nicht völlig aufgeklärt zu sein. Ebenso ist die Frage der Lagerfähigkeit der verschiedenen kristallwasserhaltigen Oxalate nicht eingehend erörtert, sodaß bislang offen bleiben muß, welches der möglichen Oxalate das günstigste Ausgangsprodukt für die karbothermische Reduktion ist.

Literatur

[1] Technologie der Kernbrennstoffe (Urankarbid und -nitrid). NUKEM, Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang/Hanau, Abschlußbericht 1.6.1968 - 30.6.1969, Kennzeichen At-T 704-68

/ 2_/ W. Jander
Z. anorg. allg. Chem., 138 (1924) 321

- / 3_/ V.M. Padmanabhan, S.C. Saraiya, A.K. Sundaram J. Inorg. Nucl. Chem., 12 (1960) 356
- <u>/</u>4_7 Handbook of Chemistry and Physics. 49. Ausgabe, 1968 - 1969 The Chemical Rubber Publishing Co., Cleveland, Ohio
- [5_7] H. Remy Lehrbuch der Anorganischen Chemie 11. Aufl., Bd. II, S. 241
- <u>/</u>6_7 A. Colani Bull. Soc, Chim., <u>37</u> (1925) 858
- [7] J.M. Cleveland, in O.J. Wick (Hrsg.) Plutonium Handbook. Bd. 1, Kap. XII-5, S. 367-376, Gordon and Breach, Science Publishers, New York, London, Paris, 1967

1124.2 Laborexperimente zur Brennstabauslegung

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

Flachzerreissproben aus Stählen der Typen 1.4988 und AISI 316 wurden im Kontakt mit überstöchiometrischem UC (~ 4,95 Gew.-% C) und mit U(C,N) bei 600, 700 und 800 ^oC bis maximal 1000 h geglüht. Das UC enthielt als zweite Phase UC₂. Der Stickstoffanteil in U(C,N) entsprach 40 Mol-% UN, der äquivalente C-Gehalt betrug ~ 4,95 Gew.-% C.

Die nach der Glühung bei Raumtemperatur gemessenen Bruchdehnungswerte der bei verschiedenen Temperaturen ausgelagerten Proben sind in Abb. 41 und 42 aufgetragen. Gegenüber den in Argon geglühten Vergleichsproben ist eine deutliche Abnahme der Duktilität zu erkennen. Der Rückgang der Dehnung ist bei tieferen Glühtemperaturen ausgeprägter. Eine totale Versprödung tritt jedoch nicht ein.



Abb.41: Bruchdehnung von Stahl 1.4988 nach Glühung in Argon, UC_{1+x} und U(C,N) bei 600, 700 und 800^oC in Abhängigkeit von der Glühdauer



Abb.42: Bruchdehnung von Stahl AISI 316 nach Glühung in Argon, UC_{1+x} und U(C,N) bei 600, 700 und 800⁰C in Abhängigkeit von der Glühdauer

113 MATERIALUNTERSUCHUNG UND -ENTWICKLUNG

1131 Materialuntersuchungen an technischen Legierungen

1131.1 Hüllmaterial

1131.11 Mechanische Eigenschaften

1.Kurzzeitfestigkeit (G. Heß, IMF)

Es wurde damit begonnen, das Ausscheidungsverhalten des Sandvik-Stahles 12R72HV systematisch zu studieren. Zu diesem Zweck wurden metallographische Untersuchungen, Härteverläufe, autoradiographische Bestimmungen der Vorverteilung, Rückstandsanalysen und Zerreißversuche durchgeführt.

Die bisher vorliegenden Ergebnisse lassen folgende Aussagen zu:

- 1.) Auslagerungen bei 800 ^oC bewirken nur nach Lösungsglühtemperaturen oberhalb 1200 ^oC eine deutliche Erhöhung der Streckgrenze bei 650 ^oC Testtemperatur (Abb. 1).
- 2.) Mit steigender Lösungsglühtemperatur werden nach kurzen Auslagerungszeiten bei 800 ^OC Gleichmaßdehnung, Verfestigung und Zugfestigkeit größer. Bei längeren Glühzeiten fallen diese Werte wieder ab, und es kommt dann zu einer Zunahme der Einschnürdehnung (Abb. 1).
- 3.) Die Borverteilung ist ebenfalls von der Lösungsglühtemperatur abhängig. Bei Lösungsglühtemperaturen unter 1150 °C befindet sich das Bor überwiegend an den Korngrenzen. Bei höheren Temperaturen liegt eine gleichmäßige Borverteilung vor. Diese ändert sich allerdings mit zunehmender Auslagerungsdauer bei 800 °C in der Weise, daß das Bor an die Korngrenzen wandert. Gleichzeitig werden dabei – wie schon unter 2.) erwähnt – Gleichmaßdehnung, Verfestigung und Zugfestigkeit vermindert, während die Einschnürdehnung zunimmt.

113-2

Fig. 1



Verfestigungskurven des Sandvikstahles 12R 72HV (1.4970) nach Auslagerungen bei 800°C.

(Zugversuche bei 650°C – Verformungsge – schwindigkeit: 0,4mm/min = 0,01/min)

2. Zeitstand- und Kriechverhalten

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

Für das Bestrahlungsprogramm Mol 1 L wurden unbestrahlte Proben der Legierung X8CrNiMoVNb 1613 (1.4988) in vier verschiedenen Vorbehandlungszuständen bei 650 °C untersucht In Abb. 2a sind die ermittelten Standzeiten in Abhängigkeit von der Spannung aufgetragen. Der Zustand I entspricht dem handelsüblichen Zustand. Die gefundenen Werte und der Verlauf der Zeitstandfestigkeitskurve entsprechen den Ergebnissen, wie sie schon in einer früheren Arbeit für diesen Stahl gefunden wurden. Durch eine Kaltverformung von 10% erhöhen sich die Zeitstandfestigkeitswerte durchweg um 5 kp/mm², und bis knapp 2·10³ Std. macht sich noch keine Entfestigung durch die Prüftemperatur bemerkbar. Die Werte für 10% Kaltverformung sind auch weitgehend identisch mit den Werten für 15% kaltverformte Proben, die z.Zt. in einem anderen Versuchsprogramm untersucht werden.



Abb. 2a und b

Bei den stärker kaltverformten Zuständen III und IV bewirkt die nachfolgende Auslagerung eine stärkere Entfestigung. Ferner erfolgt bei den 50% verformten Proben eine vollständige Rekristallisation, die den Abfall der Zeitstandfestigkeitskurven erklärt.

In Abb. 2b sind die zugehörigen Werte für die Bruchdehnung eingetragen. Man erkennt klar, daß der Gewinn an Zeitstandfestigkeit bei dem nur kaltverformten Zustand II mit einem erheblichen Verlust an Duktilität erkauft wird.

Die gemessenen Kriechdaten ergaben, daß durch die verschiedenen Vorbehandlungen der Spannungsexponent (n. Norton) nicht sehr stark beeinflußt wird. Die Werte liegen zwischen 6,5 und 8 bei unterschiedlichen K-Werten.

Die metallographischen Untersuchungen zeigten, daß alle Zustände überwiegend interkristallin brechen mit unterschiedlicher Verteilung von interkristallinen Anrissen in der Bruchzone.

Im Rahmen der Mol 2-Vergleichsversuche wurde das Zeitstandverhalten des Stahles X8CrNiMoVNb 1613 (Werkstoff-Nr. 1.4988), Chg.Nr. 25116) in zwei verschiedenen Behandlungszuständen untersucht und mit dem Anlieferzustand (lg + $\leq 5\%$ kv) verglichen. Dazu wird in der folgenden Tabelle die mittlere Bruchdehnung und die 2000 h-Zeitstandfestigkeit, die nach v. Mises als mittlere Vergleichsspannung σ_{Vm} berechnet wurde, dargestellt.

Wärmebehdlg.	v_{m}^{σ}	(kp/mm^2)	.) und (δ _B %) bei Prüftemperatur von				
	600 [°] C		650 °C		700 °C		
	20,1	(5,0%)	15,1	(3,5%)	9,9	(5,5%)	
800 ⁰ C 1 h	22,8	(4,5%)	14,8	(5,0%)	7,4	(8,0%)	
750 °C 3 h	23,7	(5,0%)	16,0	(4,5%)	9,9	(9,0%)	

Abgesehen von kleinen Streuungen kann man sagen, daß die Bruchdehnung erst bei 700 ^oC durch die Wärmebehandlung merklich verbessert wird. Die Zeitstandfestigkeit dagegen wird bei 600 ^oC merklich verbessert, während sie sich bei höheren Prüftemperaturen den Werten des Anlieferungszustandes annähert bzw. sie infolge Überalterung unterschreitet.

Zusammenfassend kann man sagen, daß der Zustand mit der Wärmebehandlung 750 ^OC 3h in dem hier abgesteckten Rahmen die besten Ergebnisse liefert.

3. Rohrprüfung (O. Jacobi, R. Scherwinsky, IMF)

Am 30./31. Mai 1972 fand bei der Fa. Mannesmann-Röhrenwerke in Hellenthal die Abnahme der Rippenrohrprüfanlage statt. Diese Prüfanlage wurde im Rahmen eines Entwicklungsvertrages zwischen der Gesellschaft für Kernforschung und der Fa. Mannesmann aufgebaut und sollte Aufschluß über die Verwendung von Ultraschall- und Wirbelstromprüfverfahren geben. Im folgenden wird das Ergebnis der Abnahmeprüfung der Anlage auszugsweise wiedergegeben.

Sowohl das Ultraschall- als auch das Wirbelstromverfahren weist reproduzierbar die im Vertrag spezifizierten Fehler nach. Diese Fehler sind längs und quer orientiert und haben Ausdehnungen von ca. 50 μ m. Das Wirbelstromverfahren ist darüber hinaus empfindlicher, d.h. mit dem Wirbelstromverfahren werden noch kleine natürliche Fehler eindeutig nachgewiesen, die bei der Ultraschallprüfung nicht mehr zur Anzeige kommen. Das Wirbelstromverfahren arbeitet außerdem schneller in der laufenden Rohrprüfung und mit geringerem Aufwand beim Justieren als das Ultraschallverfahren. Allerdings langsam einlaufende Längsfehler (ca. 10 μ m/mm) sind mit beiden Verfahren nicht zu finden.

Das Ziel des Vertrages, die Entwicklung von zerstörungsfreien Prüfverfahren für Hüllrohre der Brutzone eines Kernreaktors mit 6 integralen, gewendelten Längsrippen, ist erreicht. Der Leistungsvergleich beider Prüfverfahren an der gesamten Rohrmenge mit einer Dokumentation, die die Zuordnung der angezeigten Fehler zu der entsprechenden Stelle am jeweiligen Rohr beinhaltet, steht noch aus und wird Teil des von Mannesmann zu erstellenden Abschlußberichtes werden.

1131.12 Bestrahlungsversuche

1. Zeitstand- und Kriechverhalten

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

Im Rahmen der Arbeiten über den Einfluß von Neutronenbestrahlung auf das Zeitstand- und Kriechverhalten aussichtsreicher Hüllwerkstoffe wurden die Untersuchungen an bestrahlten Proben des austenitischen Stahles 1.4970 in vier verschiedenen Werkstoffzuständen begonnen. (Bestrahlungsprojekt Mol 3B2; $\phi \cdot t \sim 1,03 \times 10^{22} n/cm^2$, E >0,1 MeV; 6,5 x $10^{21} n_{th}/cm^2$; T_{Bestr.} = 640 °C + 15 °C - 38 °C).

Die bisher angefallenen Ergebnisse zeigten einen starken Einfluß der Neutronenbestrahlung bei höheren Temperaturen auf die Änderung der Duktilität dieses Stahles, ähnlich wie bei den anderen bereits untersuchten austenitischen Stählen. Der Versprödungsgrad ist hierbei deutlich von dem jeweiligen Werkstoffzustand, der Standzeit und der Prüftemperatur (Einsatztemperatur) abhängig. Die Ergebnisse der z.Zt. laufenden Versuche liegen nur vereinzelt vor, so daß abschließende Urteile noch nicht abgegeben werden können.

Von den Rohren aus dem Werkstoff Nr. 1.4970 mit 15% Kaltverformung liegen aus dem Bestrahlungsprojekt Mol 2 jetzt elektronenmikroskopische Aufnahmen vor. In den Abbildungen 3 und 4 sind die Ergebnisse für eine unbestrahlte und bestrahlte Probe bei einer Versuchstemperatur von 700 ^OC wiedergegeben. Wie bereits im KFK-Bericht 1272/1 mitgeteilt wurde, zeigte dieser Werkstoff unter Neutronenbestrahlung eine Erhöhung der Kriechgeschwindigkeit, die auf das veränderte Ausscheidungsverhalten zurückgeführt wurde.

Aus Abb. 3 ist zu entnehmen, daß im unbestrahlten Werkstoff neben einer hohen Versetzungsdichte eine homogene Verteilung feiner TiC-Ausscheidungen vorliegt. Der Durchmesser dieser Teilchen liegt unter 100 Å. Im Gegensatz dazu treten in der bestrahlten Probe (Abb. 4) weniger, dafür größere Ausscheidungen mit einem Durchmesser von 500 bis 600 Å auf. Diese koagulierten Ausscheidungen führen zu einer Erhöhung der Kriechgeschwindigkeit unter Neutronenbestrahlung. Über den Mechanismus der Koagulation kann noch keine endgültige Aussage gemacht werden, jedoch ist nicht auszuschließen, daß durch die relativ hohe Defekterzeugungsrate im BR2 kleinere Ausscheidungen durch die Neutronenbestrahlung aufgelöst werden und Ausscheidungen oberhalb einer bestimmten Größe auf Kosten der kleineren Ausscheidungen weiter anwachsen.





Abb. 3 Werkstoff Nr. 1.4970 unbestrahlt

Abb. 4 Werkstoff Nr. 1.4970 bestrahlt

Darüber hinaus wurden im bestrahlten Material Ausscheidungen mit einem Durchmesser von 2000 bis 4000 Å gefunden, bei denen es sich wahrscheinlich um $M_{23}C_6$ handelt.

 Metallphysikalische Grundlagen (K. Ehrlich, W. Schneider, IMF)

Die experimentell gewonnenen Ergebnisse zum Schwellverhalten des Stahles 1.4988 im sogen. DFR-Trefoil-Bestrahlungsprogramm wurden einer Analyse unterzogen. Es zeigte sich, daß Porenbildung nach Neutronenbestrahlung von $.4,4x10^{22}$ n/cm² in einem Temperaturbereich von 300 - 600 °C auftrat. Die gefundenen Schwellraten waren kleiner als die unter vergleichbaren Bestrahlungsbedingungen beobachteten Werte in den unstabilisierten Stählen 304 und 316. Dies gilt insbesondere bei höheren Temperaturen. Bezüglich der Porenkonzentrationen ergab sich zu höheren Temperaturen hin ein stärkerer Abfall als in den Materialien 304 und 316. Eine besondere Rolle spielen die z.T. bestrahlungsinduzierten Ausscheidungen, die bei höheren Temperaturen $(\geq 500$ °C) in etwa 60% der Fälle gemeinsam mit Poren auftreten. Eine konsistente Kohärenzfläche dieser plättchenförmigen Ausscheidungen mit der Matrix konnte bisher nicht gefunden werden, dürfte jedoch für das Verständnis der Porenkeimbildung bzw. das Wachstum von Ausscheidungen an Poren von großer Bedeutung sein.

3. Simulation von Strahlenschäden

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

Zu einem experimentellen Abschluß gekommen sind die Arbeiten an den stabilisierten Stählen 1.4988 und 1.4981 sowie 1.4970. Hier war bei Teilchendosen von 3 x 10^{17} C²⁺ Ionen/cm² und vorhergehender Heliumimplantation die Temperaturabhängigkeit (von 500 - 650 °C) der Porenbildung in diesen Materialien untersucht worden. Die bereits berichtete generelle Tendenz der stabilisierten Stähle, bei höheren Bestrahlungstemperaturen niedrigere Schwellraten zu zeigen als nichtstabilisierte Referenzstähle vom Typ 304 und 316, kann im wesentlichen durch die niedrigeren Porenkonzentrationen bei den höheren Temperaturen erklärt werden.

Bei der Modellierung der Defektraten in Metallen nach Schwerionenbeschuß tritt gegenüber Neutronen-, Elektronen- oder Alphateilchenbeschuß insofern eine signifikante Änderung auf, als die eingeschossenen Teilchen nach dem Primärstoß nicht das Target verlassen, sondern in ihm steckenbleiben. Die Defektrate setzt sich damit aus der Defekterzeugung durch das im Primärstoß erzeugte Targetatom (plus Kaskadenprodukte) sowie aus der Defekterzeugung durch das eingeschossene Teilchen zusammen. Rechnungen zeigen, daß z.B. für ähnliche Stoßpartner ($Z_1 - Z_2$) im Energiebereich 100 - 300 keV 90-70% der Teilchenenergie in elastischen Verlagerungsstößen konvertiert wird. Diese Ergebnisse stehen in krassem Widerspruch zu Annahmen, daß bereits bei Teilchenenergien $\ge A_2$ (keV) inelastische Stöße dominieren. Experimentell wird diese Aussage gegenwärtig am Ga⁺-V-System geprüft.





elastische Verlagerungen umgesetzten Energie als Funktion der Einschußenergie E.

Das Problem der chemischen Spannung bei gleichzeitigem Vorliegen von Leerstellen- und Zwischengitteratomübersättigungen wurde diskutiert.

Die resultierende Formel ergibt sich nicht, wie vielfach angenommen, aus einfacher Addition der entsprechenden Formeln für den Fall der Leerstellenbzw. Zwischengitteratomübersättigung, sondern enthält Korrekturterme, die kinetische Aspekte berücksichtigen. Die chemische Spannung ist in Abb. 6 gegen log $|\Delta|$ aufgetragen, wobei Δ der Unterschied in der Emission von Leerstellen und Zwischengitteratomen von der betrachteten Senke ist. Wie man sieht, kann die chemische Spannung beträchtlich sein, besonders wenn Zwischengitteratome überwiegen, wie das z.B. an einer Versetzung der Fall sein kann. Gegenwärtig wird versucht, diese allgemein qualitativen Feststellungen auch in mehr quantitativer Weise auf Probleme der Porenbildung und des in-pile Kriechens anzuwenden.



Abb. 6

Chemische Spannung in Abhängigkeit von der Differenz der Emissionsraten von Leerstellen und Zwischengitteratomen.

Veröffentlichungen

- (1) K.D. Cloß Helium-Erzeugung in den Stählen 1.4988, 1.4981 und 1.4970 Atomwirtschaft 17 (1972) 315
- (2) H. Wiedersich, K. Herschbach The Concept of "Chemical Stress" Caused by Arbitrary Vacancy and Interstitial Supersaturation, Scripta Met., 6 (1972) 453

114 KORROSIONSVERSUCHE UND KÜHLMITTELANALYSEN

1141 <u>Natriumkühlung</u>

1141.1 Korrosion austenitischer Stähle

(H.U. Borgstedt, A. Marin, Helga Schneider, IMF; W. Dietz, Interatom;N. Schwarz, SGAE; G. Drechsler, G. Frees, G. Hennrich, K. Hitzig, IRB)

Die Nachuntersuchungen an den 5200 Stunden exponierten Proben aus dem Kreislauf "<u>Cerberus</u>" wurden abgeschlossen. Oberflächenuntersuchungen an den Blechproben aus dem Werkstoff Nr. 1.4970 mit dem Rasterelektronenmikroskop (SEM) zeigten, daß auf den ursprünglich elektrolytisch polierten und sehr glatten Oberflächen Ätzgruben an den Korngrenzen entstanden waren. Daneben traten verschiedentlich erheblich tiefere Löcher in der Oberfläche auf. Ferner waren kleine, aus der Oberfläche herausragende Partikel sichtbar, von denen nicht festgestellt werden konnte, ob es sich um Massetransportabscheidungen gehandelt haben könnte. (s. Abb. 1).



Abb. 1 SEM-Aufnahme (4200:1) der Oberfläche der Probe R 205, Werkstoff Nr. 1.4970 nach 5200 Stunden bei 600 [°]C im Natriumkreislauf "Cerberus". Vertiefungen der Korngrenzenbereiche, Löcher in der Oberfläche und sehr kleine aus der Oberfläche herausragende Partikel sind feststellbar. Die bis September 1971 im <u>Hochtemperaturkreislauf der SGAE</u> in Seibersdorf exponierten Proben wurden, soweit sie für Korrosionsuntersuchungen vorgesehen waren, aufgeschnitten. Mit den Nachuntersuchungen wurde begonnen. Die Gewichtsänderungen zeigten relativ kleine Effekte von etwa 3,5 µm/Jahr Abtrag an. Entsprechend waren auch nur geringe Anteile der Oberflächenzone zu Ferrit umgewandelt, an den Korngrenzen allerdings bis zu einer Tiefe von 35 µm (s. Abb. 2). Gelegentlich waren Korngrenzen in Oberflächennähe stark aufgeweitet.

Zur Vorbereitung des Korrosionsversuchs im <u>Hochtemperaturkreislauf des IRB</u> wurde mit einem Testteil, das mit Musterproben unter Innendruck bestückt war, der Vorversuch HT O begonnen. Nach dem Ausfall einer Reihe von Heizstäben mußte der Versuch nach 77 Stunden Dauer bei 700 ^OC unterbrochen werden. Die Musterproben wurden bei dieser Unterbrechung gesäubert und erneut gewogen. Die Gewichtsverluste betrugen im Mittel 1,7 x 10⁻³ mg/cm²h.



Abb. 2 Querschliff der Probe M4 aus dem Versuch Seibersdorf 1.4 nach dem Bedampfen mit ZnSe. Die dunklen Zonen nahe der Oberfläche sind ferritisiertes Material, im Inneren des Stahls (W.Nr. 1.4988) sind auch Karbidausscheidungen vornehmlich in den Korngrenzen dunkel. Eine Korngrenzenvertiefung des 5000 Stunden bei 700 ^OC exponierten Materials findet sich links oben im Schliffbild (500:1). Zur Kontrolle des Kohlenstoffgehalts des Natriums im HT-Kreislauf waren Folien aus Reineisen und dem Stahl 1.4300 eingesetzt. Die Analysen ergaben, daß die Folien aus Reineisen entkohlt wurden, während an den Stahlfolien eine Aufkohlung gemessen wurde, die jedoch offensichtlich noch nicht bis zur Einstellung eines Gleichgewichts geführt hatte. Aus den Analysenergebnissen kann man unter Benutzung eines Modells von Thorley (Proc. Int. Conf. on Corrosion, BNES, London 1971) auf eine Kohlenstoffaktivität im Natrium des Testteils von maximal 8,1 ppm schließen, wenn man Thorleys Löslichkeitskurve mit $a_{Na}^{C} = 1$ bei 37 ppm für 700 ^OC als zutreffend ansieht.

Das Testteil wurde für die Fortsetzung des Versuchs HT O bis zu einer Dauer von 500 Stunden neu montiert. Die für Analysen verbrauchten Monitorfolien aus Reineisen bzw. Stahl Nr. 1.4300 wurden ersetzt.

Aus Ergebnissen der Messungen des H₂-Partialdruckes im Covergas ließ sich mit Hilfe einer Literaturmethode (USAEC-ANL-7846) der Wasserstoffgehalt im Natrium berechnen. Im "Cerberus" betrug demnach der Gehalt an H₂ etwa 0,6 ppm. Das Cover-Gas vom Kreislauf "Cerberus" wurde mit dem Gaschromatographen AL7 auf Verunreinigung geprüft und folgende Gehalte gefunden:

$$H_2 = 10 \text{ vpm}$$

$$N_2 < 2 \text{ vpm}$$

$$O_2 < 1 \text{ vpm}$$

Zur Kontrolle der Dichtheit der im HT-Loop eingesetzten He-gefüllten Rohrproben ist es nötig, im Cover-Gas Helium nachweisen zu können. Mit Testgasen wurde geprüft, ob dies mit dem Al7 möglich ist. Durch Verlängerung der Trennsäulen ist es möglich, den He-Peak getrennt vom H₂-Peak zu erhalten. Die Nachweisgrenze liegt bei ca. 60 vpm He.

1141.3 <u>Reinheit und Reinheitskontrolle des Na (Analysen)</u> (Helga Schneider, H.U. Borgstedt, G. Wittig, IMF)

Eine Apparatur zur Eichung von Sauerstoffmonitoren bei 300 bis über 500 $^{\circ}$ C wurde in Betrieb genommen. Die 18 500 Stunden im Kreislauf "Cerberus" betriebene Zelle Nr. 223 des UNC-Monitors wurde geprüft. Sie reagierte momentan auf Änderungen der Sauerstoffkonzentration, zeigte sich gegenüber der 1969 vorgenommenen Eichung nur unwesentlich verändert – bedingt durch die genauer eingestellten Parameter in dieser Apparatur – und funktionierte einwandfrei bei Temperaturen von 350 – 450 $^{\circ}$ C.

Bei einem nachfolgenden Versuch ging die Zelle Nr. 223 durch einen Temperaturschock zu Bruch. Die Keramikbruchstücke aus der heißesten Zone werden auf Natriumeffekte untersucht. Die Zelle Nr. 225 wurde kurzfristig bis 530 ^OC betrieben, ohne daß sich ein bleibender Schaden eingestellt hätte. Sie wurde mit sauerstoffgesättigtem Natrium kalibriert.

Für die Einführung der Vanadiumgleichgewichtsmethode wurden Vorarbeiten geleistet. Eine Vanadiumdrahtsone soll zu Kalibrierungszwecken in den Bypass des Kohlenstoffmonitors eingebaut werden; der hochreine Vanadiumdraht dazu wurde getestet. In Kapselversuchen wurde die Einstellung des Verteilungsgleichgewichts des Sauerstoffs zwischen Natrium und Vanadium bei 750 °C untersucht.

Es wurde ein Verfahren zur Bestimmung der Elemente Mo, Nb, Ta, Zr, Hf, Ti und V in Na-Metall ausgearbeitet. Mittels einer kombinierten Fällung mit Cupferron and Phenylfluoron werden diese Elemente in Gegenwart von 1 mg Fe als Spurenfänger aus der Na-Salzlösung ausgefällt. Die über Membranfilter abfiltrierten Niederschläge werden mit dem Röntgenfluoreszenzspektrometer gemessen. Bei einer Einwaage von 4 g Na werden folgende Nachweisgrenzen erreicht:

Mo	=	0,12	ppm
Nb	=	0,11	ppm
Ta	-	0,13	ppm
Zr	=	0,09	ppm
Hf	=	0,14	ppm
Ti	=	0,05	ppm
V	弄	0,05	ppm
	Na-Metall Degussa normale Lieferung	KNK-Na März 72	KNK-Na Juni 72
----	---	-------------------	-------------------
	ppm	ppm	ppm
Fe	24,4 / 2	100	57
Cr	<0,1 / <0,1	19	2,9
Ni	<0,1 / <0,1	1,2	1,1
Mn	0,11 / <0,02	2,7	0,6
Со	0,06 / 0,01	0,4	0,16
Cu	0,06 / <0,04	0,04	<0,05
Zn	16,2 / 15,6	18,5	4,5
Pb	0,4 / 9,5	1,15	0,7
Bi	0,44	0,24	<0,5
Ag	0,3		<0,5
Cd	0,4	0,75	<0,5
Sn	1,7 / 12,8	0,4	0,6
TI	0,18 / <0,1		0,15
V	<0,05 / <0,05		<0,05
la	0,14 / <0,1		0,13
Ht	<0,14 / <0,14		
Zr	<0,09 / <0,09		<0,1
ND	<0,11 / <0,11		0,8
MO	0,6 / 0,4		1,0
Ca	350,0	6,5	0,3
Mg	0,6	0,5	0,2
Li	0,22	1	<0,25
AI	<0,1	1	0,36

Verschiedene Na-Metallproben wurden auf ihre metallischen Verunreinigungen untersucht und folgende Gehalte gefunden:

Veröffentlichungen zu 1141:

4,6

Si Ba

(1) H.U. Borgstedt, G. Frees Liquid Sodium Corrosion of Refractory Metals and Alloys Based on Vanadium, Niobium and Tantalum Rev. on Coatings and Corrosion 1 (1972) 43-74

0,12

<0,1

(2) H.U. Borgstedt, G. Drechsler, G. Frees, A. Marin, Helga Schneider Natriumkorrosionsversuche am Stahl X10CrNiMoTi 1515 (Werkstoff-Nr. 1.4970) KFK-Bericht 1574

1142 Dampf- und Gaskühlung

1142.1 <u>Korrosionsverhalten in Dampf, Laborversuche</u> (S. Leistikow, IMF)

Die Untersuchung der Legierung Incoloy 800 in Abhängigkeit von der Kaltverformung und Korngröße wurde in statischen Autoklavenversuchen (Heißdampf, 600 °C, 70 at, 1000 Std) fortgesetzt. Dabei kamen Blechproben der folgenden, durch Glühung bei 1050 °, 1150 ° und 1300 °C erzeugten Korngrößenklassen = 25-100, 100-150 und 150-300 μ m im 10-90% kaltverformten, elektropolierten Zustand zum Einsatz.

Die Ergebnisse (Abb. 3) zeigen für die bislang untersuchten Korngrößenklassen im geglühten, nicht kaltverformten Zustand einen großen Unterschied der über die Gewichtszunahme aufgewiesenen Korrosionsbeständigkeit. Er ist auf die unterschiedliche Zahl von Korngrenzen pro Oberflächeneinheit, die als freie Diffusionswege des Chroms und Mangans korrosionsbeständigkeitserhöhend wirksam sind, zurückzuführen. Mit zunehmender Kaltverformung vermindert sich die Korrosion aller Korngrößenklassen mit negativ exponentieller Tendenz. Je höher

CORROSION OF INCOLOY ALLOY 800 IN SUPERHEATED STEAM



die mittlere Korngröße, desto größer ist der bei gegebenem Verformungsschritt erzielte Zugewinn an Korrosionsbeständigkeit. Die gemessenen Kurven konvergieren und fallen bei etwa 90% Kaltverformung zusammen. Dieser hochgradigen Verformung entspricht eine vollständige Kornzerstörung. Das bedeutet, daß erst bei sehr hohen Kaltverformungsgraden die strukturellen Unterschiede zwischen den Korngrößenklassen aufgehoben werden und ein ähnliches Korrosionsverhalten beobachtet wird.

THE INFLUENCE OF COLD WORK AND GRAIN SIZE AT 600°C, 70 at, 1000 hrs

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

Im Berichtszeitraum wurde der Versuchsbetrieb an maßstäblichen, elektrisch indirekt beheizten Incoloy-800-Probestäben weitergeführt. Die Probestäbe haben einen Außendurchmesser von 6,5 mm und eine beheizte Länge von 100 cm. (Betriebsbedingungen im wesentlichen wie in KFK-Ber. 1272/1, S. 114-6 beschrieben).

Zwei Probestäbe erreichten 1500 Vollastbetriebsstunden. Insgesamt 7 Probestäbe mit 125 und 1216 Vollastbetriebsstunden wurden für Nachuntersuchungen aus dem Kreislauf entnommen.

Aus den isothermen Teststrecken wurden 60 Versuchsproben aus Incoloy 800, Inconel 625, Werkstoff Nr. 4301, 4970 und 7335 sowie AGR 20/25 nach 500 bzw. 1000 Betriebsstunden für Untersuchungen ausgebaut. Diese Proben waren bei einem Dampfdruck von 150 ata, einer Dampftemperatur von 600 ^OC und einer mittleren Dampfgeschwindigkeit von 3,5 m/sec eingesetzt. - 25 neue Proben aus Hastelloy X, Inconel 600 und Werkstoff Nr. 4301 wurden eingesetzt.

e A

121 PHYSIKALISCHE EXPERIMENTE

1211 Experimentelle Reaktor- und Neutronenphysik

1211.1 Spaltspurdetektoren

(R. Papp, IASR, B. Goel, INR)

Computer-Auswertung von Spaltspurbestrahlungen

Die Eichkurve für die Computerauswertung wurde nach Verbesserung des optischen Aufbaus (Mikroskop, Fernsehkamera) bis zu Spurendichten von etwa 12000/mm² erneut aufgenommen. Das Ergebnis dieser Auswertung wird in Abb. 1 dargestellt; die mit dem Computer ermittelte Spurendichte ist darin als Funktion der wahren Spurendichte angegeben. Die Kurve durch die Meßpunkte läßt sich durch eine Formel

$$N = N e O$$

darstellen. N ist darin die durch Messung bestimmte, N die wahre Spurendichte. Der Anpassungsparameter b hat den Wert $1.9 \cdot 10^{-5} + 6.10^{-7}$. Die Unsicherheit in b resultiert aus Fehlern in N als auch aus Unsicherheiten in der Bestimmung der wahren Spurendichte N. Letztere wurde durch Auszählung mit dem Auge von Eichfolien mit Spurendichten bis etwa 1000 Spuren pro mm² ermittelt. Bei einer Spurendichte von etwa 10^4 mm^{-2} bewirkt die Unsicherheit in b einen Fehler von etwa 0.6% in der wahren Spurendichte. Dieser Beitrag kann durch Vergrößerung der Zahl an Eichpunkten weiter reduziert werden. Um darüberhinaus Unsicherheiten in der Reproduzierbarkeit des Ätzvorganges zu vermeiden, ist zumindest für den Fall von Absolutmessungen eine Neuaufnahme der Eichkurve, d.h. insbesonders eine Ätzung der Cf-bestrahlten Eichfolien zusammen mit den im Reaktor bestrahlten, erforderlich. Normalerweise ist man aber an Spaltratenverhältnissen interessiert; bis Spurendichten von etwa 5·10³/mm² kann der Verlauf der Eichkurve gut durch eine Gerade durch den Nullpunkt angenähert werden. Dann können die computergezählten Spurendichten ohne zusätzlichen Fehler direkt zur Bildung der Spaltratenverhältnisse herangezogen werden.

Erstmals an SNEAK-9B wurden Feinstrukturmessungen über den Querschnitt von Pu-Plättchen im Corezentrum durchgeführt. Es standen vier verschiedene Arten von Quellfolien (Pu-Folien mit 6 bzw. 19% Pu²⁴⁰, Uranfolien mit 0.4 bzw. 93% U²³⁵) zur Verfügung. Neben der Bestrahlung im schnellen Fluß mußte eine Bestrahlung in einem homogenen, thermischen Fluß (STARK und FR2) durchgeführt werden, um einerseits den Verlauf der Belegungsdichte auf den Quellfolien und andererseits das Verhältnis des U²³⁵ bzw. Pu²³⁹ von je zwei Uran- bzw. Pu-Folien $(N_{235}^1/N_{235}^2; N_{239}^1/N_{239}^2)$ zu bestimmen. Die vorläufigen Ergebnisse lassen Unsicherheiten über die Reibfestigkeit zumindest der Pu-Folien aufkommen, was eine Aussage über die Feinstruktur verhindert. Die Auswertung der U-Folien ist noch nicht abgeschlossen. Es steht nun eine a-Scanningapparatur mit Festkörperdetektor zur Verfügung, womit Belegungsdichte und Reibfestigkeit der Pu-Folien geprüft werden.

Die Rechenzeit pro Spur konnte auf 1.3 sec reduziert werden; sie hängt wesentlich von Zahl und Art der Spurenüberlappungen ab.



1211.4 SUAK

Ein-Material-Experimente

(D. Rusch, INR; N. Pieroni, E. Wattecamps, IASR)

Berechnung und Messung zeitabhängiger Neutronenspektren einer gepulsten Natururananordnung

Das zeitabhängige Neutronenausflußspektrum einer Natururananordnung wurde mit dem Karlsruher Monte-Carlo-Code KAMCCO /1/ berechnet und an der SUAK gemessen. Wird ein kurzer Neutronenpuls von 14 MeV Neutronen in eine kleine Natururananordnung injiziert, dann ist das Ausflußspektrum in den darauf folgenden 50 ns im wesentlichen von der Schnellspaltung, (n, 2n)-Reaktionen und von der inelastischen Streuung bestimmt. Von diesen Reaktionen führt überwiegend die inelastische Streuung zu Neutronen unterhalb 800 keV. Erst später wird das Ausflußspektrum durch elastische Streuung und Einfang bestimmt. Ist die Anordnung so klein, daß nur wenige Mehrfachreaktionen auftreten können, so ist das Ausflußspektrum kurz nach dem Neutronenpuls oberhalb 800 keV von drei Reaktionen bestimmt, wobei die inelastische Streuung der überragende Effekt ist. Unterhalb 800 keV gestaltet das Spektrum der inelastisch gestreuten Neutronen fast ausschließlich das Ausflußspektrum.

Zur quantitativen Erfassung des Einflusses von Ungenauigkeiten der inelastischen Streuung wurden Spektrumsberechnungen mit zwei Datensätzen durchgeführt. Eine Erhöhung des inelastischen Wirkungsquerschnitts von nur 20% bewirkt Änderungen im Ausflußspektrum bis zu 100%. Wegen dieses überragenden Einflusses der inelastischen Streuung auf das Spektrum wurde ein Experiment aufgebaut, das einen gezielten und empfindlichen Vergleich zwischen Rechnung und Messung erlauben soll.

Die Geometrie der Natururananordnung ist ein Quader von 20 x 20 x 15 cm Kantenlänge und zentraler Quelle. Zur Erzeugung kurzer Pulse von 14 MeV Neutronen mit 2 ns Pulsbreite diente der Kaskadenbeschleuniger /2/. Zur Bestimmung des schnellen, zeitabhängigen Neutronenspektrums wurde ein Flüssigkeitsszintillator NE 213 angewandt, der sowohl eine hohe Zeitauflösung als auch eine Energieanalyse erlaubt. Die Zeitauflösung beträgt 3 ns für einen Pulshöhenbereich von 1:100. Der Zusammenhang zwischen Rückstoßprotonenenergie und Lichtausbeute im NE 213 ist nicht linear und wurde mit zwei verschiedenen Auswerteverfahren berücksichtigt. Das erste Auswerteverfahren benutzt den von Burrus entwickelten FERDOR-Entfaltungscode /3/, und das zweite Auswerteverfahren, das in Karlsruhe entwickelt wurde, beruht auf einer Transformation und anschließenden Differentiation.

Zum Prüfen der Meßtechnik und der Auswerteverfahren wurde der Flüssigkeitsszintillator im gleichen Quellspektrum sowohl als Pulshöhe- als auch als Flugzeit-Detektor benutzt. Die Ergebnisse sind in Fig. 2 dargestellt. Der Vergleich der gemessenen Spektren beweist, daß der NE 213 Flüssigkeitsszintillator als Neutronenspektrometer mittels Pulshöheanalyse anwendbar ist.

Zur Bestimmung der zeitabhängigen Neutronenausflußspektren wurde der Szintillator unmittelbar an der Außenfläche des Natururanquaders aufgestellt. Zeit und Pulshöhe wurden zweidimensional aufgenommen in 8 Zeitintervallen å je 5.72 ns und 512 Pulshöhekanäle. Die Messungen wurden mittels des Transformations- und Differentiationscodes ausgewertet. Die Meßergebnisse und die Monte-Carlo-Rechnungen sind in Fig. 3 und 4 dargestellt. Die Geometrie in der Monte-Carlo-Rechnung entspricht der tatsächlichen Geometrie des experimentellen Aufbaus einschließlich des Detektors. Lediglich das Strahlführungsrohr des Beschleunigers (5 x 5 x 7.5 cm) wurde vernachlässigt. Da durch die Anordnungsmitte drei Symmetrieebenen führen, können in der Rechnung Spiegelrandbedingungen eingeführt werden. Sämtliche gerechneten Spektren sind auf 1 Quellneutron bezogen. Die Meßergebnisse sind alle auf die gleiche Quellstärke bezogen. Die Normierung der Berechnung zur Messung ist willkürlich.

Die zweidimensionalen Messungen beweisen, daß die Meßtechnik mit dem NE 213 Neutronenspektrometer anwendbar ist. Die KAMCCO-Berechnungen beweisen, daß zeitabhängige Spektren ein sehr empfindliches Kriterium zum Prüfen der inelastischen Streuung und des Spektrums der inelastisch gestreuten Neutronen ist. Eine quantitative Analyse der Diskrepanzen zwischen Rechnung und Messung im Hinblick auf die Verbesserung von Querschnitten ist im Gange.

Referenzen

/1/	G. Arnecke et al.
	Unveröffentl. Arbeit 1971
/2/	D. Rusch KFK-1271/2
/3/	W.R. Burrus et al.
	Nucl. Instr. & Meth. 67 (1969) p. 181



Abb. 2 Stationäres Ausflußspektrum von Unat, Vergleich zwischen Flugzeitmessung und zeitintegrierter Pulshöhenmessung



Abb. 3 Zeitabhängiges Ausflußspektrum von Unat, Vergleich zwischen Experiment und Rechnung, wobei die Spektren als Ψ(u) mit t als Parameter dargestellt sind.



wobei die Spektren als Ψ(t) mit der Energiegruppe als Parameter dargestellt sind.

1213 SNEAK

Messung der γ -Heizung in SNEAK-9B, Zentrale Axialtraverse und Absorber (H. Werle, INR)

In SNEAK-9B wurden die γ -Heizung auf der zentralen Axialtraverse des ungestörten Reaktors sowie die Werte in drei verschiedenen Absorberstäben (B₄C, Ta, EuO₂) im Zentrum des Reaktors bestimmt. Für die Messungen wurden Radiophotolumineszenz-Gläser benutzt. Eine Beschreibung der Meßmethode findet sich in <u>/</u>1_7. Die Gläser sind auch für schnelle Neutronen empfindlich. Der Neutroneneffekt in den Gläsern wurde mit Hilfe der gemessenen absoluten U-235-Spaltrate an den verschiedenen Positionen korrigiert. In Abb. 5 ist der Einbau der Gläser und Folien in die Absorberstäbe dargestellt.

Abb. 6 zeigt die Traversen des totalen, des γ - und des Neutroneneffekts in den Gläsern sowie der U-235- und der U-238-Spaltrate und schließlich die daraus berechnete Traverse der γ -Heizung (10⁻⁶ W/g bezogen auf eine Reaktorleistung von 1 kW). Der Neutroneneffekt beträgt im Zentrum 13%, steigt auf 18% im inneren Teil des Blankets und fällt wieder auf 12% im äußeren Teil des Blankets. Der Grund dafür ist, daß der Neutronenfluß relativ kontinuierlich beim Übergang vom Core zum Blanket verläuft, während der γ -Fluß hier ziemlich steil abfällt.

Die Werte der γ -Heizung beziehen sich auf das Glas, gelten aber innerhalb weniger % für beliebige andere Materialien. Im Zentrum beträgt die γ -Heizung 22.1 μ W/g (bei 1 kW Reaktorleistung), am äußeren Blanketbereich nur noch **et**wa 1 μ W/g. Der Fehler im relativen Verlauf der γ -Heizung liegt bei etwa 5%, der Fehler in den absoluten, auf die Reaktorleistung bezogenen Werte bei etwa 15%.

In Tabelle I sind die Werte im Zentrum für den ungestörten Reaktor und für die Anordnungen mit Absorberstäben im Zentrum miteinander verglichen. (Die Werte für den EuO_2 -Stab liegen noch nicht vor.) Die Absorberstäbe bewirken eine Depression des γ -Flusses um etwa 30%, der Neutronenfluß wird dagegen nur um etwa 20% geschwächt verglichen mit der ungestörten Anordnung. Entsprechend ist der Neutroneneffekt der Gläser relativ hoch in den Absorberstäben.

Literatur

[1] H. Doerfel, H. Werle, Reaktortagung 1972, Hamburg, Compact. S. 121 [2] H. Werle, H. Doerfel, 1. Vierteljahresbericht 1972 PSB, KFK-Bericht 1272/1

		Meßeffekt " Total	$\frac{\mu A}{\sec 1 \text{ kWR.L}}$	Spaltraten 4 U5	/- <u>1</u> sec 1 kWR.L-7 U8/U5	γ-Heizung /(10 ⁻⁶ W/g)/ 1 kWR.L/
Ungestörte:	r Reakt.	321.	13	3.74 10 ⁻¹⁴	3.30 10 ⁻²	22.1
B ₄ C Pos.	1 - 2 2 - 4	215. 223.	17 16	$3.07 10^{-14} 3.23 10^{-14}$	2.89 10^{-2} 2.96 10^{-2}	14.3 14.7
Ta Pos.	1 - 2 2 - 4	207. 230.	17 16	$3.11 \ 10^{-14} \\ 3.28 \ 10^{-14}$	2.43 10^{-2} 2.68 10^{-2}	13.6 15.3

Tabelle 1 y-Heizung im Zentrum von SNEAK-9B





Abb. 6 Zentrale Axialtraverse in SNEAK 9B

121-11

1215 Wirkungsquerschnittsmessungen

1215.1 Van-de-Graaff-Beschleuniger

1. Betrieb und Ausbau des Beschleunigers

(A. Ernst, S. Liese, D. Roller, J. Nadasdy, IAK)

Im Berichtszeitraum konnte der Beschleuniger 1301 Stunden für Experimente genutzt werden. Der Anteil der Experimente für das PSB betrug 75%.

2. Resonanzen mittelschwerer Kerne

(H. Beer, R.R. Spencer, J. Serman, IAK)

Die Messung der Einfangquerschnitte an den separierten Isotopen ⁵⁴, ⁵⁷Fe, ⁵⁰, ⁵², ⁵³Cr und ⁶², ⁶⁴Ni wurde nahezu abgeschlossen. Für die Messung des Einfangquerschnitts von ²³⁸U wurde es notwendig, die Verbesserung des Szintillatortanks abzuwarten, welche sich aus verschiedenen Umbauarbeiten im 3. Quartal ergibt.

Diesæ Experiment wurde am zweiten Strahlrohr des Beschleunigers aufgebaut und während einer Testmessung in Betrieb genommen. Daraus läßt sich abschätzen, daß es möglich sein wird, den Energieverlauf der mittleren Zahl der Spaltneutronen \overline{v} zwischen 50 und 1200 keV mit guter Energieauflösung und einer Genauigkeit von ca. 1% zu bestimmen.

1216 SEFOR

Analyse von SEFOR Experimenten

(H.G. Bogensberger, W.J. Oosterkamp, D. Wintzer; IASR)

Vergleichende Analyse von Reaktivitätswerten in Core I und Core II

Nach Abschluß des Versuchsprogrammes im SEFOR Core I wurde eine Reihe von Messungen bei einer etwas veränderten Corekonfiguration nochmals durchgeführt. Der wesentliche Unterschied zwischen den beiden Cores liegt im Härtegrad des Neutronenspektrums. Durch das Herausziehen der BeO-Stäbe beim Übergang zu Core II werden die Neutronen weniger moderiert. Der Einfluß dieser "Verhärtung" zeigt sich in einer Verkleinerung der Dopplerkonstanten und der mittleren Lebensdauer der Neutronen.

Für die Berechnungen des Cores II in Karlsruhe wurde der KFKINR Multigruppensatz verwendet. In Tabelle 1 sind einige Vergleichsdaten zusammengestellt. Aus dieser Tabelle kann man erkennen, daß die Überschätzung hinsichtlich der berechneten Lebensdauer bei einem härteren Neutronenspektrum abnimmt. Es bleiben nur noch 8% Diskrepanz zwischen Rechnung und Experiment in bezug auf $1/\beta$, die aber durch Unterschätzung von β erklärt werden könnten. Wenn man annimmt, daß β_{eff} um 10% höher liegt, so würde die Diskrepanz auf =2% absinken.

Reaktivitätswerte von Brennstäben

In Abb. 7 ist der Reaktivitätswert als Funktion der radialen Position aufgetragen. Die Übereinstimmung zwischen Experiment

Tabelle 1

	Core 1					Core 2			
Parameter	Gruppensatz	Rechnung	Experiment	R/E	Gruppensatz	Rechnung	Experiment	R/E	
1/β	MOXTOT	174.1 µsec	140 µsec ⁺⁾	1.25					
1/β			140.5 μsec ⁺⁺⁾	1.24					
1/β	INR	168.7 µsec		1.21	INR	151 µsec	140 µsec ⁺⁺)	1.08	
β	INR	3.196-3				3.2.10 ⁻³			
1	MOXTOT	0.55462-6							
1	INR	0.5392-6			INR	0.5034-6			

+) Gemessen von GE. Aus älteren Rauschmessungen mit He³-Kammern hatte sich 1/β = 205 µs ergeben. Es besteht der Verdacht, daß der Frequenzgang der Kammern nicht den Herstellerangaben entspricht. Er soll bei einer Kammer nachuntersucht werden. Die von ORNL gemessenen 140 µs sind konsistent mit dem Ergebnis einer 1/β-Bestimmung aus superpromptkritischen Transientenexperimenten.

++) Gemessen von ORNL.

121-14



121-15

und Rechnung - (Störungsrechnung, basierend auf 26 Gruppen DIXY-Rechnung) - ist aus dieser Figur gut ersichtlich. Im Core I hingegen wird der Reaktivitätswert unter Benutzung des gleichen Gruppensatzes um etwa 10% überschätzt (siehe Abb. \$). Diese Inkonsistenz ist nicht durch Unsicherheiten in β_{eff} zu erklären. Sie deutet auf Fehler im benutzten Querschnittssatz hin, die sich in den beiden Cores unterschiedlich auswirken.

Reaktivitätswerte von Borstäben

Abb. 9 zeigt den Reaktivitätswert eines Borstabes als Funktion der radialen Position aufgetragen. In der Mitte zwischen Corezentrum und radialem Reflektor ist die Abweichung zwischen Experiment und Rechnung etwa 10%. Je näher man an die Nickelreflektoren herankommt, desto größer wird die Reaktivitätsüberschätzung der Borstäbe durch die Rechnung. Am Corerand ist die Diskrepanz bereits 50%. Allerdings ändert sich das Neutronenspektrum in unmittelbarer Nähe des Corerandes ziemlich stark, und man kann nicht erwarten, daß die Diffusionsrechnung diese Verhältnisse gut beschreibt. Immerhin zeigt Abb. 9 eine zunehmende Überschätzung des Reaktivitätswertes von B_4C mit wachsender radialer Position. In dieser Hinsicht liegen die Verhältnisse ähnlich wie in Core I (siehe Abb.10). Jedoch werden in Core I die Reaktivitätswerte von B_4C -Stäben bei allen radialen Positionen noch stärker überschätzt.

Tabelle 3 zeigt einen Vergleich der R/E-Verhältnisse in Core I und II. Dazu kann man folgendes feststellen:

- Die untersuchten Reaktivitätswerte werden in Core I um 10-15% stärker überschätzt als in Core II.
- 2. Die Überschätzung von $\rho(B_4C)$ und $1/\beta$ ist erwartungsgemäß einigermaßen konsistent (beide Größen sind im wesentlichen der Reaktivitätsbeitrag eines 1/v-Absorbers).



121-17

-

Abb.9 SEFOR Core <u>2</u> Reaktivität von B4C Stäben als Funktion der radialen Position





Abb. 10 Core 1 Reaktivitätswert von B₄C als Funktion des Radius

Tabelle 3

Vergleich der R/E-Verhältnisse in Core I und II

	Core I			Core II		
		^β eff ^{10%} höher		^β eff ^{10%} höher		
ρ(Brennstoff)	≈ 1.1 5	1.04	≃ 1.0	.91	1.15	
ρ(Β ₄ C)	≈ 1.25	1.14	≈ 1.10	1.00	1.14	
1/β	≃ 1.21	1.10	≃ 1.08	.98	1.12	

- 3. Die R/E-Werte für $\rho(B_4C)$ und $1/\beta$ sind konsistent etwa 10% höher als für $\rho(Brennstoff)$. Das deutet auf eine Überschätzung des Verhältnisses langsame Neutronen zu schnelle Neutronen hin.
- Eine Erhöhung von β_{eff} um etwa 10% würde generell bessere Übereinstimmung zwischen Rechnung und Experiment bringen. Eine Ausnahme besteht im Reaktivitätswert von Brennstoff in Core II.

Die aufgeführten Inkonsistenzen (insbesondere unter Punkt 1.) könnten durch Kombination von mehreren Ursachen erklärbar werden:

- Systematische Eichfehler, die in Core I wahrscheinlicher sind als in Core II
- Überschätzung der Reflexionswirkung der Materialien außerhalb des Cores (Stahl, Nickel, Na). Eine solche Überschätzung würde bei Core II stärker ins Gewicht fallen als bei Core I
- Überschätzung der inelastischen Streuung von Be (nur in Core I vorhanden) und Fehler bei der Be (n, 2n)-Berechnung. Beide würden sich über die Importanceverteilung bei hohen Energien auswirken
- Unterschätzung der Importancefunktion bei hohen Energien durch Fehler im angenommenen Spaltspektrum oder im Degradationsvermögen der schweren Kerne. Die Auswirkungen in Core I und Core II wären etwas unterschiedlich.

Es ist unwahrscheinlich, daß einer der aufgeführten Gründe allein verantwortlich ist, da die erforderlichen Eingangsfehler laut Abschätzungen unrealistisch groß sein müßten.

Bestimmung der mittleren Zerfallskonstante der verzögerten

Neutronen

Als erster Schritt bei der Auswertung der SEFOR Transienten wurde eine Empfindlichkeitsstudie durchgeführt. Dabei wurde deutlich, daß die mittlere Zerfallskonstante der verzögerten Neutronen ($\overline{\lambda}$) einen erheblichen Einfluß auf den experimentell bestimmten Dopplerkoeffizienten hat. Dieser Einfluß war bei den subprompten und superprompten Experimenten unterschiedlich. Dadurch ergab sich die Möglichkeit, $\overline{\lambda}$ experimentell zu bestimmen.

Die kinetischen Gleichungen des Punktreaktormodells können in der integralen Form wie folgt definiert werden:

$$\rho = 1 + \frac{1}{P} \left[\frac{1}{\beta} \cdot \frac{dP}{dt} - \sum_{i=1}^{6} (a_i P_o e^{-\lambda_i t} + a_i \lambda_i e^{-\lambda_i t} \int_{0}^{-\lambda_i t} Pe^{-\lambda_i t} dt) \right]$$
(1)

- ρ Reaktivität
- P Leistung
- P Anfangsleistung
- β effektiver Anteil der verzögerten Neutronen
- a. effektiver Anteil der verzögerten Neutronen Gruppe i
- λ_i Zerfallskonstante der Gruppe i

Wir haben angenommen, daß der Reaktor zum Zeitpunkt t = o stabil war und auch während des gesamten Experimentes nahe bei einer Kritikalität von k_{eff} = 1 verbleibt.

Wir können Gleichung (1) vereinfachen, wenn wir annehmen, daß der Zerfall der Vorläuferkerne bei der Berechnung der Konzentration während des Experimentes vernachlässigt werden kann. Das ist möglich, da sich das Experiment über ca. 200 msec erstreckte und die Zerfallskonstante der schnellsten Gruppe eine Halbwertszeit von 170 msec ergibt. Im Fall der unterprompten Kritikalität kann man für (1) den Ansatz machen

$$\rho(t) = 1 - \frac{P_o}{P} - \frac{\overline{\lambda}}{\overline{P}} \int (P - P_o) dt \qquad (2)$$

Bei den Transienten wurde ein Borabsorber pneumatisch in 100 msec aus dem Reaktor gebracht. Etwa 200 msec später schaltete sich der Reaktor automatisch ab.

Durch die Zufuhr der Reaktivität wird die Leistung erhöht. Aufgrund der negativen Doppler- und Ausdehnungskoeffizienten ergab sich eine negative Rückkopplung. In erster Näherung ist die Rückkopplungsreaktivität proportional zur freigesetzten Energie. Wir können also die eingebrachte Reaktivität für den Bereich, in dem Gleichung (2) gilt, wie folgt schreiben

$$\rho_{ein} = 1 - \frac{P_o}{P} - \frac{\overline{\lambda}}{\overline{P}} E + \gamma E$$
(3)

wobei $E = \int_{0}^{t} (P - P_{0}) dt$ die freigesetzte Energie ist, o y der Rückkopplungskoeffizient.

Die eingebrachte Reaktivität können wir nicht als bekannt voraussetzen, da sich herausstellte, daß die statischen Eichungen des Borabsorbers möglicherweise mit erheblichen Fehlern belastet sind. Wenn wir zwei Zeitpunkte nach dem völligen Herausschuß des Absorbers herausgreifen, so bekommen wir

$$\frac{\mathbf{P}_{\mathbf{O}}}{\mathbf{P}_{\mathbf{I}}} + \frac{\mathbf{P}_{\mathbf{O}}}{\mathbf{P}_{\mathbf{II}}} - \overline{\lambda} \left(\frac{\mathbf{E}_{\mathbf{I}}}{\mathbf{P}_{\mathbf{I}}} - \frac{\mathbf{E}_{\mathbf{II}}}{\mathbf{P}_{\mathbf{II}}}\right) + \gamma \left(\mathbf{E}_{\mathbf{I}} - \mathbf{E}_{\mathbf{II}}\right) = 0 \qquad (4)$$

Es ergibt sich also eine lineare Beziehung zwischen dem Rückkopplungskoeffizienten γ und $\overline{\lambda}$. Diese Beziehung ist bei den subprompten und den superprompten Transienten unterschiedlich.

Bei unserer Analyse konnten wir ohne einige Vereinfachungen auskommen. So war es möglich, das Logarithnengesetz für die Dopplerrückwirkung zu berücksichtigen und einen "least square fit" des Dopplerkoeffizienten in dem Analysebereich durchzuführen.

Vier Experimente wurden ausgewertet: Bl mit .50\$, B2 mit .80\$, Sl mit 1.12\$ und S2 mit 1.18\$, alle mit einer Anfangsleistung von 2 MW. Für jedes Experiment wurden jeweils 2 Meßkanäle verwendet. In Abb.11 sind diese Auswertungen dargestellt. Die Fehler bei dieser Art der Auswertung liegen im Detektorrauschen und in der "begrenzten" Linearität der Verstärker. Die logaritmischen Verstärker wurden vor und nach jedem Experiment geeicht. Allerdings lagen die Eichpunkte relativ weit auseinander. Da in den verschiedenen Bereichen der Eichkurve gemessen wurde, kann man die Ergebnisse der Auswertungen als nicht korreliert betrachten. Dies führt zu einem Wert von $\overline{\lambda} = .625\pm.02$. Um die Aussagen über die Fehlergrenzen auf eine bessere Basis stellen zu können, wurden die Auswertungen von Bl für mehrere Teile des Intervalls wiederholt. Diese letzte Analyse bestätigte die oben erwähnten Fehlergrenzen.

Unsere Standardmethoden zur Berechnung von β_{eff} ergaben ein $\overline{\lambda}$ von .57, das weit außerhalb der experimentellen Fehlergrenze liegt.

 $\overline{\lambda}$ kann wie folgt geschrieben werden



Abb. 11

SEFOR Core I

$$\beta_{\text{eff}} \overline{\lambda} = (1 - F_8/F_9 + F_8) \beta_{\text{eff}}^9 \cdot \overline{\lambda}_9 + \frac{F_8}{F_9 + F_8} \cdot \beta_{\text{eff}}^8 \overline{\lambda}_8$$

In Tabelle 4 sind die Beiträge der verschiedenen Gruppen von U⁸ und Pu⁹ nach /1/ zusammengefaßt.

Wie aus Tabelle 4 leicht ersichtlich ist, sind die $\overline{\lambda}$ von U^8 und Pu⁹ sehr unterschiedlich. Die Fehler ergeben sich dann unter Zugrundelegung folgender Annahmen:

7% in dem Spaltratenverhältnis von U⁸ und Pu⁹ i.e.: .025 sec⁻¹ für λ

- 7% in dem effektiven Beitrag von Pu⁹ zu β_{eff} i.e.: .025 sec⁻¹ für λ
- 7% in der effektiven Zerfallskonstante nach /1/ i.e.: .05 sec⁻¹ für λ

Der Gesamtfehler beträgt dann: .06 sec⁻¹. Folglich liegt der Meßwert innerhalb der Fehlergrenze der Rechnung.

In der weiteren Analyse der SEFOR-Transienten wird daher dieser Meßwert verwendet, da dieser offensichtlich genauer ist.

Referenz

/1/ G. Keepin, Physics of Nuclear Kinetics, Addison-Wesley, Reading 1965 Beiträge der einzelnen Gruppen zu $\overline{\lambda}$

Tabelle 4

	U-238			Pu-239	
λ _i	a. i	^a i ^λ i	λ _i	ai	^a i ^λ i
0.0132	.013	.00017	.0129	.038	.0005
.0321	.137	.00440	.0311	.280	.0087
.139	.162	.02252	.134	.216	.0289
.358	.388	.13890	.331	.328	. 1086
1.41	•225	.35955	1.26	. 103	.1298
4.02	.075	. 30150	3.21	.035	.1124
		.827		and a sub-state of the sub-	.3888

Veröffentlichungen zu 121:

- R. Böhme, E.A. Fischer, P. McGrath, W. Scholtyssek
 Physikalische Untersuchungen an einfachen schnellen Pu-Cores
 Tagungsbericht Reaktortagung Hamburg 1972
- (2) E.A. Fischer, W. Bickel, P. Fehsenfeld, M. Pinter, W. Scholtyssek Physikalische Untersuchungen an einem schnellen "Null-Reaktivitäts-Core" mit angereichertem Uran Tagungsbericht Reaktortagung Hamburg 1972
- (3) H. Bogensberger, E.A. Fischer, A.M. Raberain, D. Wintzer Dopplerrechnungen für schnelle Reaktoren - Standardverfahren und notwendige Korrekturen Tagungsbericht Reaktortagung Hamburg 1972
- W.J. Oosterkamp, H. Bogensberger, D. Wintzer
 Transient Tests in SEFOR
 Tagungsbericht Reaktortagung Hamburg 1972
- (5) G. Jourdan, F. Plum, H. Reichel
 Physics Investigations of Sodium Cooled Fast Reactors, SNEAK-Assemblies
 6A/6B
 KFK-1612 (Juni 1972)

122. REAKTORTHEORIE

1221. Wirkungsquerschnitte und Gruppenkonstanten

Einige 208-Gruppen-Untersuchungen f ür SNEAK-7A und SNEAK-7B (J. Braun, E. Kiefhaber, INR)

Die experimentellen und theoretischen Werte einiger Spektralindizes sind für die Anordnungen SNEAK-7A und SNEAK-7B bereits angegeben worden⁺⁾.

Beim Vergleich von Rechnung und Messung fällt auf, daß für SNEAK-7B die Quotienten Rechn./Exp. für den KFKINR-Gruppenkonstantensatz um 5 - 8% über den entsprechenden Werten für SNEAK-7A liegen, wie die folgende Tabelle 1 zeigt:

Tal	bel	le	1
		_	-

	SNEAK-7A Rechn./Exp. KFKINR	SNEAK-7B Rechn./Exp. KFKINR
σ _f ⁸ /σ _f ⁵	0.88	0.95
σ _f ⁹ /σ _f ⁵	0.965	1.02
σ _c ⁸ /σ _f ⁵	1.02	1.07

*)_{KFK} 1271/4, S. 121-25

Durch einige 208-Gruppen-Rechnungen sollte geklärt werden, ob dieser Effekt dadurch bedingt sein könnte, daß das für den KFKINR-Satz benutzte SNR-Wichtungsspektrum für eine oder beide dieser Anordnungen ziemlich ungeeignet ist. Es wurden nulldimensionale Rechnungen für die jeweils zentralen Zonen durchgeführt, wobei das Buckling so bestimmt wurde, daß sich jeweils k_{eff} = 1 in den 208-Gruppen-Rechnungen ergab. Zur Untersuchung des Einflusses des Wichtungsspektrums wurden Kondensationen der Gruppenkonstanten auf 26 Gruppen durchgeführt. Bei Verwendung der 208-Gruppen-Eigenspektren der jeweiligen Mischungen als Wichtungsspektrum wurden in den 26-Gruppen-Rechnungen erwartungsgemäß die 208-Gruppen-Resultate reproduziert.

Auch bei Verwendung der SNR-Stoßdichte als Wichtungsspektrum für die Kondensation auf 26 Gruppen ergaben sich nur relativ geringfügige Abweichungen zu den 208-Gruppen-Ergebnissen, wie folgende Angaben zeigen:

Wichtungsspektrum		SNEAK-7A		SNEAK-7B			
zur Kondensation	Spektralindizes				Spektralindi		
auf 26 Gruppen	^k eff	σ _f ⁸ /σ _f ⁵	$\sigma_c^{8}/\sigma_f^{5}$	^k eff	$\sigma_{f}^{8}/\sigma_{f}^{5}$	$\sigma_{c}^{8}/\sigma_{f}^{5}$	
Eigenspektrum							
= 208-GrResul-	1.0000	0.03777	0.1465	1.0000	0.02843	o.1482	
taten							
SNR-Stoßdichte	0.9997	0.03740	0.1461	1.0029	0.02797	o.1466	
SNEAK-3A2-	1.0022	0.03810	0.1454	1.0068	0.02832	0.1460	
Stoßdichte							
aus Spaltspektr.	1.0082	0.03896	0.1427	1.0127	0.02878	0.1441	
+ 1/E-Spektr.				:			

Tabelle 2

Selbst bei Verwendung ungeeigneterer Wichtungsspektren, wie z.B. der SNEAK-3A2-Stoßdichte oder einer Stoßdichte, die aus einem Spalt- und einem 1/E-Spektrum zusammengesetzt ist, sind die Ergebnisse für die Spektralindizes aus Rechnungen mit den auf 26 Gruppen kondensierten Gruppenkonstanten noch in verhältnismäßig guter Übereinstimmung mit den entsprechenden Ergebnissen der 208-Gruppen-Rechnungen. In den folgenden Tabellen sind die experimentellen und theoretischen Resultate für die beiden untersuchten Spektralindizes in SNEAK-7A und SNEAK-7B zusammengestellt. Das Hauptaugenmerk richtet sich dabei auf das Verhalten dieser Größen beim Übergang von der Anordnung 7A zur Anordnung 7B.

Tabelle 3

	SNEAK-7A									
	Experiment	KFKINR	KOND. 2o8→26 Eigen- spektrum	KOND. 208+26 SNR- Stoßdichte	KOND. 208→26 SNEAK-3A2 Stoßdichte	KOND. 2o8→26 Stoßdichte aus χ(E)+1/E				
σ _f ⁸ /σ _f ⁵	0.0499±3%	0.0395	0.0378	0.0374	0.03810	0.03896				
σ _c ⁸ /σ _f ⁵	o.132 ±3%	0.135	0.147	0.146	o.145	0.143				

Spektralindizes für SNEAK-7A und SNEAK-7B

	SNEAK-7B							
	Experiment	KFKINR	KOND. 208+26 Eigen- spektrum	KOND. 208→26 SNR- Stoßdichte	KOND. 208→26 SNEAK-3A2 Stoßdichte	KOND. 2o8→26 Stoßdichte aus χ(E)+1/E		
σ _f ⁸ /σ _f ⁵	0.0328±2%	0.0312	0.0284	0.0280	0.02832	0.02878		
σ _c ⁸ /σ _f ⁵	o.126 ±3%	0.135	0.148	0.147	0.146	0.144		

	Verhältnis SNEAK-7A/SNEAK-7B							
	Experiment	KFKINR	KOND. 2o8→26 Eigen- spektrum	KOND. 208→26 SNR- Stoßdichte	KOND. 208+26 SNEAK-3A2 Stoßdichte	KOND. 2o8→26 Stoßdichte aus χ(E)+1/E		
σ _f ⁸ /σ _f ⁵	1.369	1.266	1.331	1.336	1.345	1.354		
σ _c ⁸ /σ _f ⁵	1.048	1.000	0.993	0.993	0.993	0.993		

122-3

Da die für den 208-Gruppenkonstanten-Satz benützten Kerndaten wesentlich älter sind als die für den KFKINR-Satz benutzten, stimmen die absoluten Werte der Ergebnisse aus Rechnungen mit 208-Gruppen-Konstanten erwartungsgemäß erheblich schlechter mit den Experimenten überein als die KFKINR-Resultate. Es ist allerdings erstaunlich, daß der KFKINR-Satz für $\sigma_f^{\ 8}/\sigma_f^{\ 5}$ beim Übergang von SNEAK-7A zu SNEAK-7B eine stärkere Abweichung zum experimentellen Resultat aufweist als diejenigen Ergebnisse, die mit 208-Gruppenkonstanten gewonnen wurden, obwohl die absoluten Werte für diesen Spektralindex bei beiden Anordnungen erwartungsgemäß mit dem KFKINR-Satz näher an den experimentellen Ergebnissen liegen als die 208-Gruppen Resultate. Eine Erklärung für diese Diskrepanz erscheint schwierig; ein wesentlicher Einfluß des Wichtungsspektrums kann mit großer Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden.

Die geringe Differenz der Resultate für σ_f^8/σ_f^5 aus den vier letzten Spalten der Tabelle 3 ist ein deutliches Indiz dafür, daß das Wichtungsspektrum in diesem Falle keine allzu große Rolle spielen sollte.

Vergleicht man das Verhalten von $\sigma_c^{-8}/\sigma_f^{-5}$ beim Übergang von SNEAK-7A zu SNEAK-7B, so fällt insbesondere auf, daß alle Rechenergebnisse nahezu unverändert bleiben, während sich das experimentelle Ergebnis um 5 % verändert. Diese Änderung ist zwar noch innerhalb der experimentellen Fehlergrenzen der Einzelmessungen. Sie könnte jedoch, ebenso wie die ungeklärte Diskrepanz für $\sigma_f^{-8}/\sigma_f^{-5}$, darauf hindeuten, daß die experimentellen Resultate - vielleicht nur für eine Anordnung - noch mit einem systematischen Fehler behaftet sind.

Die vorliegenden Rechenergebnisse der 208-Gruppen-Untersuchungen lassen jedenfalls den Schluß zu, daß die festgestellten Abweichungen zwischen theoretischen und experimentellen Resultaten für die untersuchten Spektralindizes nicht durch den Einfluß des Wichtungsspektrums bei der Erzeugung der Gruppenkonstanten für den KFKINR-Satz erklärt werden können.

122-4
<u>Einfluß der inelastischen Streuung an U-238 auf Kritikalitätswerte</u> (J. Braun, E. Kiefhaber, INR)

Bei der Erstellung des KFKINR-Satzes /1/ wurde die bekannte Tatsache erneut bestätigt, daß die inelastische Streuung an U-238 einen bemerkenswert großen Einfluß auf die Kritikalitätswerte einiger Testassemblies besitzt. Gegenüber dem MOXTOT-Satz wurden beim KFKINR-Satz u.a. folgende Datenänderungen für U-238 vorgenommen:

- a) Reduktion von σ inel.
- b) Härtung des Spektrums der gestreuten Neutronen im Bereich des Verdampfungsmodells (der Parameter γ wurde von 0,16 auf 0,099 herabgesetzt; zwischen γ und der effektiven Kerntemperatur Θ im Verdampfungsmodell besteht folgender Zusammenhang: $\Theta = \sqrt{(E/\gamma A)}$.
- c) Härtung des Spektrums der inelastisch gestreuten Neutronen im Bereich diskreter Niveaus durch Benutzung der Streuwahrscheinlichkeiten aus dem russischen ABN-Satz.

Mit dem KFKINR-Satz konnte der Kritikalitätswert k_{eff} zahlreicher Anordnungen recht gut berechnet werden. Die 2. Spalte in Tabelle 4 zeigt die festgestellten Abweichungen gegenüber den entsprechenden experimentellen Werten. Ziel der vorliegenden Untersuchungen war es, den Einfluß möglicher Änderungen in den Daten für die inelastische Streuung an U-238 auf die Kritikalitätswerte zu ermitteln.

Dabei wurden folgende Änderungen betrachtet:

- I. Berücksichtigung der vorläufigen Daten für σ inel., die von H. Bluhm /2/ aus dem Uranblock-Experiment abgeleitet wurden
 - a) im gesamten Energiebereich zwischen 0,1 und 6,5 MeV
 - b) im Energiebereich zwischen 0,1 und 2,5 MeV.
- II.Reduktion des Parameters γ von 0.099 auf 0,0685; dieser Wert wurde kürzlich von PITTERLE vorgeschlagen.
- III.Ersetzung der ABN-Streuwahrscheinlichkeiten im KFKINR-Satz durch die früher benutzten Streuwahrscheinlichkeiten, die auf KEDAK-Daten basieren.
- IV. Verwendung eines anderen Wichtungsspektrums bei der Erstellung der Gruppenkonstanten und Streumatrizen; die übliche SNEAK-3 A 2 Stoßdichte wurde versuchsweise durch die SNR-Stoßdichte ersetzt.

Der Einfluß der Änderungen wurde in nulldimensionalen Diffusionsrechnungen bestimmt. Der KFKINR-Satz befindet sich gegenwärtig noch nicht auf der Bibliothek GRUBA, so daß die vorliegenden Studien mit dem Querschnittsverarbeitungsprogramm GRUCAL unter Verwendung eines modifizierten MOXTOT-Satzes durchgeführt wurden. Die festgestellten Kritikalitätsdifferenzen sind für zahlreiche Anordnungen in den Spalten 3 - 6 der Tabelle 4 angegeben.

Von den in /1 / betrachteten Anordnungen wurden nur diejenigen in Tabelle **4** aufgenommen, bei denen Kritikalitätsdifferenzen größer als 0.0015 gefunden wurden. In den Untersuchungen wurde auch die zentrale Zone des SNR betrachtet; alle Änderungen waren dafür kleiner als 0.0015, d. h. diese Mischung ist relativ unempfindlich gegenüber Änderungen in den Daten für die inelastische Streuung an U-238.

Tabelle 4

Einfluß von Querschnittsänderungen für die inelastische Streuung an U-238 auf die Kritikalitätswerte einiger Testassemblies.

	k _{eff} .calc.	Δ k durch Änderungen				
Assembly	Assembly		I b: σ inel. Bluhm o.1 MeV≦ E≦2.5 MeV	II γ 0.099-0.0685	II Ersetzung der ABN- Streuwahr- scheinlich- keiten	
SUAK U1B	- 0.008	- 0.0012	- 0.0004	+ 0.0009	+ 0.0056	
SUAK UH1B	- 0.020	- 0.0009	- 0.0019	- 0.0011	+ 0.0037	
ZPR III-10	+ 0.001	- 0.0015	+ 0.0004	+ 0.0018	+ 0.0045	
ZPR III-25	± 0.	- 0.0035	+ 0.0016	+ 0.0052	- 0.0011	
ZPR III-55	+ 0.0011	- 0-0011	+ 0.0028	+ 0.0044	- 0.0041	
ZEBRA-8 H	- 0.005	- 0.0058	+ 0.0015	+ 0.0077	- 0.0094	
ZPR IX-25	- 0.005	- 0.0051	+ 0.0014	+ 0.0071	- 0.0088	
SNEAK-6A-Z1	+ 0.007	- 0.0004	+ 0.0004	+ 0.0015	- 0.0013	
SNEAK-7B	+ 0.012	+ 0.0007	+ 0.0007	+ 0.0029	- 0.0024	

Die Abweichungen zwischen gemessenen und gerechneten Kritikalitätswerten liegen i.a. innerhalb eines Bereiches von - 1 % mit Ausnahme von SUAK UH 1 B. Bei Berücksichtigung der von Bluhmempfohlenen Werte von σ inel. im gesamten Energiebereich zwischen 0,1 und 6,5 MeV wird der Unsicherheitsbereich für die keff-Voraussage von 🕇 1 🖇 nicht qualitiv verändert, lediglich die Anordnungen ZEBRA - 8 H und ZPR IX - 25 rücken in den Grenzbereich. Berücksichtigt man die Bluhm-Werte nur im Energiebereich zwischen 0,1 und 2,5 MeV, so rückt die Anordnung ZPR III-55 etwas weiter nach oben aus dem ± 1 % -Unsicherheitsbereich heraus. Dieser Effekt ist noch stärker ausgeprägt bei der Berücksichtigung der Härtung des Spektrums der inelastisch gestreuten Neutronen durch Verkleinerung des Parameters y von 0.099 auf 0.0685. Bei der Ersetzung der ABN-Streuwahrscheinlichkeiten durch die auf KEDAK - Daten basierenden Streuwahrscheinlichkeiten würden ZEBRA-8 H und ZPR IX - 25 nach unten aus dem ⁺ 1 % Bereich herausrücken. Bei den vorliegenden Untersuchungen wurde festgestellt,daß das bei der Erstellung der Gruppenkonstanten benutzte Wichtungsspektrum keinen großen Einfluß auf die berechneten Kritikalitätswerte besitzt. Die Effekte beim Übergang vom SNEAK-3A2 zum SNR-Wichtungsspektrum waren i.a. kleiner als 0.1 %, was in diesem Zusammenhang als vernachlässigbar angesehen werden kann. Lediglich für ZEBRA- 8 H und ZPR IX- 25 wurden Kritikalitätsänderungen zwischen o.1 und o.2 % gefunden. Der überwiegende Teil des Einflusses ergab sich aus der Änderung der Streumatrizen. Die Änderung des Gruppenquerschnitts für die totale inelastische Streuung bewirkte in allen untersuchten Fällen einen Kritkalitätsunterschied von höchstens 0.05 %. Damit ist sicher_gestellt, daß kein nennenswerter Fehler dadurch zustande kommen kann, daß bei der Erstellung der Streumatrizen für den KFKINR-Satz das SNEAK-3A2-Wichtungsspektrum statt des SNR-Wichtungsspektrums benutzt wurde.

Die Differenzen zwischen den Änderungen I a und I b zeigen die erstaunliche große Bedeutung, die der Verlauf des totalen inelastischen Streuquerschnitts im Energiebereich zwischen 2,5 und 6,5 MeV auf die Kritikalitätswerte einiger Assemblies besitzt. Sie ist besonders ausgeprägt bei den k - Experimenten ZPR III-55, ZEBRA- 8H und ZPR IX - 25: $\Delta k = 0.5$ bis 0.7 %.

Die Änderung der entsprechenden Gruppenkonstanten im Bereich 2,5 bis 6,5 MeV ist dabei nichtaußergewöhnlich groß: Gruppe 2 (4,0 -6,5 MeV): + 14 %, Gruppe 3 (2,5 - 4,0 MeV): + 7 %. Diese Werte geben an, in welchem Ausmaß die Werte von Bluhm über den im KFKINR-Satz angenommenen Werten liegen. In dem fraglichen Energiebereich dürfte es schwierig sein, bei differentiellen Querschnittsmessungen eine bessere Genauigkeit als ± 10 % zu erreichen, so daß es u. U. nicht möglich sein wird, auf Grund von differentiellen Messungen zu entscheiden, welche Werte (Bluhm oder KFKINR-Satz) zutreffend sind.

Der festgestellte Einfluß des Parameters γ auf die Kritikalitätswerte verdeutlicht, daß stärkere experimentelle Bemühungen notwendig erscheinen, um diesen Parameter zuverlässig zu bestimmen. Außerdem sollte sichergestellt werden, ob die Anwendung des Verdampfungsmodells als zulässige Vereinfachung betrachtet werden kann.

Eine Ersetzung der ABN-Streumatrizen (Änderung III) durch entsprechende Werte auf der Grundlage von KEDAK-Daten würde bei gleichzeitiger Durchführung der Reduktion von γ (Änderung II) keine wesentliche Änderung des ± 1 % Unsicherheitsbereiches für die Kritikalitätsabweichungen bedeuten, wie er für den KFKINR - Satz festgestellt wurde. Die zusätzliche gleichzeitige Berücksichtigung der Werte von Bluhm für den inelastischen Streuquerschnitt von U-238 würde ebenfalls zu brauchbaren Kritikalitätswerten führen. Berücksichtigt man hierbei die Werte von Bluhm im gesamten Energiebereich, so fallen die Assemblies ZEBRA- 8H und ZPR IX- 25 merklich aus dem \pm 1 % Bereich der Kritikalitätsabweichungen ; berücksichtigt man dabei dagegen diese Werte nur unterhalb von 2,5 MeV, so liegt ZPR III-55 stärker außerhalb des \pm 1 % Bereichs.

Folgende Anforderungen wären auf Grund der festgestellten Auswirkungen auf die Kritikalitätswerte an zukünftige Messungen und Auswertungen der Daten für die inelastische Neutronenstreuung an U-238 zu stellen:

 Genaue Bestimmung des totalen inelastischen Streuquerschnitts im gesamten Energiebereich mit einer Genauigkeit von besser als 10 %, z. B. als Bestätigung der von Bluhm empfohlenen Kurve.

- 2. Verbesserungen im Zusammenhang mit der Berechnung der Streuwahrscheinlichkeiten für die inelastische Streuung im Kontinuumsbereich. Dabei sollte
- a) die Anwendbarkeit des Verdampfungsmodells untersucht werden,
- b) der Parameter γ bzw. die effektive Kerntemperatur sowie gegebenenfalls die Energieabhängigkeit dieser Größen, die im Verdampfungsmodell benutzt werden, genauer ermittelt werden.
- 3. Verbesserte Bestimmung der Partialquerschnitte für die Anregung diskreter Niveaus unterhalb von etwa 1 2 MeV.

Literatur:

- / 1 / E. Kiefhaber , KFK 1572 (1972)
- /2/ H. Bluhm, Private Mitteilung, Juli 1972

 MIGROS-2. Ein Programm zur Berechnung von mikroskopischen Gruppenkonstanten des ABN-Typs (H. Huschke, B. Krieg, I. Langner, B. Schatz, I. Siep, P. Vertes, H. Wiese, INR)

Das Programm MIGROS-2 ist nunmehr fertiggestellt worden. Es dient der Berechnung mikroskopischer Gruppenkonstanten für beliebige Isotope. MIGROS-2 ermöglicht die Herstellung von Gruppenquerschnittssätzen des ABN-Typs $\begin{bmatrix} 1 & 7 \\ 1 & 7 \end{bmatrix}$. Die Karlsruher Kerndatei KEDAK $\begin{bmatrix} 2 & 7 \\ 2 & 7 \end{bmatrix}$ wird als Kerndatenbasis benutzt. Das Programm ist eine Weiterentwicklung des Programmes MIGROS $\begin{bmatrix} 3 & 7 \\ 3 & 7 \end{bmatrix}$, das bisher zur Herstellung der Karlsruher 26-Gruppen Querschnittssätze benutzt worden ist. Die mikroskopischen Gruppenkonstanten, die mit MIGROS-2 berechnet worden sind, können zur Herstellung makroskopischer Gruppenquerschnitte für Diffusions-, konsistente P - und für S -Berechnungen benutzt werden unter Berücksichtigung der Anisotropie bis hin zur P -Näherung. Es handelt sich vor allem um

- Mittlere Gruppenquerschnitte f
 ür unendliche Verd
 ünnung (ohne Resonanzselbstabschirmung) f
 ür alle Typen von Neutronenreaktionen, aus energieabh
 ängigen Wirkungsquerschnitten, die punktweise tabelliert sind;
- Energieresonanzselbstabschirmfaktoren und mittlere Gruppenquerschnitte für unendliche Verdünnung für Einfang, Spaltung, elastische Streuung und totale Neutronenreaktion aus Parametern aufgelöster Resonanzen, aus statistischen Resonanzparametern und aus energieabhängigen Querschnitten, die punktweise im Resonanzgebiet tabelliert sind;
- Elastische Streumatrizen bis zur P₅-Näherung aus Winkelverteilungen;
- Matrizen des nullten Moments der inelastischen Streuung aus inelastischen Anregungsquerschnitten oder aufgrund eines Verdampfungsmodells;
- 1/v gemittelte Gruppenwerte;
- Spaltspektren;
- Wirkungsquerschnitte für das Gebiet der thermischen Energie (eine Energiegruppe).

Das Programm MIGROS-2 hat eine modulare Struktur, die hinsichtlich ihres Speicherbedarfs sehr flexibel ist.

Ein Standardinput ist intern vorgesehen zur Herstellung eines 26-Gruppen Querschnittsatzes mit derselben Gruppenstruktur wie der ABN-Satz. Die Ausgabe der Ergebnisse ist in zwei Formen möglich: auf Papier oder auf eine externe Einheit. Ein Bericht über MIGROS-2 ist in Vorbereitung <u>/</u>4_/

Literaturhinweise:

- [1]7 L.P. Abagjan, N.V. Bazazjanc, I.I. Bondarenko, M.N. Nikolaev Gruppenkonstanten schneller und intermediärer Neutronen für die Berechnung von Kernreaktoren. KFK-tr-144
- [2]7 B. Hinkelmann, B. Krieg, I. Langner, J.J. Schmidt, D. Woll Status of the Karlsruhe evaluated nuclear data file KEDAK at June 1970. KFK 1340
- [3_7] H. Huschke et al. Gruppenkonstanten für dampf- und natriumgekühlte schnelle Reaktoren in einer 26-Gruppendarstellung. KFK-Bericht 770 (1968)
- [4_7] H. Huschke, B. Krieg, I. Langner, B. Schatz, I. Siep, P. Vertes, H. Wiese KFK-Bericht in Vorbereitung

Auswertung von MeV-Daten für H, C-12, Na-23 und Mo (R. Meyer, INR)

In den letzten Jahren wurde für eine Reihe von Materialien die obere Energiegrenze der auf KEDAK verfügbaren ausgewerteten Daten von 10 auf 15 MeV erweitert. Die Auswertung für Cr, Fe, Ni wurde in $\frac{1}{2}$ kurz beschrieben. Diese Arbeiten wurden nun auch auf H, C-12, Na-23 und Mo ausgedehnt. Auch hierbei wurden die Schwellreaktionen ab Schwelle ausgewertet.

1) <u>Na-23, Mo</u>

ausgewertet wurden: σ_{tot} , σ_{el} , σ_{inel} : 10 - 15 MeV σ_{γ} : 1 - 15 MeV σ_{α} , σ_{p} , σ_{2n} : Schwelle - 15 MeV

Während für die totalen Querschnitte ausreichende und sehr genaue Information vorliegt, z.B. $/2_7$, sind die experimentellen Ergebnisse für die partiellen Reaktionsquerschnitte widersprüchlich oder lückenhaft. Das hat zur Folge, daß die Absorptionsquerschnitte im MeV-Bereich wohl nicht genauer als \pm 15% (Na-23) und \pm 30% (Mo) bekannt sind. Abb. 1 zeigt als Beispiel Na-23 (n, α). Die (n, γ)-Querschnitte für die Mo-Isotope wurden gemäß dem kollektiven Modell $/5_7$ berechnet und können mit den Ergebnissen von Benzi $/6_7$ verglichen werden. Abb. 2 zeigt Mo-100 (n, γ). Das für dieses Modell charakteristische Maximum ist bei 15 MeV deutlich zu sehen. Die zum Teil neu normierten experimentellen Resultate zeigen deutliche Diskrepanzen.

Abb. 3 enthält die (n,2n)-Querschnitte für Mo und seine Isotope. Nur für Mo-92 und Mo-100 liegt experimentelle Information vor – für die anderen Isotope sind die Restkerne stabil, und σ (n,2n) kann nicht über Aktivierung gemessen werden. Die experimentellen Ergebnisse wurden mit Hilfe von Kernsystematiken ergänzt. Dies ist wegen der Größe des Querschnittes unbefriedigend. Messungen an allen Mo-Isotopen wären wünschenswert.

2)<u>H</u>

ausgewertet wurden: σ_{tot} : 0,7 - 15 MeV σ_{γ} : 0,001 eV - 15 MeV $d\sigma_{e1}(0)$: 0,5 - 15 MeV

Von den verfügbaren Experimenten ist das von Cierjacks et al. den anderen an statistischer Genauigkeit deutlich überlegen und wurde von 0,7 - 15 MeV mit stückweise linearen Kurven gefittet. Diese Fitkurve weicht von der Streuphasenanalyse in (8) im allgemeinen um weniger als 0,5% ab, ein Beweis für die hohe Genauigkeit, mit der der totale Querschnitt von Wasserstoff derzeit bekannt ist. σ_{γ} wurde der Auswertung von Horsley $\boxed{9}$ entnommen. Die elastischen Winkelverteilungen entsprechen der Streuphasenanalyse von Hopkins und Breit $\boxed{8}$. Abb. 4 zeigt die berechneten Verteilungsfunktionen bei 7 - 10 MeV: d σ (180°)/ d σ (o°) z 1,05 bei 10 MeV. 3) <u>C-12</u>

ausgewertet wurde: σ_{tot} 10 - 15 MeV σ_{inel} , σ_{inel} ^{(E}_j), σ (n, α), σ (n,n' 3 α) Schwelle-15MeV

Für σ (n,n⁴.43 MeV) gibt es keine befriedigenden experimentellen Ergebnisse. Die empfohlene Kurve stützt sich im wesentlichen auf die d σ (0[°]) Kurve von Bonner <u>/</u>14_7, die an einigen Energien auf verfügbare integrale Ergebnisse normiert wurde. Das verzweigte Zerfallsschema der höheren C¹²-Niveaus hat zur Folge, daß nur wenige verlässliche Ergebnisse über die Spektren der inelastisch gestreuten Neutronen verfügbar sind, da die α - Spektren kaum Rückschlüsse auf die emittierten Neutronen erlauben.

Erhebliche Diskrepanzen treten schließlich bei C^{12} (n, α_0) auf; diese Reaktion ist auch über den iversen Prozess Be⁹ (α , n_0) meßbar. Zwischen älteren Ergebnissen für $d\sigma(0^{\circ})$ Be⁹ (α , n_0) und neueren von Van der Zwan, Geiger (11) und Obst et al. (12) bestehen Diskrepanzen in der Größenordnung 100% für die α -Energien < 5 MeV. Wird aus dem gemessenen σ (α , n_0) für Be⁹ auf $C^{12}\sigma(n, \alpha_0)$ rückgerechnet, so ergibt sich bei 8,1 MeV für Geiger $\sqrt{11}$ ein Peakwert von 150 mb, bei 9,3 MeV 300 mb; dem steht ein Ergebnis von Risser, Price, Class $\sqrt{13}$ von 160 mb bei 9,3 MeV entgegen. Davis, Bonner $\sqrt{10}$ haben C^{12} (n, α_0) direkt gemessen und bei 8,1 MeV einen Peak von 75 mb gefunden. Da Geigers Ergebnisse durch eine zweite Messung von Obst $\sqrt{12}$ gestützt wird, und da bei Nichtberücksichtigung dieser Resultate bei 10 MeV eine sonst nicht beobachtbare Resonanz auftreten würde, haben wir schließlich die ausgewertete Kurve auf das Experiment von Geiger gestützt.

Literatur

- / 1_/ R. Meyer KFK 1270/1, 1970
- / 2_/ S. Cierjacks et al KFK 1000 + Suppl., 1970 ff
- / 3_7 J.J. Schmidt KFK 120/I, 1966
- <u>/</u>4_7 R.E. Bullock, R.G. Moore Phys.Rev. 119, 721, 1960

- / 5_7 G.E. Brown
 Nucl. Phys. 57, 338, 1964
- / 6_7 V. Benzi, G. Reffo CCDN-NW 10, 1969; CEC (70) 2
- / 8_7 J.-C. Hopkins, G. Breit Nucl. Data A9, 137, 1971
- / 9_7 A. Horsley Nucl. Data A 2 , 243, 1966
- / 10_7 E.A. Davis, T.W. Bonner, O.W. Worsley jr., R. Bass Nucl. Phys. 48, 169, 1963
- / 11_7 L. Van der Zwan, K.W. Geiger Nucl. Phys. A 152, 481, 1970
- / 12 / A.W. Obst, T.B. Grandy, J.L. Weil Phys. Rev. C5, 738, 1972
- / 13_/ J.R. Risser, J.E. Price, C.M. Class Phys. Rev. 105, 1288, 1957
- / 14_7 H.E. Hall, T.W. Bonner Nucl. Phys. 14, 295, 1959

Zeichenerklärungen zu den Abbildungen:

Abb.l Na 23 (n, α)

---- derzeit empfohlen

->->-bisher empfohlen (3)

=derzeit empfohlen (E>9 MeV)

Abb.2 Mo $100 (n_r \gamma)$

X Benzi, gerechnet (6) —— empfohlen =gerechnet E > 3 MeV —∦— gerechnet E < 3 MeV</p>

Abb.3 Mo (n,2n)

<u>Mo</u> σ (n,2n) für Mo <u>XX</u> σ (n,2n) für Mo^{XX}-Isotop

Abb.4 H $(n,n): \frac{d\sigma}{d\Omega}$

---- Breit, Hopkins (lo) =empfohlen









ω

1222 Flußberechnungen

1222.2 <u>Weiterentwicklung des Monte-Carlo-Codes KAMCCO</u> (H. Borgwaldt, INR)

Die in / l_/ dargestellten Arbeiten zur Verbesserung der Behandlung des Energiebereichs nicht aufgelöster Resonanzen wurden fortgesetzt. Mit einem hierfür erstellten Code DISTRESS wurden auf der Basis der KEDAK-Daten für die spaltbaren Materialien Wahrscheinlichkeitsverteilungen für die Wirkungsquerschnitte ermittelt.

Der Code DISTRESS berechnet mit einer Variante der Leiter-Methode aus den statistischen Resonanzparametern im Einniveau-Breit-Wigner-Schema für 2-3 Temperaturen und für 120 Wahrscheinlichkeitsintervalle, die auch ungleich sein können, je einen Satz von Querschnitten, wie in / 1/dargestellt. Statistische Fehler durch die benutzte Leiter-Methode werden weitgehend eliminiert durch Normierung der Verteilung für jede Resonanzserie auf die im gleichen Rechengang wesentlich genauer berechneten mittleren Querschnitte (gültig für unendliche Verdünnung).

Die Rechnungen wurden durchgeführt für Pu-239 und U-235 von 46.5 eV bis 21.5 keV, für Pu-240 von 465 eV bis 21.5 keV und für U-238 von 1 keV bis 21.5 keV, jeweils für die Energiegruppen-Eckwerte des 26-Gruppensatzes. Eine erste Überprüfung der Ergebnisse an Hand der aus ihnen sich ergebenden effektiven Querschnitte (bzw. f-Faktoren) bei unterschiedlichen Verdünnungen ergab befriedigende Übereinstimmung mit den Daten des SNEAK-Satzes / 2_/.

Die Kondensation dieser Daten auf wenige Wahrscheinlichkeitsintervalle, wie sie für KAMCCO notwendig wird, erfordert im Bereich unter 1 keV einige Sorgfalt; die optimale Kondensationsmethode steht für diesen Bereich noch nicht eindeutig fest. Für höhere Energien dagegen läßt sich die Kondensation ohne Schwierigkeiten durchführen. Ein erster Test-Datensatz für die verbesserte KAMCCO-Version wurde erstellt; Testrechnungen bestätigen die früheren Erwartungen.

Literatur

[1] H. Borgwaldt, M. Lalović, KFK-Bericht 1272/1 (1972), S. 122-6
[2] H. Huschke (comp.), KFK-Bericht 770 (1968)

123 SICHERHEIT SCHNELLER REAKTOREN

1231. Theoretische Untersuchungen zur Reaktordynamik

Dokumentation des zweidimensionalen Dynamikprogramms KINTIC-1.

(L. Mayer, H. Bachmann, INR)

KINTIC-1 ist die erste Stufe eines Programmsystems zur Behandlung aller Stadien einer Reaktorexkursion, beginnend mit der einleitenden Störung bis zum eventuellen Zusammenschmelzen des Cores und zur zweiten Exkursion. Im ersten Teil der Dokumentation werden die physikalischen Modelle zusammengefaßt, die die Basis des Programms bilden. Es behandelt zweidimensionale Geometrie und benutzt die quasistatischen Methode für den Neutronenkinetik-Teil. In der vorliegenden Version können nur Störungen simuliert werden, die durch eine Materialbewegung verursacht werden. Für die Beschreibung der zonenabhängigen Thermodynamik in Core und Blanket wird ein Einkanalmodell mit charakteristischen Kühlkanälen für verschiedene Reaktorzonen benutzt. Die Rückwirkungseffekte umfassen ortsabhängige Dichteänderungen und die Ausdehnung von Reaktorzonen sowie Wirkungsquerschnittsänderungen aufgrund des Dopplereffekts. Zur Zeit können noch keine Effekte wie Kühlmittelsieden, Brennstoff-Natrium-Reaktion usw. beschrieben werden.

Die Parameter eines Problems wie Zahl der Maschenpunkte, der Energiegruppen usw. können unter Rücksichtnahme auf den verfügbaren Kernspeicher frei gewählt werden, da eine dynamische Speicherplatzzuweisung realisiert wurde. Zusätzliche obere Grenzen sind: Bis zu 26 Energiegruppen, 6 Vorläufergruppen, 100 Materialzonen und 10 charakteristische Kühlkanäle.

Teil I der Arbeit wird abgeschlossen mit einer kurzen Diskussion der geplanten Codeerweiterungen und mit den Ergebnissen numerischer Rechnungen und Vergleiche. Teil 2 enthält Eingabe- und Kontrollkartenlisten, die Eingabe für eine kleine Proberechnung, einige Informationen über die Codeorganisation und Flußdiagramme. Er soll es dem Benutzer ermöglichen, selbständig Rechnungen mit KINTIC-1 durchzuführen.

Veröffentlichungen zu 1231:

L. Mayer, H. Bachmann KINTIC-1: A program for the calculation of two-dimensional reactor dynamics of fast reactors with the quasistatic method. KFK 1627 (1972)

1232 Spannungs- und Verformungsanalysen von Reaktorbauteilen

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

1232.1 Festigkeitsuntersuchungen von Hüllrohren und sonstigen Corebauteilen

Längsberippte Hüllrohre für Na-gekühlte Reaktoren⁺⁾ (R. Krieg, IRE)

Die Untersuchungen zum ebenen Verzerrungszustand bei weitgehend beliebiger zweifach zusammenhängender Körperquerschnittsfläche / 1_7 bei nichtelastischem Werkstoffverhalten wurden abgeschlossen. Damit lassen sich beim längsberippten Brennstabhüllrohr Spannungs- und Verzerrungsanalysen auch unter Berücksichtigung des thermischen und strahlungsinduzierten Werkstoffkriechens durchführen. Der Hüllrohrinnendruck und die Volumenzunahme dürfen dabei beliebige Funktionen der Zeit sein. Das gewählte Berechnungsverfahren beruht auf einer schrittweise linear-elastischen Lösung des Problems. Die linearelastische Lösung muß hierbei so beschaffen sein, daß der Einfluß plastischer Verzerrungsfelder – letztere ergeben sich aufgrund vorhergehender Rechenschritte- berücksichtigt werden kann.

Zur numerischen Durchführung der Rechnungen dient der Code EVA2. Große Teile dieses Codes stimmen mit dem Code EVA1 (elastische Spannungsanalyse für längsberippte Brennstabhüllrohre) überein.

Einige Rechenbeispiele für Brennstabhüllrohre, wie sie für Na-gekühlte Reaktoren typisch sind, wurden bisher mit dem Code EVA2 durchgeführt. Obwohl derzeit die Stoffdaten für eine quantitative Analyse noch außerordentlich unsicher sind, lassen sich die folgenden Aussagen machen:

⁺⁾Letzter Beitrag in KFK-Bericht 1271/3

- Bei längeren Einsatzzeiten (Größenordnung 50 Tage) ist für die Hüllrohrbeanspruchung im wesentlichen der Hüllrohrinnendruck maßgebend. Demgegenüber ist der Einfluß der Wärmedehnung und des Werkstoffschwellens von geringerer Bedeutung.
- Die Erhöhung der Beanspruchung am Rippenfuß infolge Kerbwirkung ist nicht sehr erheblich. Nötigenfalls kann sie durch eine geeignete (korbbogenartige) Ausrundung herabgesetzt werden.
- Mehr Beachtung verdient die Erhöhung der Beanspruchung am Innenrand unter der Rippe.
- Der Spannungsabbau infolge strahlungsinduzierten Kriechens kann bei mehrachsigem Spannungszustand – anders als beim thermischen Kriechen – zu sehr ungleichmäßigen Spannungsfeldern führen (hohe Spannungsmaxima). Ursache sind die fehlende Progression und der geringe gestaltändernde Dehnungsanteil beim strahlungsinduzierten Kriechen.

Eine ausführliche Darstellung ist als KFK-Bericht in Vorbereitung.

2. <u>Verhalten eines Brennelementkastens bei Kriechen und Schwellen des</u> <u>Werkstoffes⁺⁾</u> (R. Liebe, IRE)

Für die mechanische Coreauslegung und die Beschreibung des Betriebsverhaltens von Na-gekühlten Schnellbrütern muß man den zeitlichen und örtlichen Verlauf der Deformationen, Lagerkräfte und Spannungen am einzelnen Brennelement (BE) kennen. Das mehrfach, d.h. statisch unbestimmt gelagerte BE wird im wesentlichen durch unsymmetrische Temperatur- und Flußprofile auf Biegung beansprucht, die von drei Mechanismen herrührt:

- Behinderte thermische Dehnung
- Thermisches und/oder strahlungsinduziertes Kriechen
- Behinderte Schwelldehnung.

Für die ebene Biegung des einzelnen BE infolge thermischer Dehnung, Kriechund Schwelldehnung ist ein allgemeines Rechenverfahren entwickelt worden, mit dem die zeitliche und örtliche Verteilung der Kastenauslenkungen, der Kräfte in den Verspannungsebenen sowie der Biegespannungen (axial und über dem Kastenquerschnitt) bestimmt werden kann. Die Methode zur näherungsweisen

+)Letzter Beitrag in KFK-Bericht 1271/3

Lösung des nichtlinearen Kriechbiegeproblems beruht auf dem Verfahren der schrittweisen linear-elastischen Approximation, bei dem innerhalb eines Zeitschrittes die Spannungen konstant gehalten werden. Dadurch wird die Trennung in ein reines Orts- und ein Zeitproblem möglich. Für jedes Zeitintervall dienen die zuvor ermittelten thermoelastischen Kriech- und Schwell-Dehnungsinkremente des vorangegangenen Zeitschrittes zur Ermittlung gewisser Korrekturlasten, die gerade so beschaffen sind, daß Gleichgewicht und Verträglichkeit am Gesamtsystem erfüllt sind. Dem Verfahren liegen folgende vereinfachende Annahmen zugrunde:

- Gültigkeit der Balkenbiegetheorie
- Inkrementelles Vorgehen in der Zeit
- Örtliche Diskretisierung durch Einteilung des BE in endlich viele Felder mit geeigneter Substruktur
- Feldweise Linearisierung der Verläufe von Temperatur und Neutronenflußdichte.

Die flexible und kompakte Matrixformulierung erleichtert die Anwendung der sehr allgemeinen Methode, deren Einsatzmöglichkeiten wie folgt charakterisierbar sind:

- Zulassung beliebiger Kriech- und Schwellgesetzte mit temperaturabhängigen Kriech- und Schwellparametern
- Erfassung beliebiger Ortsverläufe der BE-Biegesteifigkeit sowie des Niveaus und Gradienten der Temperatur- und Neutronenflußdichte
- Berücksichtigung mehrerer Lager, deren Position u.U. als Zeitfunktion vorgebbar sein kann
- Maximale Flexibilität und Einfachheit, so daß das Verfahren Teil eines wirtschaftlichen, modular aufgebauten Corefestigkeits-Codes bilden kann.

Es wurde ein entsprechendes Computerprogramm "BEKS" (Brennelementkasten bei Kriechen und Schwellen) entwickelt und erfolgreich getestet. Bisher durchgeführte Rechnungen für verschiedene SNR-Verhältnisse haben u.a. folgendes gezeigt:

- Das Zusammenwirken insbesondere von in-pile Kriechen (Spannungsabbau) und Schwellen (Spannungsaufbau) kann den thermoelastischen Beanspruchungszustand zu Beginn der Standzeit in weiten Grenzen ändern
- Die Tendenz der Rechenergebnisse stimmt mit den Resultaten an anderer Stelle überein (BNWL, ANL/USA).

Eine detaillierte Beschreibung der Methode und Anwendung des Verfahrens sowie des Computerprogramms wird z.Zt. abgeschlossen und soll als KFK-Bericht veröffentlicht werden.

3. <u>Theorie des Kriechens zylindrischer Schraubfedern</u>⁺⁾ (T. Malmberg, IRE)

Das Phänomen des strahlungsinduzierten Kriechens von Hüll- und Strukturmaterialien gehört neben dem Schwellen zu den wichtigsten Gesichtspunkten, die beim Entwurf der Hüllrohre und der Corestruktur beachtet werden müssen. Die bisher vorliegenden Daten sind spärlich, die Versuchsbedingungen oft nicht genau bekannt und die Ergebnisse zum Teil widersprüchlich.

Es wird daher diskutiert, in-pile Kriechversuche an zylindrischen Schraubfedern vorzunehmen. Im Gegensatz zu Zugproben haben Schraubenfedern meßtechnische Vorteile, da die zu messenden Verformungen wesentlich größer sind bei etwa gleicher Baugröße der Versuchseinsätze. Zur Prüfung der Zweckmäßigkeit solcher Experimente wurden folgende Arbeiten durchgeführt:

- a) Da der Spannungszustand im Querschnitt des Federdrahtes vorwiegend ein reiner Schubspannungszustand ist, wurde untersucht, unter welchen Voraussetzungen diese Ergebnisse Aussagen über das strahlungsinduzierte Kriechen bei Normalspannungsbelastung zulassen.
- b) Als Voraussetzung f
 ür die Auswertung solcher Experimente wurde eine Kriechtheorie f
 ür zylindrische Schraubfedern entwickelt.

+) Bisher nicht berichtet.

Diese Untersuchungen lieferten folgende vorläufige Ergebnisse:

Zu a): Es zeigte sich, daß eine Übertragung auf Normalspannungszustände nur mit Hilfe zusätzlicher Hypothesen möglich ist. Es ist hierzu nämlich die Postulierung eines mehrachsigen Kriechgesetzes erforderlich. Diese zusätzlichen Hypothesen lassen sich nicht in dem vorgesehenen Schraubenfederexperiment allein verifizieren, vielmehr sind hierzu andere Versuchstypen erforderlich (z.B. Rohr unter Innendruck, Biegebalken unter Einzellast).

Zu b): Es wurde eine neue Kriechtheorie für zylindrische Schraubenfedern entwickelt, in der nicht nur strahlungsinduziertes, sondern auch thermisches Kriechen enthalten ist und in der näherungsweise die nichtlineare Schubspannungsverteilung im Drahtquerschnitt und das Eigengewicht der Feder berücksichtigt werden. Die Theorie ist beschränkt auf kleine Steigungen der Federwindungen und kleine Verhältnisse a/R (2a: Federdrahtdurchmesser, 2R: Durchmesser der Schraubenfeder). Das bedeutet, daß der Federdraht im Hinblick auf die Spannungsverteilung wie ein gerader Torsionsstab behandelt werden kann.

Wie Abschätzungen gezeigt haben, bewirkt diese letzte Annahme (a/R << 1) bei Vorhandensein des thermischen Kriechens mit seiner ausgeprägt nichtlinearen Spannungsabhängigkeit eine deutliche Unterschätzung der Verlängerungsrate der Feder, für a/R = 0.1 und n = 5 (Spannungsexponent) ist sie um einen Faktor 2 kleiner. Sollte thermisches Kriechen eine Rolle spielen, dann muß in dieser Hinsicht die Theorie erweitert werden.

Ein weiteres Problem, das zu untersuchen bleibt, ist die Frage der Separierung von strahlungsinduziertem Kriechen und Schwellen.

1232.4 Verhalten von Reaktorbauteilen unter dynamischer Belastung⁺⁾ (T. Malmberg, IRE)

Die Auswertung der Simulationsexperimente zur Auswirkung der Brennstoff-Natrium-Wechselwirkung auf die Corestruktur (vergl. Kap. 1235 in KFK 1272/1) erfordert ergänzende und tiefergehende theoretische und experimentelle Untersuchungen über das Verhalten des Kernverbandes unter dynamischer Belastung.

⁺⁾ Letzter Beitrag in KFK-Bericht 1271/4.

Ein erster Programmentwurf "Verformung der Corestruktur durch interne Drucktransienten" wurde Anfang des Jahres 1971 fertiggestellt. Das Ziel dieses Vorhabens ist es, die mechanischen Auswirkungen von Drucktransienten, die durch eine Brennstoff-Natrium-Reaktion (BNR) in einem einzelnen Brennelement verursacht werden könnten, zu untersuchen. Die BNR wird dabei nicht näher untersucht, sondern zunächst durch einen vorgegebenen Druck-Zeit-Verlauf simuliert.

Die Untersuchungen sollen in einer ersten Phase zunächst folgende Aktivitäten umfassen:

- 1. Literaturstudien
 - Aktivitäten anderer Forschungsstellen oder Firmen
 - Verhalten metallischer Werkstoffe unter dynamischer Belastung
 - Faltwerkstheorie bei großen Deformationen.
- Entwicklung eines Ein-Reihen-Modells. Bei diesem Modell soll davon ausgegangen werden, daß nur die unmittelbar benachbarten sechs Brennelementkästen (Ein-Reihen- oder Ein-Ring-Modell) eine erhebliche Querschnittsverformung erfahren.
- 3. Statische und dynamische Experimente an Einzelkästen unter Berücksichtigung der hydrodynamischen Kopplung.

Falls sich aufgrund der Simulationsexperimente (Vorhaben 1235) erweisen sollte, daß eine größere Anzahl von Brennelementen eine deutliche Querschnittsverformung erfährt, dann muß in einer zweiten Phase die Entwicklung eines "Multireihenmodells" angestrebt werden, deren Basis die Ergebnisse der ersten Phase und die Resultate der Simulationsexperimente sein werden. Einige Literaturstudien wurden bisher abgeschlossen.

Die Untersuchungen der Aktivitäten anderer Forschungsstellen oder Firmen $\angle 2$ bis 6 $\overline{/}$ zeigen, daß für die theoretische Behandlung dieses Problems bisher keine befriedigende Lösung gefunden wurde. Die wohl detailliertesten Untersuchungen wurden von der GE und in letzter Zeit von ANL durchgeführt. Brauchbare Ansätze im Hinblick auf die Entwicklung eines theoretischen Modells zur Auswertung der Simulationsexperimente bieten sich hier aber nicht an. Die Literaturstudie zum Verhalten metallischer Werkstoffe unter dynamischer Belastung hatte folgende Ziele:

- Kenntnis der verschiedenen Phänomene im dynamisch plastischen Versuch
- Phänomenologische Stoffgesetze zur Beschreibung dieser Phänomene
- Zusammenstellung experimenteller Daten verschiedener, insbesondere austenitischer Stähle.

Hier seien nur einige vorläufige Ergebnisse zum dynamisch plastischen Verhalten austenitischer Stähle wiedergegeben. Die bisher bekannt gewordenen Daten bei einigen 18-8-Legierungen zeigen, daß bei <u>Raumtemperatur</u> die Streckgrenze sehr deutlich von der Dehnungsgeschwindigkeit abhängt, die Bruchspannung dagegen weniger. Die vorliegenden Daten von unbestrahltem SS 304 bei Temperaturen um 500 °C zeigen nur eine geringe Abhängigkeit der Festigkeitskennwerte von der Dehnungsgeschwindigkeit $\sqrt{7}$.

Für die als SNR-Corestrukturmaterial vorgesehene Legierung X8CrNiMoNb1616 (15% kalverformt) ist bei Betriebstemperatur der Einfluß der Dehngeschwindigkeit auf die Festigkeitskennwerte bisher nicht bekannt. Die Untersuchungen zu diesem Fragenkreis werden deshalb fortgesetzt.

Literatur:

/ 1_7 R. Krieg

Die Spannungsverteilung in längsberippten Brennstabhüllrohren 1st Internat. Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Berlin, Sept. 20 - 24, 1971

/ 2_7 A.V. Campise

Fault Propagation in an EBR-II MARK-II Driver-Fuel Subassembly ANL-7560, März 1969

 $\sqrt{3}$, L.M. McWethy et al.

An Analytical Evaluation of the Consequences of a Hypothetical Instantaneous Loss of Coolant Flow to a Fast Flux Text Facility Driver Fuel Assembly GEAP-10059, Juli 1969

/4, L.M. McWethy et al.

Core Design Development Needs in Relation to Fuel Failure Propagation, Sodium Boiling and Clad/Fuel-Sodium Thermal Interaction GEAP-13639-1 und GEAP-136939-2, AEC Research and Development Report, Okt. 1970

1000-MWe LMFBR Accident Analysis and Safety System Design Study -Topical Report - Local Core Faults, BAW-1362, Jan. 1971

- [6]7 J.M. Kennedy Dynamic Response of Core Subassemblies, in ANL-Progress-Reports, ANL-7753, S. 168-171, Okt. 1970, ANL-7776, S. 133-134, Jan. 1971, ANL-7833, S. 8.38 - 8.40, Juni 1971, ANL-7854, S. 8.26 - 8.27, Juli 1971, ANL-7861, S. 8.20 - 8.25, Sept. 1971.
- [7,7] J.M. Steichen, M.M. Paxton The Effect of Strain Rate on the Mechanical Properties of Austenitic Stainless Steel, Interim Report, Hanford Engineering Development Laboratory, HEDL-TME 71-56, May 1971

1233 Untersuchungen von Kühlungsstörungen

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

Die Auswertung der Versuche zur experimentellen Ermittlung des Totwasservolumens und des Massenaustauschs zwischen Hauptströmung und Totwasser hinter lokalen Kühlkanalblockaden ist abgeschlossen. Aus den Ergebnissen dieser Versuche wurden mittlere Kühlmitteltemperaturen im Totwasser berechnet. Die wichtigsten Ergebnisse aller zu diesem Zweck durchgeführten Versuche sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Die Blockade wurde dabei in der Coremittelebene in einem Brennelement am Innenrand der 2. Zone des SNR-Cores angenommen.

Theoretische Überlegungen zu diesen Versuchen haben inzwischen zu dem Schluß geführt, daß die aus den Ergebnissen der Austauschmessungen berechneten mittleren Kühlmitteltemperaturen im Totwasser (vgl. Tab. 1) konservativ sind, also zu hoch liegen. Das liegt daran, daß die aus der punktförmigen Injektion der Salzlösung resultierende Konzentrationsverteilung die entsprechende Temperaturverteilung nur unvollkommen repräsentiert, da die für die Temperaturverteilung maßgeblichen Wärmequellen (die Brennstäbe) über das ganze Brennelement gleichmäßig verteilt sind. Man kann zeigen, daß wegen der andersartigen Konzentrationsverteilung zu niedrige Werte für den Massenaustausch gemessen werden.

Tabelle 1

Totwasservolumina und mittlere Kühlmitteltemperaturen im Totwasser hinter verschiedenen lokalen Kühlkanalblockaden (Blockade jeweils in Coremittelebene im höchstbelasteten Brennelement des SNR-Reaktors).

Lage der Blockade im BE-Kasten	-	zentral	zentral	zentral	in einer Ecke
Anteil der Blockade am Strömungsquer- schnitt	<u>/</u> 1_7	0.147	0.411	0.411	0.411
Restdurchsatz durch die Blockade (An- teil am Gesamtdurch satz)				≈ 0.05	
Totwasservolumen	<u>∕</u> cm ³ _7	137±12	298±25	238±20	470±40
Kühlmitteltempera- tur unmittelbar vor der Blockade	∠ ^{-o} c_7	478	489	489	489
Mittlere Kühlmittel– temperatur im Tot– wasser ¹⁾	∠ ^{-o} c_7	690 ±1 5	780± 20	805±75	900±80

1) Diese Temperaturen sind konservativ (vgl. Text)

Die beheizte Teststrecke zur Messung von Temperaturverteilungen hinter lokalen Kühlkanalbockaden ist inzwischen instrumentiert und in den Wasserkreislauf des IRE eingebaut worden. Die ersten Versuche sollen im 3. Vierteljahr 1972 durchgeführt werden.

1233.2 <u>Untersuchungen zum integralen Sieden im Natrium-Siedekreislauf (NSK)</u> (A. Kaiser, W. Peppler, K. Schleisiek, IRE)

Der 2-Phasen-Druckabfall und die sich bei verschiedenen Dampfgehalten ergebenden kritischen Wärmeflüsse sind noch wenig bekannt. Es wurde deshalb eine Serie von 60 Einzelversuchen durchgeführt, bei welchen der kritische Wärmefluß 16mal erreicht wurde.

Folgende Parameter wurden variiert:

Wärmefluß:	$300 - 737 \text{ W/cm}^2$
Geschwindigkeit des flüssigen Natriums in der Teststrecke:	0,5 - 3 m/sec
Dampfgehalt:	0 - 50%
Sattdampftemperatur:	830 - 940 ^o c

Die Eintrittstemperatur zur Teststrecke wurde auf 700 °C konstant gehalten.

Die Versuchsbedingungen wurden so gewählt, daß der kritische Wärmefluß von stationärem Sieden ausgehend eingeleitet wurde. Dies wurde erreicht, indem der Natriumdurchsatz stark gedrosselt und außerdem der Siedeverzug unterbunden wurde. Obwohl die Auswertungen erst angelaufen sind, zeigen bereits die ersten Ergebnisse, daß sehrhohe Wärmeflüsse bei hohem Dampfgehalt abgeführt werden können, bis schließlich der kritische Wärmefluß erreicht wird. Ein typisches Ergebnis der Bedingungen kurz vor Erreichen des kritischen Wärmeflusses wird wiedergegeben:

Wärmefluß:	737 W/cm^2
Geschwindigkeit des flüssigen Natriums in der Teststrecke:	0,34 m/sec
Dampfgehalt:	0,53%
Sattdampfdruck:	$2,97 \cdot 10^5 \text{ N/m}^2$

Das Experiment lieferte zusätzliche Informationen über die Filmdicke an der Wand und die Strömungsform.

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

Das Rechenmodell, das die integralen Siedevorgänge beschreibt, wurde mit dem Thermodynamik-Programm von Radyvar 2 gekoppelt. Dadurch ist es möglich, das Verhalten eines Cores im Störfall durch die gleichzeitige Berechnung mehrerer charakteristischer Kühlkanäle zu simulieren. Abb. 1 zeigt für typische SNR-Bedingungen die Ejektion des Na aus einem BE in Coremitte nach Ausfall aller Kühlmittelpumpen und bei konstant bleibender Leistung. Die sich innerhalb der Siedezone einstellende Dampfströmung als Folge stark unterschiedlicher Temperaturen im Core und Blanket bzw. Mischzone, der dadurch bewirkte Druckabfall, sowie der Einfluß auf den bei der Ejektion des Na an den Pins verbleibenden Flüssigkeits-Film ist noch nicht berücksichtigt. Eine dahingehend erweiterte Programmversion wird momentan getestet.

Außerdem wurden vorbereitende Rechnungen zur Festlegung der Parameter für die Siedeexperimente gemacht, die zur Bestätigung des Rechenmodells im IRE durchgeführt werden.



1234 Störfallverhalten von Brennstäben

Experimentelle Untersuchungen zum Brennstab-Versagen

(A. Alexas, H. Sauter, IASR/RPU)

Im Versuchsprogramm EPBF (Electrical Pin Burst Facility) wurden die Vorversuche abgeschlossen.

Die Pelletauffüll- und Vorheiztechnik wurde weiterentwickelt, so daß die Übernahme durch die automatische Direktheizelektronik einwandfrei möglich ist. Das Hochheizen und Niederschmelzen des EPBF-Modellstabes wurde planmäßig und erfolgreich mehrmals erprobt. Es hat sich bestätigt, daß durch den Einsatz geeigneter Techniken die Phasen des Niederschmelzens der Brennstabhülle, das Verhalten des vom Stabinneren emittierten geschmolzenen UO₂ sowie deren Wechselwirkungsmechanismus gut beobachtbar und analysierbar sind, so daß daraus wertvolle Detailinformationen gewonnen werden können, die bei "In-Pile"-Experimenten nicht zugänglich sind. Die einzelnen Phasen des Zerstörungsvorgangs wurden mittels einer Hochfrequenzkamera gefilmt (aufgenommen). Abb. 2 zeigt eine reproduzierbare charakteristische Phase des Phänomens (heftiges Herausblasen von geschmolzenem UO2). Der Stab wurde bei diesem Experiment nicht zwangsgekühlt. Die zum Zeitpunkt der Aufnahme zugeführte elektrische Nennleistung betrug 100 W/cm. Dadurch wurde ein nukleares Temperaturprofil simuliert, wie es bei ca. 280 W/cm nuklearer Stableistung entsteht. Die effektive Stableistung lag hier jedoch höher, da bei diesem Versuch das Niederschmelzen der Hülle am unteren Ende des Stabes einen Kurzschluß verursachte, der verhinderte, daß die Nennleistung dem gesamten Stab aufgeprägt wurde. An der Vermeidung von Kurzschlüssen dieser Art wird zur Zeit gearbeitet. So wurde für den Zusammenbau der EPBF-Stäbe eine verbesserte Auffülltechnik und eine Transportvorrichtung entwickelt.

Ferner wird untersucht, unter welchen Bedingungen eine Kühlung mit anderen Gasen möglich ist, wobei eine optimalere Auslegung des Spalts Brennstoff-Hülle für den EPBF-Stab angestrebt wird.

Modelltheoretisch wurde an der Problematik des Temperaturabfalls im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle gearbeitet. Es wurde festgestellt, daß der Gültigkeitsbereich der Spaltgleichung (KFK-604) nicht genügend definiert ist. Es wurde gefunden, daß der die Wärmeleitung berücksichtigende Koeffizient nicht konstant, sondern in Abhängigkeit von der Spaltbreite variabel angesetzt werden sollte. Mit dieser Annahme ergibt sich eine bessere Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen.





1234.2 Brennstabversagensmodell (B. Kuczera, IRE)

Die erste Version des Rechenprogramms BREDA (<u>Brennstabdehnungsanalyse</u>) ist entwickelt worden und wird z.Zt. mit dem Thermodynamikteil des RADYVAR-2-Programmsystems gekoppelt. In einem Testbeispiel wird die Verformung eines SNR-Brennstabes (s. KFK-660) im Bereich des Cores berechnet. Ausgehend vom "kalten" Reaktor (300 °C) wird zunächst die "pin"-Geometrie bei stationärem Betriebszustand ermittelt. Diese Abmessungen und Temperaturverteilungen stellen für die anschließende transiente Phase den Referenzzustand dar. Die Brennstabbelastung wird hier durch einen mit der Zeit linearen Leistungsanstieg simuliert ($Q_i = Q_{oi}(1+80t), Q/w/m_i^3/, t/sec_i^2, i = 1...10,$ ax. Zonenindex).

Die Testergebnisse werden anhand der Abb. 3 kurz diskutiert. Der betrachtete Brennstab befindet sich in einer mittleren Corezone. In seiner Umgebung ragt von oben bis einschließlich zur 7. axialen Zone ein Trimmstab in das Core. (In der Abb. ist der "kalte" Zustand durch ausgezogene Linien, der stationäre durch unterbrochene und der instationäre Zustand zur Zeit t = 0,2 sec durch eine strichpunktierte Linie gezeichnet; das Hüllrohr ist nur für den instationären Zustand eingezeichnet; T_{Bm} = mittlere Brennstofftemperatur).

Man erkennt deutlich die Abhängigkeit der Verformung von der axial variierten, thermischen Belastung. Während im Corebereich (Zone 3...8) die Brennstoffausdehnung infolge der hohen Temperatur größer ist als die Hüllrohrdehnung, ist dies in den Blanketbereichen umgekehrt ($\alpha_{stahl} > \alpha_{fuel}$). Die so ermittelten Materialverschiebungsvektoren und die aktuelle Spaltweite ("pellet-can") gehen als neutronenkinetischer bzw. thermodynamischer "feedback" in die RADYVAR 2-Rechnungen ein. 123-16



Abb. 3 Brennstabverformung bei transienter Belastung (BREDA-Ergebnisse)

1236 Untersuchungen zur Brennstoff-Natrium-Reaktion

1. <u>Parametrische Untersuchungen mit dem Programm BRENDY</u> (H. Jacobs, H. Küsters, K. Thurnay, INR)

Das im INR entwickelte Verfahren zur vollständigen Lösung der eindimensionalen thermo-hydrodynamischen Gleichungen einer zweikomponentigen Mischung aus Brennstoff und Natrium wurde zunächst unter Vernachlässigung von Gravitation, Reibung und Viskosität codiert. Erste parametrische Untersuchungen wurden mit dem so entstandenen Programm BRENDY durchgeführt, besonders im Hinblick auf den Effekt der bei den üblichen Paramtermodellen nicht berücksichtigten örtlichen Temperatur- und Druckgradienten. Der Code und die damit erzielten Ergebnisse werden auf der IAEA-Konferenz über "Engineering of Fast Reactors for Safe and Reliable Operation" in Karlsruhe (Oktober 1972) vorgestellt.

2. <u>Theoretische Modelle für die "Brennstoff-Natrium-Reaktion"</u> (L. Caldarola, G. Koutsouvelis, IASR)

Im Rahmen der Untersuchungen des IASR zur "Brennstoff-Natrium-Reaktion" (BNR) wurde ein erstes theoretisches Modell erstellt⁺⁾. Es setzt eine instantane Fragmentation des geschmolzenen Brennstoffes und Vermischung desselben mit dem flüssigen Natrium voraus. Eine Rechnung mit dem Modell wurde unter Benutzung von verbesserten Daten für die Materialeigenschaften des Natriums sowie einer modifizierten Energiebilanz-Gleichung für das Natrium durchgeführt.

Ein zweites theoretisches Modell wird entwickelt (1). In diesem Modell werden die Massen von Brennstoff und Natrium die an der Reaktion teilnehmen, als Funktionen der Zeit betrachtet. Es ist evident, daß die gesamte Brennstoffmasse nicht instantan mit dem Natrium vermischt wird. Als Hauptursache der Fragmentation des Brennstoffes wird violent boiling des Natriums angenommen. Die Berücksichtigung einer endlichen Geschwindigkeit für die Vermischung zwischen Brennstoff und Natrium scheint wichtig zu sein, weil die Größe des Faktors der Konversion der thermischen in mechanische Energie möglicherweise stark von dieser Geschwindigkeit abhängt.

+) Vg1. KFK-Bericht 1272/1

Literatur

(1) L. Caldarola, G. Koutsouvelis
 Theoretical Models for the Molten Fuel-Sodium Interaction, Juli 1972
 (Beitrag zu der "International Conference on Engineering of Fast
 Reactors for Safe and Reliable Operation", Karlsruhe, 9.-13. Oktober 1972)

3. <u>Niederschmelzversuche an Brennstäben mit Na-Kühlung durch direkte</u> elektrische Beheizung

(H. Reiser, H. Lehning, H. Deckers, D. Piel, IMF)

Es sind out of pile-Versuche zum Brennstabversagen infolge von Leistungsexkursionen unter strömendem Natrium geplant. Durch direkte elektrische Beheizung von UO₂-Brennstäben werden scharfe Leistungstransienten erzeugt, durch die Brennstoffschmelzen und Versagen der Brennstabhülle herbeigeführt werden. Der geschmolzene Brennstoff tritt dabei in Wechselwirkung mit dem Kühlmittel Natrium.

Die Versuche bauen auf dem im IASR laufenden Versuchsprogramm (vgl. 1234) zum Niederschmelzen von Einzelstäben unter Helium-Kühlung auf.

Es wurde ein Konzept für eine Versuchseinrichtung zur Durchführung der Experimente in Natrium ausgearbeitet. Damit können Versuche mit Einzelstäben und sieben Stab-Bündel durchgeführt werden, wobei die thermischen und hydraulischen Verhältnisse in den SNR-Kühlkanälen so gut wie möglich nachgebildet werden. Die Höhe der Brennstoffsäule in den Stäben wurde mit 16 cm angenommen. Jeder Brennstab wird von einer tyristorgesteuerten Gleichstromversorgung von ca. 120 kW Spitzenleistung versorgt. Damit können – ausgehend von einer stationären Leistung von ca. 50 W/cm – Exkursionen im 100 msec-Bereich simuliert werden. Ins Auge gefaßt sind später auch Experimente kürzerer Dauer mittels Stoßstromversorgung. Während der Exkursion werden die notwendigen Meßwerte, insbesondere die zugeführte Leistung, der Druck- und Durchflußverlauf sowie Temperaturen in und nahe der Teststrecke gemessen und registriert. Die an der Reaktion beteiligten Brennstoff- und Strukturmaterialpartikel sollen aus dem Kreislaufsystem zur Auswertung entnommen werden können.

Die Versuchseinrichtung soll im Jahre 1973 erstellt werden. Die Versuchsdurchführung wird sich über die Jahre 1974 und 1975 erstrecken.
1237 Natriumbrandversuche

(F. Huber, P. Menzenhauer, W. Peppler, W. Till, IRE)

Mit Untersuchungen von Bränden an isolierten Rohrleitungen wurde das Natriumbrandprogramm fortgesetzt. Hierzu wurde ein Teil der Einfülleitung durch eine Rohrleitung NW 50 von ca. 1 m Länge mit definierter Leckstelle ersetzt. Die Rohrleitung wurde sowohl in vertikaler (s. Abb. 4) als auch in horizontaler Lage eingesetzt. Als Isoliermaterial wurden Steinwolle (Hauptbestandteile ca. 55% SiO₂ und 30% Ca₂O₃) und eine keramische Faser Kaowool (Hauptbestandteile ca. 52% SiO₂ und 45% Al₂O₃) verwendet. Die Isolierung war so ausgelegt, daß sich bei einer Rohrtemperatur von 600 °C eine Blechmanteltemperatur von 60 °C einstellte. Zur Messung des Temperaturverlaufs in der Isolierung waren in verschiedenen Ebenen insgesamt 30 Thermoelemente installiert. Um einen Flächenbrand durch das aus der Isolierung der Rohrleitung austretende Natrium zu verhindern, wurde unter der Rohrleitung eine Wanne mit Abdeckung aufgestellt.

Die Versuche wurden mit Na-Leckagen von 1 bzw. 10 1/min und Temperaturen von 400 bzw. 600 °C durchgeführt. Zur Erzielung der gewünschten Leckagen wurden in die Rohrwand Löcher von 1,2 bzw. 3,8 mm Ø gebohrt. Natrium wurde solange nachgespeist, bis dieses in größeren Mengen aus der Isolierung austrat. Abhängig von den gewählten Versuchsbedingungen schwankte der Zeitraum von Beginn des Natriumzutritts (Lecks) in die Isolierung bis zum Austreten des Natriums in flüssiger Form aus der Isolierung zwischen 3 und 19 Minuten. Ein Natriumdurchtritt aus der Isolierung nach außen kündigte sich stets einige Minuten vorher durch zunehmende Rauchentwicklung an Stoßstellen und Thermoelementdurchführungen des Isoliermantels an. Nur an diesen Stellen traten zunächst geringe Mengen Natrium aus, die am Isoliermantel haftend verbrannten. Die zunehmende Aufheizung der Isolierung durch das verbrennende Natrium verstärkte den Natriumdurchtritt aus der Isolierung, so daß schließlich Natrium in mehreren dünnen Rinnsalen brennend in die Wanne abtropfte. In einigen Versuchen wurde beobachtet, daß die Isolierung große Mengen Natrium speicherte, bevor dieses aus der Isolierung austrat. Deshalb dauerte der Brand teilweise auch noch lange Zeit nach Schließung des Lecks an.

Wird die in der Isolierung eingespeiste Natriummenge auf den Raum bezogen, den die Isolierung einnimmt, erhält man eine Vorstellung von dem Aufnahmevermögen der Isolation. Bei den bisher durchgeführten Versuchen wurden Werte zwischen 4 - 64 Vol.% ermittelt.

Die Versuche zeigen deutlich, daß das Aufnahmevermögen sehr von der Größe der Leckage abhängt. Es nimmt mit steigender Leckage zu. Maßgebend hierfür scheint die Art der Ausbreitung in der Isolierung zu sein. Eine genauere Interpretation wird erst nach Auswertung aller vorliegenden Meßdaten möglich sein.

Die Reaktion zwischen dem Natrium und der Isolierung aus Steinwolle war verhältnismäßig gering. Anders verhielt es sich bei der Isolierung aus Kaowool. Sie brannte nahezu vollständig aus, so daß nach Öffnen des Blechmantels nur minimale Reste des ursprünglichen Isoliermaterials vorhanden waren.

Versuche, den Brand an einer Rohrleitung mit Löschpulver einzudämmen, führten zu keinerlei Erfolg, da das Löschpulver an der Branstelle nicht haftet. Als einzige wirkungsvolle Maßnahme verbleibt das Abschiebern und - wenn möglich - das Entleeren der Rohrleitung im Bereich der Leckstelle sowie eine Eindämmung des sich möglicherweise ausbreitenden Flächenbrandes unterhalb der Rohrleitung. Es muß hierbei berücksichtigt werden, daß in der Isolierung größere Mengen Natrium gespeichert sein können und dadurch die Nachspeisung nach außen auch nach dem Abschiebern des Lecks nicht gleich zum Stillstand kommt.

Grundsätzlich ist bei der Demontage der Isolierung nach einem vorangegangenen Natriumleck und dem daraus resultierenden Brand besondere Vorsicht geboten, da sich die vorhandenen Reaktions-Zwischenprodukte auch im kalten Zustand sofort wieder entzünden.

Es wurde auch das Verhalten verschiedener Glassorten unter auftreffendem Natrium beobachtet. Es hat sich gezeigt , daß von den drei untersuchten Glassorten (Verbund-, Tempax- und Drahtspiegelglas) nur das Drahtspiegelglas dem auftreffenden Natriumstrahl von ca. 450 ^OC für begrenzte Zeit standhält, dabei aber ebenfalls Risse bekommt. Nur die Tatsache, daß das eingeschmolzene Drahtgewebe mit einer Maschenweite von 12,5 mm die gesprungene Scheibe zusammenhielt, verhinderte ein Durchdringen des Natriumstrahls.



Abb. 4

Untersuchung von Natriumbränden an einer vertikalen isolierten Rohrleitung.

1239 Untersuchung zu einem Corecatchersystem für einen Schnellen Brüter (R. Meyder, IRE)

Nachwärmeabfuhr bei einem Natriumbrüter nach einem hypothetischen Unfall. Im Fall einer hypothetischen nuklearen Exkursion kann die Geometrie des Kerns so stark geändert werden, daß die Nachwärme des abgeschalteten Reaktors nicht an allen Stellen des Kerns durch Naturkonvektion abgeführt werden kann. Als Folge ist ein Aufheizen des Brennstoffs und seiner Unterlage (Strukturmaterial) anzunehmen, das so lange anhält, bis die Unterlage durchgeschmolzen ist. Auf diese Weise kann unter ungünstigen Verhältnissen Brennstoff auf den Tankboden vordringen und sich dort ansammeln. Dies führt ab einer gewissen Menge angesammelten Brennstoffs zum Versagen des Tankbodens. Da die darunter liegenden Böden wesentlich schlechter gekühlt sind, versagen auch diese nach kurzer Zeit. Damit wäre für den Brennstoff der Weg in die Reaktorgrube frei. Um ein weiteres Vordringen des Brennstoffs in die Fundamente des Reaktorgebäudes oder gar ins Erdreich zu verhindern, werden Überlegungen angestellt, wie der Brennstoff in der Reaktorgrube aufgefangen und gekühlt werden kann. In einer Literaturübersicht $/ 1_7$ wurde die bisherige Arbeit auf diesem Gebiet zusammengestellt. Es zeigte sich dabei, daß 2 verschiedene Arten von Auffangeinrichtungen für den Brennstoff diskutiert werden.

Die eine Art sieht eine große ebene Stahlplatte vor, die in der Reaktorgrube angeordnet ist (Abb. 5). Sie ist durch abgereichertes UO₂ vor dem herabfallenden Brennstoff thermisch geschützt und wird durch Natrium im Naturumlauf gekühlt.

Das Natrium gelangt nach dem Versagen aller Tankböden zusammen mit dem Brennstoff in die Reaktorgrube.



Abb. 5

Die andere Art von Auffangeinrichtung für Brennstoff sieht kreuzweise übereinander angeordnete Stahlrinnen vor (Abb. 6). Diese stehen auch bei Normalbetrieb unter Natrium. Die Rinnen werden durch das Natrium so gut gekühlt, daß in ihrem Innern eine Temperaturschutzschicht aus Brennstoff ausfriert.



Wie in / 1 / ausgeführt, ist für den SNR 300, für den diese Überlegungen in erster Linie durchgeführt werden, eine plattenförmige Auffangeinrichtung besser geeignet. Es sollen daher im weiteren Verlauf dieser Arbeit einige für diese Auffangeinrichtung besonders wichtige Fragen behandelt werden.

Literatur

/ I / R. Meyder unveröffentlichter Bericht 1972

124 ENTWICKLUNG DER INSTRUMENTIERUNG UND SIGNALVERARBEITUNG ZUR KERNÜBERWACHUNG

1241 Nachweis von Durchflußstörungen an Brennelementen

1241.4 <u>Temperaturfluktuation am KNK</u> (L. Krebs, G. Weinkötz, IRB)

Zur Ergänzung der Untersuchung am elektrisch beheizten Brennelement hinsichtlich der in einem Reaktor auftretenden Temperaturschwankungen, wurden im Mai erstmals Messungen am KNK durchgeführt. Die KBG-KNK stellte hierfür am KNK 6 freiverfügbare Thermoelementpositionen am Brennelementaustritt für die Messungen der Temperaturrauschsignale bereit. Die Thermoelemente, NiCr-Ni, DIN 43710, 1/2 DIN-Toleranz haben einen Mantel von 1,5 mm Ø. Die Messtelle ist gegen den Mantel isoliert. Die Zeitkonstante der Temperatursonden beträgt nach Angabe von Interatom 0,5 sec. Die Temperaturmeßstelle ist direkt zugänglich, d.h. zwischen Thermosonde und Ausgangssignal sind weder Verstärker noch sonstige Signal- oder Übertragungssysteme angeschlossen, so daß die bereits bei Messungen am IRB-Na-Kreislauf erprobte Meßeinrichtung für dynamische Temperaturmessungen eingesetzt werden konnte. Die auch im KNK vorhandenen Leitungs- und Netzstörgrößen konnten damit weitgehend von der Signalgröße getrennt werden. Zum Zeitpunkt der Messungen wurde der Reaktor von Null-Leistung auf ca. 8% der Nennleistung gefahren. Abb. 1 zeigt das Temperaturrauschsignal $T_R(t)$ bei 8% Nennleistung an der BE-Austrittsposition YT1T78. Das zugehörige Spektrum der Leistungsdichte $S(\omega)$ des Temperaturrauschsignals T (t) ist in Abb. 2 als Fourier-Transformierte der Korrelationsfunktion s(t) dargestellt. Das Leistungsspektrum wurde mit Unterstützung des INR am Fourieranalysator erstellt.

Weiterführende Messungen am KNK sollen die dynamischen Temperatursignale von mindestens 15 Thermoelementpositionen am BE-Austritt sowie den integralen Durchfluss im Na-Primärsystem bei den verschiedenen Lastbereichen bis zur Nennlast erfassen.



Abb. l Temperaturrauschsignal $T_R(t)$ an der Messstelle YT1T78 am BE-Austritt bei 8 % Reaktornennleistung. Mittlere Na-Temperatur am BE-Austritt $T_m \approx 408$ °C Mittlerer Durchfluss im Na-Primärsystem $Q_m \approx 180$ m³/h



YT1778, ω_g = Grenzfrequenz der Thermosonde

1244 Akustische und elektromagnetische Meßverfahren in Natrium

1244.1 Ultraschall-Meßtechnik in Natrium

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

Für den Direkteinsatz der Ultraschallköpfe in Flüssig-Natrium konzentrierten sich die Untersuchungen auf die Verbindung zwischen Piezoelementen und dem Trägermaterial. Es wurde eine Reihe von Versuchsproben mit Quarzen (SiO₂) verschiedenartiger Oberflächen-Metallisierungen hergestellt und Lötversuchen unterworfen. Klebeversuche mit 400 °C-Klebern erbrachten eine hohe und thermisch belastbare Haftbindung bei 350 °C, jedoch zeigten die Proben bei 210 °C und darüber einen schnell abfallenden akustischen Kopplungsfaktor, so daß die bisher verwendeten Kleber für ein Kontaktieren der Wandler für out-of-pile-Versuche nicht zur Verwendung kommen werden. Die Untersuchungen konzentrieren sich nunmehr auf Vakuum-Lötverfahren mit verschiedenen Spezialloten.

1244.3 Akustische Meßtechnik in Natriumsystemen

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

Mit Hilfe der im IRE entwickelten Aufnahmetechnik wurden am KNK während der Anlaufphase Schallaufzeichnungen vorgenommen. Hierzu wurden die bereits im vorigen Jahre installierten Meßstellen an den Primär- und Sekundär-Natrium-Pumpen, sowie die beiden Schallköpfe am Tankauflager benutzt. Das Schallspektrum wurde dabei mit Hilfe eines Magnetbandgeräts (FR 1300-Ampex) registriert. Es ist geplant, diese Aufzeichnungen in regelmäßigen Abständen und bei unterschiedlichen Betriebszuständen des Reaktors zu wiederholen. Die bevorstehenden ersten Auswertungen über das Meßdatenverarbeitungsprogramm SEDAP⁺⁾ werden Hinweise liefern, mit welchen Filtern und Signaldiskriminatoren eine Analyse des Schallspektrums verbessert, störende technische Frequenzen und ihre Harmonischen unterdrückt und der interessierende Bereich des bis zu 100 kHz reichenden Spektrums angehoben werden können.

+) Vgl. Abschnitt 1262.4

Im Hinblick auf die geplante Entwicklung eines Siededetektors wurden die Schallspektren kollabierender Wasserdampfblasen in Wasser aufgenommen. Parallel hierzu wurden die Kondensationsvorgänge mit Hilfe einer Hochfrequenzkamera gefilmt. Eine erste Auswertung zeigt eine hohe Schallenergie-Freisetzung bei der Kondensation einzelner Dampfblasen. Neben der Grundfrequenz konnten bereits oszillografisch signifikante Schallspektren beobachtet werden. Die gleichfalls auf Band aufgenommenen Signale werden in Kürze mit Hilfe eines Frequenzanalysators und parallel hierzu über SEDAP ausgewertet. Weitere Schallaufzeichnungen mit Breitband-Spezial-Mikrophonen sind geplant.

125 AUSWIRKUNGEN VON REAKTORSTÖRFÄLLEN AUF DIE UMWELT; AKTIVITÄTSFREISETZUNG

1251 <u>Theorie der Aktivitätsfreisetzung</u> (K. Keller, IASR/RPU)

Im Rahmen der Sicherheitsanalyse des SNR 300 wurde mit dem Rechenprogramm PARDISEKO 1 der zeitliche Verlauf der Aerosolmassenkonzentration im äußeren Containment des SNR nach einem schweren Reaktorunfall ermittelt. Das Rechenprogramm PARDISEKO 1 berücksichtigt folgende physikalische Effekte: Die Diffusion, die Sedimentation und die Koagulation. Es berücksichtigt keine Aerosolabscheidungen infolge von Temperatureffekten (z.B. Thermophorese), die aber im äußeren Containment des SNR auch nicht auftreten.

Bei den Berechnungen wurde davon ausgegangen, daß (nach Angaben von Interatom) nach einem schweren Reaktorunfall maximal 1000 kg Brennstoff und 150 kg Natrium im inneren Containment als Aerosole freigesetzt werden können. Es wurde für die freigesetzten Aerosole eine Anfangsgrößenverteilung angenommen, wie sie in der Abteilung für Physik der Reaktorstörfälle im IASR bei der GFK durch Brennstoffprobenverdampfung mit Hilfe einer Stoßstromanlage experimentell ermittelt wurde. Hier ergab sich: Die Anfangsgrößenverteilung der Aerosole ist eine logarithmische Normalverteilung mit einem mittleren Erwartungswert der Teilchengröße (Radius) von $r_{\sigma} = 0,037$ µm und einer Varianz von $\sigma = 1,85$.

Da über Leckfunktionen vom inneren ins äußere Containment derzeit von Interatom keine Angaben gemacht werden können, wurden bezüglich des Aerosoltransports vom inneren ins äußere Containment zwei Fälle betrachtet:

Der erste Fall beruht auf der getroffenen Annahme, daß nach dem Unfall augenblicklich Brennstoffaerosole in das äußere Containment gelangen und dort eine Anfangsmassenkonzentration von 3,1 gr/m³ ergeben. Mit dieser Anfangsmassenkonzentration wurde mit dem oben erwähnten Rechenprogramm der zeitliche Verlauf der Massenkonzentration berechnet. Die Abnahme der Massenkonzentration als Funktion der Zeit ist für diesen Fall auf Abb. 1 dargestellt. Die Kurve I stellt die Abnahme dar, wenn nur Brennstoffaerosole vorhanden sind. Die Kurve II stellt die Abnahme dar, wenn im oben angegeben Verhältnis auch noch Natriumaerosole bzw. Brennstoff-Natrium-Mischaerosole vorhanden sind. Man erkennt aus Abb. 1, daß bereits nach 140 Stunden die Massenkonzentration vom Anfangswert 3,1 gr/m³ auf 21 • 10⁻³ gr/m³ abgesunken ist. Ferner ist ersichtlich, daß sich der Einfluß der Natriumaerosole auf die Konzentrationsabnahme nicht sehr stark bemerkbar macht.

Im zweiten Fall wurde versucht, die (unbekannte) Leckfunktion vom inneren ins äußere Containment zu berücksichtigen. Hierzu wurde angenommen, daß die primär freigesetzten 1000 kg Brennstoff nur im inneren Containment freigesetzt werden. Mit der Anfangsmassenkonzentration des inneren Containments wurde der zeitliche Verlauf der Konzentration im inneren Containment während einer begrenzten Leckdauer berechnet. Die Leckdauer (es wurden etwa 5 Stunden ermittelt) ist dann die Zeit, bei der sich im äußeren Containment dieselbe Aerosolgrößenverteilung wie im inneren eingestellt hat. Mit dieser Größenverteilung und der entsprechenden Anfangskonzentration (nach Ende der Leckzeit) von 2,8 gr/m³ wurde der zeitliche Verlauf der Massenkonzentration im äußeren Containment berechnet. Er ist auf Abb. 2 dargestellt.

Man erkennt, daß hier der Abfall der Massenkonzentration stärker ist als im ersten Fall. Dies rührt daher, daß im zweiten Fall die Anfangsærosolkonzentration im inneren Containment sehr hoch war und damit die Aerosole zu größeren Teilchen als im ersten Fall koagulierten und damit schneller sedimentierten.

Literatur:

K. Keller, "Theoretische Behandlung des Aerosolverhaltens im geschlossenen zylindrischen Behälter (PARDISEKO 1)", KFK-1490, November 1971

W. Schikarski, H. Wild, "Zum Zusammenhang der Konzentrationsabnahme von nuklearen Aerosolen mit Aerosolprozessen", Staub-Reinh. der Luft 30 (1970), Nr. 6, S. 251-255



t V

:

126 NATRIUM-TECHNOLOGIE-VERSUCHE

1262 Untersuchungen von Reaktorbauteilen

1262.2 <u>Untersuchungen zum Verschleiß- und Reibverhalten von Abstands-</u> haltergittern unter Natrium (F. Huber, IRE)

Im Berichtszeitraum wurde nochmals ein Versuch mit einem Röhrchen-Abstandshalter durchgeführt, welcher in einem früheren Experiment zum vorzeitigen Versagen geführt hatte (4. Vierteljahresbericht 1971). Allerdings waren jetzt das Gitter und die Befestigung gegenüber der ersten Ausführung modifiziert, nämlich ballige Führungsnoppen (Punktberührung anstatt Linienberührung) und nach innen versetzte Strukturstäbe (Verringerung der Biegebeanspruchung).

Der Versuch erstreckte sich über insgesamt 306 000 Doppelhübe. Davon liefen 97000 Zyklen mit 0,5 ^o Schrägstellung des Gitters und 111 000 Zyklen mit 1 ^o Schrägstellung ab. Die gemessene Reibkraft lag zwischen <u>+</u> 45 kp und <u>+</u> 65 kp. Eine nennenswerte Abhängigkeit der Reibkraft von der Schrägstellung wurde nicht festgestellt.

Mit diesem Versuch wurde die laufende Serie abgeschlossen. Die Ergebnisse werden in einem Bericht veröffentlicht.

Betriebsverhalten von Wälzlagern

(K. Kleefeldt, IRE)

Zuletzt wurde über das Vorhaben im 2. Vierteljahresbericht 1970⁺⁾ berichtet. In der Zwischenzeit konnten die Arbeiten wegen einer Abordnung zu SEFOR nur mit geringem Personalaufwand weitergeführt werden. Es wurden die Versuchsvorrichtung und die dazugehörigen Behältereinbauten für die NABEA fertiggestellt sowie mehrere Versuche zur Eichung der Reibmomentmeßstäbe und der pneumatischen Belastungsvorrichtung durchgeführt.

+) KFK-Bericht 1270/2

Die Aufbringung der Dehnmeßstreifen auf die Reibmomentmeßstäbe für eine statische Messung bei Temperaturen bis zu ca. 300 ^OC erwies sich als sehr schwierig. Mehrere DMS-Typen lösten sich bei der Aufheizung von der Unterlage ab und zeigten im übrigen nur eine unbefriedigende Reproduzierbarkeit bei statischen Eichversuchen. Das Problem scheint inzwischen mit aufgeschweißten Micro-dot-Streifen behoben zu sein.

Im Berichtsquartal wurden die Arbeiten wieder voll aufgenommen. Der Versuchsstand wurde außerhalb des Natriums probebetrieben, und Reibmomentkennfelder bei Öl- und Wasserschmierung wurden zur Erprobung der Meßtechnik aufgenommen. Die Versuche in Natrium können nach dem NABEA-Belegungsplan erst zu Beginn 1973 begonnen werden. Gegenwärtig konzentriert sich die Arbeit auf die Beschäffung von Prüflagern. Eine Spezifikation ist dafür geschrieben worden.

1262.3 Versuche zur Werkstoffpaarung unter Natrium

1262.31 <u>Verschweißversuche</u> (K. Mattes, IRE)

Die als Versuchsphase II definierte Versuchsserie, über die zuletzt im 1. VB 1972 berichtet wurde, ist durch vier Einzelversuche ergänzt worden. Zwei weitere stehen noch aus. Diese insgesamt sechs Nachversuche sollen den Einfluß verschiedener Parameter, wie Anpreßzeit, Spülphase, Kontaktkantenlänge auf die Verschweißung verdeutlichen. Ferner wurde der Werkstoff 1.4948 neu aufgenommen. Mit dem die Versuchsphase II abschließenden Bericht wurde begonnen.

Das weitere Versuchsvorhaben wird sich auf Sonderlegierungen (Nimonic 90, TZM, Stellit 6 und Colmonoy 4) konzentrieren. Das Versuchsprogramm dafür wurde erstellt und die neue Vorrichtung, die ein Zerreißen verschweißter Proben unter Na ermöglicht, in Auftrag gegeben.

Literatur

/ 1_7 F. Huber, K. Mattes: Selbstverschweißen von Strukturwerkstoffen in flüssigem Natrium, Reaktortagung Hamburg (April 1972)

1262.32 <u>Verschleißuntersuchungen im Natrium</u> (E. Wild, K.J. Mack, IRB)

Seit der Wiederinbetriebnahme der Versuchsanlage NVP II (nach Brand im Dez. 71) wurden Vorauswahlversuche unter Standardbedingungen durchgeführt. Entsprechend einer Anregung von INTERATOM wurden dabei Werkstoffpaarungen

'gleich gegen gleich'

eingesetzt.

Ferner wurden die Reibungskoeffizienten nachträglich an solchen Werkstoffkombinationen untersucht, an denen bei früheren Versuchen nur die Verschleißrate ermittelt wurde. Die dabei gewonnenen Ergebnisse zeigt Tab. 1. Nach ihrer Verschleißresistenz ergeben die bisher bei Standardbedingungen untersuchten Paarungen aus gleichen Werkstoffen die in Tab. 2 dargestellte Rangfolge. Bei der Aufzeichnung der Reibungsbeiwerte zeigte sich in keinem Fall ein Maximalwert beim Übergang von der statischen zur kinetischen Reibung. Nach einer Einlaufzeit von 5 bis 15 Minuten stellte sich ein konstanter Wert ein, der sich nur in Einzelfällen über die Versuchszeit leicht veränderte.

Umbau- und Konstruktionsarbeiten

Um den Bereich der bisher untersuchten Parameter Gleitgeschwindigkeit und Amplitude in den Teststrecken des NVP II zu erweitern, wurden einige Abänderungen erforderlich. In den Antriebsteil wurden Schneckengetriebe eingebaut, durch welche die relative Gleitgeschwindigkeit an den Werkstoffproben nunmehr bis auf v < 1 cm/min reduziert werden konnte.

Bei oszillierender Bewegung sind Amplituden von 2 mm und 5 mm vorgesehen. Das bedeutet, daß der größte Teil der Gleitbahn während des Stillstandes in der Voreintauchzeit von der Probenfläche überdeckt ist. Um dies zu vermeiden und ein freies Bespülen der Gleitfläche durch das Na zu ermöglichen, wurde die Teststrecke so umgebaut, daß die Proben über ein durch Faltenbalg abgedichtetes Gestänge abgehoben werden können.

A	В	C	D	E	F	G
225 226 230 231 232 233 234 235	Stellit 6 Stellit 6 T Z M T Z M R G T 3 R G T 3 Stellit 6 Stellit 6	Stellit 6 Stellit 6 T Z M T Z M R G T 3 R G T 3 1.4961 1.4961	2,83 = 11,05 11,13 = =	3,0 4,67 18,0 24,0 15,0 19,0	3,28 19,1 25,1	0,7 0,78/0,8 0,76 0,72 1,3/1,34 1,16/1,28
236 237 238 239 240 241 241 244	Inconel 718 Inconel 718 Inconel 750 Hastelloy C Hastelloy C Inconel 750 R G T 3	Inconel 718 Inconel 718 1.4961 Hastelloy C Hastelloy C 1.4961 R G T 3	* 2,25 * 2,78	2,5 4,0 9,83	0,25 0,28 11,3	0,47 0,68 0,65 0,38/0,5 0,4 0,73 0,52/0,4
Versuchsergebnisse unter Standardbedingungen						Tab. 1

- A = Laufende Nr. des Versuches
- B = Werkstoff der zyl. Probe
- C = Werkstoff der Ringscheibe
- D = Spez. Verschleißrate an 3 Proben $x10^{-10}/\overline{cm}^{3}/cm-Kp7$ E = Spez. Verschleißrate an der Ringscheibe $x10^{-9}$ $/\overline{cm}^{3}/cm-Kp7$ F = Gesamtverschleißrate x 10^{-9} $/\overline{cm}^{3}/cm-Kp7$
- G = Reibungskoeffizient
- = = Aufschweißungen
- * = Oberflächenrauhigkeit W + Rt / μm_7

Hontworkstoff (110 Ni)	0.07	10-9 3/ *-
nartwerkstoll (wc - N1)	0,05	x 10 · cm / cm - Kp
Hastelloy C	0,217	1
Inconel 718	0,265	е Н
Stellit 6	3,289	
RGT 3	11,3	1 1
TZM	22,10	4
1.4981	43,8	8
1.4961	44,47	ц
Gesamtverschleißraten von aus gleichen Werkst (^D urchschnittswerte aus 3	Tab. 2	

Für die Durchführung der Versuche mit einer Flächenpressung $\sigma >0.8 \text{ kg/mm}^2$ wurde eine neue Teststrecke konstruiert. Sie ist so ausgelegt, daß die Werkstoffproben gegeneinander eine translatorische Relativbewegung mit variabler Amplitude bis 25 mm ausführen. Bei einer Berührungsfläche der Proben von 25 mm² können spezifische Belastungen bis 10 kp/mm² eingestellt werden.

Im Berichtszeitraum wurde darüberhinaus die Sauerstoffmeßsonde von U.N.C. in den Na-Kreislauf eingebaut und die Harfe für die Probenentnahme in Betrieb genommen.

1262.4 <u>Rechnergesteuerte Meßdaten-Erfassungs- und Aufbereitungsanlage</u> (G. Rittirsch, IRE)

Im Rahmen der F+E-Teilprojekte Sicherheit schneller Reaktoren (123) und Natrium-Technologie-Versuche (126) wurde in den zurückliegenden 3 Jahren im IRE eine Vielzahl von Experimenten durchgeführt. Mit der fortschreitenden Versuchstechnik eng gekoppelt war ein stetiges Anwachsen der Meßsignale, die aufgezeichnet, IBM-kompatibel aufbereitet und anschließend nach breit gefächerten Gesichtspunkten auf den IBM-Anlagen im DVZ ausgewertet wurden. Die dabei gewonnenen Erfahrungen mit einer rechnergesteuerten Meßdaten-Erfassungs- und Aufbereitungsanlage und dem eigens dafür entwickelten Auswerteprogramm SEDAP sind typisch für technisch-physikalische Experimente im Forschungs- und Versuchsbetrieb. Die in der nachstehenden Kurzfassung zusammengestellten Erkenntnisse können deshalb insbesondere bei der Planung und dem Entwurf neu zu installierender Systeme hilfreich sein.

- Bei Experimenten, die über den Rahmen von Kleinversuchen (max. einige 10⁴ Meßdaten) hinausgehen, ist eine wirtschaftliche Auswertung der Meßdaten heute nur noch mittels EDV realisierbar.
- 2. Eine wichtige Voraussetzung für eine leistungsfähige, flexible Erfassung und Auswertung von Meßdaten mit EDV-Anlagen ist eine miteinander harmonisierende Hard- und Software. D.h., für die aufgezeichneten und aufbereiteten Meßdaten muß dem Experimentator eine Auswertesoftware zur Verfügung stehen, die es erlaubt, große Datenmengen (10.10⁶) in bekannten Auswerteroutinen zu verarbeiten. Sie muß ferner so flexibel sein, daß neue Gesichtspunkte, die sich während der Auswertung ergeben, in zusätzlichen Auswerteschritten berücksichtigt werden können, ohne daß dadurch Programmänderungen erforderlich werden. Schließlich sollte die Auswertesoftware benutzerfreundlich, d.h. in der Handhabung schnell erlernbar sein, auch für Benutzer ohne einschlägige EDV-Kenntnisse.

Ein solches Auswerte-Softwaresystem wurde im IRE entwickelt und steht in Form des Programmes SEDAP-SYSTEM FOR EXPERIMENTAL DATA PROCESSING zur allgemeinen Verfügung. Die detaillierte Benutzeranleitung ist als Handbuchausdruck über den üblichen Aufruf für Bibliothek-Object-Programme (s.DVZ-Aushang) erhältlich.

- 3. EDV-adaptive Aufzeichnungen von Meßsignalen mit sehr unterschiedlicher Frequenz (einige Hz bis 100 kHz) sind bei erträglichem Aufwand nur mit einem Hybridsystem (s.Abb.1) möglich. Das digitale Subsystem registriert die langsamen (max. 600 Hz/Kanal), das analoge Subsystem die schnellen Vorgänge (max. 100 kHz/Kanal). In einem 2ten Durchgang wird dabei das Analogband im "slow motion play back" EDV-kompatibel aufbereitet.
- 4. Die Kapazität der externen Speichermedien sollte min. 100.10⁶ Bit betragen. Dies ist erforderlich, um einerseits eine redundante Meßdatenerfassung zu ermöglichen, die das Versuchsrisiko reduziert, und um andererseits eine ausreichend lange fortlaufende Datenaufzeichnung bzw. Versuchslaufzeit zu erreichen.
- 5. Liegt das Problem vor, Meßdaten von mehreren Versuchsständen zu erfassen und aufzubereiten, so ist eine zentralisierte Anlage mit festem Standort in einem Klimaraum eine wirtschaftliche Lösung. Damit verbundene evtl. betriebstechnische Nachteile können durch entsprechende Kommunikationssysteme kompensiert werden.
- 6. Bei einer zentralen Anlage ist für die Signalübertragung eine Ringleitung mit Anschlußtableaus an den einzelnen Versuchsständen zweckmäßig. Die Übertragungsleitungen selbst sollten d u r c h g e h e n d koaxial ausgeführt sein, wobei je 10 Koaxleitungen (z.B. Amphenol RG 58/U) zusammengefaßt in i s o l i e r t installierten Massiv-Kupferrohren (32 mm Ø) geführt werden. Die Cu-Rohre sind an e i n e r zentralen Stelle zu erden. Derartig aufgebaute Ringleitungssysteme zur Signalübertragung können ohne nachteilige Auswirkungen bis 400 m lang sein.
- 7. Eine störungsfreie Meßsignalerfassung in größeren Systemen ist nur über den Einsatz von Differenz-Trennverstärkern (z.B. Dana 2860) mit hoher Gleichtaktunterdrückung zu erreichen. Derartige Verstärker bewirken zum einen die galvanische Trennung der Erdbezugspunkte von Meßwertgeber und Erfassungsanlage, zum anderen unterdrücken sie dem Meßsignal überlagerte Störungen. Eine Trennung der Erdbezugspunkte ist insbesondere bei Gebern erforderlich, die eine direkte galvanische Verbindung (z.B. TM-Thermoelemente) zum System haben.

8. Signalverstärker sollten räumlich unmittelbar hinter den Meßwertgebern angeordnet sein. Dadurch wird die Verstärkung von Störsignalen, die ggf. in die Leitungen Meßwertgeber/Verstärker induziert werden, minimal. Störeinstreuungen auf die Signalübertragungsleitungen Verstärker/Datenerfassungs-Anlage sind vernachlässigbar, dar der Signalpegel auf Voltniveau verstärkt und ein Übertragungssystem, wie unter 6. beschrieben a priori nahezu einstreuungsfrei ist.

Verstärkungen sollten in den Stufen 1, 2, 5, 10, 20, 50 2500, Ausgangsfilter in den Stufen 3, 10, 30, 100 20 kHz, einstellbar sein.

- 9. Seitens der Meßdatenerfassungsanlage ist für den diskutierten Experimenttyp eine maximale Auflösung von [±] 0,5 °/oo, bezogen auf einen Standardpegel von [±] 10 V, sinnvoll. Für den ADC bedeutet dies 12-Bit-Auflösung. Die Konvertierfrequenz sollte 100 kHz betragen.
- 10. Sehr hilfreich für einen rationellen Versuchsbetrieb ist die Möglichkeit der graphischen Quick-look-Darstellung (z.B. Plot od. Bildschirm) aktueller Meßdaten. Negativ verlaufene Experimente können dadurch schnell erkannt und direkt wiederholt werden.

Das im IRE installierte System (s.Abb.1) wurde durch die Integration der zunächst unabhängig voneinander für bestimmte Einzelexperimente angeschafften digitalen und analogen Aufzeichnungsgerätegebildet. Es wirdim wesentlichen den oben genannten Gesichtspunkten derartiger Systeme gerecht und hat sich im Routineeinsatz sehr gut bewährt.

Veröffentlichungen:

Audoux, Katz, Olbrich, Schlechtendahl: SEDAP, KFK-Bericht 1594

G.Rittirsch: Kriterien zur Wahl der Meßfilter und Abtastfrequenz sowie Methoden zur Meßfehlerkorrektur, angewandt bei Temperaturmessungen in Natrium, Externer Bericht 8/71-3



Abb.1 Schema der rechnergesteuerten Meßwert-Erfassungs-u. Aufbereitungsanlage im IRE

1263 Untersuchungen zur thermo- und hydrodynamischen Coreauslegung

1263.2 Untersuchungen im exzentrischen Ringraum

(A. De Grande, P. Donath, S. Fenyi, H. Martin, D. Weinberg, IRB)

In Weiterführung der in /1/1 berichteten Arbeiten konnte für die Eichung der Miniatur-Heißfilmsonden eine praktische Methode entwickelt werden.

Aus den bekannten Beziehungen / 1_7 zwischen Anemometer-Spannung, Wassergeschwindigkeit und -temperatur wird ein Diagramm, wie es Abb. 2 zeigt, erstellt. Daraus ist innerhalb des Temperaturbereiches, in dem die Eichung durchgeführt wurde, für jede beliebige Temperatur die notwendige Eichkurve für die Heißfilmsonde zu entnehmen.

Neben dieser praktischen Eichmethode wird die mathematische Behandlung zur Eichung von Heißfilmsonden in Wasser weiter verfolgt.

Für die Auswertung der Geschwindigkeits- und Temperaturfelder im exzentrischen Ringraum war ein Modell für die turbulenten Austauschgrößen übernommen worden $\lfloor 2 \ \overline{} / .$ Die Berechnungen der Impulsaustauschgrößen und der Geschwindigkeit für den zentrischen Ringraum mit dem Radienverhältnis eins (parallele Platten) führten zu einem vorläufigen Ergebnis. Die Abbildungen 3 und 4 zeigen die Felder der Impulsaustauschgröße sowie der dazugehörigen Geschwindigkeit. Der Parameter ψ bestimmt dabei die Größe des Impulsaustausches $\lfloor 3 \ \overline{} / 3 \ \overline$

Die Variationsbreiten auf beiden Abbildungen entsprechen einander. Es ist deutlich zu erkennen, daß sich die Geschwindigkeitsverteilung bei Variation der Impulsaustauschgröße nur wenig ändert.

Die nichtlineare Integrodifferentialgleichung mit Randbedingungen wurde mit der Differenzenmethode gelöst. Für den Integralansatz der Austauschgröße wurde die Besselsche Integration verwendet.

Die Erweiterung dieses Modells auf den exzentrischen Ringraum wird bearbeitet.



Abb.2 Eichkurve für Heißfilmsonde tsi







Na-Wärmeübergangs-Prüfstand

(G. Drechsler, G. Frees, G. Hennrich, IRB)

Der Aufbau des Prüfstandes zur Untersuchung von Wärmeübergangsproblemen im zentrisch-exzentrischen Rimgraum wurde abgeschlossen.

Das Einfüllen des Natriums und die Erprobung des Kreislaufes werden vorbereitet.

Literatur:

- / 1_7 PSB 1. Vierteljahresbericht 1972 KFK-Bericht 1272/1, Juli 1972
- / 2_/ PSB 3. Vierteljahresbericht 1972 KFK-Bericht 1271/3, November 1971
- / 3_7 N.I. Buleev Turbulent flows of a liquid in annular and plane channels High Temp. 5 (1967) S. 566
- 1263.4 Untersuchungen zur Kühlmittelquervermischung in Na-gekühlten
 Brennelementen (K. Bätke, E. Baumgärtner, A. De Grande, H.H. Frey,
 H. Hoffmann, IRB)

Die 1. Serie von Versuchen zur Kühlmittelquervermischung in Na-durchströmten Brennstabbündeln mit integralen Wendelrippen als Abstandshalter wurde abgeschlossen. Für folgende Geometrien wurden die Kühlmitteltemperaturen im Austrittsquerschnitt eines 61-Stabbündels bei Beheizung des Zentralstabes ermittelt.

Nr.	Stabdurch- messer / mm_/	p/d	Anzahl der Rippen pro Stab	Steigungshöhe / mm_/
1	6	1,32	3	300
2	6	1,32	3	450
3	6	1,32	6	600

Typische gemessene radiale Temperaturprofile als Funktion der Reynoldszahl für konstante Stableistung zeigt Abb. 5 für das Bündel Nr. 3. Die Temperaturprofile wurden mit Hilfe des MISTRAL-Rechenprogrammes ausgewertet und die Mischraten bestimmt. Diese Ergebnisse sind für die Bündel 1, 2 und 3 in Abb. 6 über der Re-Zahl aufgetragen.

Es wurde ein 61-Stabbündel mit gitterförmigen Abstandshaltern der SNR-Bauart fertiggestellt, das in Na-Strömung untersucht werden wird. Um das Bündel auch für Schieflastversuche mit 3 beheizten Stäben zu nutzen, wird der Brennelementkasten z.Zt. isoliert, zur Reduktion der Wärmeverluste vom beheizten Wandstab an die den hexagonalen Kasten umgebende Schicht stagnierenden Natriums.

Eine Versuchsstrecke zur Untersuchung der lokalen Gesamtquervermischung vor, hinter und innerhalb gitterförmiger Abstandshaltern wurde ausgelegt und entworfen. Die Konstruktion wurde so ausgeführt, daß die zur Errechnung der lokalen Gesamtquervermischung notwendigen örtlichen Geschwindigkeiten und Temperaturen mit Hilfe einer feststehenden Meßebene und eines beweglichen Abstandshalters aufgenommen werden können. Die Versuchsstrecke besteht aus einem hexagonal angeordneten vergrößerten 19-Stabbündel. (Maßstab der Versuchsstrecke gegenüber der SNR-Abmessung = 4:1). Die Meßstrecke kann in Wasser und Luft eingesetzt werden.

Für die in Na-Strömung bereits untersuchten Bündelmodelle ist eine Teststrecke in der Entwicklung, mit der die axialen Strömungsverhältnisse im Wand- und Eckbereich des Brennelementkastens visuell beobachtet werden können. Die Teststrecke wird mit Wasser betrieben werden.



Abstandshalter: 6 Rippen, H = 600 mm Beheizte Stablänge: 88,7 cm

Versuch		X[W/cm]	M[kg/s]	Re	
7	2	35,0	1,04	6 600	
0	3	35,0	1,638	10 3 0 0	
D	6	35,6	2,34	14 740	
∇	9	35,7	3,384	21 400	
8	12	35,6	4,008	28 044	
				1	

Abb. 5 Gemessene Radiale Temperaturprofile $\vartheta = t_{aus} - t_{ein}$ im 61 - Stabbündel für verschiedene Re-Zahlen und konstante Stableistung



Abb. 6 Mischrate als Funktion der Reynoldszahl für 61-Stabbündel aus Rohren mit 3 und 6 Rippen pro Stab als Abstandshalter (p/d=1,32)

1263.5 <u>Entwicklung und Erprobung von elektrischen Heizstäben</u> (V. Casal, E. Graf, W. Hartmann, IRB)

Heizstäbe für Wärmeübergangsversuche

- 1. Dauererprobung bei 700 °C Hüllentemperatur siehe 1142.2.
- 2. Zyklische Erprobung.

Die zyklische Erprobung von Heizstäben in Wasser wurde fortgesetzt (siehe auch 1. Vierteljahresbericht 1972). An zwei Stäben mit rohrförmigem Stromleiter wurden bei einer Hüllentemperatur von 150 $^{\circ}$ C bei Leistungen von 1110 w/cm² bzw. 1185 w/cm² 400 bzw. 340 Zyklen erreicht. Die Zentraltemperatur bei Last betrug bis zu 1190 $^{\circ}$ C.

Beim Abschalten der Erregung des Generators, der den Strom zur Beheizung der Stäbe lieferte, war der Anfangsgradient der Temperaturänderung ca. 200 ^OC/sec.

3. Entwicklung von Heizstäben mit rohrförmigem Stromleiter mit erhöhtem Widerstand.

Großbündelversuche vereinfachen sich, wenn die zur Brennelementsimulation dienenden Heizstäbe einen höheren elektrischen Widerstand aufweisen als die bisherigen (bisher betrug der Widerstand ca. 0,25 Ω je m beheizte Länge). Ein höherer Widerstand bei gleichem Aufbau erfordert einen dünnwandigen Stromleiter. Sehr dünne Stromleiter würden beim Rundhämmern der Stäbe knicken. Rundhämmern ist jedoch zur Verdichtung des pulverförmig eingebrachten BN erforderlich.

Im Berichtszeitraum wurde ein Stab gefertigt mit folgenden Abmessungen vor dem Hämmern:

Außendurchmesser	Hüllrohr:	8,5	mm
Innendurchmesser	Hüllrohr:	7,5	mm
Außendurchmesser	Stromleiter:	5,6	mm
Innendurchmesser	Stromleiter:	5,2	mm

Nach dem Hämmern auf 6,0 mm Hüllrohraußendurchmesser wies das Stromleiterrohr einen einwandfreien runden Querschnitt auf. Der elektrische Widerstand betrug R = 0,54 Ω je m beheizte Länge. Bei einer Leistung von 250 W/cm² (das entspricht bei 6 mm Ø einer Stableistung von 470 W/cm) benötigt ein Stab dann 296 A und 160 V je m beheizte Länge. Der Versuchsstab erbrachte im Wasserprüfstand bei 150 °C Hüllentemperatur eine Leistung von 1140 W/cm², wobei die Zentraltemperatur 1170 °C betrug. Weitere Versuche mit noch dünneren Stromleiterrohren sind geplant.

Heizstäbe für Siedeversuche

Kaltverformungsversuche an Tantalrohren von verschiedenen Herstellern zeigten, daß Rohre verfügbar sind, welche die Kaltverformung zulassen, die unsere Heizstabfertigung erfordert. Rohre entsprechender Qualität wurden bestellt, so daß nach Lieferung Heizer mit Tantalhülle und Stromleiter aus gewendeltem Tantaldraht herstellbar sind.

1264 Hydraulische Untersuchungen am SNR 300-Absorbermodell (K. Marten, IRB)

Zur Absorberauslegung werden von der Fa. Interatom folgende Versuche benötigt, die das IRB am eigenen Wasserkreislauf durchführt.

- Um sicherzustellen, daß das Absorber-Stabbündel in jedem Betriebszustand ausreichend gekühlt wird, soll die Durchsatzverteilung zwischen Stabbündel und Ringraum in Abhängigkeit von nachfolgenden Parametern untersucht werden:
 - Durchsatz des Absorbers
 - Einfahrtiefe des Absorber-Stabbündels
 - Zentrizität des Absorber-Stabbündels und des Führungsrohrs
 - Versperrung der Durchbrüche im Zentrierrohr im Bereich der Kernelemente-Oberkante und des ersten axialen Lagers.
- 2. Zur Überprüfung der Auslegungsrechnungen und Abschätzungen der auftretenden Unsicherheiten wird die Druckverlustcharakteristik für das Absorber-Stabbündel einschließlich Verklinkung und Teilgestänge bei gleichen Versuchsparametern wie Punkt 1 aufgenommen.
- 3. Da das Absorber-Stabbündel im Führungsrohr nicht starr geführt wird, kann es durch die Anströmung zu Pendelschwingungen angeregt werden. Nur wenn es zum rhythmischen Anschlagen des Bündels an die Führungsrohrwand kommt, sind die Versuchsparameter (Durchsatz, Einfahrtiefe und Versperrung) festzuhalten.
- 4. Zur Bestätigung eines Rechenmodells muß das Fallverhalten des Absorber-Stabbündels überprüft werden. Die Unsicherheiten dieses Modells sind neben den Widerstandsbeiwerten die Relativ-Geschwindigkeit im Ringspalt und die wirksame Verdrängerfläche des Bündels. Versuchsparameter sind der Durchsatz, die Zentrizität des Bündels im Führungsrohr und der Durchmesser des Führungsrohres.

Die Versuche 1 - 3 werden in der Teststrecke I, der Versuch 4 in Teststrecke II durchgeführt. Abb. 7 zeigt die Teststrecken I und II aufgebaut am Wasserkreislauf. Die Arbeiten zur Versuchsvorbereitung wurden in Zusammenarbeit mit Firma Interatom durchgeführt.

Im 1. und 2. Quartal 72 wurden die Konstruktionsarbeiten abgeschlossen. Die Fertigung der Teststrecken einschließlich des Absorber-Stabbündels ist für Anfang September geplant.



Prüfstand der Teststrecken am Wasserkreislauf A

Abb. 7
127 THERMO- UND HYDRODYNAMISCHE VERSUCHE MIT GASFÖRMIGEN MEDIEN

1271 Arbeiten für den gasgekühlten schnellen Brüter

1271.1 <u>Verbesserung des Wärmeübergangs eines gasgekühlten Reaktors</u> <u>durch "versetzte Rauhigkeitselemente"</u> (M. Dalle Donne, E. Meerwald, INR)

Auf Grund ihrer geringen Dichte haben Gase schlechte Wärmeübertragungseigenschaften. Für gasgekühlte Reaktoren, insbesondere schnelle Brüter mit hoher Leistungsdichte, kann durch Aufrauhung der Oberfläche der Brennelemente der Wärmeübergang zwischen Brennstab und Gas verbessert werden. Üblicherweise besteht die künstliche Rauhigkeit aus kleinen umlaufenden Rippen / 1, 2/. Die von uns vorgeschlagene neue Methode zur Bestimmung der charakteristischen Größen der Rauhigkeit basiert auf dem turbulenten Geschwindigkeitsprofil von Nikuradse⁺⁾:

$$U^{+} = 2.5 \ln \left(\frac{y^{+}}{h^{+}}\right) + R(h^{+})$$
 (1)

wobei $R(h^{\dagger})$ eine für jede Rauhigkeitsgeometrie bestimmte Größe ist; und auf dem von Dipprey und Sabersky / 3 / eingeführten Parameter

$$G(h^{+}) = R(h^{+}) + \frac{\frac{f}{2St} - 1}{\sqrt{f/2}}$$
 (2)

Diese beiden Faktoren sind nur abhängig von der mikroskopischen Geometrie der Rauhigkeit und nicht, wie der Reibungsbeiwert und die Stantonzahl, Funktionen der Geometrie des Strömungskanals / 1, 2/. Sayre und Albertson / 4 / veröffentlichten 1961 Reibungsbeiwerte und Rauhigkeitsparameter $R(h^+)$ von versetzten Rauhigkeitselementen, die die Strömungsgeschwindigkeit in Wasserkanälen herabsetzen sollen. Das bedeutet hohe Reibungsbeiwerte und gewöhnlich auch große Wärmeübertragungskoeffizienten. Aus diesem Grund, und weil wir ferner annehmen, daß bei dieser speziellen Rauhigkeitsform sich hinter den Rauhigkeitselementen durch die seitliche Umströmung keine Totwassergebiete bilden, haben wir mit einem Stab mit versetzten Rauhigkeitselementen Reibungsbeiwerte und Wärmeübertragungskoeffizienten gemessen.

⁺⁾ Erklärung der Symbole auf S. 127-5

Abb. 1 zeigt die charakteristischen Abmessungen der Rauhigkeit und die Werte von $R(h^+)$ und $G(h^+)$.

In Abb. 2 ist der Parameter $(St_R/St_S)^3/(f_R/f_S)$ über f_R/f_S von Rauhigkeiten, berechnet für die typischen Daten eines gasgekühlten Reaktorbrennelements, aufgetragen. Der Faktor St³/f ist proportional dem Verhältnis thermische Leistung zu Pumpleistung / 2_7. Aus der Abb. 2 wird der Vorteil dieser Rauhigkeit im Vergleich zu Rauhigkeiten mit umlaufenden Rippen deutlich.

Literatur:

- [1]7 M. Dalle Donne, E. Meerwald Heat Transfer from Surfaces Roughened by Thread-Type Ribs at High Temperatures Proc. 1970 Heat Transfer Fluid Mechanics Institute, Stanford University Press
- / 2_7 M. Dalle Donne
 Heat Transfer Work on Gas Cooling for High Temperature and
 Fast Reaktors, in Press
- [3_7] D.F. Dipprey, R.H. Sabersky Heat and Momentum Transfer in Smooth and Rough Tubes Int. J. Heat Mass Transfer, 6, 1963
- [4] W.W. Sayre, M. Abertson Roughness Spacing in Rigid Open Channels Proc. Am. Soc, Civil Eng., May 1961
- <u>/</u>5<u>/</u> Vg1. (5) in Abschnitt 1271.2







Fig.1 HEAT TRANSFER AND FRICTION PARAMETERS FOR "ALTERNATE STUDS" ROUGHNESS



Fig. 2 ROUGHNESS THERMAL PERFORMANCE

Symbole

U	Gasgeschwindigkeit /cm/sec7
U	Schubspannungsgeschwindigkeit $\sqrt{\tau/\rho}$ /cm/sec/
τ	Wandschubspannung /dyn/cm ² /
v ⁺	Dimensionslose Geschwindigkeit U/U*
y ⁺	Dimensionsloser Wandabstand $y \cdot U^* / v$
У	Wandabstand /cm/
f	Reibungsbeiwert $2 \cdot \tau / \rho \cdot U^2$
St	Stantonzahl @/p.cp.U
h ⁺	Dimensionslose Rauhigkeitshöhe h·U [*] /v
C.	Wärmeübergangszahl /cal/cm ² sec ^o K7
ρ	Dichte /g/cm ³ /
ср	S pezifische Wärme <u>/cal/g</u> ^O K/
ν	Kinematische Zähigkeit /cm²/sec/
Index w in Abb	. 1: Zähigkeit wird auf die Wandtemperatur bezogen $h_w^+ = \frac{h \cdot U^*}{v_w}$

Index R: rauhe Oberfläche

Index S: glatte Oberfläche

1271.2 <u>Grundlagenexperimente zum Impuls- und Wärmetransport in</u> <u>Stabbündeln</u>

Reibungsgesetze für die turbulente Strömung in nichtkreisförmigen Kanälen (K. Rehme, INR)

Bei vielen nichtkreisförmigen Kanälen zeigt sich, daß gemessene Druckverlustbeiwerte für die inkompressible, isotherme, voll ausgebildete turbulente Strömung nicht durch die Gesetzmäßigkeiten des Kreisrohres bei Verwendung des hydraulischen Durchmessers beschrieben werden können.

Anhand eines einfachen Modells wurden daher die Gesetzmäßigkeiten paralleler Kanäle abgeleitet. Es zeigt sich nämlich, daß ein wesentliches Kennzeichen nichtkreisförmiger Kanäle Linien mit verschwindendem Impulsaustausch sind, d.h. parallele Kanäle. Unter der Annahme, daß in nichtkreisförmigen Kanälen das "Wandgesetz" der Geschwindigkeitsverteilung gültig ist, nämlich

$$u^+ = 2.5 \ln y^+ + 5.5$$
 (1)

mit der dimensionslosen Geschwindigkeit $u^+ = u/u^*$, wobei u^* die Schubspannungsgeschwindigkeit bedeutet, und dem dimensionslosen Wandabstand $y^+ = \rho y u^*/\eta$ mit ρ als der Dichte und η als der dynamischen Viskosität des Strömungsmediums, lassen sich die Reibungsgesetze für nichtkreisförmige Kanäle als

$$\frac{8}{\lambda} = A (2.5 \ln \text{Re} \sqrt{\frac{\lambda}{8}} + 5.5) - G^{*}$$
(2)

darstellen, mit λ als dem Druckverlustbeiwert und der Reynolds-zahl Re

$$Re = \frac{\rho u_m D_h}{n}$$
(3)

mit u_m als der über den Strömungsquerschnitt F gemittelten Strömungsgeschwindigkeit. Der hydraulische Durchmesser D_h ist definiert zu

$$D_{h} = \frac{4F}{U}$$
(4)

mit U als dem benetzten Umfang des Strömungskanals.

A und G^{*} in Gl.(2) sind zwei Geometriefaktoren. Das Druckverlustgesetz bei laminarer Strömung ist

 $\lambda Re = K.$ (5)

Dabei ist K ebenfalls ein Geometriefaktor, nämlich der Eigenwert der Poisson-Gleichung.

Man kann nun zeigen, daß sich dem Geometriefaktor K der laminaren Strömung je ein Geometriefaktor A bzw. G^{*} für die turbulente Strömung zuordnen läßt. Dazu wurden für das Modell parallelgeschalteter Kreisrohre, für das sich Geometriefaktoren A und G^{*} analytisch berechnen lassen, mit verschiedener Anzahl n paralleler Rohre und Durchmesserverhältnisse die Geometriefaktoren ermittelt $/\overline{1}/$. Für Geometriefaktoren K 64 (Kreisrohr) lassen sich Werte von G^{*} aus der Ringzonenlösung ermitteln $/\overline{2}/$. Für diese Fälle ist der Geometriefaktor A = 1. Abb.3 zeigt die ermittelten G^{*} als Funktion von K, Abb.4 A als Funktion von K. Man sieht, daß sich die Punkte recht gut zu Kurven anordnen.

Man kann nun für eine bestimmte Geometrie mit Hilfe von Abb.3 und Abb.4 und Gl.(2) das Druckverlustgesetz für die turbulente Strömung angeben, falls man den Geometriefaktor K des Druckverlustgesetzes für die laminare Strömung kennt. Geometriefaktoren K für die laminare Strömung sind aber für viele nichtkreisförmige Kanäle aus der Literatur bekannt, z.B. für spitzwinklige Dreiecke $\langle \overline{37} \rangle$, für konzentrische und exzentrische Ringspalte $\langle \overline{47} \rangle$, für Stabbündel $\langle \overline{57} \rangle$ oder lassen sich mit numerischen Methoden schnell und genau ermitteln.

Die aufgezeigte Methode wurde an einer Reihe von Meßergebnissen aus der Literatur getestet. Als Beispiel für Stabbündel in hexagonaler Anordnung zeigt Abb.5 einen Vergleich der Meßwerte $\langle \overline{6} \rangle$ und berechneten Werte. Die Übereinstimmung ist sehr gut. Für extreme Kanalformen, wie sie bei Stabbündeln mit aneinanderliegenden Stäben bzw. sich berührenden Stäben und Wänden vorkommen, sind in Abb.6 für quadratische Anordnungen die Meßergebnisse von GUNN und DARLING $\langle \overline{2} \rangle$ und in Abb.7 für hexagonale Anordnungen die Meßergebnisse von SUBBOTIN et al. $\langle \overline{8} \rangle$ und LEVCHENKO et al. $\langle \overline{9} \rangle$ mit den berechneten Werten verglichen. Die Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie ist ausgezeichnet.

Das vorgeschlagene Verfahren ist sehr einfach, da nur die Kenntnis des Geometriefaktors K für die laminare Strömung vorausgesetzt wird. Wegen der einfachen Anwendung und gleichwohl guten Genauigkeit ist dieses Berechnungsverfahren allen bisher vorgeschlagenen Berechnungsmethoden überlegen, und es können daher für die verschiedensten Kanalformen auf einfache Weise Druckverlustbeiwerte für die turbulente Strömung mit hinreichender Genauigkeit vorausgesagt werden.

Literatur

- <u>/1</u>/ K. Rehme, Method of Predicting the Pressure Drop of Turbulent Flow in Non-circular Channels. ENEA Gas-Cooled Fast Reactor Conference, Windscale, Cumberland, U.K. (May 1972)
- <u>/2</u>/ K. Maubach, Reibungsgesetze turbulenter Strömungen, Chemie-Ing. Technik 42, p. 995-1004 (1970)
- <u>/3</u>/ E.M. Sparrow and A. Haji-Sheikh, Laminar Heat Transfer and Pressure Drop in Isoceles Triangular, Right Triangular, and Circular Sector Ducts, J. Heat Transfer 87, p. 426-428 (1965)
- <u>4</u>
 W. Tiedt, Berechnung des laminaren und turbulenten Reibungswiderstandes konzentrischer und exzentrischer Ringspalte, Chemiker-Ztg./Chem. Apparatur <u>90</u>, p. 813-821 (1966), <u>91</u>, p. 17-25, 149-155, 299-311, 569-576, 968-975 (1967), <u>92</u>, 76-89 (1968)
- K. Rehme, Laminarströmung in Stabbündeln, Chemie-Ing. Technik
 43, p. 962-966 (1971)
- $\sqrt{6}$ / K. Rehme, Pressure Drop Performance of Rod Bundles in Hexagonal Arrangements, Int. J. Heat Mass Transfer (im Druck)
- (7) D.J. Gunn and C.W.W. Darling, Fluid Flow and Energy Losses in Non-circular Conduits, Trans. Instit. Chem. Engrs. <u>41</u>, p. 163-173 (1963)

- V.I. Subbotin, P.A. Ushakov, B.N. Gabrianovich,
 Hydraulischer Widerstand bei durch Flüssigkeiten längsumströmten Stabbündeln, Kernenergie <u>4</u>, p. 658-660 (1961),
 cf. Atomnaya Energiya <u>9</u>, 308 (1960)
- <u>Vu. D. Levchenko, V.I. Subbotin, P.A. Ushakov, A.U. Sheynina, Geschwindigkeitsverteilung in der Zelle eines dicht gepackten Stabbündels, In: Liquid Metals, Atomizdat, Moskau (1967), p. 223-234, cf. KFK-tr-371
 </u>

Veröffentlichungen zu 1271 im Berichtszeitraum

- (1) M. Dalle Donne and E. Meerwald, Heat Transfer and Friction Coefficients for Turbulent Flow of Air in Smooth Annuli at High Temperatures, ENEA Gas-Cooled Fast Reactor Conference, Windscale, Cumberland, U.K. (May 1972), Paper 7
- (2) K. Rehme, Method of Predicting the Pressure Drop of Turbulent Flow in Non-circular Channels, ENEA Gas-Cooled Fast Reactor Conference, Windscale, Cumberland, U.K. (May 1972), Paper 10
- M. Dalle Donne and E. Meerwald, Heat Transfer from Rough Surfaces, Latest Results, ENEA Gas-Cooled Fast Reactor Conf., Windscale, Cumberland, U.K. (May 1972), Paper 11
- K. Rehme, Friction Factors for Isothermal Turbulent Flow with Hexagonal Rod Clusters, ENEA Gas-Cooled Fast Reactor Conference, Windscale, Cumberland, U.K. (May 1972), Paper 21
- (5) C. Savatteri, Friction factors of a cluster of 19 rough rods, ENEA Gas-Cooled Fast Reactor Conference, Windscale, Cumberland, U.K. (May 1972), Paper 22 und KFK-Bericht 1588, EUR 4728 e



Аbb. 4 Ge





o 0 0.1 0 000 λ STRO OTHER OTHER OFFICE Active Constant por an 0.01 Composed States of Soo 0.01 Ed & Booton Booton 2000000 -Kreisrohr Theorie 0.01 10³ 10² 104 Re 10⁵ Stabbündelkanäle nach [7]

Abb. 6



Abb.7

1273 Untersuchungen zur Notkühlung von dampf- (und gast) gekühlten Reaktorkernen

(G. Hofmann, B. Schöffler, IRB)

Die Fertigung des Versuchsbündels wurde fortgesetzt. Die Stäbe und die Meßpositionen der eingebauten Thermoelemente wurden vermessen. Drei Wendeldrähte, die aufgelötet werden und so die integralen Rippen simulieren, wurden durch Punktschweißen an den Rippen fixiert; mit dem Verlöten der Drähte wurde begonnen.



128 ENTWURFSSTUDIEN FÜR GAS- UND DAMPFGEKÜHLTE BRUTREAKTOREN

1285 <u>Studien zu dampfgekühlten schnellen Reaktoren</u> (Zusammengestellt von F. Erbacher, IRB und G. Kill, AEG)

Die Arbeiten im Berichtszeitraum konzentrierten sich auf die Kernauslegung und den Entwurf des nuklearen Dampferzeugungssystems (NDES).

Die im IMF mit dem Rechenprogramm SATURN I durchgeführten Rechnungen zur Brennstabauslegung führten zur Empfehlung, die Hüllwandstärke auf 0,4 mm zu erhöhen⁺⁾. Der Brennstabdurchmesser wurde auf 8 mm angehoben.

Als Kastenmaterial wird der Werkstoff Nr. 4970 (Sandvik 12 R 72 HV) vorgesehen. Die Korrosionsbeständigkeit dieses Werkstoffes ist bei der vorgesehenen max. Heißdampftemperatur von 480 [°]C ausreichend. Das Strukturmaterialschwellen wurde bei der Kernauslegung mit einem Sättigungswert von 8,5 Vol.% berücksichtigt.

Die thermohydraulische Kern- und Kreislaufauslegung mit den Programmen NAPPRA, COBRA und THEDYBER wurde weitgehend abgeschlossen. Detaillierte Rechenläufe zur Heißkanalanalyse mit den Programmen THESYS und THEDRA wurden vorbereitet.

Die Betrachtungen zur teil- bzw. vollintegrierten Bauweise von Kern- und Löfflerkreislaufkomponenten wurden abgeschlossen. Nach Abwägung der Vorund Nachteile der beiden Alternativen wurde die Vollintegration von Reaktorkern, Dampfgebläse und Verdampfer gewählt.

Die Ermittlung des Einflusses von sattdampf- oder heißdampfseitiger Anordnung der Gebläse auf die Regelbarkeit der Dampftemperatur am Kernaustritt wurde abgeschlossen und hatte zum Ergebnis, daß beide Anordnungen eine zuverlässige Regelung erlauben. Die bei Anwendung des Druckausgleichssystems verbleibende Druckbelastung der Brennstäbe beträgt Lei der sattdampfseitigen Anordnung etwa 20 at gegenüber etwa 1,5 at bei Anordnung des Gebläses im heißen Strang. Dagegen verschlechtert sich der Anlagenwirkungsgrad bei der heißdampfseitigen Anordnung um knapp 1 Punkt. Die auch bei früheren Entwürfen vorgesehene sattdampfseitige Anordnung des Dampfgebläses am Reaktoreintritt wird zunächst beibehalten.

⁺⁾vg1. S. 112-2

Die benötigten konstruktiven Betrachtungen zur Gestaltung der Kernverspannung und der Kernniederhalterung sowie der vollintegrierten Bauweise wurden abgeschlossen. Erste Überlegungen zur Gestaltung des Containments ergaben, daß ein der neuesten SWR-Technologie entsprechendes Konzept für die vollintegrierte Bauweise besonders geeignet ist.

Aus Gründen der Vergleichbarkeit mit der Gasstudie werden zunächst alle physikalischen Rechnungen mit dem KFK-MOXTOT-Satz weitergeführt. Der neuere KFK-INR-Satz soll zu einem späteren Zeitpunkt für Kontrollrechnungen eingesetzt werden. Das zweidimensionale Diffusionsprogramm DIXY wurde ausgetestet und für die physikalischen Auslegungsrechnungen eingesetzt.

Insgesamt sind nun die Auslegungsarbeiten zur Definition des für die eigentliche Sicherheitsstudie heranzuziehenden Reaktorentwurfs weitgehend abgeschlossen.

Zur Ermittlung der Auswirkungen hypothetischer Unfälle vom Bethe-Tait-Typ wurde eine Parameterstudie mit dem Programm FAUN-Z durchgeführt. Die Anwendung der Ergebnisse auf definierte Unfallmechanismen wird sich daran anschließen. Dazu wurde die Diskussion der für den Dampfbrüter relevanten Unfallsituationen weitergeführt. Erste Rechnungen für die zu erwartenden Reaktivitätsrampen sind durchgeführt worden.

Zur Aufnahme des geschmolzenen Kerns im Falle eines Kernschmelzunfalls ist ein Core-Catcher vorgesehen. Es wird zur Zeit untersucht, welche Anforderungen an eine derartige Anordnung zu stellen sind.

129 ENTWURFSSTUDIEN FÜR NA-GEKÜHLTE SCHNELLE REAKTOREN

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

Datenstruktur in THESYS

(letzter PSB-Vierteljahresbericht: KFK 1271/4)

Die Temperaturverteilung innerhalb des Kernverbands eines Schnellen Reaktors ist eine unstetige Funktion, da einmal aufgrund der inhomogenen Leistungserzeugung Temperatursprünge zwischen den verschiedenen Kernmaterialien auftreten und zum anderen die Kühlkanäle auch unterschiedlich stark gekühlt sind. Zur numerischen Berechnung der 3d-Temperaturverteilung des Kernverbands ist daher die Erfassung einer sehr großen Anzahl von Maschenpunkten (ca. $10^5 \div 10^6$) nötig, die die echte Reaktorgeometrie wiedergeben müssen und die theoretisch alle untereinander thermisch (durch Wärmeleitung und ggf. Kühlmittelquervermischung) verknüpft sind.

Bei der Erstellung des Programms THESYS traten daher Schwierigkeiten bei der Strukturierung der Daten auf, die im Berichtszeitraum neu überarbeitet wurde. Hierbei waren im wesentlichen zwei Forderungen zu erfüllen:

- 1. Die Datenstruktur muß an die echte Reaktorgeometrie angepaßt sein, und
- 2. sie muß das einfache Auffinden benachbarter Punkte ermöglichen.

Um diesen Anforderungen nachzukommen, wird zur Darstellung der Reaktorgeometrie der Kernverband mehrfach unterteilt:

In axialer Richtung werden die Bereiche Spaltstoffzone, untere und obere Brutzone, Spaltgasplenum und Kopfstück unterschieden, innerhalb derer die axiale Feinaufteilung vorgenommen wird. In radialer Richtung befinden sich die innere und äußere Spaltstoffzone, sowie der radiale Brutmantel (Abb. 1). In einer Querschnittsebene wird die Positionierung einzelner Brenn-, Regel- oder Brutelemente in sogenannten "Hex-Koordinaten" / 1 / angegeben (Abb. 2). Innerhalb eines Elementes befinden sich Teilkanalmaschen, Brennstäbe und Wand/Spaltmaschen (Maschen der Kastenwand und des Spalts zwischen den Elementen), wobei jedes Element seine eigenen Bezugssysteme für diese Größen hat. Die Element-Bezugssysteme sind ähnlich aufgebaut, wie die "Hex-Koordinaten" des Kernverbands.

In Abb. 3 sind die Bezugssysteme für die Teilkanal- und die Wand/ Spaltmaschen dargestellt. Die letzteren werden für jede Hexagonseite der Kastenwand nochmals gesondert zusammengefaßt. Abb. 4 zeigt das Bezugssystem der Brennstäbe im Element.

Durch diese Maschenanordnung wird der Kernverband in seiner realen Geometrie beschrieben, die erste Forderung ist damit erfüllt. Um die Erfüllung der zweiten Forderung (Auffinden der Nachbarmaschen) zu beurteilen, muß der prinzipielle Rechenablauf bekannt sein.

In THESYS werden zunächst die Elemente des Kernverbands einzeln durchgerechnet, ohne Berücksichtigung der thermischen Verknüpfung mit den Nachbarelementen. Diese wird durch eine nachfolgende Iteration über den gesamten Kernverband erfaßt.

Da also jeweils ein Element geschlossen durchgerechnet wird, ist die Verknüpfung der ein Element beschreibenden Maschen kein besonderes Problem. Zur Erfassung der thermischen Wechselwirkung zwischen den Elementen müssen dagegen die Temperaturen der Nachbarkastenwände aus dem vorhergehenden Iterationsschritt in den Kernspeicher geholt werden. Dies ist bei der vorliegenden Datenstruktur verhältnismäßig einfach:

Die "Tri-Koordinaten"-Option des Systems HEXAGON / 1_7 gestattet eine einfache Bestimmung der 6 Nachbarelemente, die normalerweise einem Element zugeordnet sind. Von diesen Nachbarelementen werden jeweils nur die Temperaturen der unmittelbar benachbarten Wand benötigt. Auch diese Daten sind leicht zu finden, da die entsprechende Datei, wie oben beschrieben, die Kastenwandseiten als Unterstruktur enthält.

Die Berechnung der 3d-Temperaturverteilung des Kernverbands schließt somit die Erzeugung folgender Dateien ein:

- 1. Eine Datei mit der Leistungsverteilung,
- 2. eine Datei mit den Teilkanaltemperaturen und
- 3. eine Datei mit den Kastenwandtemperaturen.

Grundsätzlich ist bei allen Dateien das Brenn- bzw. Brutelement die oberste Strukturebene, daran schließen sich weitere Unterstrukturen der Querschnittsebene an. An unterster Stelle kommen die Strukturen der axialen Richtung. Die erste Datei enthält Stableistungswerte, die stabweise für einige ausgewählte Brennstäbe (z.B. Zentralstab und Eckstäbe) angeordnet sind. In der zweiten Datei stehen für jeden Teilkanal die Kühlmittel-, die Hüllrohrund die Brennstofftemperaturen. Die dritte Datei enthält die Temperaturen der Kastenwand- und Spaltmaschen, in ihr ist noch eine weitere Strukturierung für einzelne Kastenwandseiten vorhanden.

/ I_7 E.G. Schlechtendahl: HEXAGON - Eine Systematik zur Behandlung von Problemen in Sechseckanordnungen. Juli 1971. KFK 1432

Veröffentlichung:

A. Amendola, K. Doetschmann:

THECA, ein Rechenprogramm zur dreidimensionalen thermischen Auslegung schneller Reaktorkerne einschl. einer statistischen Heißstellen- und Zuverlässigkeitsanalyse

Reaktortagung Hamburg 11. - 14.4.1972, Compactband S. 208 ff.



Abb. 1: Aufteilung des Kernlängsschnitts

Abb.2: Hex-Koordinaten einer Sechseckanordnung



Abb. 3: Bezugssystem der Teilkanalmaschen (innen) und der Wand/Spaltmaschen (außen).



Abb.4: Bezugssystem der Brennstäbe.

1293 Reaktorentwurf, spezielle Untersuchungen

Untersuchung über die Verwendung von Heat Pipes in Dampferzeugern natriumgekühlter Reaktoren (U. Hitzschke, IRE)

Ausgangspunkt dieser Studie waren die beim Einsatz von Heat Pipes zu vermutenden Vorteile hinsichtlich der Sicherheit der Kreisläufe und der Anlagenkosten (evtl. Einsparung des Sekundärkreislaufes).

Seit der letzten Berichterstattung im 4. Vierteljahresbericht 1971 erfolgtem die wärmetechnische Auslegung und einige Untersuchungen über die Ausnutzung des absolut maximalen Wärmetransportvermögens der Heat Pipes und über verschiedene Einflüsse auf Rohrzahl und Rohrlänge. Mit den Berechnungsergebnissen wurde ein Heat Pipe Dampferzeuger entworfen. Weiterhin wurden das Teillastverhalten und, als besonders wichtiger Punkt, die Sicherheit gegenüber Natrium-Wasser-Reaktionen betrachtet.

Die Ergebnisse lassen folgende Tendenz erkennen:

Auslegungsmäßig werden keine entscheidenden Vorteile sichtbar. Die benötigte Wärmeaustauschfläche liegt ca. um den Faktor 2 über dem Wert vergleichbarer Anlagen. In konstruktiver Hinsicht ergeben sich Schwierigkeiten beim Einschweißen der Heat Pipes in die Trennböden, und es müssen erhebliche Genauigkeitsanforderungen in bezug auf die Dichtheit der Schweißnähte und fehlerlose Fertigung der Rohrwände gestellt werden. Die Untersuchung des Teillastverhaltens ergibt, daß bei festgehaltenem Verdampfungsendpunkt für Lasten unterhalb von 40% ein Wasser-Dampfgemisch in den Vorwärmer eingeleitet werden muß. Diese Tendenz verstärkt sich, wenn im Verdampfer teilweise Überhitzung zugelassen wird. Nur im umgekehrten Fall, wenn teilweise Verdampfung im Überhitzer erlaubt wird, kann auch bei kleineren Teillasten direkt Wasser in den Vorwärmer gespeist werden.

Die weiteren Betrachtungen zeigen, daß eine gewisse Erhöhung der Sicherheit gegeben ist. Die Wahrscheinlichkeit von Natrium-Wasser-Reaktionen ist geringer, da sie beim Heat Pipe Dampferzeuger nur dann auftreten können, wenn sich sowohl auf der Natrium- als auch auf der Wasserseite je ein Leck gebildet hat. Entstehen trotzdem zwei solche Leckstellen, was nicht ganz ausgeschlossen werden kann, sind erhebliche Schäden zu erwarten, da in diesem Fall Primärnatrium und Wasser miteinander reagieren würden. Um diesen Störfall mit seinen Auswirkungen zu vermeiden, müssen entweder entsprechende Sicherheitsvorkehrungen getroffen werden (Beibehaltung des sekundären Natriumkreises oder aufwendiges Druckentlastungssystem), oder man muß über ein präzises Detektier- und Absperrsystem verfügen. Wenn diese zuletzt genannte Voraussetzung erfüllt ist, werden echte Vorteile erkennbar, die den Einsatz des neuen Wärmeübertragungssystems rechtfertigen.

Aus heutiger Sicht erscheint die Verwendung von Wärmerohren in Dampferzeugern natriumgekühlter Reaktoren jedoch noch problematisch. Erst experimentelle Untersuchungen über das Betriebsverhalten und die Beständigkeit von Heat Pipes unter Dampferzeugerbedingungen werden eine endgültige Beurteilung ermöglichen.

Der zusammenfassende Bericht über die Studie befindet sich in Vorbereitung. ī

the second se

÷