

November 1972

KFK 1522

Institut für Material- und Festkörperforschung Projekt Schneller Brüter

Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung des $\rm UO_2$ -PuO $_{2^-}$ Brennstab-Bündels Mol-7A

K. Kummerer, D. Geithoff, P. Weimar



GESELLSCHAFT FUR KERNFORSCHUNG M.B.H. KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H. KARLSRUHE

Ĭ

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1522

Institut für Material- und Festkörperforschung Projekt Schneller Brüter

Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung des UO₂-PuO₂-Brennstab-Bündels Mol-7A

von

K. Kummerer, D. Geithoff, P. Weimar

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

4.10.1972

Ŧ

VORBEMERKUNG

Der in diesem Bericht beschriebene Bestrahlungsversuch basiert auf der Zusammenarbeit mehrerer Arbeitsgruppen im Kernforschungszentrum Karlsruhe und im Centre d'Etude de l'Energie Nucleaire in Mol/Belgien. Die vielfältige Mühe und Sorgfalt aller Beteiligten sei ausdrücklich anerkannt. Auch danken wir allen, die unmittelbar zur Abfassung dieser Dokumentation beitrugen, insbesondere Herrn F. Bauer für die Ausarbeitung der Faltblätter, Diagramme und Abbildungen sowie Frau B. Hauth für die Reinschrift des Manuskriptes und die redaktionelle Hilfe.

22.9.1972

K.Kummerer, D.Geithoff, P.Weimar

Der im Rahmen der Brennstabentwicklung für schnelle Brutreaktoren durchgeführte Bestrahlungsversuch Mol-7A umfaßt die Bestrahlung eines Brennstab-Bündels mit 7 Stäben im epithermischen Neutronenfluß des belgischen Reaktors BR 2. Das Stabbündel war in dem Natrium-Kreislauf im Zentralkanal des BR 2, dem sog. MFBS-5-Loop, eingesetzt. Die Brennstäbe enthielten UO2-PuO2-Brennstoff und Hüllmaterial aus Edelstahl. Die Auslegung der Brennstäbe hinsichtlich Materialzusammensetzung und Geometrie sowie die betriebliche Beanspruchung der Stäbe stellen eine teilweise sehr weitgehende Simulation der Verhältnisse in einem Schnellbrüter-Prototyp wie etwa dem SNR-300 dar. Bei einem PuO2-Anteil von 20 Gew.-% betrug die Brennstoffschmierdichte 80 % der theoretischen Dichte. Die Stabhüllen aus 3 einander ähnlichen Typen hochwarmfester Edelstähle hatten eine Wandstärke von 0,38 mm. Der Stabdurchmesser war 6,0 mm. Hinsichtlich der Stablänge war wegen des begrenzten Bestrahlungsraumes die Simulation echter Schnellbrüterbedingungen nicht möglich, wohl aber etwa im Verhältnis von Brennstoffvolumen zu Spaltgasraum. Bei einer gesamten Stablänge von 108 cm schließen an einen 50 cm langen Brennstoffteil oben und unten je ein kurzes UO2-Brutstoffstück sowie jeweils ein Spaltgasplenum an.

Die betriebliche Beanspruchung während der Bestrahlung war mit 500 W/cm maximaler Stableistung und einer maximalen Hüllwandtemperatur von 630°C vorgesehen. Die tatsächlich im Experiment aufgetretene maximale Stableistung lag aber deutlich höher, nämlich bei etwa 590 W/cm. Der vorgesehene Zielabbrand des Experimentes war 60.000 MWd/t M. Tatsächlich erreicht wurde aber ein maximaler Abbrand von etwa 45.000 MWd/t M, da ein Brennstab defekt wurde und der Versuch daher schon vorzeitig beendet werden mußte. Der vorliegende Bericht stellt eine Dokumentation dieses Bestrahlungsversuches dar. In ihr sind alle Einzelheiten über die Aufgabenstellung, die Auslegung, Konstruktion und Spezifikation der Stäbe und des Bündels, über die Stabherstellung, die Prüfungen vor der Bestrahlung, die gesamte Bestrahlungsgeschichte sowie schließlich über die zerstörungsfreie und zerstörende Nachuntersuchung der bestrahlten Stäbe zusammengestellt. Die Ursachen des aufgetretenen Stabschadens lassen sich nicht eindeutig angeben. Es wird in erster Linie ein Material- oder Fertigungsfehler vermutet, doch kann auch die nicht geplante betriebliche Überbeanspruchung auslösendes Moment gewesen sein.

ABSTRACT

Design, Irradiation and Examination of the UO₂-PuO₂-Fuel-Pin-Bundle Mol-7A

Within the fuel pin development for fast breeder reactors the irradiation experiment Mol-7A comprises the irradiation of a fuel pin bundle with 7 pins in the epithermal neutron flux of the Belgian reactor BR 2. The bundle was loaded in the sodium circuit in the central channel of the BR 2, the so-called MFBS-5-Loop. The pins contained UO_2 -PuO₂ fuel in a stainless steel cladding. The design of the pins with respect to material composition and geometry as well as the operational conditions are highly representative for the conditions in a fast breeder prototype like the SNR 300. Having a $Pu0_2$ -content of 20 w/o, the smeared density of the fuel was 80 % of theoretical density. The claddings which consisted of 3 quite similar types of high temperature resistant stainless steels, had a 0.38 mm wall thickness. The pin diameter was 6.0 mm. As far as the pin length is concerned the simulation of true fast reactor conditions was not possible due to the limited irradiation space in the BR 2. The ratio between fuel volume and fission gas plenum, however, is representative for a fast reactor pin. In a total pin length of 108 cm a 50 cm long fuel region is located between upper and lower small axial blankets, each accompanied by a separate gas plenum.

The operational conditions during irradiation were designed to be 500 watts/cm for the pin rating and 630 ^OC for the maximum cladding temperature. In the course of the experiment the power happened to be remarkably higher, up to about 590 watts/cm. The target burnup was 60000 megawatt days/t M, but only about 45000 MWd/t were reached, when the experiment had to be terminated due to a pin failure.

This report is a documentation of this irradiation experiment, where all data and facts on the experimental objectives, pin design, specifications for pin and bundle, fabrication of the pins including preirradiational tests, the irradiation history, and, finally, the destructive and nondestructive post irradiation examination are compiled. The cause for the pin failure in the bundle could not be identified. Primarily a fault in material components or pin fabrication is suspected. But also the non-scheduled overpower during irradiation might have initiated the damage.

Int	alt		Seite
l.	Einf	lührung	1
2.	Aufe	3	
3.	Ausl	egung der Bündelbestrahlung	4
	3.1	Stab- und Bündelgeometrie	4
	3.2	Materialauswahl	5
	3.3	Dichte des Brennstoffes	5
	3.4	Stableistung, Temperatur, Abbrand	
	3.5	Hüllrohrauslegung und -beanspruchung	6
4.	Kons	truktion der Brennstäbe und Spezifikationen	9
	4.1	Der Aufbau der Brennstäbe	10
	4.2	Brennstoffspezifikationen	12
	4.3	Spezifikationen für den Brutstoff	14
	4.4	Spezifikationen für die Hülle	14
	4.5	Spezifikationen für den Brennstab	17
5.	Hers	tellung der Brennstäbe	19
	5.1	Ausgangspulver für Brennstoff und Brutstoff	20
	5.2	Herstellung der Brennstoff-Tabletten	24
	5.3	Herstellung der Brutstoff-Tabletten	24
	5.4	Hüll- und Strukturmaterial	27
	5.5	Tablettensäulen	27
	5.6	Fertigung der Stäbe und Prüfungen	29
	5.7	Abweichungen von den Spezifikationen	39
6.	Bren	nstabbündel und Bestrahlungseinsatz	41
7.	Abla	uf der Bestrahlung	52
	7.1	Reaktorzyklen	53
	7.2	Neutronenfluß	53
	7.3	Temperatur und Stableistung	56
	7.4	Abbrand	56

8.	Unte	rsuchung und Demontage des Bündels	60
	8.1	Partielle Zerlegung des Bestrahlungseinsatzes in Mol	60
	8.2	Betatron-Durchleuchtung	61
	8.3	Röntgen-Durchleuchtung	65
	8.4	Sipping-Test	66
	8.5	Vollständige Zerlegung des Stab-Bündels	70
9.	Zers	törungsfreie Untersuchung der Stäbe	75
	9.1	Visuelle Kontrolle und äußere Vermessung	75
	9.2	Durchleuchtung	86
	9.3	Gamma-Profile und Gamma-Spektren	86
10.	Spal	tgasbestimmungen	98
11.	Kera	mografie	102
12.	Radi	ochemische Abbrandbestimmungen	102
13.	Schl	ußfolgerungen	106
Lit	eratu	r	108
Lis	te de	r Tabellen	11 0
Lis	te de	r Abbildungen	111
Anha	ang I	: Tablettenlisten	113
Anha	ang I	I: Dokumentation der Nachuntersuchung	123

1. Einführung

Bei den Entwicklungsarbeiten für Brennelemente schneller Brutreaktoren kommt nach der Erprobung einzelner oxidischer Brennstäbe das Verhalten ganzer Brennstabbündel ins Blickfeld. Im Schnellbrüter-Bestrahlungsprogramm des Kernforschungszentrums Karlsruhe nimmt der Bestrahlungsversuch Mol-7A eine Art Zwitterstellung ein. Er steht zwischen den Bestrahlungen einzelner Stabprüflinge, wie sie mit Parametervariation in zahlreichen Kapselversuchsgruppen im FR 2 und im BR 2 durchgeführt wurden 1, 2, 7, und den eigentlichen Bündeltests nach Art des Versuches DFR-350 5.7.

Die zu einem Hexagonalbündel zusammengefaßten 7 Stäbe sind identisch hinsichtlich Spezifikation und Fertigung, auch weitgehend in ihrer betrieblichen Beanspruchung im Bestrahlungskanal. Eine Beschränkung liegt aber darin, daß wegen der geringen Stabzahl vornehmlich die "Randeffekte" das Geschehen im Bündel bestimmen. Das durch ein Cadmium-Schild gehärtete Neutronenspektrum stellt ebenfalls einen Kompromiß dar.

Trotzdem kann aber festgestellt werden, daß dieser Bündelversuch bereits alle Züge eines "Brauchbarkeitstests" für Schnellbrüterbrennstäbe mit UO₂-PuO₂-Brennstoff in wesentlichen Ansätzen aufwies und eine Menge von Erkenntnissen bezüglich des Stab- und Bündelverhaltens, aber nicht zuletzt auch bezüglich des Brennstoffes und der Hülle selbst brachte.

Dieser Bericht faßt alle Einzelheiten der Auslegung, Spezifikation und Prüflingsherstellung zusammen und beschreibt den tatsächlichen Bestrahlungsablauf sowie die zerstörungsfreie und keramografische Nachuntersuchung in zusammenfassender Dokumentation. Die Zusammenstellung benützt neben den ausdrücklich zitierten Referenzen eine Vielzahl von internen Niederschriften und persönlichen Mitteilungen. Die Hauptarbeit an dem Versuch in all seinen Phasen verteilte sich auf die Jahre 1967 bis 1971, wobei erste Überlegungen bis ins Jahr 1966 zurückreichen. In der nachfolgenden Übersicht ist der Zeitablauf grob dargestellt. Außerdem sind die für jeden Teilaspekt hauptverantwortlichen Stellen bzw. Personen angegeben.

Zeitraum	Teilarbeit	Institution und Hauptbeteiligte		
1967	Vorüberlegungen, Verhandlungen mit CEN Mol	IAR, Karsten IRE, Gast, Bojarsky		
1967/68	Spezifikationen	IRE, Kleefeldt IAR, Karsten, Laue		
1968	Herstellung der Stäbe	IMF, Dippel, Kummerer		
1968	Assemblierung des Bündels	CEN Mol		
1968/69	Organisation und Betreuung der Bestrahlung	IAR, Karsten, Borkowetz ⁺⁾		
11.9.68 bis 11.9.69	Bestrahlung im BR 2	CEN Mol		
1970/71	Organisation und Betreuung der Nachuntersuchung	IMF, Geithoff		
1970	Zerlegung des Bündels und zerstörungsfreie Nachunter- suchung der Stäbe	RB/Z, Scheeder, Enderlein		
1970	Spaltgasuntersuchungen	RB/CuM, Gräbner		
1971	Keramografie in den Heißen Zellen	RB/CuM, Pejsa		
1971	Abbrandbestimmungen	IRCH, Wertenbach		
1972	Auswertung, Zusammenfassung und Dokumentation	IMF, Kummerer, Geithoff, Weimar		

Die Konzipierung dieses Bestrahlungsversuches stand ziemlich am Anfang unseres Bestrahlungsprogramms, wobei der damalige Kenntnisstand und die damaligen experimentellen Randbedingungen maßgebend waren. Nach Erteilung des Projektierungsauftrages für ein 300 MWd-Prototypkernkraftwerk Ende 1966 an ein Industrie-Konsortium wurde dieser Bündelbestrahlungsversuch für die vorbereitenden Arbeiten zum Prototypreaktor SNR-300 auch in der Sicht der Industriepartner aktuell. Seit 1968 sind daher die Firmen Siemens AG. und Interatom GmbH., ab 1969 die Firma Interatom allein beteiligt, wobei die Federführung bei der Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe (GFK) verblieb.

2. Aufgabenstellung und Versuchsziel

In der Bündelbestrahlung Mol-7A kamen Brennstäbe mit UO₂-PuO₂-Mischoxid und Edelstahlhülle zum Einsatz. Im Aufbau der Prüflinge sowie in den Bestrahlungsbedingungen wurde eine Simulation der Verhältnisse bei Brennstäben in schnellen Na-gekühlten Reaktoren angestrebt. Insbesondere sollte realisiert werden

- ein integraler Stabaufbau mit Brennstoffzone, Brutstoff und Spaltgasplenum
- ein Stabdurchmesser von 6 mm
- 3 verschiedene hochlegierte austenitische Edelstähle als Hüllwerkstoffe
- funkenerodierte Abstandshalter
- ein Brennstoffgemisch mit repräsentativer UO2-PuO2-Zusammensetzung
- eine maximale (nominale) Stableistung von 500 W/cm
- eine maximale (nominale) Hüllwandtemperatur von 630°C
- Kühlung durch fließendes Natrium
- ein maximaler Abbrand von 60.000 MWd/t M
- ein durch Cd-Abschirmung gehärtetes Neutronenspektrum.

Die wesentlichen Unterschiede im Vergleich zu echten Schnellbrüter-Brennstäben liegen in folgenden Beschränkungen:

- Die nuklearen Verhältnisse sind deutlich verschieden. Das Intensitätsmaximum des Neutronenflusses liegt - infolge der Cd-Abschirmung zwar im epithermischen Bereich. Der schnelle Flußanteil ist jedoch vergleichsweise gering.
- Die Neutronenschädigung der Metallhülle ist bei weitem nicht so ausgeprägt wie in einem "echten" schnellen Fluß.

- Die Kühlung der Stäbe erfolgt zwar im strömenden Natrium mit der Strömungsrichtung von unten nach oben. Wegen der geringen Stabzahl unterliegen aber fast alle Stäbe hinsichtlich der Strömungs- und Temperaturverteilung den Randeffekten im Bündel.

Die Untersuchungsziele während der Bestrahlung und bei den Nachuntersuchungen sind durch folgende Fragestellungen gegeben:

- Bleiben die Brennstäbe bis zum Zielabbrand intakt ?
- Ändert sich die äußere Geometrie der Stäbe, erfolgt insbesondere eine Hüllaufweitung ?
- Wie ist die radiale und axiale Strukturverteilung im Brennstoff nach der Bestrahlung ?
- Wie bildet sich der Zentralkanal im Brennstoff aus ?
- Wie groß ist die Spaltgasfreisetzung, welcher Anteil bleibt im Brennstoff in geschlossenen Poren oder im Gitter zurück ?
- Wie ist die Verteilung der Spaltprodukte ?
- Zeigen die verschiedenen Hüllmaterialien unterschiedliches Verhalten, gibt es einen Korrosionsangriff von innen her ?
- Wie verhalten sich die Brennstäbe im Kontakt mit den funkenerodierten Abstandshaltern ?

3. Auslegung der Bündelbestrahlung

In diesem Kapitel sind die Festlegungen und Auslegungsrechnungen bei der Versuchsvorbereitung zusammengefaßt. Diese bildeten die Basis für die Konstruktion der Brennstäbe und die Spezifikationen.

3.1 Stab- und Bündelgeometrie

Für die Brennstäbe des Bündels wurde als Außendurchmesser 6 mm festgelegt. Die Länge der Brennstoffzone ist den Verhältnissen im BR 2 und dem zur Bestrahlung vorgesehenen MFBS-Loop^{*)} angepaßt. Diese aktive Länge kann nicht mehr als etwa 500 mm betragen, da bei der angestrebten Stableistung von maximal 500 W/cm die Wärmeleistung des

^{*)&}quot;Manipulation Franco Belge Sodium"

gesamten Bündels sonst zu hoch wird. Die Wärmetauscher des Na-Loops sind auf ca. 160 kW ausgelegt. Die weitere Längenverteilung im Stab orientiert sich an der Schnellbrüter-Auslegungsstudie Na $2 \sqrt{5}$. Damit das Verhältnis Spaltgasraum:Brennstoffvolumen das gleiche wird, ist für den Spaltgasraum im Mol-7A-Stab eine Länge von ca. 350 mm nötig. Die Stablänge soll insgesamt 1100 mm nicht überschreiten wegen des Einbaues in das MFBS-Loop im BR 2. Es bleiben somit ca. 200 mm für axiale Brutzonen – je eine zu 100 mm oberhalb und unterhalb des Brennstoffes – übrig. Um die Brennstoffzone – bei vorgegebener axialer Position des Loops im Reaktor – in das Neutronenflußmaximum zu bringen, ist eine Teilung des Spaltgasraumes nötig.

Im Stabbündel sind 7 Brennstäbe in Hexagonal-Anordnung mit funkenerodierten Abstandshaltern zusammengehalten. Der Stababstand im Bündel beträgt 7,9 mm. Über die Bündellänge verteilt sind 10 Abstandshaltergitter vorgesehen. Das Bündel ist von einem Mantelrohr umgeben.

3.2 Materialauswahl

Als Brennstoff wird mechanisch gemischtes, gesintertes UO_2 -Pu O_2 genommen. Der Pu O_2 -Gehalt ist 20 %. Der Brutstoff in den Brutzonen ist UO_2 natürlicher Isotopenzusammensetzung. Für das Hüll- und Strukturmaterial gibt es die 3 Edelstahl-Varianten:

- X 8 Cr Ni Mo V Nb 1613, Werkstoff-Nr. 1.4988 (3 Stäbe)
- X 8 Cr Ni Nb 1613, Werkstoff-Nr. 1.4961 (2 Stäbe)
- AISI 316 (2 Stäbe)

Dabei stellt der Edelstahl AISI 316 das Referenzmaterial dar.

3.3 Dichte des Brennstoffes

Als Schmierdichte des Brennstoffes ist 80 % th.D. vorgesehen. Die Tabletten sollen an einer Stirnfläche eine Einsenkung erhalten. Außerdem soll ein diametraler Spalt von 100 bis 200 µm als Schwellraum zur Verfügung stehen. Nachstehend sind einige mögliche Wertekombinationen aufgeführt. Für die theoretische Dichte des Mischoxids (mit 80 % U-235 im Uran) wird hierbei der Wert 10,97 g/cm³ angesetzt und für den Hüllinnendurchmesser der Wert 5,24 mm.

Schmier- dichte (% th.D.)	Lineare Dichte (g/cm)	Diametraler Spalt (µm)	Materia Vollzylinder (% th.D.)	aldichte bei 3 Vol% Einsenkung (% th.D.)
80	1,893	100 150 200	83,16 84,80 86,50	85,73 87,43 89,17
		250	88,24	90,97

3.4 Stableistung, Temperatur, Abbrand

Als Nominalwert der maximalen Stableistung wird 500 W/cm festgelegt. Bei Verwendung eines Cd-Schirmes um den Bestrahlungskanal zur Härtung des Neutronenspektrums ist dann eine U-235-Anreicherung im Uran von 80 % nötig.

Die maximale nominale Hüllwandtemperatur soll 630°C betragen. Als maximale Hüllmittenwandtemperatur ergibt sich daraus 600°C. Für den maximalen Abbrand wird ein Wert von etwa 60.000 MWd/t M angestrebt.

3.5 Hüllrohrauslegung und -beanspruchung

Als Wandstärke der Edelstahl-Hüllrohre wird 0,38 mm festgelegt. Bei 6,00 mm Außendurchmesser beträgt der Innendurchmesser dann 5,24 mm. Es soll hier abgeschätzt werden, wie groß der Spaltgasdruck auf die Hülle wird und welche Kriechverformungen dies (maximal) zur Folge hat.

Zuerst ist das freie Volumen innerhalb der Stabhülle zu ermitteln und die jeweils dazugehörige Temperatur. Es ergeben sich folgende Werte $\sqrt{6}$:

	Volumen (cm3)	Temperatur (°C)
Gasplenum oben	4,95	480
Gasplenum unten	1,36	650
Beide Brutzonen	0,24	565
Brennstoffzone	0,62	565
Summe	7,17	
Gewichteter Mi	ttelwert	522

Unter der Annahme, daß 0,27 Gasatome pro Spaltung entstehen, ist am Ende der Bestrahlung bis zu 60.000 MWd/t M eine Gasmenge von $0,6\cdot10^{-2}$ Mol im Stab vorhanden. Unter der weiteren Annahme, daß das Spaltgas vollständig freigesetzt wird, ergibt sich daraus ein Druckaufbau bis zu etwa 55 atm. Wenn man noch das Füllgas und die im Brennstoff adsorbierten Gase hinzurechnet, kommt man näherungsweise am Ende der Bestrahlung auf einen

- Gesamtdruck von $p_G = 60$ atm.

Dieser Druck baut sich linear mit der Zeit auf. Er hat eine ebenfalls linear ansteigende Tangentialspannung in der Rohrwand zur Folge. Unter Benutzung des Norton'schon Kriechgesetzes und Integration über die veränderliche Kriechgeschwindigkeit ergibt sich die Kriechdehnung nach dem Ausdruck $\sqrt{6}$:

$$\boldsymbol{\xi} = \frac{K}{n+1} \left(\frac{\mathbf{p}_{\mathbf{G}} \cdot \mathbf{r}_{\mathbf{i}}}{s} \right) \cdot \mathbf{T}$$

Zur Auswertung dieser Formel werden als Zahlenwerte benützt:

- Kriechkonstante und Kriechexponent als Mittelwerte aus den Zeitdehngrenzen $\sigma_{1/10\ 000}$ und $\sigma_{1/100\ 000}$

- Enddruck
$$p_{G} = 60$$
 atm

- Hüllinnenradius
$$r_1 = 2,62 \text{ mm}$$

- Wandstärke s = 0,29 mm (Mindestmaß abzüglich 50 µm für Korrosion)
- Bestrahlungszeit T = 440 Tage $\approx 10^4$ Stunden.

Tabelle I bringt die benützten Materialwerte und alle Ergebnisse und zwar für

- Fall 1 mit Mittelwerten der Zeitdehngrenze,
- Fall 2 mit Minimalwerten der Zeitdehngrenze, die zu Maximalwerten in der Dehnung führen.

Man sieht, daß bis zu den hier aktuellen Temperaturen von 650°C die Umfangskriechdehnung der Hülle weit unter 0,1 % bleibt.

	Hen de Brynn fferen effenste fferen de trenne feren de trenne feren de trenne feren de trenne feren de trenne f	Fall 1: mit Mittelwerten der Zeitdehngrenze				Fall 2: mit	Kleinstw	instwerten der Zeitdehngrenze			
Material	Temperatur	σ _{l/l0 000} +)		К	ε	σ _{1/10 000} +)		K	ε		
	(°C)	σ1/100 000 (kp/mm ²)	n	$(mm^{2n}/h*kp^{n})$	(%)	σ1/100 000 (kp/mm ²)	n	(mm ²ⁿ /h•kp ⁿ)	(%)		
Werkstoff-	620	9,7 7,0	7,06	1,1.10 ⁻¹³	2,1.10 ⁻³						
Nr. 1.4961	650	8,0 5,5	6,14	2,9.10 ⁻¹²	1,3.10 ⁻²	6,4 4,4	6,16	1,1.10 ⁻¹¹	5,1.10 ⁻²		
	700	5,0 3,0	4,5	7,1.10-10	2,6.10 ⁻¹	4,0 2,4	4,5	1,9·10 ⁻⁹	6,9·10 ⁻¹		
	620	15,9 10,3	5,3	1,4.10-13	1,7.10 ⁻⁴						
Werkstoff- Nr. 1.4988	650	12,0 7,5	4,9	5,0.10 ⁻¹²	3,4·10 ⁻³	9,6 6,0	4,9	1,5•10 ⁻¹¹	1,8.10 ⁻²		
	700	7,0 4,0	4,12	3,3.10 ⁻¹⁰	6 , 8•10 ⁻²	5,6 3,2	4,1	8,7.10 ⁻¹⁰	2,6.10-1		
AISI 316	620	11,0 7,0	5,1	4,8.10 ⁻¹²	4,4.10 ⁻³						
	650	8,7 5,3	4,65	4,25•10 ^{-11}	2,0.10-2						
	700	4,9 3,16	5,26	2,35.10 ⁻¹⁰	2,7.10 ⁻¹						

Tabelle I Umfangskriechdehnung der Hülle

+) Werte für Edelstähle 1.4961 und 1.4988 aus Stahl-Eisen-Lieferbedingungen, Werkstoffblatt Nr. 670 (1965) Werte für Edelstahl AISI 316 aus ASTM Data Series Publication DS 5-51, Fig. 53 (1965)

4. Konstruktion der Brennstäbe und Spezifikationen

In diesem Kapitel sind alle Festlegungen für die Konstruktion sowie für die Spezifikationen einschließlich der der Bestrahlung vorausgehenden Prüfungen zusammengefaßt. Der Brennstabaufbau geht aus Abb. 1 hervor, die wichtigsten Spezifikationen sind in nachfolgender Tabelle aufgeführt.

Tabelle II Spezifikationen für die Brennstäbe Mol-7A

Äußere und innere Geometrie	Stablänge Brennstoffsäule Gesamte Tablettensäule Außendurchmesser Hüllwandstärke	$1080 \pm 1 \text{ mm}$ $500 \pm 3 \text{ mm}$ $700 \pm 3 \text{ mm}$ $6,0 \pm 0,03 \text{ mm}$ $0,38 \pm 0,03 \text{ mm}$
Brennstoff	PuO ₂ -Anteil U-235 im Uran O/Me-Verhältnis Tablettendichte Tablettendurchmesser Tablettenhöhe Einsenkung	$20 \pm 1 \text{ Gew\%}$ $80 \pm 0,2 \text{ Gew\%}$ $1,98 \pm 0,015$ $87,5 \pm 1,5 \% \text{ th.D.}$ $5,1 \pm 0,050 \text{ mm}$ $6,0 \pm 0,5 \text{ mm}$ $3 \pm 0,3 \%$
Brutstoff	Tablettendichte Tablettendurchmesser Tablettenhöhe	95 <u>+</u> 1,5 % th.D. 5,1 <u>+</u> 0,050 mm 6,0 <u>+</u> 0,5 mm
	Gasfüllung	l atm Helium
Oberflächen- kontamination	Wischtest oberflächlich fixiert	unter der Nachweisgrenze <22 α-Zerfälle/min • cm ²

Die folgenden Abschnitte berichten die Einzelheiten, basierend auf internen Mitteilungen und Notizen $\boxed{7, 8}$.

4.1 Der Aufbau der Brennstäbe

Der Brennstab hat bei einer Gesamtlänge von 1080 mm folgende Längenverteilung:

Oberer Endstopfen	17	mm
Spaltgasraum mit Feder und Zwischenstopfen	271	mm
Brutzone	100	mm
Brennstoffzone	500	mm
Brutzone	100	mm
Spaltgasraum mit Stützrohr	70	mm
Unterer Endstopfen	22	mm
Gesamtlänge	1080	mm

Die Längenverteilung wurde so gewählt mit Rücksicht auf die axiale Flußverteilung im BR 2. Die Brennstoffzone befindet sich damit im Bereich des Neutronenflußmaximums.

Die Konstruktion des Brennstabes sowie seiner Einzelteile geht aus Abb. 1 hervor. Der Außendurchmesser der Stäbe ist 6,0 mm, die Hüllwandstärke beträgt 0,38 mm. An den unteren Endstopfen schließt ein kleiner Spaltgasraum an, der durch ein Stützrohr gesichert wird. Hierauf folgen untere Brutzone, Brennstoff und obere Brutzone, Der große obere Spaltgasraum enthält eine Druckfeder zur Fixierung der Brennstoff-/Brutstoffsäule bei Handhabung und Transport An den beiden Grenzen zwischen Spaltgasraum und Brutstoff befindet sich jeweils ein Zwischenstopfen mit einem Sinterstahlfilter, durch den das Spaltgas in die Gasräume gelangen kann. Die Endstopfen haben in der Nähe der Schweißnaht aus schweißtechnischen Gründen eine Nut. Der obere Endstopfen hat zur Führung beim Schweißvorgang eine Zentrierbohrung an der Stirnfläche. Der untere Endstopfen ist speziell zur Fixierung des Stabes im Bestrahlungseinsatz ausgebildet. Er trägt auch die Stabbezeichnung. Beide Endstopfen werden unter Schutzgas mit dem Hüllrohr verschweißt.



"Sofir-Naendruck" Revize Gelga, Daren u Berlin T 2526 65

لد ل

4.2 Brennstoffspezifikationen

Der Brennstoff ist aus UO_2 und PuO_2 durch mechanisches Mischen, Pressen zu Tabletten und Sintern herzustellen.

- 4.2.1 Chemische Zusammensetzung
 - Der Mischoxidbrennstoff besteht aus 20 \pm 1 Gew.-% ${\rm PuO}_2$ und 80 Gew.-% ${\rm UO}_2$.
 - Stöchiometrie des Mischoxids 0/M = 1,98 ± 0,015.
 - Der Gesamtgehalt an Verunreinigungen soll 2500 ppm (entsprechend 4 ppm Boräquivalent) nicht übersteigen mit folgenden Einschränkungen:

Verunreinigung	Grenzwert (ppm)
С	150
Ca	25
Cl	25
F	25
Mg	25
N	100
H ₂ 0	100

- Der gesamte Gasgehalt soll nicht höher als 0,1 Norm-cm³ pro Gramm Brennstoff sein bei einer Freisetzungstemperatur von 1600⁰C.

4.2.2 Isotopenzusammensetzung

- Die Pu-Zusammensetzung ist spezifiziert zu

Pu-239:	90,90 <u>+</u>	0,20	Gew%
Pu-240:	8,21 <u>+</u>	0,20	Gew%
Pu-241:	0,85 <u>+</u>	0,05	Gew%
Pu-242:	0,04 <u>+</u>	0,01	Gew%

Die U-Zusammensetzung ist:

U-235:	80	<u>+</u>	0,2	Gew%
U-238:	20	+	0,2	Gew%

4.2.3 Homogenität im Mischbrennstoff

Die größten PuO_2 -Partikel dürfen einen Durchmesser nicht über 100 μ m haben.

4.2.4 Brennstoff-Form

Es kommen zylindrische Tabletten mit einseitiger Stirnflächeneinsenkung (dishing) zum Einsatz.

4.2.5 Brennstoffdichte

Die Materialdichte der Tabletten ist festgelegt zu 87,5 ± 1,5 % th.D.

4.2.6 Tablettengeometrie

-	Tablettendurchmesser	5,10	+	0,05	mm	
2588	Tablettenhöhe	6,00	+	0,5	mm	
	Stirnflächeneinsenkung	3,00	+	0,39	6 des	Tablettenvolumens.

4.2.7 Oberfläche der Tabletten

Auf den Oberflächen der Tabletten sind höchstens folgende Unregelmäßigkeiten zulässig:

- Kantenabplatzungen bis 0,3 mm Ausdehnung
- Risse von maximal 2 mm Länge und 0,1 mm Weite
- Flächenabplatzungen bis 1 mm Durchmesser.

4.2.8 Prüfungen am Brennstoff

Folgende Ausgangs-, Zwischen- und Endprüfungen müssen durch Protokolle belegt werden:

- BET-Oberfläche des Ausgangspulvers
- Stöchiometrie am Ausgangspulver und an fertigen Tabletten
- Größe der Primärpartikel und der Sekundäragglomerate
- Mischungsverhältnis
- Chemische Analyse auf Verunreinigungen
- Isotopenanalyse
- Durchmesser, Höhe und Dichte an jeder 5. Tablette in einer Säule
- Fotografische Aufnahmen von Tablettenstirnflächen ohne und mit Einsenkung
- Schliffbilder in 200-facher Vergrößerung von Tablettenrand und -zentrum.

4.3 Spezifikationen für den Brutstoff

Die Brutstofftabletten bestehen aus UO_2 mit Natururan. Ihre Geometrie entspricht den Spezifikationen bei den Mischoxid-Tabletten. Abweichend vom Brennstoff ist beim Brutstoff die Materialdichte spezifiziert zu 95,0 \pm 1,5 % th.D. Alle sonstigen Forderungen entsprechen den Brennstofftabletten.

4.4 Spezifikationen für die Hülle

4.4.1 Werkstoffe

Für die Hüllrohre und Endstopfen ist austenitischer Edelstahl nach 3 Werkstofftypen vorgesehen, nämlich

- X8CrNiMoVNb 1613, Werkstoff-Nr. 1.4988
- X8CrNiNb 1613, Werkstoff-Nr. 1.4961
- AISI 316

Die chemische Zusammensetzung ist in Tabelle III angegeben.

Tabelle III Ch	hemische	Zusammensetzung	der	Hüllwerkstoffe	(Gew	%)
----------------	----------	-----------------	-----	----------------	------	----

1	Richtanalysen		Analyse n. Zeugnis
Werkstoff-Nr.	1.4988	1.4961	AISI 316
С	£ 0,1	<0,1	0,05
Cr	15,5 - 17,5	15,0 - 17,0	16,88
Ni	12,5 - 14,5	12,0 - 14,0	13,30
Мо	1,1 - 1,5		2,34
v	0,6 - 0,85	1000	Spuren
	>10 x % C	>10 x % C	
Nb + Ta	<10 x % C+0,4	<10 x % C+0,4	- O
	max. 1,2	max. 1,2	
Si	0,3 - 0,6	0,3 - 0,6	0,48
Mn	1,0 - 1,5	1,0 - 1,5	1,81
N	N O,1		0,014
P	≦ 0,02	≦ 0,02	0,012
S	≤ 0,02	≦ 0,02	0,04
Fe	Rest	Rest	Rest

4.4.2 Abmessungen der Hüllrohre

6 12	Außendurchmesser:	6,00 <u>+</u> 0,03 mm
6 2	Innendurchmesser:	5,24 <u>+</u> 0,03 mm
-	Wanddicke:	0,38 <u>+</u> 0,03 mm
-	Geradheit:	1:1500, bezogen auf jeweils 30 cm Länge
quit.	Ovalität:	innerhalb der Außendurchmessertoleranz
0005	Wanddicken-Exzentrizität:	≦ 0,02 mm, bezogen auf die Wanddicke

4.4.3 Materialbedingungen

85	Vorbehandlung	e •
	bei 1.4988	lösungsgeglüht 1100 ⁰ C, kaltverformt 5 - 7 %,
		angelassen l h/800 [°] C,
	bei 1.4961	lösungsgeglüht 1100 ⁰ C, kaltverformt 5 - 7 %,
	bei AISI 316	lösungsgeglüht, kaltverformt 10 - 15 %.
120	Korngröße:	kleiner 2,5 Körner/cm ² bei 100-facher Vergrößerung
		(ASTM Nr. 5)
	Mechanische E	igenschaften:

Nachweise für Zugfestigkeit, Streckgrenze und Bruchdehnung, maximale und minimale Werte bei Raumtemperatur und 650°C. Nachweise für Abdrückversuch nach DIN 50104 mit 80 at Druck, Querfaltversuch nach DIN 50136, Aufweitversuch nach DIN 50135.

- Innere Fehler: kleiner 10 % der Wandstärke
- Einschlüsse: kleiner 0,05 mm oder 10^{-3} mm²

4.4.4 Hüllrohroberfläche

- Rauhigkeit: maximal 2 μm
- Oberflächenriefen und maximal 20 μ m oder kleiner 5 % der Wandstärke -fehler:
- Oberflächenrisse: nicht zulässig
- Oberflächenbeschaffenheit: Innere und äußere Oberfläche muß frei von Anlauffarben, Öl, Schmutz, Metallspänen und sonstigen Fremdkörpern sein.

4.4.5 Hüllrohrprüfungen und Prüfzeugnisse

Die Rohre müssen nach einem einheitlichen Schema durchgehend numeriert werden, wobei die Numerierung an der Stelle des Prüfbeginns der Ultraschallprüfung mit Aufklebestreifen licht- und waschecht anzubringen ist. Für jedes Rohr wird ein Prüfzeugnis erstellt. Die Prüfzeugnisse des Herstellerwerkes müssen den Werksabnahmezeugnissen nach DIN 50049/3B entsprechen und von unabhängigen Sachverständigen durchgeführt werden.

- Werkstoff: Chemische Analyse entsprechend Werksabnahmezeugnis
- Abmessungen:

Außendurchmesser mit geeigneten optischen oder mechanischen Verfahren. Innendurchmesser mit einer pneumatischen Innendurchmesserprüfanlage über die ganze Rohrlänge. Wanddicke mit Ultraschall-Vidigage-Verfahren. Geradheit mit einem geeigneten mechanischen Verfahren, z.B. Drehen der Rohre in Rollenlagern und Messung der Abweichungen mit einer 1/100 mm-Meßuhr. Ovalität mit einem pneumatischen Verfahren in Verbindung mit der Innendurchmesserprüfung. Wanddicken-Exzentrizität mit Ultraschall-Vidigage-Verfahren, drei Messungen pro Rohr, in jeweils 30 cm Abstand.

Materialbedingungen:

Vorbehandlung, bestätigt im Werksabnahmezeugnis. Korngröße, metallografisch, Vergrößerung 100-fach (nach ASTM) an mindestens zwei Rohren pro Charge und Lot.

Mechanische Eigenschaften, Zugversuch, Verformungsgeschwindigkeit 0,1/min, Aufnahme eines Spannungs-Dehnungsdiagramms an mindestens 5 % der Rohre. Innere Fehler mit Ultra-Schall-Vidigage-Verfahren. Einschlüsse mit Ultra-Schall-Vidigage-Verfahren.

- Oberflächenbeschaffenheit:

Rauhigkeit, Prüfung mit Perth-O-Meter an einzelnen Rohren.

Oberflächenriefen und -fehler, Prüfung mit Ultraschall-Vidigage-Verfahren in Längs- und Querrichtung mit vorgegebenen Testfehlern. Oberflächenrisse, Prüfung mit Farbeindringverfahren Diffutherm. Oberflächengüte mit geeignetem optischen Verfahren, z.B. ausgeleuchteter Großflächenlupe bzw. Lichtschnittmikroskop.

4.5 Spezifikationen für den Brennstab

4.5.1 Brennstoff- und Brutstoffsäule im Stab

- Länge der Brennstoffsäule: 500 ± 3 mm
- Gesamtlänge der Tablettensäule: 700 ± 3 mm

4.5.2 Weitere Stabkomponenten

- Hüllrohr: spezifiziert in 4.4, Maße siehe Zeichnung in Abb. 1, Teil 1.
- Endstopfen: Material identisch zum Hüllrohr, Maße siehe Zeichnung in Abb. 1, Teile 2 und 3.
- Stützrohr im unteren Spaltgasraum: Material identisch zum Hüllrohr, Maße siehe Zeichnung in Abb. 1, Teil 4.
- Zwischenstopfen: Material identisch zum Hüllrohr, Maße siehe Zeichnung in Abb. 1, Teile 6 und 7.
- Sinterstahlfilter: Material Cr-Ni-Stahl, Maße siehe Zeichnung in Abb. 1, Teil 8.
- Druckfeder: Material der Werkstoff-Nr. 1.4310, Maße siehe Zeichnung in Abb. 1, Teil 9, Federkonstante 0,3 kp/cm.

4.5.3 Stabgeometrie

Länge des fertigen Stabes: 1080 ± 1 mm

4.5.4 Gasfüllung der Stäbe

Das Füllen des Brennstabes mit Brennstoff und die Montage der oberen Einbauteile geschehen unter Normaldruck mit Helium. In dieser Atmosphäre wird der obere Endstopfen aufgedrückt. Dann wird der Stab in eine Schweißkammer überführt.

4.5.5 Schweißnähte

Die Schweißungen erfolgen unter Schutzgasatmosphäre. Die Schweißverbindung zwischen dem unteren Endstopfen und der Hülle erfolgt nach Einbau des Stützrohres. Der Durchmesser der unteren Schweißnaht muß $\leq 6,05$ mm sein, bei der oberen Schweißnaht soll er 6,15 mm nicht überschreiten. Vor dem Schweißen der Brennstäbe muß die Güte der Schweißung durch Probeschweißungen nachgewiesen werden, von denen anschließend Röntgenaufnahmen und Querschliffe anzufertigen sind. Anhand der Querschliffe wird der Härteverlauf quer zur Naht (also in Achsrichtung des Stabes), die Schweißnahttiefe sowie auf Poren, Risse und Anlauffarben geprüft.

4.5.6 Dichtheit der fertigen Stäbe

Zum Nachweis der Dichtheit der Schweißnähte ist jeder Brennstab im Anschluß an die letzte Schweißung einem Helium-Dichtheitstest unter äußerem Vakuum zu unterziehen. Die Empfindlichkeit des Meßgerätes muß 10⁻⁹ Torrliter/sec pro Skalenteil sein. Die Prüfung gilt als bestanden, wenn kein Zeigerausschlag des Meßinstrumentes erfolgt.

4.5.7 Kontamination

Die Oberflächenkontamination darf nicht mehr betragen als

22 α -Zerfälle pro cm² und Minute und 220 β -Zerfälle pro cm² und Minute.

Diese Kontamination ist als obere Grenze für haftende Verunreinigungen zu betrachten. Der Wischtest dagegen soll keine Kontamination zeigen.

4.5.8 Kennzeichnung der Stäbe

Die Bezeichnung der Stäbe erfolgt an einer speziell dafür vorgesehenen Fläche am unteren Endstopfen mit Schlagzahlen und Buchstaben, fortlaufend von 7A-1 bis 7A-9.

4.5.9 Prüfungen an den fertigen Stäben

Folgende Prüfungen müssen durch Protokolle und Zertifikate belegt werden:

- Gesamtlänge
- Durchmesser am Hüllrohr, an den Endstopfen, an den Schweißnähten
- Durchbiegung und Rundheit, profilometrisch
- Gewicht
- Dichtheit
- Röntgen-Aufnahmen von den Schweißnähten und vom gesamten Stab
- Probeschweißungen mit mikrografischer Untersuchung
- Kontamination der Oberfläche

5. Herstellung der Brennstäbe

Die 7 Stäbe des Bündels haben gleichen Aufbau und gleiche äußere Abmessungen. Es gibt nur die Variation hinsichtlich des Hüllwerkstoffes. Insgesamt sollten 10 Stäbe hergestellt werden, 7 Stück für den Einsatz im Bündel und 3 als Reserve. Tatsächlich hergestellt wurden nur 9 Stäbe mit der Bezeichnung 7A-1 bis 7A-9. Davon waren 7 Stück für den Einsatz im Bündel bestimmt, 2 Stück dienten als Reserve. Tabelle IV zeigt die Zuordnung des Hüllmaterials sowie die Auswahl der zur Bestrahlung kommenden Stäbe.

Brennstab-Nr.	Hüllwerkstoff	Verwendung
7A-1	1.4988	Bündel
7A-2	1.4988	Reserve
7a=3	1.4988	Bündel
7A-4	1.4961	Bündel
7A-5	1.4961	Bündel
7A-6	AISI 316	Bündel
7A-7	AISI 316	Bündel
7A-8	1.4961	Reserve
7A-9	1.4988	Bündel

Tabelle IV Bezeichnung und Verwendung der Brennstäbe

Die Herstellung der Stäbe erfolgte im Plutonium-Laboratorium des Kernforschungszentrums Karlsruhe nach den in Kap. 4 gegebenen Spezifikationen. Die Hüllrohre wurden von der Fa. Siemens, Erlangen, beigestellt und geprüft. Die folgenden Abschnitte dieses Kapitels geben als Auszug aus dem Herstellungsbericht $\sqrt{9}$ die näheren Einzelheiten der Brennstoffherstellung und der Stabfertigung wieder einschließlich der Zwischen- und Endprüfungen.

Es sei hier bereits darauf hingewiesen, daß einige Spezifikationen nicht eingehalten werden konnten.So mußte z.B. auf die Stirnflächeneinsenkung der Tabletten verzichtet werden, da das erforderliche Preßwerkzeug nicht zeitgerecht beschafft werden konnte. Weitere Einzelheiten hierzu sind in Abschnitt 5.7 dargelegt.

5.1 Ausgangspulver für Brennstoff und Brutstoff

Als oxidische Ausgangspulver standen zur Verfügung:

- a) UO₂ mit Natururan, ADU-gefällt, von Fa. NUKEM
- b) UO₂ mit 93 % angereichertem Uran, konvertiert von Fa. NUKEM aus UF₆, das von der USAEC stammte
- c) PuO₂ mit nominell 7,7 % Pu-240, oxalatgefällt, aus einer Lieferung der USAEC

Die genaue Isotopenzusammensetzung des angereicherten UO_2 und des PuO_2 ist in Tabelle V angegeben. Tabelle VI enthält die chemischen Verunreinigungen der Ausgangspulver. Um die spezifische Oberfläche dieser Pulversorten stark zu verringern, wurden sie kalziniert. PuO_2 wurde zu diesem Zweck 2 Stunden lang unter CO_2 auf $1100^{\circ}C$ erhitzt, die Uranoxide 2 Stunden lang unter Argon/5 % H₂ auf $1250^{\circ}C$. Die dadurch eingestellte BET-Oberfläche und das Sauerstoff/Metall-Verhältnis dieser sinterfähigen Pulver ist in Tabelle VII aufgeführt. Es waren insgesamt ca. 1000 Tabletten herzustellen. Die Mischung der Ausgangspulver erfolgte hierbei mechanisch in einem Lödige-Mischer in einer Charge, Mischzeit 2 Stunden. Hierfür ist das Mischprotokoll in Tabelle VIII aufgeführt und auf die U-235-Anreicherung analysiert, Ergebnisse siehe Tabelle IX.

<u>Tabelle V</u> Isotopenzusammensetzung der Ausgangspulver für den Brennstoff

Uran mit nominell 93 % Anreicherung

U-235-Gehalt laut Angabe des Lieferanten (USAEC/NUKEM): 93,183 Gew.-%

Pu mit nominell 7.7 % Pu-240

Die Pu-Zusammensetzung wurde in Hanford/USA und in Karlsruhe bestimmt (Angaben in Gew.-%)

	Hanford/USA	Karlsruhe Messung 1966 Messung 1968		
Pu-239 Pu-240 Pu-241 Pu-242	90,845 8,301 0,813 0,040	90,850 8,240 0,867 0,044	90,96 8,18 0,82 0,04	
Summe:	99,999	100,001	100,00	Pilono,

Element	UO ₂ mit Natururan	UO ₂ -anger. mit 93 % U-235	PuO ₂ mit 7,7 % Pu-240
Ag	< 10	0,7	22) Fran Fran Fran Fran Fran Fran Fran Fran
В	< 0,5	0,18	« 10
с	200	40	wa
Ca	< 10	< 20	170
Cd	< 1	< 0,07	aaa
Cl	ige.	< 3	-
Co	use .	86	20
Cr	< 5	210	35
Cu	< 1	3,0	5
F	-	8,0	400
Fe	10	145	85
Mg	5	0,5	15
Mn		-	25
Мо	< 10	< 1,0	< 5
N	896	< 3,0	
Ni	< 5	330	30
Pb	< 5	< 1,0	30
V	< 5	800	nicht nachweisbar

Tabelle VIChemische Verunreinigungen der Ausgangspulver
(Angaben in ppm)

Tabelle VII Kenndaten der sinterfähigen Pulver

	Für	Für Brutstoff		
Material	UO ₂ mit Natururan	UO ₂ mit 93 % U-235	PuO ₂ mit 7,7 % Pu-240	UO ₂ mit Natururan
Vorbehandlung	kalziniert	kalziniert	kalziniert	nicht kalziniert
BET-Oberfläche (m ² /g)	1,61	1,93	2,41	5,61
O/Me- Verhältnis	1,99	2,00	1,98	2,04
Maximale Teil- chengröße (mm)	0,063	0,063	0,032	0,063

Tabelle VIII Mischprotokoll für den Brennstoff

Hierbei wurde der Metallanteil mit 88,1 Gew.-% für alle Mischkomponenten als gleich angenommen

M	Mischkomponenten			Me-Anteil		
K _a K _b K _{Pu}	K _a UO ₂ , Natururan mit 0,721 % U-235 K _b UO ₂ mit 93,183 % U-235 K _{Pu} PuO ₂		88,1 Gew% U 88,1 Gew% U 88,1 Gew% Pu			
		ىلىدىنى بىرىكى بىرىك مەرىكى بىرىكى				
М	ischansatz für UO ₂	Oxid	U- 235	U-23 8		
$ \begin{bmatrix} K_{a} \\ K_{b} \\ K_{U} = K_{a} + K_{b} \end{bmatrix} $		119,68 g 719,57 g 839,25 g	0,760 g 590,725 g 591,485 g	104,678 g 43,216 g 147,894 g		
		๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛๛	෯෨෫෬෦෯෫෨෯෪෭෨෯෫෭෦෯෩෯෩෯෩෯෩෯෩෯෩෯෩෯෩෯෩෯෩	՟֎ֈֈ֎ՠ֎ֈֈֈ֎՟֎ՠ֎ֈֈ֎ֈ֎֎ՠֈ֎ֈֈ֎֎ՠֈ֎֎ՠֈ֎ֈ֎ՠֈ֎֎ՠֈ֎		
M	ischansatz für UO ₂ -PuO	2 Oxid	U	Pu		
K_{U} K_{Pu} $K_{M} = K_{U} + K_{Pu}$		838,8 g 209,7 g 1048,5 g	738,983 g 738,983 g	184,746 g 184,746 g		
Rechnerische Ergebnisse						
$ \begin{array}{c} K_{U} & U-235-Anreicherung \\ K_{M} & \frac{Pu}{U + Pu} \end{array} $		79,998 Gew% 20,000 Gew%				

Tabelle IX Analyse der Brennstoff-Pulvermischung

Isotopenanalyse des Urans an 2 Proben (Gew%) vor dem Mischen mit Pu 2						
	Probe I Probe II					
U-234	0,67 0,67					
U-235	80,08 80,06			5		
U-236	0,19 0,19		9			
U-238	19,05		19,07			
Chemische Analyse auf den Pu-Gehalt an 3 Proben (Gew%) nach dem Mischen						
	Probe I		Probe II	Probe III		
$\frac{Pu}{U + Pu}$	20,24		20,37	20,49		

-23-

5.2 Herstellung der Brennstoff-Tabletten

Die Pulvermischung konnte trocken, d.h. ohne Zugabe von Binde- und Gleitmitteln nicht verpreßt werden. Daher wurde sie unter Zusatz von 1,2 Gew.-% Polyvinylalkohol in wässriger Lösung und 1,0 Gew.-% Stearinsäure in alkoholischer Lösung im Lödige-Mischer granuliert. Nach dem Trocknen bei ca. 50° C wurde das Granulat durch ein Sieb mit 0,25 mm Maschenweite gestrichen, um es für den Preßvorgang vorzubereiten. Zum Pressen verwendete man eine Matrize mit 6,20 mm Durchmesser. Nach Volumendosierung des Pulvers erfolgte der Preßvorgang bei einem Preßdruck von 0,4 - 0,75 t/cm². Die Grünlinge wurden anschließend stichprobenweise hinsichtlich ihrer Dimensionen und ihres Gewichtes überprüft. Die Sinterung erfolgte in einem Stickstoff-Gasgemisch mit 8 % H₀ bei 1570[°]C, die Sinterzeit war 2 Stunden.

Die Meßergebnisse an den fertigen Tabletten auf Dichte und Geometrie sind bei der Zusammenstellung der Tablettensäulen (siehe 5.5)aufgeführt. Zur Charakterisierung der Brennstoffstruktur wurde von der Stirnseite einer repräsentativen Brennstofftablette ein keramografischer Schliff angefertigt (Schleiftiefe ca. 1 mm). Abb. 2 zeigt eine Autoradiografie dieses Schliffes, woraus hervorgeht, daß die PuO_2 -Partikel (weiß) mit wenigen Ausnahmen kleiner als 100 μ sind. Die Abb. 3 und 4 bringen Schliffaufnahmen für eine Partie im Zentrum der Schlifffläche bzw. am Tablettenrand.

An mehreren Brennstofftabletten wurden schließlich chemische und Isotopenanalysen durchgeführt, Ergebnisse siehe Tabelle X. Nachdem bei der Untersuchung der ersten Tablette (A) im U-235-Gehalt eine wesentliche Abweichung festgestellt werden mußte, wurden noch an 2 weiteren Tabletten (B und C) Uran-Isotopenanalysen durchgeführt. Diese haben den Befund an der Tablette A bestätigt. Es ist ungeklärt, woher die Diskrepanz kommt. Eventuelle Meßfehler würden allenfalls eine Abweichung im U-235-Gehalt von + 0,2 Gew.-% erklären.

5.3 Herstellung der Brutstoff-Tabletten

Der Herstellungsgang ist analog dem Verfahren bei den Brennstofftabletten. Allerdings wurde das UO₂-Ausgangspulver nicht kalziniert, da die Brutstofftabletten eine höhere Sinterdichte erreichen müssen, siehe Kenndaten in Tabelle VII. Zunächst wurde das Natururanoxidpulver

24



Abb.2 Autoradiographie einer Brennstofftablette





Abb.3 Schliffaufnahme vom Zentrum der Tablette



Abb.4 Schliffaufnahme vom Tablettenrand





Tabelle X Analysen an Brennstofftabletten

l. U-Isotope im Uran (Gew%)						
A A			1	В	С	
	(1. Messung)	(2. M	essung)			
U-23 4	0,674	0,	668	0,659	0,662	
U-235	79,050	79,	150	78,976	78,960	
U-236	0,196	0,	197	0,194	0,192	
U-238	20,080	20,	000	20,171	20,186	
	ىرىنى بىرىنى بىرىنى بىرىنى بىرىكى بىرىكى مەرىكى بىرىكى			ىنى بىر بىر بىر بىر بىر بىر بىر بىر بىر بى	ݥݰݥݵݥݤݲݒݵݾݒݥݥݵݥݒݵݥݒݵݥݒݵݥݒݵݥݕݵݥݕݵݥݕݵݥݕݵݥ ݥݹݘݹݾݾݠݖݔݛݗݷݷݵݾݕݵݥݒݶݥݒݵݥݕݵݥݕݵݥݕݵݥݕݵݞݷݵݞݥݕݞݥ ݠݹݘݹݾݜݠݖݔݛݗݷݵݿݕݵݿݕݕݶݥݕݶݥݕݵݥݕݻݾݻݿݷݵݿݥݕ	
2. Pu-Ge	ehalt					
	Div					
	$\frac{Fu}{H} = 2$	0,03 Gew.	-%			
	0 + 14					
3. Pu-Is	sotope im Plutoni	um				
		В		C		
Pu-23	38	0,0	25	0,03	.8	
Pu-23	39	90,9	63	90,95	90,951	
Pu-21	+0	8,2	49	8,25	53	
Pu-2 ¹	+1	0,72	22	0,73	58	
Pu-2 ¹	12	0,041		0,040		
4. Chemi	sche Verunreinig	ungen (ppm))			
С	65	Ag	< 10	Fe	350	
Ca	100	В	< 0,5	Mn	30	
Cl		Cd	< 1	Мо	< 10	
F	-	Co	9224	Ni	110	
Mg	50	Cr	110	Pb	< 5	
		Cu	< 1	v	< 5	

auf einem Sieb mit 0,063 mm Maschenweite abgesiebt. Das Granulieren, Trocknen, Pressen und Sintern erfolgte im Prinzip wie bei den Brennstofftabletten, dagegen war die Sintertemperatur 1600[°]C. Die Tablettendaten sind wieder bei den Tablettensäulen in 5.5 aufgeführt.

5.4 Hüll- und Strukturmaterial

Zur Stabherstellung wurden insgesamt 14 Hüllrohre in den spezifizierten Abmessungen bereitgestellt, nämlich

- 5 Stück der Werkstoff-Nr. 1.4988 (Lieferer Mannesmann)
- 4 Stück der Werkstoff-Nr. 1.4961 (Lieferer Mannesmann)
- 5 Stück aus Werkstoff AISI 316 (Lieferer Accles u. Pollock)

Alle Rohre trugen eine Nummern- und Buchstabenbezeichnung. Mit Ausnahme von 2 Rohren aus AISI 316 entsprachen alle Rohre den Spezifikationen. Dies wurde durch Ultraschall-Rißprüfung sowie durch Innenund Außendurchmesserprüfung nachgewiesen. Die ausgewählten Hüllrohre sowie ihre Zuordnung zu den Stäben ist in Tabelle XI angeführt. Dort sind außerdem die Ergebnisse der von der Fa. Siemens, Erlangen, durchgeführten Rohrprüfung eingetragen.

Für die End- und Zwischenstopfen sowie für das Stützrohr wurde jeweils das gleiche Material gewählt wie für das Hüllrohr. Die Stopfen wurden aus Rundmaterial gedreht.

Die Druckfeder sowie die beiden Sinterstahlfilter waren ebenfalls spezifikationsgerecht.

5.5 Tablettensäulen

Die Tablettensäule jedes Brennstabes setzt sich aus 90 (bei Stab 7A-2 aus 89) Brennstofftabletten zusammen. Die Zusammenstellung der Tablettensäulen ist durch die Datenlisten in den Tabellen im Anhang I charakterisiert. Entsprechend den Forderungen der Spezifikation wurden Dichte, Höhe und Durchmesser an jeder fünften Tablette ermittelt. Dazu sind in den Listen der einzelnen Säulen die Einzelwerte angegeben. Die Lage der geprüften Tabletten ist hierbei von oben gezählt.
Tabelle XI Hüllrohre	und	Hüllrohrprüfung
----------------------	-----	-----------------

Stab-Nr.	Hüllmaterial	Hüllrohr-Nr.	Wanddicke spez.: ≧ O	(mm) .38 + 0.03	Innendurch	umesser (mm) 24 + 0.03	Außendurchmesser (mm)		
			max.	max. min.		min.	max.	min.	
7A-1	1.4988	221 B/a	0,396	0,384	5,250	5,243	6,002	5,993	
7A-2	1.4988	214 B/a	0,388	0,371	5,248	5,241	6,002	5,992	
7A-3	1.4988	211 B/b	0,392	0,374	5,245	5,239	6,003	5,994	
7A-4	1.4961	143 B/a	0,357	0,342	5,273	5,256	5,982	5,965	
7A-5	1,4961	701 B/a	0,389	0,364	5,249	5,240	6,001	5,992	
7A-6	AISI 316	55 b	0,409	0,372	5,259	5,251	6,017	5,996	
7A-7	AISI 316	56 b	0,405	0,375	5,256	5,250	6,013	6,002	
7A-8	1.4961	685 B/a	0,386	0,378	5,246	5,236	6,006	5,996	
7A-9	1.4988	294 В/Ъ	0,396	0,378	5,244	5,244 5,235		5,990	

Gewicht, Säulenhöhe, Durchmesser und Dichte sind sowohl für den Brennstoff als auch für den Brutstoff durch Mittelung berechnet worden. Dabei liegen beim Brennstoff die 18 (bzw. 17 in Stab 7A-2) ausgemessenen Tabletten zugrunde, beim Brutstoff die jeweils 3 ausgemessenen Tabletten (Einzelangaben in den Listen im Anhang I). Die sich so ergebenden Gesamtwerte sind in den Tabellen XII und XIII zusammengefaßt. Tabelle XII enthält außerdem den Pu-Gehalt und den U-235-Gehalt der Brennstoffsäulen. Als Faktoren wurden für die Umrechnung von PuO₂ auf Pu der Wert 0,882, für die Umrechnung von UO₂ auf U der Wert 0,874 benützt.

Zur Kontrolle der berechneten Säulenhöhen wurde bei den Brutstoffsäulen die Einzelhöhe aller Tabletten gemessen und addiert. Es zeigte sich gute Übereinstimmung mit den Rechenwerten. Bei den Brennstoffsäulen konnte das berechnete Säulengewicht durch einige Kontrollwägungen gut bestätigt werden.

5.6 Fertigung der Stäbe und Prüfungen

5.6.1 Einfüllen und Verschweißen der Stäbe

Die neun Brennstäbe tragen die Bezeichnung 7A-1 bis 7A-9, mit Schlagziffern eingestanzt am unteren Endstopfen. Die Hüllrohre wurden so orientiert, daß ihr Ende mit der Rohrnummer an das obere Stabende kam. Die Zuordnung der Stabnummern zu den Rohrnummern bzw. zum Hüllrohrmaterial ist aus Tabelle XI zu ersehen.

Zur Stabfertigung wurde zuerst der untere Endstopfen unter Helium-Schutzgas in das Hüllrohr eingeschweißt. Dann wurden das untere Stützrohr, der Zwischenstopfen und das Sinterstahlfilter eingesetzt. Beim Füllen der Hüllrohre mit Brenn- und Brutstoff wurden die einzelnen Tabletten der betreffenden Tablettensäule durch eine am Rohrende angebrachte Schutzkappe eingeschoben, nachdem sie vorher über einer Staubsaugerdüse abgepinselt worden waren. Nach dem Einfüllen wurde die Schutzkappe entfernt, der obere Zwischenstopfen mit Sinterstahlfilter sowie die Druckfeder eingeführt und das Rohr mit einer Vakuumkammer verbunden. Nun folgte zweimaliges Evakuieren auf ca. 1 Torr und Fluten mit Helium. Abschließend wurde der obere Endstopfen aufgesetzt und wiederum unter Helium verschweißt.

Brennstab- Nr.	Gewicht (g)	Höhe (mm)	Durchmesser (mm)	Dichte (%th.D.)	Pu-Gehalt (g)	U-235-Gehalt (g)
7A-1	95,68	500,31	5,013	88,17	16,88	53,52
7A-2	94,04	502,00	5,063	84,72	16,59	52,57
7A-3	95,88	498,96	5,008	88,80	16,91	53,63
7A-4	95,69	499,32	5,000	88,80	16,88	53,52
7A-5	95,63	498,96	5,014	88,36	16,87	53,49
7A-6	95,45	499,77	5,011	88,08	16,84	53,39
7A-7	95,72	500,31	5,026	87,79	16,89	53,54
7a-8	97,66	504,27	5,032	88,65	17,23	54,62
7 A -9	96,28	500,22	5,013	88,71	16,98	53,86

Tabelle XII Gesamtwerte für die Brennstoffsäulen

Tabelle XIII Gesamtwerte für die Brutst	toffsäulen
---	------------

		Untere I	Brutzone		Obere Brutzone				
Brenn- stab-Nr.	Gewicht	Höhe	Durch- messer	Dichte	Gewicht	Höhe	Durch- messer	Dichte	
	(g)	(mm)	(mm)	(%th.D.)	(g)	(mm)	(mm)	(%th.D.)	
and and an	ىلىنى بىلىغى يىلىغى يىلىغى يىلىنى يەلىكى يىلىغى يەلىكى					ang ang ing ing ing ing ing ing ing ing ing i	,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,		
7A-1	21,19	99,87	5,072	95,80	21,16	99,92	5,070	95,76	
7A-2	21,37	100,59	5,083	95,67	21,07	99,81	5,068	95,54	
7A-3	21,37	100,89	5,072	95,71	21,30	100,50	5,075	95,63	
7A-4	21,43	100,57	5,056	96,65	21,20	100,03	5,052	96,51	
7A-5	21,17	100,08	5,048	96,21	21,22	100,21	5,053	96,35	
7A-6	20,99	99,76	5,042	96,19	21,10	100,03	5,040	96,95	
7A-7	21,35	100,40	5,057	96,65	21,41	100,48	5,062	96,62	
7a-8	21,28	100,29	5,048	96,79	21,23	100,29	5,040	96,94	
7A-9	21,10	99,89	5,052	96,16	21,04	99,89	5,052	95,89	

5.6.2 Dichtheit und Schweißnahtkontrolle

Im Anschluß an die Fertigung wurde die Röntgenprüfung der Schweißnähte sowie der Helium-Lecktest an den Stäben durchgeführt. Ein Prüfbericht weist die Dichtheit der in die leeren Hüllrohre eingeschweißten Endstopfen nach, ein weiterer Prüfbericht die Dichtheit der fertig verschlossenen Brennstäbe. Ein Auszug aus diesen Prüfberichten ist in Tabelle XIV wiedergegeben.

Die Schweißnahtqualität an den unteren Endstopfen ist nach der Röntgenprüfung einwandfrei. Die abschließende Schweißnaht wurde ebenfalls durchstrahlt. Nach dem entsprechenden Prüfbericht ist die Beurteilung in den meisten Fällen gut, während 2 Einzelmessungen wegen Poreneinschlüssen nur die Beurteilung "brauchbar" erhielten. In Tabelle XV sind einige Angaben aus den Röntgen-Prüfberichten zusammengefaßt. Als zusätzliche Kontrolle wurden auch noch Schliffbilder von Schweißnähten an Originalmaterial der spezifizierten Abmessungen hergestellt, siehe Abb. 5.

Tabelle XIV Dichtheitsprüfung an den Brennstäben mit He-Lecksuch-Massenspektrometer

Prüfungen an den unteren Endstopfen										
Eichleck Empfindlichkeit Leckrate (in jedem Rohr)	l,7·10 ⁻⁸ Torr L/sec 4·10 ⁻¹¹ Torr L/sec•Skalenteil < 10 ⁻⁹ Torr L/sec									
Prüfungen an den fertigen Stäben										
Eichleck Empfindlichkeit Leckrate (in jedem Stab)	5,2.10 ⁻⁸ Torr L/sec 2,3.10 ⁻¹⁰ Torr L/sec.Skalenteil < 4,6.10 ⁻¹⁰ Torr L/sec									

-31-

Befund:	Ε	li	einwandfrei	Beurteilung:	1	-	gut
	Ρ	unite unite	Poren		2	-	brauchbar
					3	-	belassen
					4	since Give	nicht genügend

Stab	Durchstrahl-	Untere S	chweißnaht	Obere Schweißnaht			
0 040	richtung	Befund	Beurteilung	Befund	Beurteilung		
7A-1	A	E	1	E	1		
	B	E	1	E	1		
7A-2	A	E	1	E	1		
	B	E	1	P	2		
7A-3	A	E	1	E	1		
	B	E	1	E	1		
7 A -4	A	E	1	E	1		
	B	E	1	E	1		
7A-5	A	E	1	E	1		
	B	E	1	E	1		
7A-6	A	E	1	E	1		
	B	E	1	E	1		
7A-7	A	E	1	E	1		
	B	E	1	E	1		
7A-8	A	E	1	E	1		
	B	E	1	P	2		
7A-9	A	E	1	E	1		
	B	E	1	E	1		

Die beiden Durchstrahlrichtungen A und B stehen aufeinander senkrecht.



Abb. 5 Schliffbilder der Schweißnähte Werkstoff AISI 316 Werkstoff Nr. 1.4988 oben:

unten:

5.6.3 Kontaminationsprüfung

Im Hinblick auf die Pu-Kontamination auf der Oberfläche ist zwischen einer abwischbaren Verschmutzung und einer oberflächlich fixierten Aktivität zu unterscheiden.

Zur Bestimmung der wischbaren Alpha-Kontamination erfolgten an allen Oberflächen der Brennstäbe, insbesondere aber an der Schweißnaht beim oberen Endstopfen Wischteste, deren Ausmessung ein empfindliches Zählrohr (ca. 40 % Zählausbeute) besorgte. Alle Wischteste blieben ohne Befund, d.h. es konnte keine wischbare Aktivität nachgewiesen werden.

Dagegen ist bei einigen Stäben in der oberen Schweißnaht eine punktförmig fixierte Alpha-Aktivität nachweisbar, die nach folgender Formel ermittelt wurde:

$$A = \frac{J}{f_a \cdot f_g \cdot F}$$

Darin bedeutet:

600 3	J	die	Impulsrate	am	Zählrohr	(Impulse	pro	Minute)
--------------	---	-----	------------	----	----------	----------	-----	---------

- f die Wirksamkeit des Zählrohres (%)
- f den Geometriefaktor
- F die Oberfläche des Brennstabes (cm²)

und als Ergebnis

- A die Alpha-Zerfälle pro Minute und cm²

Zum Geometriefaktor ist zu bemerken, daß durch ihn der Tatsache Rechnung getragen wird, daß auf einem planen Zählrohr ein zylinderförmiger Körper ausgemessen wird. Dabei trägt eine ringförmig um die Schweißnaht verteilte Aktivität umso weniger zur Impulsrate bei, je weiter sich die Zylinderfläche von der Zählrohrfläche abkrümmt. Wir sind davon ausgegangen, daß im vorliegenden Fall nur ein Viertel des gesamten Umfanges voll zur Impulsrate beiträgt (f_g = 0,25).

Die Tabelle XVI bringt die einzelnen Meßergebnisse für die wischbare und die fixierte Aktivität.

Tabelle XVI	Kontan	nir	ation	der	Staboberflächen
	(o.B.	-	ohne	Befur	nd)

Stab-Nr.	Wischtest (Zerfälle/min.)	Fizierte Aktivität (Zerfälle/min.°cm ²)
7A-1	0.B.	16
7A-2	0.B.	0.B.
7A-3	0.B.	0.B.
7A-4	o.B.	5
7A-5	0.B.	0.B.
7A-6	0.B.	0.B.
7A-7	0.B.	0.B.
7A-8	0.B.	0.B.
7A-9	0.B.	5

5.6.4 Äußere Abmessungen und Gewicht

Zur Kontrolle der äußeren Abmessungen der fertigen Stäbe wurde außer der Gesamtlänge der Durchmesser an 10 der Länge nach verteilten Stellen gemessen sowie zusätzlich an den beiden Schweißnähten. Die Ergebnisse sind in Tabelle XVII zusammengestellt. An den Schweißnähten zeigten sich lokale Durchmesserüberschreitungen.

5.6.5 Innere Geometrie

Die innere Geometrie der fertigen Stäbe wurde mit Röntgenaufnahmen nachgeprüft. Abb. 6 gibt die Durchstrahlung unmittelbar nach der Herstellung der Stäbe in Karlsruhe wieder. Abb. 7 bringt die Röntgen-Aufnahmen, die nach dem Transport in Mol angefertigt wurden. In Tabelle XVIII sind den berechneten Werten der Tablettensäulenlänge (nach Tabellen XII und XIII) die nach den Röntgen-Aufnahmen vermessenen Säulenlängen gegenübergestellt <u>10</u>. Beim Stab 7A-9 ist eine wesentliche Diskrepanz festzustellen. Die Lage der Tabletten und sonstigen Einbauten ist auch nach dem Transport einwandfrei.

Lage der Meßstelle	ur en	iten	d ₁	d ₂	d ₃	d ₄	d ₅	^d 6	d ₇ d	8 ^d g	y	oben	a •	∍ b	
Stab-Nr.	Meß- stelle	d _l (mm)	^d 2 (mm)	d_3 (mm)	d ₄ (mm)	d ₅ (mm)	d ₆ (mm)	d. (mm)	d ₈ (mm)	d ₉ (mm)	d ₁₀ (mm)	L (mm)	Gewicht (g)		
7A-1	a b	6,022 5,998	5,994 5,994	5,996	5,993	5,995	5,995	5,996	5,993 5,994	5,996	6,005	1080,00	205,50	х У	6,070 6,106
7A-2	a b	6,028 5,984	5,996 5,995	5,995	5,996	5,995 5,996	5,995	5,995	5,994 5,993	5,994	6,014	1079,95	204,38	x y	6,110 6,145
7A-3	a b	6,028 6,000	5,996	5,993	5,996	5,995	5,995	5,993 5,994	5,994	5,996	5,997 5,998	1080,00	205,72	x y	6,080 6,040
7A-4	a b	6,042 5,991	5,970 5,972	5,970 5,974	5,972	5,972 5,973	5,972 5,968	5,972 5,968	5,996 5,972	5,996 5,971	6,012 6,013	1080,00	202,44	x y	6,050 6,060
7A-5	a b	6,037 5,996	5,995 5,996	5,996	5,995 5,994	5,993	5,991 5,992	5,994	5,991 5,992	5,997 5,992	6,010 6,012	1080,00	206,10	х У	6,060 6,098
7 A -6	a b	6,016 6,000	6,002 6,003	6,003 6,001	6,002	6,004 6,006	6,002 6,003	6,004	6,003	6,002 6,004	6,014 6,012	1080,00	2 95, 66	x y	6,059 6,060
7A-7	a b	6,014 5,996	6,002 6,001	6,003 6,001	6,001 6,002	6,002 6,001	6,002	6,001	6,002	6,002	6,016	1080,00	206,12	x y	6,060 6,080
7A-8	a b	6,015 5,990	5,996 6,000	5,996	5,996	5,996	5,997 5,998	5,997	5,997	5,998	5,997	1080,00	206,48	x y	6,080 6,070
7A-9	a b	6,028 6,002	5,995 5,993	5,991 5,990	5,992	5,994 5,995	5,994	5,994 5,993	5,992 5,990	5,993 5,991	6,010	1080,00	2,07,40	x y	6,070 6,060

Tabelle XVII Äußere Abmessungen und Gewichte der fertigen Stäbe

-36-



oberer Sta



VVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVVV	
7A-7	
7A-6	
7A-5	
7A-4	
7A-3	
7A-2	
<u>/A-1</u>	

Abb. 6 Röntgen-Aufnahmen der 9 Stäbe nach der Fertigung in Karlsruhe (Oberer Stabteil)

Mittelstück

	Stab-Nr.	
· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	/A=6	이는 이는 것에서 참여할 것 같은 것이다. 이는 것은 감독적인 것이 같은 것이 것이다. 그는 것이라는 것이 많아요. 것은 것은 것을 했다.
	$7\Delta - 7$	1. A structure of the structure of the structure of the structure structure of the structure of the structure structure of the structure of
	-7 <u>A</u> - <u>L</u>	
	an a	
	7/ -2	
	A CALL AND A	
	74-2	이 집에 가지 않는 것 같은 것을 해야 했다. 것은 것은 것은 것은 것은 것이 같이 많이 있는 것을 하는 것이 없는 것을 하는 것을 했다.
an a		
and a serie state of the second		
	74.0	
	и на има и на	가 있는 것 같은 것 같





Röntgen-Aufnahmen der 8 nach Mol Abb. 7 transportierten Stäbe vor der Bestrahlung

Chab Ma	Länge der T	ablettensäule (mm)
Stad-Mr.	Berechnete Werte	Gemessene Werte
7A-1	700,10	700,0
7A-2	702,40	
7A-3	700,35	700,0
7 A -4	699,92	
7A-5	699,25	699,5
7 A -6	699,56	700,0
7A-7	701,19	699,5
7a-8	704,85	
7A-9	700,00	704,0

Tabelle XVIII Länge der Tablettensäulen vor der Bestrahlung

5.7 Abweichungen von den Spezifikationen

In einigen Punkten wurden die Spezifikationen nicht oder nicht vollständig erfüllt. Dies soll hier kurz diskutiert werden:

- Die abschließende Isotopenanalyse an einigen fertigen Tabletten ergab einen U-235-Gehalt von nur ca. 79 %, während bei der Analyse der Pulvermischung ziemlich genau 80 % gemessen wurden. Diese Differenz konnte nicht geklärt werden.
- Die Höhe der Brennstofftabletten liegt mit Werten um 5,5 mm einige Male unterhalb der unteren Toleranzgrenze. Dies ist aber unwesentlich, da es auf die Höhe der Brennstoff- bzw. Tablettensäule ankommt.
- Die Höhe der Brennstoff- bzw. Tablettensäulen ist nach den Herstellungsprotokollen spezifikationsgerecht mit Ausnahme von Stab 7A-8. In den Auswertungen nach den Röntgen-Aufnahmen gibt es allerdings weitere (nicht sehr erhebliche) Abweichungen.
- Entgegen den Spezifikationen erhielten die Brennstofftabletten keine Stirnflächeneinsenkung, da dem Hersteller kein geeignetes Preßwerkzeug zeitgerecht zur Verfügung stand. Das Fehlen dieses

"äußeren" Leervolumens wird weitgehend kompensiert durch die (ebenfalls nicht spezifikationsgerechte) Unterschreitung des Tablettendurchmessers um Werte meist zwischen 50 und 100 μ m.

- Die Spezifikation für die Tablettendichte ist im wesentlichen erfüllt worden. Mit Ausnahme von Stab 7A-2 liegen die Mittelwerte für alle Stäbe im Toleranzbereich. Einzelne gemessene Tabletten überschreiten die obere Toleranzgrenze geringfügig. Die Brennstoffdichte im Stab 7A-2 ist zu niedrig. Wegen Materialmangels konnten diese deutlich außerhalb der Toleranz liegenden Brennstofftabletten nicht ausgeschieden werden.
- Der Auslegungswert für die Brennstoff-Schmierdichte hingegen ist bei allen Stäben ziemlich gut angenähert. Die Tabelle XIX zeigt die rechnerisch ermittelten tatsächlichen Werte für alle 9 Stäbe.
- Beim UO2-Brutstoff sind einige Tabletten in der Dichte zu hoch.
- Bei den abschließenden Prüfungen am Brennstoff konnte das O/Me-Verhältnis, der Gasgehalt und der Wassergehalt nicht gemessen werden.

Brennstab- Nr.	Hüllinnen- durchmesser (mm)	Brennstofftabletten- durchmesser (mm)	Brennstoff- dichte (∲ th.D.)	Schmier- dichte (% th.D.)
7A-1	5,247	5,013	88,17	80,50
7A-2	5,245	5,063	8/172	78 9)1
7A-3	5,242	5,008	88,80	70,94 81,05
7A-4	5,265	5,000	88,80	80,09
7A-5	5,245	5,014	88,36	80,75
7A - 6	5,255	5,011	88,08	80 ,0 9
7A - 7	5,253	5,026	87,79	80,37
7A -8	5,241	5,032	88,65	81,72
7A -9	5,240	5,013	88,71	81,19

Tabelle	XTX	Innere	Geometrie	der	Stäbe	und	Brennstoffdichte
	2 Se Lind Se		COULCOT TO	acr	Dunc	ana	DI CIUR COLLOCIOC

6. Brennstabbündel und Bestrahlungseinsatz

Die 7 Stäbe sind mit 10 Abstandshaltern zu einem Hexagonalbündel zusammengefaßt. Dieses Bündel steckt in einem Bündelrohr. Zum Einbau wurden die Stäbe von oben in diese Brennstabhalterung geschoben und sitzen mit den Schlitzen ihrer Fußstücke auf den unteren Haltestegen. Sie sind dort mit Stiften befestigt. Das obere Ende der Stäbe ist axial frei beweglich. Die geometrische Anordnung der Stäbe und Abstandshalter wird in Abb. 8 deutlich. In Abb. 9 sind in einem skizzierten Bündelquerschnitt die Stabnummern angegeben. Von den 9 hergestellten Stäben wirklich eingesetzt wurden die Stäbe Nr. 1, 3, 4, 5, 6, 7 und 9. Der Stab 8 war als Reserve in Karlsruhe verblieben. Der Stab 2 wurde beim Einbau in Mol ausgeschieden, da der Durchmesser der oberen Stopfenschweißnaht überhöht war. Die Stabteilung im Bündel ist 7,9 mm und der kleinste Stababstand somit 1,9 mm.

Die Konstruktion der Brennstabhalterung wurde von der Fa. Siemens AG. ausgeführt. Sie geht aus der Siemens-Werkszeichnung in Abb. 10 hervor. Die wabenförmigen Abstandshalter – Konstruktion siehe Abb. 11 – wurden bei der Fa. Siemens durch ein Funkenerosionsverfahren hergestellt. Für die 10 Abstandshalter wurden drei verschiedene Edelstähle, nämlich die Werkstoffe Nr.

- 1.4981 für 6 Abstandshalter
- 1.4961 für 2 Abstandshalter
- 1.4988 für 2 Abstandshalter

verwendet. Die Anordnung der verschiedenen Typen im Bündel geht aus Tabelle XX hervor.

Abstandshalter Orientierung	Nr .	Werkstoff-Nr.
oben unten	1 2 3 4 5 6 7 8 9 10	1.4981 1.4981 1.4988 1.4981 1.4981 1.4988 1.4981 1.4981 1.4981

Tabelle XX Abstandshalter









Die Bestrahlung des Brennstabbündels erfolgte im sogenannten MFBS-5-Loop des BR 2. Diese Bestrahlungseinrichtung wurde speziell für Brennstab-Bestrahlungen unter simulierten Schnellbrüterbedingungen gebaut und bereits seit 1965 erfolgreich betrieben /11/. Das Loop sitzt im durchgehenden, 200 mm weiten Zentralkanal des ER 2 und enthält einen primären Natrium-Kreislauf, der über einen CO₂-Zwischenkreislauf die Wärmemenge an Kühlwasser abgibt. Dieser Loop-Einsatz ist weiterhin noch von einem zylindrischen Cadmium-Schirm umgeben, durch den das Neutronenspektrum "gehärtet" wird. Abb. 12 zeigt einen Querschnitt durch den Loop-Einsatz in Höhe des Stabbündels. (Der dort skizzierte Abstandshalter entspricht nicht der wirklichen Ausführung.)

Die Strömung des Na-Kühlmittels erfolgt im Brennstabbündel von unten nach oben, Strömungsgeschwindigkeit ca. 3 bis 4 m/sec. Die Führung des Kühlmittelstromes wird aus dem Längsschnitt des Loopeinsatzes in Abb. 13 deutlich. Die Position des MFBS-Loops im ER 2 geht aus der Übersichtszeichnung in Abb. 14 hervor. Der ringförmige Zwischenraum zwischen Loop-Einsatz (Außendurchmesser 67 mm) und der Innenwand des Zentralkanals (200 mm Durchmesser) ist mit einem Al-Körper und Spezialbrennelementen ausgefüllt. Im MFES-Loop gibt es zahlreiche Temperatur-Meßstellen, deren Meßwerte zur Temperaturberechnung in Bündel und Stab herangezogen werden. Abb. 15 zeigt die Position der Thermoelemente im Bündelbereich. Die Abb. 16 schließlich gibt die axiale Position von Bündel und Stab relativ zur BR 2-Mittelebene an.



- 47 -



1	S/Ack			Bene	Beauv		_	Markstaff	490	frame	Zokango.	Mr. Norm	Gerra	gweg
- Unit		i	Þ	20	ß	0000			-	e e	18 1 2 1	88 12	18 1 1	100
1	THE PL	9	8	2	·	3		7 remotioner and	194		10.	9	4°6 i	01
20	Tes		None		L	Warnafe		Gentlechaft 10r	Karafar	ichues -	Zupre. 4	Zchng.		
14	1.6	N	4					1.0	н					
à.					,,			7500 Ke	erterubs		Errette	før		
z								Pointer	× 91		Erectal	durch		
Ne.Se	i aqoy	Bent	Series								Zelehan	nps Mr.		
4	1:5/2:1	ğ	20,2	101	nna	ģ	UUa.	stab Mc	5 7	4				







7. Ablauf der Bestrahlung

Im BR 2 in Mol sollte das 7-Stabbündel bei einer Stableistung von 500 W/cm bis zu einem Abbrand von 60.000 MWd/t M bestrahlt werden. Aufgrund einer Unzulänglichkeit bei der Berechnung des epithermischen Flusses und der Reaktionsraten für die Cd-abgeschirmte Zone des Loops erreichte die maximale lineare Stableistung Werte bis zu 590 W/cm anstelle des spezifizierten Wertes von 500 W/cm. Nach Erreichen von ca. 35.000 MWd/t M während des 10. Bestrahlungszyklus wurde Spaltgas im Cover-Gas des primären Na-Kreislaufes festgestellt, was einen Stabschaden anzeigte. Der Spaltgasausbruch ereignete sich nach dem Wiedereinsetzen von Treiberstäben, wobei die Leistung von 450 W/cm am Ende des vorangegangenen Zyklus auf den Anfangswert von 560 W/cm des neuen Zyklus erhöht wurde. Die Bestrahlung konnte jedoch fortgesetzt werden, da die Aktivität die Sicherheitsgrenze in der Primärkühlung nicht überschritt. Die Situation änderte sich, als während des gleichen Zyklus, kurz nachdem das Spaltgas festgestellt war, Undichtigkeiten an einem Federbalg festgestellt wurden, durch die das sekundäre Kühlmittel CO, in das Cover-Gas des primären Na-Kühlkreislaufes eindringen konnte. Aus Sicherheitsgründen wurde das Loop am Beginn des 11. Bestrahlungszyklus (= Reaktorzyklus 05/69) entladen und eine Ermittlung der Leckgröße im Federbalg des Cover-Gas-Systems durchgeführt. Durch Abdruckversuche wurde der Nachweis erbracht, daß beim Bruch der CO₂-Leitung das He-Cover-Gas, das dann unter einem Überdruck gegenüber der Umgebung von 6 atü steht, nur mit der gemessenen Leckrate in die Umgebung (Reaktorhalle) austreten kann.

Es wurde eine Apparatur konstruiert, die es gestattet, die Gesamtaktivität des Cover-Gases durch direkte Probenahme zu bestimmen. Nach Fertigstellung dieser Apparatur wurde gegen Ende des Reaktorzyklus 09/69 das Loop wieder eingesetzt. Die Analyse des Cover-Gases ergab einen CO₂-Gehalt von ca.50 % und eine Gesamtaktivität unterhalb der zulässigen Grenze, die für plötzliche Freisetzung des gesamten Cover-Gases festgesetzt worden war.

Nach sechs Tagen Probebetrieb bei Vollast wurde das Loop vor Beginn des nächsten Zyklus noch einmal einem Drucktest unterzogen (16 atm Überdruck). Es war nur eine geringe Vergrößerung der Leckrate festzustellen. Das Loop wurde deshalb für den Betrieb im Reaktorzyklus 10/69 freigegeben.

Nach einem Tag Vollast wurde ein starker Anstieg des Cover-Gas-Drucks durch eindringendes CO_2 festgestellt. Um eine Reaktion des Na mit CO_2 und eine Beschädigung der Hüllrohre durch Korrosion zu vermeiden, wurde daraufhin der Versuch abgebrochen $\int 12 \sqrt{-12}$.

7.1 <u>Reaktorzyklen</u>

Das 7-Stabbündel wurde im BR 2 in Mol während 139 Vollasttagen (= 13 Zyklen) bestrahlt. Infolge eines Spaltgasausbruches beim 10. Zyklus wurde – nach einigen Versuchen, um die geplante Bestrahlungszeit (▲ 60.000 MWd/t M Abbrand) einzuhalten – der Versuch im Zyklus 12/69 abgebrochen.

In Tabelle XXI sind u.a. die Zeit- und Leistungsdaten während der BR 2-Zyklen dargestellt 157.

7.2 <u>Neutronenfluß</u>

In / 167 wird das Maximum des Spaltneutronenflusses mit

$$\phi_{\rm f} = 2,09 \cdot 10^{14} (\rm n \cdot \rm cm^{-2} \ \rm s^{-1})$$

(gemessen durch die Fe 54 (n,p) Mn 54-Reaktion) angegeben.

Die relative Lage dieses Flußmaximums und die axiale Verteilung zur Position der 7 Prüflinge (- 310 bis + 190 Spaltstoff) kann aus Abb. 17 entnommen werden. Das Flußmaximum liegt für Mol-7A bei Position - 100 mm.

Das Maximum des integrierten Flusses ist

$$\phi_{f} \cdot t = 2,54 \cdot 10^{21} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} / 167$$

Die radiale Flußverteilung im MFBS-5-Loop (Durchmesser 200 mm) ist durch eine Flußabsenkung von ca. 10 % im Zentrum charakterisiert. Tabelle XXII zeigt die Fluß- und Dosismaxima für 3 Energiebereiche.

Tabelle XXII Fluß- und Dosismaxima für 3 Energiebereiche

Energie	Fluß Ø (n/cm ² sec)	Dosis D +) (n/cm ²)	Dosis D ++) (n/cm ²)
>0,414 eV	9,9 • 10 ¹⁴	1,18 · 10 ²²	1,2 · 10 ²²
>1,25 keV	7,6 · 10 ¹⁴	9,1 · 10 ²¹	-
>0,11 MeV	5,3 · 10 ¹⁴	6,3 · 10 ²¹	7,0 · 10 ²¹
+) aus 139	Vollasttagen gerec	nnet [12] +	+) _{Angabe} aus Mol

-53-

Tabelle XXI

Ablauf	der	Bestrahlung
--------	----------------------	-------------

BR 2 Zyklus	Beginn Ende	Vollast Tage ⁺⁾	Zahl der Abschal- tungen	Maximal des	e Leistung s BR 2 Zyklus (MW)	MW-Tage im Zyklus (MWd)	Berechneter mi äußere Stäbe (Mwd/t)	ttlerer Abbrand ⁺⁺⁾ innerer Stab (MWd/t)	Äußere Stäbe (Mwd/t Metall)
12/68	11.09.68	16,06	2	90	63		3525,92	3161,11	4001,9
13/68	04.10.68	13,63	l	97	68	867,7	2989,81	2680,55	3393,4
14/68	26.10.68 08.11.68	12,43	1	98	68,7	817,6	2670,37	2393,51	3030,9
15/68	14.11.68 26.11.68	12,23	l	94	65,8	770,1	2970,37	2662,96	3371,4
16/68	02.12.68 13.12.68	10,72	l	100	70	694,1	2442,59	2189,81	2772,4
17/68	19.12.68 30.12.68	10,78	1	100	70	725,5	2370,37	2125,00	2690,4
01/69	07.01.69 24.01.69	13,94	1	100	70	939,6	3423,14	3068,51	3885,2
02/69	30.1. 69 11.2.69	11,29	l	100	70	862,2	2694,44	2498,14	3058,1
03/69	18.02.69 08.03.69	12,86	2	90	63	811,8	2539,81	2274,07	2882,7
04/69	15.03.69 31.03.69	11,67	2	100	70	808,6	2887,96	2589,81	3277,7
05/69	04.04.69 06.04.69	1,14	l	95	66,5	855,9	268,51	248,14	304,7
11/69	23.08.69 29.08.69	5,80	1	100	70	1230,8	1233,33	1105,55	1399,8
12/69	05.09.69 11.09.69	5,40	l	100	70	910,4	1051,85	942,59	1193,9
Summ	1 e	139,0	17				31.068,0	27.940,0	35.262,5

+) oberhalb 90 % Nennleistung des Reaktors. ++) MWd durch Spaltung in den Brennstäben, bezogen auf UO₂ + PuO₂ /13 / (Umrechnung: 0,881). Werte aus / 13 / um 8 % erniedrigt 1t. /14 /



7.3 Temperatur und Stableistung

Die Stableistung wurde jeweils für Zyklusbeginn und -ende aus den kontinuierlichen Temperaturen der verschiedenen Meßstellen (Abb. 18) über die Leistungsbilanz über Primär- und Sekundärkreislauf [15] mit dem Programm MISTRAL berechnet.

In Abb. 19 wird die Hüllmitten-Temperatur der äußeren Stäbe gezeigt. Die maximal errechnete Stableistung betrug 590 W/cm (Zyklus Ol/69) / 17_7. Mit diesem Wert wurde der ursprünglich spezifizierte Wert von 500 W/cm um fast 20 % überschritten. Die Ursache hierfür lag in einer Unzulänglichkeit bei der Berechnung des epithermischen Flusses im BR 2.

Die Lage der Thermoelementmeßstellen im Natrium (Zone II), mit deren Hilfe die Hüllaußen-, Mitt- und Innentemperaturen der Außenstäbe gerechnet wurden,kann aus Abb. 15 entnommen werden. Weiterhin ist hier die Position des Thermoelementes TE 60 zur Bestimmung der Hüllaußentemperaturen der äußeren Stäbe eingezeichnet. Abb. 17 zeigt weiterhin den axialen Verlauf des Neutronenflusses, der mittleren Stableistung, des mittleren Abbrandes und den Verlauf der Hüllmittentemperatur der Außenstäbe. Die Temperaturprofile für den inneren Stab liegen um 3 bis 6^oC niedriger.

Die maximale Hüllmittentemperatur der Außenstäbe betrug $600 \pm 10^{\circ}$ C, sie wurde – wie aus Abb. 19 hervorgeht – ebenfalls im Zyklus 1/69 erreicht. Die Temperaturverteilung der Außenstäbe ist nicht einheitlich über den Umfang. Die Temperaturangaben auf Abb. 19 beziehen sich auf die nach innen gekehrte heißere Seite der Außenstäbe.

7.4 Abbrand

Die Berechnung des mittleren Abbrandes \overline{A} der Prüflinge wird über die aus den Temperaturwerten gewonnenen mittleren Stableistung \overline{X} der Außenstäbe nach der folgenden Gleichung

$$\overline{A} = \overline{X} \cdot \frac{1}{-} \cdot t_{v}$$

mit l = Brennstofflänge (cm)

t_v = Bestrahlungszeit (Vollastäquivalent) (d)

G = Brennstoffgewicht (Metall) (g)

vorgenommen (Abb. 17).



- 57 -



Während der 13 Betriebszyklen (139 Vollasttage) des BR 2 wurden mittlere Abbrände von 35, 26 (Außenstäbe) und 31, 70 MWd/kg M (Innenstab) erreicht. Die Werte wurden aus Temperatur- und Stableistungsdaten der BR 2-Betriebsprotokolle berechnet (s.a. Tabelle XXI).

Tabelle XXIII zeigt die axiale Verteilung des Abbrandes über die Spaltstofflänge von 500 mm (-300 bis +190). Derselbe Verlauf ist grafisch in Abb. 17 im Vergleich mit mittlerer Stableistung, Hüllwandtemperatur des Außenstabes und Flußverlauf im BR 2 dargestellt.

<u>Tabe</u>]	lle	XXI	[]	Axi	ale	Ver	rtei	lung	des	Ab	brand	les	der	Auß	enst	abe
---------------	-----	-----	----	-----	-----	-----	------	------	-----	----	-------	-----	-----	-----	------	-----

Höhenkote (mm)	-300	-200	-100	-50	0	+100	+190
Abbrand (MWd/kg M)	21,60	35,60	42,34	42,76	41,50	35,30	29,10

Durch Ausplanimetrieren der Fläche unterhalb der Abbrandkurve (Abb. 17, Tabelle XXIII) erhält man den schon in Tabelle XXI angegebenen Wert von 35262 MWd/t M. Berücksichtigt man eine Gesamtenergiefreisetzung bei der Spaltung von 200 MeV und das Maximum der mittleren Stableistung von 520 W/cm (Abb. 17), so ergibt sich der in <u>/</u>14_7 angegebene maximale Abbrand von 46,5 MWd/kg M.

8. Untersuchung und Demontage des Bündels

8.1 Partielle Zerlegung des Bestrahlungseinsatzes in Mol

In den mit Inertgas gefüllten Hochaktivitätszellen ATHA in Mol wurde vom gesamten Bestrahlungseinsatz der Abschnitt mit den Brennstäben abgetrennt. Dazu wurde zunächst oberhalb der Brennstäbe (1350 mm vom unteren Ende des Einsatzes) ein Schnitt durch das Rohr mit den Durchmessern 53/50 geführt. Der Natriumkreislauf wurde dabei noch nicht geöffnet. Das getrennte Außenrohr wurde nach unten abgezogen. Der nächste Schnitt erfolgte mit einem Rohrschneider kurz unterhalb der Stäbe (105 mm vom unteren Ende des Einsatzes), wobei der Natriumkreislauf geöffnet wurde. Aus dem kurzen abgetrennten Teil wurden zwei Na-Proben zur Analyse entnommen, um die Kontaminationsgefahr durch im Natrium vorhandene Spaltprodukte und Brennstoff abzuschätzen.

In den Proben wurde kein Brennstoff, jedoch erhebliche Mengen von Spaltcäsium gefunden (110 mC Cs-137, 40 mC Cs-134). Als letzter Schnitt wurden oberhalb der Stäbe (1150 mm über Schnitt Nr. 2) die beiden Natriumführungsrohre (Durchmesser 48/45 und 38/35) mit einem Rohrschneider durchgetrennt.

Der abgetrennte Abschnitt bestand nun aus drei konzentrischen Edelstahlrohren mit dem Sieben-Stab-Bündel in der Mitte. Alle Zwischenräume waren mit festem Natrium gefüllt. Der Außendurchmesser dieses Zylinders betrug 48 mm, seine Länge 1150 mm.

Zum Schutz des Natriums wurde der Abschnitt mit Endkappen versehen und in einen Argon-gefüllten Primärbehälter für den Transport geladen.

8.2 Betatron-Durchleuchtung

Aus dem zeitlichen Ablauf des Schadenfalles sowie der in den Kreislauf freigesetzten Spaltgasmenge war es nicht möglich zu entscheiden, ob ein oder mehrere Stäbe defekt geworden waren. Weiterhin war unbekannt, ob es sich nur um eine kleine Leckstelle, etwa im Bereich der Schweißnähte oder um einen großen Hüllrohrriss bzw. einen Stabbruch handelt.

Das primäre Ziel der Betatron-Durchleuchtung war daher, das Ausmaß des Schadens festzustellen, um eine geeignete Zerlegung des Bündels vorzubereiten. Daneben sollte die grundsätzliche Frage geklärt werden, ob mit Hilfe einer Betatron-Durchleuchtung Stabdefekte in einer Bündel-Konfiguration sichtbar gemacht werden können/18_7.

Die Durchleuchtung des Bündels wurde noch im Transportbehälter, einem beidseitig verschraubtem Rohr mit 53 mm Außendurchmesser vorgenommen. Die Einzelaufnahmen umfaßten jeweils einen Abschnitt von etwa 150 mm. Bei einer leichten Überlappung der Bildränder waren über die Bündellänge 12 Aufnahmen zur vollständigen Abbildung erforderlich. Aufgrund der großen Länge mußte nach 6 fortlaufenden Aufnahmen das Rohr um 180° gekippt und von der anderen Seite mit den Aufnahmen weitergefahren werden. Damit ergeben sich 2 Aufnahmeserien, in denen die Stabposition rechts-links spiegelbildlich vertauscht ist. Die Gesamtlänge des Bündels wurde mit 2 verschiedenen Stabgitterorientierungen durchleuchtet (Abb. 20). In Orientierung I liegen in dem hexagonalen Gitter außen zwei, in der Mitte drei Stäbe im Bild übereinander. Zwischen den Stabgruppen liegt jeweils ein Spalt. Damit lassen sich besonders gut verbogene oder aufgeschwollene Stäbe und ausgetretener Brennstoff erkennen. Bei Orientierung II sind die Stäbe im Bild ohne Spalt nebeneinander zu sehen. Da nun drei Stäbe ohne Abschirmung durch ihre Nachbarn allein abgebildet werden und nur vier Stäbe jeweils zu zweit hintereinander stehen, kann hier besser die innere Struktur, d.h. der Zentralkanal bzw. zentrale Hohlräume im Brennstoff beurteilt werden.

In Abb. 21 ist eine Bildserie dargestellt, die mit der Stabgitterorientierung I aufgenommen wurde.

Eine Auswertung aller Betatron-Aufnahmen ergab für das Stabbündel folgendes Bild:




¥

>rer Spaltgasraum

obere Brutstoffsäule





atron-Durchleuchtung des Stab-Bündels Mol-7A

-63-



- Nur an einem Stab sind auffällige Besonderheiten zu sehen.
 Dieser Stab ist einer der 6 Außenstäbe. Eine Ausbreitung des Schadens hat nicht stattgefunden.
- 2.) Die Brennstoffsäule dieses Stabes zeigt etwa in der Mitte zwischen den Abstandshaltern 7 und 8 eine deutliche zigarrenförmige Vergrößerung des Zentralkanals, die sich über mehrere Zentimeter erstreckt. Der übrigbleibende Brennstoffkamin ist ungleichmäßig dick und von Rissen durchzogen. Der Verdacht eines Stabschadens an dieser Stelle liegt nahe.

Ferner weist das untere (kalte) Ende der Brennstoffsäule einen walzenförmigen ca. 6 mm langen zentralen Hohlraum auf, der nach oben zu verstopft ist. Ein weiterer Schaden in der Nähe dieser Stelle kann nicht ausgeschlossen werden, obwohl er wegen der niedrigen Hüllwandtemperatur unwahrscheinlich ist.

- 3.) Zwischen den Stäben sind keine ausgeschwemmten Brennstoffpartikel zu sehen. Es ist daher anzunehmen, daß der Brennstoff auch an der Schadensstelle noch von der Hülle umgeben ist.
- 4.) Das Bündel zeigt insgesamt einen regelmäßigen Aufbau. Stäbe und Abstandshalter sind nicht verbogen.

Der als beschädigt angesehene Stab konnte aufgrund der Betatron-Aufnahmen nicht eindeutig identifiziert werden. Es fehlten hierzu drehorientierte Merkmale am Bündel.

8.3 Röntgen-Durchleuchtung

Um die Fehlererkennbarkeit zweier Durchleuchtungsmethoden miteinander vergleichen zu können, wurde das Bündel in der gleichen Umhüllung mit einer 400 keV-Röntgenanlage durchleuchtet⁺⁾. Wegen der geringen

⁺⁾ Die Durchleuchtung mit der 400 keV-Röntgenanlage wurde am Europäischen Institut für Transurane, Karlsruhe, durchgeführt.

Durchdringungsfähigkeit der Röntgen-Strahlen war eine Brennstoffdurchleuchtung zur Sichtbarmachung des Zentralkanals nicht möglich. Es wurde deshalb in der Stabgitterorientierung I (s. Abb.22) eine Umleuchtung der Stäbe vorgenommen. Hierbei ließ sich ein besonders starker Kontrast zwischen den Konturen der Brennstäbe und den dazwischenliegenden Spalten erzielen. Die Auswertung der Röntgen-Bilder hinsichtlich eines Stabschadens führte zu folgendem Ergebnis:

- 1.) Als einzige Anomalie läßt sich im Bündel, etwa in der Mitte zwischen den Abstandshaltern 7 und 8, eine einseitige Verengung des Spaltes zwischen den Brennstäben erkennen. Die Form und Größe dieser Verengung läßt vermuten, daß ein Stab ca. 1 mm aufgeschwollen ist. Eine Schadensausbreitung ist nicht erkennbar.
- 2.) In den Spalten zwischen den Brennstäben sind keine Brennstoffpartikel vorhanden. Vermutlich wurde kein Brennstoff aus der Schadensstelle ausgetragen.
- 3.) Der anomale Stab ist ein Außenstab.

Durch weitere Aufnahmen, in denen das Bündel um 60° gedreht wurde, konnte der anomale Stab als Außenstab identifiziert werden. Die Größe der beobachteten lokalen Aufschwellung änderte sich in den anderen Aufnahmen nur unwesentlich. Sie lag bei allen Aufnahmen jeweils auf der Innenseite des Bündels.

8.4 Sipping-Test

Von der Fa. Belgonucleaire wurde der Vorschlag gemacht, am defekten Bündel die Durchführbarkeit eines sogenannten Sipping-Tests zu erproben. Dieser Test, der bei Brennelement-Bündeln aus Wasser-Reaktoren zur Erkennung von Leckagen üblich ist, besteht in einem leichten Aufheizen der Stäbe und Bestimmen des ausgetretenen Spaltgases durch Messung seiner Radioaktivität. Dabei wird zwischen "Dry Sipping" (Aufheizen ohne flüssiges Kühlmittel) und "Wet Sipping" (Aufheizen im flüssigen Kühlmittel) unterschieden.









- 73 -

Für das Mol-7A-Bündel wurde eine Serie von 13 Sipping-Tests durchgeführt, die abwechselnd mit und ohne Kühlmittel vorgenommen wurden. Die Maximaltemperatur wurde bei diesen Experimenten auf 400°C festgelegt. Dabei ging man von der Überlegung aus, daß die Hülle beim Test nicht höher erwärmt werden sollte als während der Bestrahlung. Für den kältesten Abschnitt des Stabes (unteres Ende) lag während der Bestrahlung bei einer Kühlmittel-Eintrittstemperatur von etwa 370°C die Hüllmittentemperatur am Anfang der Brennstoffsäule bei 400°C.

In den Einzelversuchen wurde das Bündel jeweils langsam bis zur Versuchstemperatur aufgeheizt. Während dieser Phase sollten vor allem thermische Schocks im Brennstoff vermieden werden. Anschließend wurde die Versuchstemperatur ca. 20 Minuten gehalten und das in dieser Zeit austretende Spaltgas im Heliumstrom weggespült . Die Abkühlung erfolgte ebenfalls wieder ohne Temperaturschocks. Um das Natrium während der gesammten Versuchsserie stets flüssig zu halten, wurde die Temperatur von 175°C auch in den Zwischenzeiten nicht unterschritten. Die ersten Sipping-Tests wurden bei 240°C Maximaltemperatur durchgeführt und erst in den letzten 6 Experimenten wurde die weiter oben erwähnte Temperaturgrenze von 400°C errreicht.

Neben der thermischen Behandlung wurde noch der Frage nachgegangen, ob und in welchem Maße während der Sipping-Tests die Stäbe einem korrosiven Außenangriff ausgesetzt waren. Die Verwendung von hochreinem Helium für das Dry-Sipping sowie der niedrige Sauerstoffgehalt des verwendeten Natriums lassen zusammen mit der niedrigen Temperatur einen korrosiven Angriff von außen als unerheblich erscheinen.

Insgesamt wird bei der weiteren Untersuchung davon ausgegangen, daß die intakten Stäbe im Sipping-Test keine Veränderung hinsichtlich des Brennstoffes und des Hüllmaterials erfahren haben. Für den defekten Stab wird neben der bewußt verstärkten Spaltgasfreisetzung lediglich eine geringe mechanische Wirkung des aus- und einströmenden Natriums auf den Brennstoff im Bereich der Schadensstelle erwartet.

Die Ergebnisse des Sipping-Tests wurden an anderer Stelle veröffentlicht / 19_7.

8.5 Vollständige Zerlegung des Stab-Bündels

Der herausgesägte Abschnitt des Bestrahlungseinsatzes enthielt das Stabbündel, umgeben von drei konzentrischen Rohren, deren Zwischenräume noch teilweise mit Natrium gefüllt waren. Von einem generellen Entfernen des Natriums durch Auslösen mit Alkohol bzw. Wasser wurde Abstand genommen, um die Schadensstelle durch aufquellendes Hydroxid nicht zu verändern.

Die Demontage begann mit dem Abziehen des äußersten Rohres, das im Bestrahlungseinsatz die äußere Begrenzung des Natriumkreislaufes gebildet hatte. Das Außenrohr konnte ohne Schwierigkeiten abgezogen werden. In Abb.23 ist ein Abschnitt des Bündels nach diesem Demontageschritt zu sehen.

Die darauffolgende Entfernung des mittleren Rohres (zentrales Natrium-Leitrohr) bereitete große Schwierigkeiten. Zunächst wurde das Rohr von außen mehrfach angebohrt und anschließend erwärmt, um das noch eingeschlossene Natrium abfließen zu lassen. Danach wurde am unteren Ende eine Scheibe abgesägt. Der Schnitt wurde dabei so gelegt, daß die Brennstäbe oberhalb ihrer Verstiftung in der Gitterplatte durchtrennt wurden und damit herausziehbar waren. Abb. 24 zeigt das untere Bündelende mit der abgetrennten Scheibe. Durch einen weiteren Schnitt am oberen Rohrende wurden die Distanznocken des innersten Rohres mit abgeschnitten. Danach sollte das zentrale Natriumleitrohr nunmehr abzuziehen sein. Ein entsprechender Versuch blieb jedoch ohne Erfolg. Durch weitere Schnitte wurde das Rohr dann stückweise entfernt. Dabei zeigte sich, daß trotz vorangegangener partieller Auslöseversuche noch immer Natrium bzw. Oxidreste im Spalt zwischen Leitrohr und Innenrohr ein Abziehen blockierten.Außerdem mußte eine vorher nicht bekannte Verstiftung, die die Demontage ebenfalls behinderte, entfernt werden.

Am freigelegten Innenrohr wurden nun die 10 mal drei Schweißstellen der Abstandshalter durch Abfräsen gelöst und das Rohr längsgeschlitzt. Darauf konnte das Stabbündel aus den Halbschalen herausgenommen werden. Abb.25 zeigt das Bündel zwischen den Abstandshaltern 7 und 8. An einem Stab ist ein mehrere Zentimeter langer Längsriß zu erkennen, der nach der Außenseite des Bündels gekehrt ist. Im Bereich dieses Hüllschadens ist der Stab aufgeschwollen. Die wabenförmigen Abstandshalter konnten über diese Schadensstelle nicht hinweggezogen werden. Sie wurden daher nacheinander nach oben und unten vom Stabbündel abgezogen. Abb.26 zeigt die Abstandshalter nach dem Ausbau.









9. Zerstörungsfreie Untersuchung der Stäbe

9.1 Visuelle Kontrolle und äußere Vermessung

Die 6 intakten Stäbe sind in Abb. 27, der aufgeplatzte Stab in Abb. 28 zu sehen. Äußerlich hatten die unversehrten Stäbe ein metallisch blankes Aussehen, bis auf die Positionen der Abstandshalter, die durch eine dunklere Färbung gekennzeichnet sind $\sqrt{207}$.

9.1.1 Tablettensäulenlänge

Die Bestimmung wurde an den Negativen der Röntgen- und Betatron-Durchleuchtungen vorgenommen. Die 500 mm langen Brennstoffsäulen der Mol-7A-Stäbe haben sich während der Bestrahlung um etwa 1,5 mm, das sind 0,3 % ausgedehnt. Eine Ausnahme bildet Stab 3, bei dem eine axiale Ausdehnung von 5 mm entsprechend 1 % gemessen wurde. Die Länge der Brutstoffsäulen blieb durch die Bestrahlung unverändert $\sqrt{10}$ 7.

In Tab.XXIV sind die Änderungen von Brennstoff- und Brutstoff-Säulenlänge wiedergegeben. Die Vergleiche konnten zum Teil nur mit den Angaben aus dem Prüfbericht vorgenommen werden, da in den Röntgenaufnahmen vor der Bestrahlung der Übergang zwischen Brennstoff und Brutstoff nicht immer eindeutig erkennbar war. Die Notwendigkeit, mit errechneten Längenangaben aus dem Prüfbericht zu arbeiten, führte bei Stab 9 zu einem Fehler. Wie sich aus der Gesamtvermessung ergibt, war die Brennstoffsäule vor der Bestrahlung um etwa 4 mm länger als im Prüfbericht angegeben. Korrigiert man diesen Wert, so reduziert sich die Längenänderung auf ca. 1 mm. Die starke Säulenverlängerung von Stab $\mathbf{3}$ (~ 5 mm) ist durch die Gesamtsäulen-Vermessung bestätigt und stellt eine Ausnahme unter den 6 vermessenen Stäben dar.

Die unteren Brutstoffsäulen, die zwischen ein Stützrohr und die Brennstoffsäule eingespannt sind, schwanken in ihrer Längenänderung um etwa \pm 0,5 mm. Dies dürfte die Fehlergrenze der





Abb. 27 6 intakte Stäbe nach der Bündelzerlegung

Schadensstelle

Abb. 28 Defekter Stab 4 nach der Bündelzerlegung

-77-





Tabelle XXIV Vermessung der Brennstoff- und Brutstoff-Säulenlängen

	Stab - Bezeichnung 7 A-	1	3	5	6	7	9
Länge der	A) laut Prüfbericht	500,31	498,96	498,96	499,77	500,31	500,22
Brennstoffsäule in mm	B) Vermessung nach Bestrahlung	502,00	503,90	500,40	501,20	501,60	505,00
Änderung (B-C)		+ 1,69	+ 4,94	+ 1,44	+ 1,43	+ 1,29	+ 4,78
Länge der Oberen	A) laut Prüfbericht	99,92	100,50	100,21	100,03	100,48	99,89
Brutstoffzone in mm	B) Vermessung vor Bestrahlung	100,50	101,50	101,50	101,00	100,50	101,00
	C) Vermessung nach Bestrahlung	104,00	101,80	101,50	100,50	101,00	101,30
Änderung (C-B)		+ 3,50	+ 0,30	0	- 0,50	+ 0,50	+ 0,30
Länge der Unteren	A) laut Prüfbericht	99,87	100,89	100,08	99,76	100,40	99,89
Brutstoffzone in mm	B) Vermessung nach Bestrahlung	100,30	100,30	100,00	100,30	100,10	100,60
Änderung (B-A)		+ 0,43	- 0,59	- 0,08	+ 0,54	- 0,30	+ 0,71

optischen Bestimmung sein. Die Länge der Stäbe blieb danach also unverändert. Das gleiche gilt auch für die oberen Säulen. Da diese jedoch nur einseitig eingespannt sind und sich nach oben gegen eine erschlaffte Feder bewegen können, ist eine Verlagerung der Tabletten möglich. In Stab 1 hat eine solche Verlagerung zu einer scheinbaren Verlängerung von 3,5 mm geführt.

Aus Tabelle XXV ist zu entnehmen, daß durch die Bestrahlung die Gesamtsäulenlänge aller Stäbe um 2 bis 6 mm gewachsen ist. Während die Meßwerte von 4 Stäben zwischen 2 und 3 mm liegen, zeigen 2 Stäbe mit 6 mm ungewöhnlich große Längenänderungen.

9.1.2 Stabdurchmesser und Durchbiegung

Im Rahmen der zerstörungsfreien Nachuntersuchung wurde an den sieben Stäben der Versuchsgruppe Mol-7A eine Dimensionskontrolle vorgenommen <u>/10</u>. Hierbei wurde der Stabdurchmesser und die Durchbiegung der Stäbe vermessen. Auf die Bestimmung der Stablänge mußte verzichtet werden, da ein Teil der Endkappen während der Demontage des Bündels abgeschnitten wurde.

Der Durchmesser der Stäbe wurde zwischen zwei Meßschneiden schraubenförmig mit Hilfe eines Wegaufnehmers abgetastet und das Meßergebnis als sogenannter Wendelschrieb aufgezeichnet. Der Mittelwert zwischen den Maximal- und Minimalausschlägen des Wendelschriebes stellt den mittleren Stabdurchmesser dar. Durch Vergleich mit den auf die gleiche Weise gewonnenen Vorbestrahlungsdaten wurde die Durchmesser-Vergrößerung bestimmt, die in den Abb. 29 bis 31 über der Stablänge wiedergegeben ist. Vor- und Nachvermessungen sind mit verschiedenen Meßanordnungen durchgeführt worden, die sich auch hinsichtlich der Schraubensteigung unterschieden. So betrug die Steigung bei der Vorvermessung 3,3 mm, bei der Nachvermessung 5,0 mm. Beide Meßanordnungen wurden mit Hilfe eines Meisterbolzens vergleichbar gemacht.

Die Durchbiegung wurde durch Auflegen der Stäbe auf eine ebene Unterlage als maximale Abweichung von der Bogensehne gemessen. Tabelle XXVI gibt die maximalen Durchbiegungswerte zusammen mit der Lage der Maxima bezüglich der Stablänge wieder.

-80-

Tabelle XXV Vermessung der Gesamtsäulenlängen

	Stab-Bezeichnung 7A-	1	3	5	6	7	9
Cosomtsiulo in mm	A) laut Prüfbericht	700,10	700,35	699,25	699,56	701,19	700,00
(Brennstoff und	B) Vermessung vor Bestrahlung	700,00	700,00	699,50	700,00	699,50	704,00
Brutstoff)	C) Vermessung nach Bestrahlung	706,30	706,00	701,90	702,00	702,70	706,90
Änderung (C-B)		+ 6,30	+ 6,00	+ 2,40	+ 2,00	+ 3,20	+ 2,90







Durchmesserveränderung von Stab 4 nach der Bestrahlung Abb. 30

- 83 -



Stab	Maximale Durchbiegung (mm)	Abstand des Maximums vom unteren Stabende (mm)
l	30	620
3	10	560
4	25	625
5	15	630
6	5	700
7	22	640
9	10	650

Tabelle XXVI Durchbiegung der Stäbe Mol-7A

Bei allen sieben Stäben sind die Außendurchmesser im Bereich der Brennstoffsäule sowie der oberen Brutstoffsäule und des oberen Spaltgasraumes gewachsen. Abgesehen von dem defekten Stab Nr. 4 liegen die maximalen Aufweitungswerte im Bereich von 0,1 - 0,2 % (bei 6 mm Außendurchmesser). Die Stäbe mit den Hüllmaterialien der Werkstoff-Nr. 1.4988 und 1.4961 unterscheiden sich hierbei nicht. Wohl aber kann man eine geringere Aufweitung von maximal nur 0,1 % bei den Stäben mit dem Hüllmaterial AISI 316 beobachten. Der defekte Stab war zum Zeitpunkt der Vermessung bereits zerbrochen. Da die aufgeweiteten Bruchstellen durch Verkleben mit Araldit-Gießharz geschützt werden mußten, konnten sie nicht in die Messung miteinbezogen werden. Das Vermessungsdiagramm des Stabes Nr. 4 enthält deshalb eine Lücke. Aber auch außerhalb der Bruchzone sind große lokale Aufweitungen (bis zu 0,8 %) zu beobachten. Die im unteren Stabbereich bei allen Stäben auftretenden negativen Meßwerte drücken wahrscheinlich die Unsicherheit der Vermessung aus und sollten nicht als Durchmesserverkleinerungen aufgefaßt werden.

Einzelne Bereiche innerhalb der Stablänge, die durch eine Schraffur in den Abbildungen gekennzeichnet sind, zeigen stärkere Ovalitäten. Da nicht ausgeschlossen werden kann, daß sie sekundär durch die Handhabung bei der Nachuntersuchung entstanden sind, ist hieraus nichts für das Stabverhalten abzuleiten.

9.2 Durchleuchtung

Die Stäbe wurden zum Teil beim Europäischen Institut für Transurane geröntgt (Stäbe 1, 4, 5 und 7) und alle in den Heißen Zellen des Kernforschungszentrums Karlsruhe mit Hilfe des Betatrons durchstrahlt. Letztere Aufnahmen sind in der Dokumentation im Anhang II enthalten.

Die Aufnahmen haben durch die notwendige Verkleinerung bei der Reproduktion einigen Aussagewert verloren, erkennbar sind jedoch der Zentralkanal im Brennstoff, die Brutstoffsäulen sowie in einigen Fällen die Tabletten im Brutstoffteil und Rißstrukturen.

9.3 Gamma-Profile und Gamma-Spektren

Zur Ermittlung von Brennstoffverlagerungen und Spaltproduktwanderungen und um den Leistungsverlauf entlang der Stabachse zu überprüfen, wurden die Stäbe γ -spektrometrisch untersucht. Die Untersuchung erfolgte etwa 10 bis 12 Monate nach Bestrahlungsende. Zu diesem Zeitpunkt waren im γ -Spektrum im Energiebereich zwischen 250 keV und 2 MeV noch folgende Nuklide identifizierbar:

Im Brennstoff: Zr/Nb-95 Ru/Rh-106 Cs/Ba-134 Cs/Ba-137 Ru/Rh-103 Ce/Pr-144 Im Hüllmaterial: Mn/Cr-54 Co/Ni-60

Von jedem Stab wurden vier $\gamma\text{-}\textsc{Profile}$ aufgenommen mit folgenden Energiebereichen:

-	Integrales	Profil		400		1700	keV
1000	Profil für	die isobare Reih	e Zr/Nb-95	700	-	785	keV
682a	Profil für	die isobare Reih	e Ru/Rh-106	500	-	540	keV
-	Profil für	die isobare Reih	e Cs/Ba-137	640	6225	690	keV

Darüber hinaus wurden an auffallenden Positionen entlang der Stabachse sowie an einigen ungestörten Bereichen vollständige γ-Spektren aufgenommen. Im Mittel entfielen auf jeden Stab etwa 8 Spektren. Als Detektor für die Aufnahme der Profile und Spektren diente ein Ge-Li-Halbleiter.

Bei der Auswertung der integralen γ -Profile (Abb. 32 bis Abb.38) zeigte sich, daß erhebliche Spaltproduktwanderungen innerhalb der gesamten Brennstoff-Brutstoffsäule stattgefunden hatten.

Ansammlungen von Ru/Rh-106 wurden insbesondere bei dem defekten Stab Nr. 4 festgestellt. Sie konnten bei der nachfolgenden keramografischen Untersuchung als Metallreguli im Zentralkanal der Brennstoffsäule identifiziert werden. Auch der dem defekten Stab benachbarte Stab Nr. 3 zeigte zwei Ruthen-Ansammlungen, jedoch von kleinem Ausmaß an. Da gewöhnlich überhitzte Stäbe bevorzugt Ruthen-Reguli enthalten, ist es möglich, daß durch die noch nicht ermittelte Ursache für den Defekt an Stab 4 auch der benachbarte Stab beeinflußt wurde.

Die stärksten Konzentrationsveränderungen zeigten die Nuklide Cs-134 und Cs-137. Eine bevorzugte Wanderung zum oberen Ende (heiße Kühlmittelseite) ließ sich für das Cs-137 bei allen Außenstäben des Bündels feststellen. Mehrere Stäbe zeigten auch am unteren Säulenabschluß größere Cs-137-Konzentrationen. Über die Brennstoffsäule hinaus in die beiden Brutstoffsäulen und die anschließenden Sinterstahlstopfen war das Cs-134 bei allen Stäben gedrungen. Abb. 39 zeigt in einem Ausschnitt die lokalen Anreicherungen von Cs-134. Das Ausmaß und der Mechanismus dieser Wanderung wurden bereits an anderer Stelle beschrieben $\sqrt{18}$, 21 $\sqrt{7}$.

Die Profile für die isobare Reihe Zr/Nb-95 sind bei allen intakten Stäben regelmäßig (s. Abb. 40). Ihr Verlauf entspricht jedoch nicht dem mittleren Stableistungsverlauf, da die Stableistungen in jedem Bestrahlungszyklus im oberen Säulenbereich zu-, im unteren Säulenbereich dagegen abnahmen. Die Regelmäßigkeit der Profile läßt darauf schließen, daß kein axialer Brennstofftransport durch Schmelzen stattgefunden hat. Vergleicht man nach einer Korrektur für die unterschiedlichen Aufnahmezeiten die Profile untereinander, so ist erkennbar, daß der zentrale Stab im Bündel (Stab 1) eine um etwa 10 % geringere maximale Stableistung hatte, was im Einklang mit den vorausberechneten Stableistungen für das Bündel steht .

-87-

Die starken Unregelmäßigkeiten im Zr/Nb-95-Profil des defekten Stabes Nr. 4 sind Ausdruck der Brennstoffverlagerungen, wie sie besonders im Nahbereich der Schadensstelle aufgetreten sind.

Ein Versuch, für die isobaren Reihen Cs/Ba-137 und Ru/Rh-106 ebenfalls γ-Profile aufzunehmen, führte nicht zu dem gewünschten Erfolg. Die gewonnenen qualitativen Aussagen gingen nicht über das hinaus, was bereits in den integralen Profilen sichtbar wurde. Für eine sinnvolle quantitative Auswertung waren die gemessenen Aktivitäten zu gering. Als einzige zusätzliche Information wurde festgestellt, daß die Ru-106-Verteilung nicht dem mittleren ^Stableistungsverlauf entspricht, was bei der langen Halbwertszeit des Ru-106 zu erwarten gewesen wäre. Im oberen Stabbereich wurde gleichmäßig verteilt eine höhere Ru-106-Konzentration als erwartet angetroffen.







-91-



-92-









-96-


- 97 -

10. Spaltgasbestimmungen

Bei den experimentellen Spaltgasuntersuchungen an den bestrahlten Prüflingen werden Messungen durchgeführt / 22 / zur Bestimmung

- der freien Spaltgasmenge V_F

- des freien Volumens innerhalb der Hülle
- der Spaltgasmenge in geschlossenen Poren V_p
- der im Brennstoff gelösten Spaltgasmenge V_C.

Zu diesem Zweck wird der Prüfling zuerst an der Stirnseite des oberen Stopfens angebohrt und das freie Spaltgas abgezogen mit anschließender Helium-Spülung. Die Zusammensetzung des Spaltgases wird gaschromatografisch ermittelt, wobei die Menge an Xe, Kr quantitativ und Kr-85 über die ß-Aktivität bestimmt wird.

Für die weiteren Spaltgasbestimmungen (Anteile in geschlossener Porosität beziehungsweise im Brennstoffgitter gelöst) werden bei der Aufteilung des Prüflings zwei Brennstoffproben von etwa 3 g Gewicht bereitgestellt. Jede Probe wird zuerst in einer gasdichten Kugelmühle aus Edelstahl ca. 2 Stunden gemahlen, wobei eine Mahlfeinheit von weniger als lµm erreicht wird. Das hierbei freigesetzte "Porenspaltgas" umfaßt alles Gas, das sich in geschlossener Porosität mit Porengrößen ≥ lµm befand. Nach der gaschromatografischen Bestimmung dieses Anteils wird die gemahlene Brennstoffprobe schließlich in HNO₃ aufgelöst. Dabei wird der im Brennstoff gelöste Anteil, das "Gitterspaltgas", freigesetzt und bestimmt.

Die für eine weitere Auswertung wichtigen Ergebnisse sind zusammenfassend in einigen Tabellen dargestellt. Tabelle XXVII bringt für alle Prüflinge die gemessene Menge an freiem Spaltgas sowie den Spaltgasdruck bei einer (angenommenen) mittleren Betriebstemperatur von 500°C. Die Gasmengenangaben in mm³ beziehen sich auf 20°C und 760 Torr.

In Tabelle XXVIII sind alle gemessenen Werte für das im Brennstoff gebundene Spaltgas (wieder aufgeteilt nach Krypton und Xenon) enthalten. Die Messungen wurden hierbei an kleinen Brennstoffproben durchgeführt und die Meßergebnisse auf die in einem Prüfling enthaltene Gesamtmenge an Brennstoff umgerechnet.

In Tabelle XXIX schließlich wird für jeden Prüfling die Spaltgasbilanz aufgestellt.

Tabelle XXVII Freies Spaltgas und Spaltgasdruck

Prüfling	max. Abbrand ++) (MWd/kg M)	Freies Sp Krypton	oaltgas V _F Xenon	(mm ³) Gesamt	Xe/Kr- Verhältnis	Freies Volumen (mm ³)	Spaltgasdruck bei 500 ⁰ C (at)
gerzegentigetingentikgentikgentregenergikter		algalanin angalan ngangangan ngangangan ngangangan ngangangan ngangan ngangan ngangan ngangan ngangan ngangan n Ngangan ngangan ngangangan ngangangan ngangangan ngangangan ngangangan ngangangan ngangangan ngangangan ngangan	afrayferydraufraefnaefnaefnaggefnagfnagfnag	ġġġġġġġĸĸĸĸĸŧĸijĊĊijġġĸijŎĸijŎŴijŎĔŦijţŎĸĸţŎŦĸţĸĬŎIJ	2=====_===_==_========================		ĸĸŔŦſĸġŎĨĸĸĸſĬġŧġĬĬĸĸſĬĬĬĊĸţĊĬĬĊġĊĨĬĊĹŎĨĸĸġĸĸġĸĬġĸijĸĬĸſĸĬſĸĿġŔĸţſĬĬĸIJĬŔĿIJĊŔĸĿĬĬĊĿIJŔĿĿĿŔ
7A-1	41,8	5350	48150	53500	9,0	_+)	_+)
7A-3	46,5	10100	68400	78500	6,8	7527	27,51
7A-5	46,5	9360	53100	62460	5,7	_+)	_+)
7A-6	46,5	9750	65600	75350	6,7	_+)	_+)
7A-7	46,5	7400	63750	71150	8,6	_+)	_+)
7A-9	46,5	9400	62800	72200	6,7	7443	25,59

+) wurde nicht bestimmt ++) nach /147 -99-

Tabelle XXVIII Poren- und Gitterspaltgas

Prüfling	rüfling max. Abbrand		Porenspaltgas (mm ³)		Gitterspaltgas (mm ³)			Xe/Kr-Verhältnis	
	(MWd/kg M)	Krypton	Xenon	Gesamt	Krypton	Xenon	Gesamt	Poren	Gitter
7A-1	41,8	2205	12980	15180	620	5130	5750	5,90	10,1
7A-3	46,5	1900	11880	13780	660	6690	7350	5,70	10,1
7A-5	46,5	2700	15150	17850	520	4750	5250	5,60	9,1
7a-6	46,5	2125	1321	15340	880	8340	9190	6,00	9,8
7A-7	46,5	2089	13020	15110	530	4530	5060	6,25	8,7
7A-9	46,5	2400	17400	19800	480	4520	5000	7,40	8,9

+) nach _14_

Tabelle XXIX Spaltgasbilanz

Prüfling	max. Abbrand) (MWd/kg M)	Freies Sp (mm ³)	paltgas V _F (%)	Porenspal (mm ³)	tgas V _P (%)	Gitterspa (mm ³)	ltgas V _G (%)	Gesamtspaltgas gemessen (mm ³)
7A-1	41,8	53500	71,9	15180	20,4	5750	7,7	74430
7A-3	46,5	78500	78,8	13780	13,8	7350	7,4	99630
7 A- 5	46,5	62460	73,0	17850	20,9	5250	6,1	85560
7A-6	46,5	75350	75,4	15340	15,4	9190	9,2	99880
7A-7	46,5	71150	77,9	15110	16,5	5060	5,6	91320
7A-9	46,5	72200	74,4	19800	20,4	5000	5,2	97000

+) nach / 147

11. Keramografie

Bei der Festlegung der Untersuchungsflächen (Quer- und Längsschliffe) wurden lokal die Stellen der maximalen Hüllwandtemperatur und der maximalen Stableistung bevorzugt. Weiterhin wurden noch zusätzliche Schliffe an die Stellen gelegt, die durch die Röntgen- bzw. Betatronaufnahmen Unstetigkeiten der Brennstoffgeometrie vermuten ließen. Eine vergleichende Auswertung, bei der die Zentralkanalgröße, der Tablettenspalt zur Hülle und die konzentrischen Strukturzonen im Brennstoff vermessen werden, ist nur an Querschliffen möglich, weshalb die wichtigsten Untersuchungsebenen als Querschliffe ausgeführt wurden.

Für die Dokumentation einer Schliffebene wurde folgendes Schema angewandt:

- 1. Totalaufnahme der Untersuchungsebene in 5-facher Vergrößerung(poliert).
- 2. $\beta-\gamma-$ und α -Autoradiografien in 5-facher Vergrößerung (poliert).
- 3. Panorama-Aufnahmen über einen Radius (Vergrößerung 100-fach) poliert und geätzt.
- 4. Detailaufnahmen in 200-facher und 500-facher Vergrößerung poliert und geätzt.

Eine Untersuchung der Hülle wurde nur für den Fall vorgesehen, daß im Brennstoffschliff Hinweise auf eine Wechselwirkung mit dem Brennstoff oder dem Kühlmittel vorlägen. Weiterhin wurden Hüllrohrabschnitte an der Stelle des Flußmaximums (Pos. -100) für elektronenmikroskopische Untersuchungen der Porenbildung entnommen.

In Anhang II sind alle keramografischen Längs- und Querschliffe dokumentarisch zusammengestellt.

12. Radiochemische Abbrandbestimmungen

Aus den Anzeigedaten der Thermoelemente wurde über die thermische Leistung des Bündels der maximale und mittlere Abbrand für die Stäbe errechnet. Für die Außenstäbe, die hinsichtlich der Leistung als gleichwertig angesehen wurden, ergaben sich folgende Werte / 14 / 2:

- Maximaler Abbrand 46.500 MWd/t schwere Elemente
- Mittlerer Abbrand 35.200 MWd/t schwere Elemente

Beim zentralen Stab liegen die entsprechenden Abbrände um etwa 10 % niedriger.

Zur Stützung dieser Rechenwerte wurden insgesamt 10 Abbrand-Bestimmungen auf radiochemischem Wege durchgeführt. Bei zwei Stäben wurde versucht, ein Abbrandprofil durch 3 Analysen zu ermitteln, während 4 weitere nur im Abbrandmaximum mit einer Probe belegt wurden. Der defekte Stab Nr. 4 wurde von den Abbrandanalysen ausgenommen, da in ihm partielles Brennstoffschmelzen aufgetreten war, wodurch eine Abbrandbestimmung über die Spaltprodukte wegen der zu erwartenden Entmischungseffekte unzuverlässig wurde.

Als Abbrandindikatoren für die chemische Analyse wurden die 2 Spaltnuklide Nd-148 und Ce/Pr-144 eingesetzt. Hierbei wurde das Nd-148 als stabiles Nuklid massenspektrometrisch und das aktive Ce/Pr-144 über eine γ -Messung bestimmt.

Die Umrechnung der chemischen Analysenwerte in Abbrandwerte wurde erschwert durch die Tatsache, daß einerseits ein Mischbrennstoff mit mehreren spaltbaren Nukliden vorlag und andererseits das Neutronenspektrum in den Stäben nicht genügend genau bekannt war. Als Basis für die Umrechnung wurden deshalb folgende Daten festgelegt:

- 1.) Spaltung des U-235 = 78 % Spaltung des Pu-239 = 22 % Hierbei wurden die anderen Uran- und Plutonium-Isotope hinsichtlich der veränderten Spaltausbeute für die Abbrandindikatoren vernachlässigt. Die Spaltraten dieser Isotope sind jedoch in den obigen Werten enthalten.
- 2.) Spaltraten: 11 % aus Spaltung mit thermischen Neutronen 89 % aus Spaltung mit epithermischen und schnellen Neutronen.

3.) Spaltausbeuten bei gewichtetem Neutronenspektrum:

	Ce/Pr-144	Nd-148
	<i>რულერელებილერელებიც დე</i> რელებილებ	
U-23 5	5,18 %	1,74 %
Pu-239	3,26 %	1,71 %

4.) Gewichtete Spaltausbeuten für den Mischbrennstoff bei gewichtetem Neutronenspektrum:

У	für	Ce/Pr-144	4,76	%
у	für	Nd-148	1,73	%

-103-

Für die Umrechnung von Prozent gespaltener Atome in MWd/t schwere Elemente wurde 1,07 % Abbrand dem Wert von 10.000 MWd/t gleichgesetzt. Tabelle XXX gibt die Ergebnisse der Abbrandbestimmungen wieder. Die Proben aus dem Abbrandmaximum sind mit einem Stern gekennzeichnet.

Tabelle XXX Radiochemisch bestimmte Abbrandwerte

Stab 7A-	Probe	Abbrand in MWd/t schwere Elemente Ce-144	Abbrand in MWd/t schwere Elemente Nd-148
l	7*	40.500	40.400
3	4	31.300	31.500
	8*	42.800	43.900
	14	31.300	31.000
4	<i>8</i> 73		
5	8*	42.200	43.000
6	5a.	30.800	30.300
	9*	43.800	43.030
	15a	29.400	30.480
7	8	42.200	41.000
9	11*	42.400	43.400

Eine bemerkenswert gute Übereinstimmung zeigt sich zwischen den Abbränden die aus den Ce/Pr-144 und den Nd-148-Analysen ermittelt wurden. Zieht man in Betracht, daß insbesondere für die Ce/Pr-144-Abbrände mehrere gewichtete Mittelungen sowie Korrekturen für radioaktiven Zerfall durchgeführt werden, mußten, so ist die hier erzielte Übereinstimmung wohl eher zufällig. Sie gibt aber doch eine Aussage über die Genauigkeit der Nuklid-Analysen.

Ein Vergleich zwischen den aus den thermischen Daten berechneten Abbränden und den Nd-148-Abbrandwerten ist in Abb. 41 dargestellt. Im Abbrandmaximum liegen die thermischen Werte um etwa 8 % über den radiochemischen. Hierbei ist noch zu berücksichtigen, daß die thermischen Werte den Abbrand als "MWd produced by fission in the fuel pins" ohne Berücksichtigung der γ-Strahlung infolge Spaltung und Neutroneneinfang beinhalten.



- 105 -

Bei der Umrechnung der radiochemischen Analysen wurden hingegen etwa 200 MeV als nutzbare Energie pro Spaltung eingesetzt (Umrechnungsfaktor 1,07 % Abbrand = 10.000 MWd/t M). Die auf die Nd-148-Analysen aufbauende radiochemische Abbrandbestimmung kann als besonders zuverlässig angesehen werden.

13. Schlußfölgerungen

Eine zusammenfassende Wertung dieses Bestrahlungsversuches hat sich an der Aufgabenstellung und am Versuchsziel, wie sie in Kap. 2 formuliert sind, zu orientieren. Es lassen sich folgende Feststellungen treffen:

- 1.) Die vorgesehene maximale Stableistung von 500 W/cm wurde deutlich überschritten, da zum Zeitpunkt der Auslegungsrechnungen der tatsächliche Neutronenfluß im Bestrahlungseinsatz nicht genau genug bekannt war.
- 2.) Die vorgesehene Hüllwandtemperatur von 630°C wurde betriebsmäßig tatsächlich erreicht.
- 3.) Der vorgesehene maximale Abbrand von 60.000 MWd/t M wurde nicht erreicht. Bei einem Abbrandstand von ca. 35.000 MWd/t M trat im Stabbündel eine Undichtigkeit auf. Bei einem maximalen Abbrand von ca. 45.000 MWd/t M wurde der Bestrahlungsversuch dann vorzeitig abgebrochen.
- 4.) Beim Zerlegen des bestrahlten Bündels wurde festgestellt, daß der Stab 7A-4 aufgerissen ist. Alle anderen Stäbe blieben intakt. Die Ursache des Schadens in Stab 7A-4 ist nicht bekannt. Es wird aber angenommen, daß dieser Schaden nicht konzeptbedingt ist, sondern infolge eines Material-, Fertigungs- oder Betriebsfehlers aufgetreten ist.
- 5.) Die sechs intakten Stäbe zeigen nach Bestrahlung nur eine geringfügige Durchmesservergrößerung um 0,1 %. Da ein Stahlschwellen infolge Porenbildung in diesem Neutronenfluß ausgeschlossen ist,

haben wir es mit einer geringfügigen Kriechaufweitung infolge des Brennstoffschwelldruckes zu tun.

- 6.) In der Brennstoffsäule, die in ihrer regelmäßigen Konfiguration erhalten blieb, entstand überall ein gleichmäßiger Zentralkanal. Jede Brennstoffsäule zeigt eine Längsausdehnung von ca. 1 mm.
- 7.) Die Spaltgasfreisetzung war ziemlich gleichmäßig in allen (intakten) Stäben. Sie betrug 70 - 80 %, während etwa 15 - 20 % in den Poren des Brennstoffes und etwa 5 - 10 % im Brennstoffgitter nachgewiesen wurden.
- 8.) Bei den festen Spaltprodukten fällt vor allem die Wanderung des Cäsium nach dem heißen Ende der Brennstoffsäule auf. Diese Cs-Ansammlungen stellen sicher den Ausgangspunkt erhöhter Innenkorrosion dar.
- 9.) Im Verhalten der 3 verschiedenen Hüllmaterialien sind keine wesentlichen Unterschiede festzustellen.
- 10.) Im Stabbündel ist an den Berührungsstellen zwischen Brennstäben und Abstandshaltern keinerlei Reibkorrosion festzustellen. Im strömenden Natrium (mit etwa Prototypreaktor-ähnlichen Bedingungen) trat an den Berührungsstellen lediglich eine gewisse Dunkelfärbung der Hüllrohroberfläche auf.

Weitere Ergebnisse, vor allem hinsichtlich der Spaltgasfreisetzung, der Riß- und Porenverteilung sowie der Innenkorrosion werden zur Zeit in einer detaillierten Auswertung der einzelnen Bestrahlungsphänomene erarbeitet. Ein entsprechender Abschlußbericht ist in Vorbereitung <u>73</u>.

Literatur

/17D. Geithoff, D. Freund, K. Kummerer: Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der UOp-Brennstab-Prüflinge in der FR 2-Kapselversuchsgruppe 3, KFK 1239 (1971) $\sum 2 \sum$ D. Freund: Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der Oxidbrennstabproben im FR 2, KFK 1376 (1972) [3]D. Geithoff, K. Kummerer: Auslegung, Bestrahlung und zerstörungsfreie Nachuntersuchung des U02-Pu02-Brennstab-Bündels DFR-350, KFK 1377 (1972) /47 K. Kummerer: Brennstäbe für Schnellbrüter-Prototypreaktoren, Atomwirtschaft 17 (1972), erscheint demnächst $\sum 5 \sum$ K. Gast, E.G. Schlechtendahl et al.: Schneller Natriumgekühlter Reaktor Na 2, KFK 660 (1967) $\begin{bmatrix} 6 \end{bmatrix}$ W. Borkowetz: Ergänzung zur Spezifikation der Brennstäbe für die Bündelbestrahlung Mol-7A im BR 2, nicht veröffentlicht [7] K. Kleefeldt: Spezifikation und technische Liefer- und Abnahmebedingungen für Brennstabbündel Mol-7A, nicht veröffentlicht $\sqrt{87}$ G. Karsten, H.J. Laue: Spezifikation des Brennstabes für die Bündelbestrahlung Mol-7A im BR 2-Reaktor, nicht veröffentlicht [9] Th. Dippel, K. Kummerer, K.H. Triemer: Herstellung von Brennstäben für die Bündelbestrahlung Mol-7A, nicht veröffentlicht / 10 / H. Herrmann, D. Geithoff: Verlängerung der Brennstoffsäulen in den Brennstäben der Versuchsgruppe Mol-7A, nicht veröffentlicht /11 7 M. Soenen: Experience Gained with the In-pile Sodium Loop for Fast Neutron Irradiation after the First Run in the BR 2 Reactor, IAEA Symposium on Alkali Metal Coolants, Corrosion Studies and System Operating Experience, Wien 1966

[12]	W. Borkowetz, C. Heyne: Bestrahlungsablauf Mol-7A, nicht veröffentlicht
[13]	BR 2-Test Report, nicht veröffentlicht
<u>[14]</u>	BR 2-Calculating Note, nicht veröffentlicht
[15]	BR 2-Test Reports, nicht veröffentlicht
<u>[16]</u>	N. Maene: Dosimetry of BR 2-Irradiations, nicht veröffentlicht
<u>[17]</u>	D. Geithoff: Berichtigung der Bestrahlungsdaten für das Siebenstab-Bündel Mol-7A, nicht veröffentlicht
<u>[18]</u>	W. Borkowetz, D. Geithoff: Die Bestrahlung von SNR-typischen Brennstäben in einem Sieben- Stab-Bündel, Proc. Int. Meet. Fast Reactor Fuel and Fuel Elements, Karlsruhe 1970, 296
[19 <u>]</u>	M. De Donder, J. Prévot: Detection of Failed Fuel Subassemblies by the Sipping Technique, Tagungsbericht Reaktortagung Bonn 1971, 453
<u>[</u> 20 <u>]</u>	H. Enderlein: Übersicht Nachbestrahlungsuntersuchung Mol-7A-Bündel, nicht veröffentlicht
<u>[</u> 21 <u></u>]	D. Geithoff: Die Bestrahlungs-Nachuntersuchung von SNR-Prototyp-Brennstäben aus einem Sieben-Stab-Bündel, Tagungsbericht Reaktortagung Bonn 1971, 586
[22]	H. Gräbner: Spaltgasmessungen, nicht veröffentlicht
[23_]	W. Dienst et al.: Auswertung der Untersuchungsergebnisse an dem Brennstab-Bündel Mol-7A, KFK-Bericht, demnächst

-110	
------	--

Liste der Tabellen

Tabelle	Thema	Seite
T	Umfangskriechdehnung der Hülle	8
II	Spezifikationen für die Brennstäbe Mol-7A	9
III	Chemische Zusammensetzung der Hüllwerkstoffe	14
IV	Bezeichnung und Verwendung der Brennstäbe	20
v	Isotopenzusammensetzung der Ausgangspulver für den Brennstoff	21
VI	Chemische Verunreinigungen der Ausgangspulver	22
VII	Kenndaten der sinterfähigen Pulver	22
VIII	Mischprotokoll für den Brennstoff	23
TX.	Analyse der Brennstoff-Pulvermischung	23
Х	Analysen an Brennstofftabletten	26
XI	Hüllrohre und Hüllrohrprüfung	28
XII	Gesamtwerte für die Brennstoffsäulen	30
XIII	Gesamtwerte für die Brutstoffsäulen	30
XIV	Dichtheitsprüfung an den Brennstäben mit He-Lecksuch- Massenspektrometer	31
XV	Schweißnahtprüfung mit Röntgen-Durchstrahlung	32
XVI	Kontamination der Staboberflächen	35
XVII	Äußere Abmessungen und Gewichte der fertigen Stäbe	36
XVIII	Länge der Tablettensäulen vor der Bestrahlung	39
XIX	Innere Geometrie der Stäbe und Brenn s toffdichte	40
XX	Abstandshalter	41
XXI	Ablauf der Bestrahlung	54
XXII	Fluß- und Dosismaxima für 3 Energiebereiche	53
XXIII	Axiale Verteilung des Abbrandes der Außenstäbe	59
VIXX	Vermessung der Brennstoff- und Brutstoff-Säulenlängen	79
XXV	Vermessung der Gesamtsäulenlängen	81
XXVI	Durchbiegung der Stäbe Mol-7A	85
XXVII	Freies Spaltgas und Spaltgasdruck	99
XXVIII	Poren- und Gitterspaltgas	100
XXIX	Spaltgasbilanz	101
XXX	Radiochemisch bestimmte Abbrandwerte	104

Liste der Abbildungen

Abb.	Titel	Seite
]	Konstruktion des Brennstabes	11
2	Autoradiographie einer Brennstofftablette	25
3	Schliffaufnahme vom Zentrum der Tablette	25
4	Schliffaufnahme vom Tablettenrand	25
5	Schliffbilder der Schweißnähte	33
6	Röntgen-Aufnahmen der 9 Stäbe nach der Fertigung in Karlsruhe	37
7	Röntgen-Aufnahmen der 8 nach Mol transportierten Stäbe vor der Bestrahlung	37
8	Anordnung der Stäbe und Abstandshalter im Bündel	42
9	Bündelquerschnitt	43
10	Brennstabhalterung Mol-7A	44
11	Abstandhalter	45
12	GfK-CEN In-Pile Sodium Loop "Mol-7A"	47
13	Bündel und Brennstab Mol-7A	48
14	General Disposition of the Loop in the Reactor Channel	49
15	Meßstellen im Na zur Bestimmung der Hülltemperaturen der Prüflinge	e 50
16	Axiale Position von Bündel und Brennstab im BR 2	51
17	Axiale Verläufe von Fluß, mittlerer Stableistung, -Hüllmitten- temperatur und -Abbrand über alle Zyklen der 6 äußeren Stäbe	55
18	Mittlere Stableistung der äußeren Stäbe für verschiedene Quer- schnitte	57
19	Hüllmittentemperatur der äußeren Stäbe	58
20	Orientierung der Betatron-Durchleuchtung	62
21	Betatron-Durchleuchtung des Stab-Bündels Mol-7A	63
22	Röntgen-Umleuchtung des Stab-Bündels Mol-7A	67
23	Mittleres Na-Leitrohr mit Heizleitern, Thermoelementen und Na-Resten	71
24	Unteres Bündelende während der Zerlegung	72
25	Stabschäden zwischen Abstandshalter 7 und 8	73

Abb.	Titel	Seite
26	Abstandshalter nach der Demontage des Stab-Bündels	74
27	6 intakte Stäbe nach der Bündelzerlegung	77
28	Defekter Stab 4 nach der Bündelzerlegung	77
29	Durchmesserveränderung der Stäbe 1, 3 und 5 nach der Bestrahlung	82
30	Durchmesserveränderung von Stab 4 nach der Bestrahlung	83
31	Durchmesserveränderung der Stäbe 6, 7 und 9 nach der Bestrahlung	84
32	Mol-7A Stab 1, Integrales y-Profil	89
33	" Stab 3, " " "	90
34	" " Stab 4, " " "	91
35	"Stab 5, """	92
36	" Stab 6, " " "	93
37	" Stab 7, " " "	94
<u>3</u> 8	"Stab 9, """	95
39	" Stab 9, " " " Untere Brutstoffsäule mit Sinterstahlfilter	96
40	Mol-7A, y-Profil im Energiebereich 700 - 780 keV	97
41	Mol-7A, Vergleich der radiochemischen (Nd-148) und thermisch errechneten Abbrände	105

Anhang I

......

Tablettenlisten, Tabellen 1 bis 9

Tabelle 1Tablettensäule für Stab 7A-1Hüllrohr-Nr. 221 B/a

	Lage der geprüften Tabletten	Gewicht (g)	Tabl Höhe (mm)	ettenda Durchmesser (mm)	t e n Materialdichte (% th.D.)
Ohere	5	1,3374	6,25	5,09	95,90
Brutzone	10	1,3087	6,23	5,05	95,70
16 Tabletten	15	1,3221	6,255	5,07	95, <u>5</u> 0
in an	5	1,0638	5,55 ₅	5,025	87,90
	10	1,0670	5,56	5,02	88,20
	15	1,0755	5,58 ₅	5,02	88,50
	20	1,0606	5,55	5,01	88,10
	25	1,0760	5,58	5,02 ₅	88,50
	30	1,0668	5,58	5,01	88,20
	35	1,0611	5,56	5,00	88,40
Brennstoff-	40	1,0547	5,55	5,01	87,70
zone	45	1,0750	5,58	5,02	88,50
90 Tabletten	50	1,0619	5,55	5,01	88,20
	55	1,0673	5,57 ₅	5,01	88,30
	60	1,0565	5,56	5,01 ₅	87,50
	65	1,0626	5,54 ₅	5,01	88,40
	70	1,0572	5,55	5,01	87,50
	75	1,0500	5,54	5,00	87,80
	80	1,0513	5,51 ₅	5,00	88,30
	85	1,0673	5,58	5,01	88,00
	90	1,0628	5,55	5,02	88,0 ₀
Untere	5	1,3196	6,22	5,07	95,70
Brutzone	10	1,3251	6,255	5,06 ₅	95,95
16 Tabletten	15	1,3277	6,25	5,075	95,80

Tabelle 2Tablettensäule für Stab 7A-2Hüllrohr-Nr. 214 B/a

	Lage der geprüften Tabletten	Gewicht (g)	Tabl Höhe (mm)	ettenda Durchmess e r (mm)	t e n Materialdichte (% th.D.)
Ohere	5	1,3114	6,235	5,07	95,45
Brutzone	10	1,3282	6,26	5,07 ₅	95,70
16 Tabletten	15	1,3110	6,22	5,06	95,60
	5	1,0597	5,64	5,07	84,60
	10	1,0563	5,63 ₅	5,06	84,80
	15	1,0523	5,64	5,05	84,75
	20	1,0395	5,63	5,05 ₅	83,70
	25	1,0538	5,64 ₅	5,07	84,00
	30	1,0567	5,64	5,06 ₅	84,60
	35	1,0631	5,65	5,055	85,20
Brennstoff-	40	1,0562	5,64 ₅	5,065	84,50
zone	45	1,0490	5,645	5,055	84,20
89 Tabletten	50	1,0709	5,65	5,065	85,60
	55	1,0612	5,64	5,06	85,10
	60	1,0706	5,65	5,07	85,30
	65	1,0660	5,665	5,05	85,40
	70	1,0514	5,62	5,08	84,50
	75	1,0514	5,64	5,075	83,80
	80	1,0486	5,61	5,07	84,20
	85	1,0555	5,65	5,06	84,50
Untere	5	1,3278	6,27	5,085	95,15
Brutzone	10	1,3516	6,33	5,095	95,60
16 Tabletten	15	1,3273	6,26	5,07	95,80

Tabelle 3Tablettensäule für Stab 7A-3Hüllrohr-Nr. 211 B/b

	Lage der geprüften Tabletten	Gewicht (g)	Tabl Höhe (mm)	e t t e n d a Durchmesser (mm)	t e n Materialdichte (% th.D.)
Ohere	5	1,3353	6,29	5,07	95,95
Brutzone	10	1,3318	6,285	5,075	95,50
16 Tabletten	15	1,3260	6,27	5,08	95,20
ing and a first of generalized and a first of generalized and a first of generalized and generalized and general	5	1,0655	5,54	5,01	88,70
	10	1,0706	5,55	5,015	88,30
	15	1,0659	5,54	5,02	88,40
	20	1,0693	5,56	5,00	88,70
	25	1,0760	5,55	5,00	89,90
	30	1,0495	5,51	5,00	88,10
	35	1,0774	5,55	5,03	88,90
Brennstoff-	40	1,0687	5,56 ₅	5,02	88,20
zone	45	1,0618	5,54	4,99	89,00
90 Tabletten	50	1,0740	5,58	5,01	88,80
	55	1,0657	5,55	5,01	88,20
	60	1,0559	5,51	5,00	88,70
	65	1,0664	5,55	5,00	89,00
	70	1,0479	5,47	5,00	88,70
	75	1,0789	5,57	5,01	89,30
	80	1,0479	5,51	4,99	88,40
	85	1,0683	5,60	5,05	86,60
	90	1,0650	5,55	4,98	89,60
Untere	5	1,3382	6,32	5,07 ₅	95,45
Brutzone	10	1,3285	6,29	5,065	95,60
15 Tabletten	15	1,3400	6,31	5,075	95,75

Tabelle 4Tablettensäule für Stab 7A-4Hüllrohr-Nr. 143 B/a

	Lage der geprüften Tabletten	Gewicht (g)	Tabl Höhe (mm)	ettendat Durchmesser (mm)	e n Materialdichte (% th.D.)
Ohere	5	1,3231	6,25	5,045	96,50
Brutzone	10	1,3300	6,26	5,065	96,20
16 Tabletten	15	1,3220	6,24 ₅	5,045	96,60
	5	1,0603	5,53	5,00	88,90
	10	1,0617	5,56	5,01	88,10
	15	1,0745	5,62	5,02	87,90
	20	1,0645	5,54	5,01	88,60
	25	1,0707	5,57	5,01	88,70
	30	1,0630	5,55	5,00	88,80
	35	1,0740	5,56	5,00	89,50
Brennstoff-	40	1,0696	5,56 ₅	5,00	89,00
zone	45	1,0700	5,56	5,00	89,10
90 Tabletten	50	1,0640	5,57	5,00	88,70
	55	1,0645	5,55	4,99	89,10
	60	1,0446	5,47	4,98	89,10
	65	1,0640	5,52	5,00	89,20
	70	1,0585	5,53	5,00	88,60
	75	1,0600	5,52	5,00	88 ,90
	80	1,0500	5,53	4,99	87,90
	85	1,0788	5,59	5,00	89,40
	90	1,0563	5,54	5,00	88,30
Untere	5	1,3382	6,32	5,05	96,40
Brutzone	10	1,3427	6,27	5,05	97,50
16 Tabletten	15	1,3377	6,27	5,07	96,40

Tabelle 5Tablettensäule für Stab 7A-5Hüllrohr-Nr. 701

	Lage der geprüften Tabletten	Gewicht (g)	Table Höhe (mm)	ettenda Durchmesser (mm)	t e n Materialdichte (% th.D.)
Ohere	5	1,3293	6,27	5,06 ₅	96,00
Brutzone	10	1,3209	6,25	5,045	96,45
16 Tabletten	15	1,3292	6,27	5,05	96,50
Ally and a second s	5	1,0738	5,57 ₅	5,01	88,85
	10	1,0459	5,47	5,00	88,60
<i>.</i>	15	1,0634	5,58	5,01 ₅	87,80
	20	1,0685	5,54 ₅	5,01	88,90
	25	1,0590	5,61	5,04	86,00
	30	1,0735	5,59 ₅	5,02	88,20
	35	1,0699	5,55	5,01	89,00
Bronnetoff	40	1,0755	5,56 ₅	5,02	88,90
zone	45	1,0431	5,47	4,99	83,70
90 Tabletten	50	1,0609	5,58	5,06	86,00
	55	1,0604	5,50 ₅	4,99	89,50
	60	1,0591	5,50	5,00	89,10
	65	1,0691	5,59	5,01	88,20
	70	1,0725	5,60	5,02	88,00
	75	1,0718	5,52 ₅	5,01	89,50
	80	1,0360	5,48	4,99	87,90
	85	1,0425	5,50	5,04	86,40
	90	1,0810	5,565	5,01	89,60
Untere	5	1,3253	6,27	5,05	96,30
Brutzone	10	1,3099	6,225	5,03 ₅	96,40
16 Tabletten	15	1,3342	6,27	5,06	96,50

Tabelle 6Tablettensäule für Stab 7A-6Hüllrohr-Nr. 55 b

	Lage der geprüften Tabletten	Gewicht (g)	Tabl Höhe (mm)	ettenda Durchmesser (mm)	t e n Materialdichte (% th.D.)
Ohere	5	1,3238	6,26	5,045	96,50
fBrutzone	10	1,3305	6,26	5,04	97,30
16 Tabletten	15	1,3181	6,24	5,03 ₅	96,80
	5	1,0703	5,55	5,00	89,25
	10	1,0661	5,55 ₅	5,01	88,50
	15	1,0693	5,55	5,00	89,20
	20	1,0681	5,54	5,00	89,80
	25	1,0516	5,52	4,99	88,60
	30	1,0465	5,54 ₅	5,01	87,00
	35	1,0633	5,575	5,03	86,80
Brennstoff_	40	1,0505	5,55	5,00	87,20
zone	45	1,0500	5,57	5,035	86,00
90 Tabletten	50	1,0585	5,56	5,01	87,30
	55	1,0565	5,53	5,00	88,40
	60	1,0643	5,53	5,00	89,10
	65	1,0648	5,55 ₅	5,00	88,85
	70	1,0626	5,55	5,00	88,70
	75	1,0739	5,58 ₅	5,04	87,70
	80	1,0645	5,57	5,025	87,70
	85	1,0746	5,56 ₅	5,04	88,00
	90	1,0643	5,56	5,00	88,20
Untere	5	1,3140	6,24	5,04 ₅	96,20
Brutzone	10	1,3105	6,23	5,035	96,40
16 Tabletten	15	1,3103	6,23 ₅	5,045	95,90

	Lage der geprüften Tabletten	Gewicht (g)	Table Höhe (mm)	t t e n d a f Durchmesser (mm)	t e n Materialdichte (% th.D.)
Obere	5	1,3254	6,27	5,06	95,90
Brutzone	10	1,3387	6,30	5,05	96,70
16 Tabletten	15	1,3506	6,27	5,08	96,90
	5	1,0724	5,56	5,02	88,70
	10	1,0611	5,56	5,01	88,00
	15	1,0500	5,58 ₅	5,025	86,20
	20	1,0662	5,56	5,03 ₅	87,60
	25	1,0400	5,48	4,99	88,20
	30	1,0635	5,58	5,04	86,90
	35	1,0754	5,60	5,02 ₅	88,10
Brennstoff_	40	1,0708	5,57 ₅	5,01	88,60
zone	45	1,0736	5,60	5,05	87,00
90 Tabletten	50	1,0690	5,58 ₅	5,02	88,00
	55	1,0542	5,53 ₅	5,00	88,20
	60	1,0809	5,58	5,01	89,30
	65	1,0570	5,50	5,00	89,00
	70	1,0493	5,49 ₅	5,06	86,30
	75	1,0522	5,60	5,02	86,30
	80	1,0728	5,55	5,07	87,00
	85	1,0808	5,56	5,05	88,20
	90	1,0543	5,56	5,03 ₅	86,60
Untere	5	1,3303	6,275	5,05	96,50
Brutzone	10	1,3370	6,28	5,06 ₅	96,40
16 Tabletten	15	1,3355	6,27	5,055	96,80

Tabelle 8Tablettensäule für Stab 7A-8Hüllrohr-Nr. 685 B/a

	Lage der geprüften Tabletten	Gewicht (g)	Table Höhe (mm)	ettenda Durchmesser (mm)	t e n Materialdichte (% th.D.)
Ohere	5	1,3213	6,26	5,045	96,35
Brutzone	10	1,3286	6,27	5,04	96,90
16 Tabletten	15	1,3312	6,265	5,035	97,20
	5	1,0878	5,60	5,03	88,90
	10	1,0714	5,65	5,05	86,10
	15	1,0957	5,60	5,02	89,90
	20	1,0829	5,63	5,04	87,85
	25	1,0866	5,63	5,05	87,70
	30	1,0869	5,60	5,01	89,55
	35	1,0812	5,60 ₅	5,02 ₅	88,50
Brennstoff-	40	1,0839	5,605	5,03	88,50
zone	45	1,0882	5,57	5,01	89,00
90 Tabletten	50	1,0853	5,59 ₅	5,03	88,80
	55	1,0624	5,55 ₅	5,01 ₅	87,95
	60	1,0798	5,58	5,03	88,60
	65	1,0828	5,59	5,06	87,60
	70	1,0906	5,59	5,03	89,25
	75	1,1014	5,75	5,06	86,65
	80	1,0900	5,63	5,06	87,60
	85	1,0786	5,58	5,02	88,90
	90	1,0959	5,59	5,01	90,40
Untere	5	1,3386	6,265	5,04	97,60
Brutzone	10	1,3259	6,27	5,045	97,00
16 Tabletten	15	1,3270	6,27	5,06	96,00

Tabelle 9Tablettensäule für Stab 7A-9Hüllrohr-Nr. 294 B/b

	Lage der geprüften Tabletten	Gewicht (g)	Table Höhe (mm)	ttendat Durchmesser (mm)	e n Materialdichte (% th.D.)
Ohere	5	1,3208	6,26	5,045	96,40
Brutzone	10	1,3162	6,25	5,05	95,30
16 Tabletten	15	1,3082	6,23	5,04	96,00
	5	1,0771	5,58 ₅	5,04 ₅	87,80
	10	1,0680	5,57	5,01	88,50
	15	1,0698	5,55	5,01	88,90
	20	1,0700	5,56	5,005	89,20
	25	1,0808	5,57 ₅	5,00	90,00
	30	1,0778	5,54	5,01	89,80
	35	1,0588	5,48	5,00	89,50
Brennstoff-	40	1,0599	5,54 ₅	5,00	88,60
zone	45	1,0784	5,57	5,01 ₅	89,10
90 Tabletten	50	1,0685	5,54	5,015	88,80
	55	1,0614	5,51	4,995	89,40
	60	1,0784	5,53 ₅	5,01	89,90
	65	1,0547	5,57 ₅	5,01 ₅	87,10
	70	1,0683	5,59	5,005	88,30
	75	1,0699	5,59 ₅	5,04	87,10
	80	1,0802	5,58	5,02	89,00
	85	1,0635	5,59	5,05	86,30
	90	1,0684	5,57	4,99	89,20
Untere	5	1,3214	6,24	5,04 ₅	96,60
Brutzone	10	1,3203	6,25	5,05	96,20
16 Tabletten	15	1,3151	6,24	5,06	95,50

Anhang II

Dokumentation der Nachuntersuchung

Es wurde pro Stab ein fünfseitiges Faltblatt zusammengestellt. Die Titelseite (Seite ganz rechts) enthält die Material- und Bestrahlungsdaten für den Prüfling. Nach links schließen sich 4 DIN A4-Seiten mit der eigentlichen Dokumentation an. Hierin sind dargestellt:

- a) eine Betatrondurchstrahlung der Spaltstoffsäule,
- b) eine Zeichnung des gesamten Stabes,
- c) in 3 Zeilen angeordnet: keramografische Längs- und Querschliffe (als Übersichtsaufnahmen) und hierzu die α - und ß-Autoradiografien.

Die Lage der Schliffe ist durch Pfeile in der Stabzeichnung markiert. Vor jedem dieser 7 Faltblätter sind auf mehreren Seiten Detailaufnahmen der dargestellten Keramografien (in Vergrößerung) eingefügt.

Auf einem weiteren Faltblatt sind außerdem die Röntgenaufnahmen von 4 Prüflingen (7A-1, -4, -5 und -7) dargestellt. Man erkennt auf dieser Seite z.T. sehr gut die einzelnen Tabletten und deren Schädigung (z.B. Stab 7A-1 im Brutstoff). -124zu Prüfling 7A-1 A1





-125zu Prüfling 7A-1 A2





⊢____I 0,1mm



ŀ

0,1mm

⊢–**ı** 0,1mm - 126 zu Prüfling 7A-1 A 3



⊢ 0,1 mm









 \mathbf{F}

0,1mm

- 127zu Prüfling 7A-1

Α4



A5

á



⊢–ı 0,1mm







	A STATUTE AND A STATUTE AN
	And the second
atten	
°u0 ₂	
7% th.D.	
	E A CONTRACTOR A CON
ım	
- m m	a printeria in printerio andre a
nisal yong gang di Kilin (yong yang gan ang barang barang barang barang barang barang barang barang barang bar	and the second
mm	
mm	
mm	
% th.D.	
atrium Loop 475	
ollasttage	
ept. 1970	n an
MWd/kg Metall	
390 W/cm	



- 132 -

zu Prüfling 7A-3

Α3



Α4



⊢–**ı** 0,1mm
-133-

zu Prüfling 7A-3

Α5





-134-

zu Prüfling 7A-3









	-77		
	Prüflin	g	7A - 3
Brennstoff :			
Form		:	Table
Zusammenset	zung	:	U0 ₂ -P
Tablettendichte	ş	:	88,80
Hülle:			
Material		:	4988
Aussendurchm	esser	:	6,0 m
Wandstärke		:	0,374
Geometrie :			
Länge des Prüf	lings	:	1080
Länge der Bren	nstoffsäul	e :	700
Radiale Spaltw	eite	:	0,234
Schmierdichte		:	81,03
Bestrahlung	g:		
Einrichtung		:	BR2 N
Dauer	-	:	139 Vo
Ende		:	11. S
Rechn. Abbranc	d mittl:	:	35,21
Stableistung	max./mittl	.:	590 /

-135-







⊢–**1** 0,1mm ⊢____ 0,1 mm









⊢– 10,1mm





-142 zu Prüfling 7A-4 A9



⊢____I 0,1mm

0,1mm







-145-



ŀ	
etten	
Pu ⁰ 2	
0% th.D.	
nm	
2 mm	
mm	
mm	
5 mm	
7% th.D.	
Natrium Loop 5475	
Vollasttage	
Sept. 1970	-
MWd/kg Metall	
/ 430 W/cm	
	r

-147zu Prüfling 7A-5

A1

A 2

7b-Mol7a-

⊢____ı 0,1mm





-149 -

zu Prüfling 7A-5

A5















tten	
u ⁰ 2	
% th.D.	
m	
mm	
mm	
mm	
mm	
% th.D.	
atrium Loop 1475	
ollasttage	
ept. 1970	
MWd/kg Metall	
430 W/cm	
	-

- 153zu Prüfling 7A-6

⊢–⊣ 0,1mm 1mm



-154zu Prüfling 7A-6 A3





I-----I 0,1mm

-155zu Prüfling 7A-6

Α4



Α5



⊢---i 0,1mm







ten	
102	
6 th.D.	
516	
n	
mm	
am nm	
mm	
% th.D.	
atrium Loop 475	
ollasttage ept. 1970	
MWd/kg Metall	
430 W/cm	
	ł



-160zu Prüfling 7A-7 A 2



⊢–-1 0,1mm



0,1mm



-162zu Prüfling 7A-7 A 5








-166 -

zu Prüfling 7A 9

Α4





-168zu Prüfling 7A-9 A7













-	-169 -	
۰Pri	ifling	7A - 9
Brennstoff :		
Form	:	Tablet
Zusammensetzung] :	U0 ₂ -Pu
Tablettendichte	:	88,71%
Hülle :		
Material	:	4988
Aussendurchmess	er :	6,0 mm
Wandstärke	:	0,378
Geometrie :		
Länge des Prüfling	s :	1080 m
Länge der Brennsto	ffsäule :	700 m
Radiale Spaltweite	:	0,227
Schmierdichte	e •	81,17%
Bestrahlung:		
Einrichtung	:	BR2 Nat GEX 541
Dauer	:	139 Vo:

Rechn. Abbrand mittl: : 35,2 MWd/kg Metall

Ende

Stableistung max./mittl.: 590 / 430 W/cm









