

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

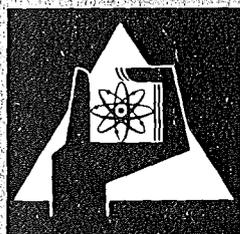
Januar 1973

KFK 1727

Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Schneller Brüter

Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten
 UO_2 - PuO_2 -Brennstäben der Versuchsgruppe FR 2 – 4a

W. Dienst, O. Götzmann, H. Kleykamp,
G. Ondracek, B. Schulz, H. Zimmermann



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1727

Institut für Material- und Festkörperforschung

Projekt Schneller Brüter

Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den
bestrahlten UO_2 - PuO_2 -Brennstäben der Versuchs-
gruppe FR 2 - 4a

von

W.Dienst, O.Götzmann, H.Kleykamp
G.Ondracek, B.Schulz, H.Zimmermann

unter Mitarbeit von

J.Biel, J.Burbach, G.Gausmann,
H.-D.Gottschalg, G.Halm, K.Spieler

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

Dieser Bericht beruht auf Bestrahlungsdaten und Untersuchungsergebnissen aus den Heissen Zellen, für deren Zusammenstellung und Aufbereitung bzw. Erarbeitung und Vorauswertung wir allen beteiligten Mitarbeitern von IMF/LB und RB/Z danken, im besonderen den Herren W.Ernst, D.Freund, D.Geithoff (IMF) und H.Enderlein, W.Hellriegel, R.Pejsa, B.Schweigel (RB/Z).

Als Manuskript eingereicht am 11.12.1972

Zusammenfassung

In der Kapselbestrahlungs-Versuchsgruppe FR 2-4a wurden kurze UO_2 -15% PuO_2 -Brennstäbe (Brennstofflänge 80 mm) mit einem Aussendurchmesser von 7,4 mm bei mittleren Stableistungen von etwa 350-550 W/cm bis zu Abbränden von 10-95 MWd/kg(U+Pu) bestrahlt.

Zur Ermittlung der Brennstofftemperaturverteilung wurde eine thermische Analyse durchgeführt, der die Annahme einer konstanten Wärmequellichte zugrunde lag. Zur Berücksichtigung der Brennstoffporosität wurde bis zum Reaktorzyklus höchster Stableistung ein 1-Zonen-Modell verwendet, anschliessend ein 2-Zonen-Modell mit festen Radien für den Zentralkanal, den Säulenkristall- und den Kornwachstumsbereich. Für den Wärmeübergang zwischen Brennstoff und Hülle wurden Werte von $0,5 \text{ W/cm}^2 \cdot ^\circ\text{C}$ bzw. $1,0 \text{ W/cm}^2 \cdot ^\circ\text{C}$ ausgewählt. Die Brennstoffzentraltemperatur überschreitet in einigen Fällen den Schmelzpunkt. Im Bereich hohen Abbrandes ergab sich wegen des begrenzten Neutronenflusses im FR 2 ein starkes Absinken der Stableistung und der Zentraltemperatur.

Die erzeugten Spaltgasmengen wurden in drei Stufen als freies Spaltgas, in grossen Blasen zurückgehaltenes Spaltgas sowie in kleinen Blasen und im Kristallgitter zurückgehaltenes Spaltgas gemessen. Das geschah durch Anbohren der Brennstabhülle, durch Mahlen des Brennstoffes sowie durch chemisches Auflösen des Brennstoffes. Dadurch ergaben sich ziemlich zuverlässige Werte für die Spaltgasrückhaltung, die die Aufstellung einer Formel für die mittlere Spaltgasfreigabe aufgrund eines 3-Temperaturzonen-Modelles gestatteten. Die Einzelmesswerte streuten jedoch über die volle Breite des Literaturdatenbandes, so dass die Formel zwar zur Analyse des Brennstabverhaltens brauchbar erscheint, aber nicht für die Brennstabauslegung.

Die Untersuchung der Leervolumen-Verteilung an Brennstabquerschnitten erfolgte durch Ermittlung von Rissbreiten und Zentralkanaldurchmessern sowie durch Vermessung der Porosität mit einem elektronischen Gefügebild-Analysator. Es ergaben sich ziemlich grosse systematische Fehler, die bei der üblichen keramographischen Präparation der verwendeten Schliffproben schwer zu überwinden sind. Die Verfolgung der Rissbreitenänderung mit steigendem Abbrand sowie eine Porositätskorrektur mittels der Leervolumen-Bilanz liess trotzdem einige qualitative und halb-

quantitative Schlüsse zu: Es ergibt sich ein systematischer Zusammenhang zwischen Zentralkanalquerschnitt und maximaler Stabileistung sowie ein typischer Verlauf der Porosität über dem Brennstoffradius. Bei hoher Stabileistung wird der Brennstoffdurchmesser schnell (im Abbrandbereich ≤ 10 MWd/kg) bis zum Kontakt mit der Hülle vergrössert, wahrscheinlich durch Spaltgasschwellung der inneren, plastischen Brennstoffzone. Die dabei in breiten Rissen der äusseren Brennstoffzone verbleibenden Leervolumenanteile werden erst bei Abbränden oberhalb 30 MWd/kg nachweisbar für Brennstoffverlagerungen in Anspruch genommen. Die Porosität der äusseren Brennstoffzone wird unter Bestrahlung durch Brennstoffschwellen oder Nachsintern vermindert. Bei einer Brennstoffsinterdichte von etwa 92% TD findet keine wesentliche Nachsinterung statt. Die Ergebnisse an 84% TD Proben legen dagegen die Annahme einer beträchtlichen Nachsinterung nahe.

Die Zusammensetzung und die Verteilung der Spaltprodukt-Verbindungen sowie die Uran/Plutonium-Entmischung wurden durch Mikrosondenanalyse untersucht. Im Brennstoff und im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle konnte eine grosse Zahl von metallischen und oxidischen Spaltproduktphasen aufgefunden werden, die teilweise auch Hüllmaterialkomponenten enthalten. Metallische Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Ausscheidungen treten im gesamten Brennstoff auf; dabei steigt das Mo/Ru-Verhältnis mit zunehmendem Abstand vom Zentralkanal. Freies Te und Pd-haltige Phasen mit flüchtigen Spaltprodukten oder Hüllmaterialkomponenten treten vorzugsweise in der äusseren, porösen Brennstoffzone und im Spalt auf. Die oxidischen Phasen bestehen hauptsächlich aus Ba-Cerat, -Ferrit, -Molybdat und -Zirkonat und werden vorwiegend in der äusseren, porösen Zone, aber auch in anderen Bereichen des Brennstoffs gefunden. Cs-Molybdat und -Chromat werden nur im Spalt identifiziert. Die Oxidationsreaktion an der Hüllinnenseite führt zu Cr-Anreicherungen an den Korngrenzen oder an der Hülloberfläche, während metallische Fe-Ni-Anteile durch die Reaktionszone von der Hülle getrennt zurückbleiben.

Die radiale U/Pu-Entmischung des Brennstoffes im Temperaturgradienten führte zu einer Pu-Anreicherung am Zentralkanal, die zwischen 23 und 26% PuO₂ lag (gegenüber ursprünglich 15%) und für den Brennstoff höherer Sinterdichte niedriger war als für denjenigen niedriger Dichte. Bei α -autoradiographischen Gefügeuntersuchungen wurden auch Pu-Anreiche-

rungen durch radiale Entmischung am Brennstoffrand und durch axiale Entmischung im Zentralkanal gefunden. Sie werden in typischen Bildern gezeigt.

Die Beurteilung der chemischen Verträglichkeit zwischen dem UO_2 - PuO_2 -Brennstoff mit einem ursprünglichen O/M-Verhältnis von $1.98 \pm 0,015$ und der Hülle aus nichtrostendem austenitischen Cr-Ni-Stahl X8CrNiMoVNb16 13 (Werkstoff-Nr.4988) war schwierig wegen der schwankenden thermischen Bedingungen unter Bestrahlung. Anscheinend ergab sich immer dann ein deutlicher chemischer Angriff auf die Hüllinnenseite, wenn ihre Temperatur für längere Zeit oberhalb $500^\circ C$ lag. Er erfolgte meistens als Korngrenzenangriff und erreichte eine maximale Eindringtiefe von $110 \mu m$. Eine systematische Abbrandabhängigkeit war nicht erkennbar.

Evaluation of the investigation results on the irradiated
UO₂-PuO₂ fuel rods of the test series FR 2 - 4a

Abstract

In the capsule-irradiation test series FR 2 - 4a, short UO₂-PuO₂ fuel rods (80 mm fuel length) of 7.4 mm outer diameter were irradiated at mean rod powers of about 350-500 W/cm to 10-95 MWd/kg (U+Pu) burnup.

To calculate the fuel temperature profile, a thermal analysis was made assuming constant heat source density. The influence of fuel porosity was taken into consideration by a 1-zone-model, till the reactor cycle of maximum rod power had been reached. It was followed by a 2-zone-modell with fixed diameters of the central void, of the columnar grain region and of the grain growth region. For the heat transfer between fuel and cladding values of 0.5 W/cm²·°C (1-zone-model) and 1.0 W/cm²·°C (2-zone-model) were chosen. Fuel central temperatures in some cases exceeded the melting point. At high burnups the limited neutron flux resulted in a strong decrease of rod power and central temperature.

The amount of fission gas was measured in 3 steps as released fission gas, fission gas retained in large bubbles and fission gas retained in small bubbles and crystal lattice sites. This was done by piercing the fuel rods, by grinding the fuel and by chemical solution of the powdered fuel. By this means, rather reliable values of fission gas retention were obtained, which allowed to suggest a formula for the average fission gas retention based on a 3-temperature-zone model. However, the measuring values scattered to the full extent of the literature data. Therefore the formula appears useful for analysing fuel rod performance, but not for fuel rod design.

The void volume distribution in fuel rod cross-sections was investigated by measuring crack widths, central hole diameters, and porosity. Porosity was measured by an electronic micrograph analyser. Large systematic errors resulted, which can be scarcely avoided by the usual ceramographic preparation. Nevertheless, following the tendency of crack width changes with increasing burnup and correcting the porosity values by a void-volume balance allowed some qualitative and semi-quantitative conclusions: A systematic dependence of the central-void cross-section

on the maximum fuel rod power could be found as well as a typical shape of the radial porosity profile. At high rod power the fuel diameter is rapidly (at burnups ≤ 10 MWd/kg) increased to contact the cladding, probably by fission gas swelling of the inner, plastic fuel zone. The void-volume portions remaining as wide cracks in the outer fuel zone apparently do not begin to disappear by fuel displacement, till burn-ups above 30 MWd/kg have been reached. Porosity in the outer fuel zone is reduced under irradiation by fuel swelling or irradiation-induced sintering. Fuel pellets of 92% TD showed essentially no irradiation sintering. On the other hand, the results of 84% TD pellets suggest a considerable in-pile sintering.

Fission-product compound composition and distribution as well as plutonium redistribution was examined by microprobe analysis. A large number of fission product metal and oxide phases could be found in the fuel and in the gap between fuel and cladding. Metallic Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-precipitates exist throughout the fuel, the Mo/Ru proportion increasing with the distance from the central hole surface. Free Te and Pd-containing phases with volatile fission products or with cladding components exist preferably in the porous outer fuel zone and in the gap. The oxide phases mainly consisting of Ba-cerate -ferrite, -molybdate and -zirconate are mostly observed in the porous outer zone, but also in other fuel regions; Cs-molybdate and -chromate are found only in the gap. The oxidizing reaction at the inner cladding surface leaves Cr enriched in the grain boundaries or in a surface layer, and metallic Fe-Ni separate from the cladding.

Radial fuel redistribution resulted in a Pu-enrichment around the central void amounting to 23-26% PuO₂ (original content 15%). The enrichment was lower in fuel of high sintered density than in such of low density. α -autoradiographs of fuel sections showed Pu-enrichment also by radial redistribution at the outer fuel edge and by axial redistribution in the central void. Typical micrographs are reproduced.

The chemical compatibility between the UO₂-PuO₂ fuel (original O/M= 1.98 ± 0.015) and the cladding of stainless Cr-Ni steel CrNiMoVNb16 13 (No.4988) proved difficult to be judged because of the thermal conditions changing during irradiation. Apparently an observable chemical attack on the cladding resulted, whenever the inner surface temperature had

been above 500°C for some time. In most cases the micrographs showed grain boundary attack, up to a maximum penetration depth of 110 μm. A burnup dependence was not recognizable.

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	Seite
1. Bestrahlungsversuchsdaten	1
1.1 Aussagekraft der Versuchsgruppe FR2 - 4a	3
1.2 Probenmaterial, Bestrahlungsbedingungen	3
Literatur, Tabellen, Bild	5 - 8
2. Thermische Analyse (B.Schulz)	9
2.1 Einleitung	11
2.2 Charakteristische Grössen der Prüflinge, Auswertung der Bestrahlungsdaten	11
2.3 Auswahl der Materialkenndaten	12
2.4 Thermische Analyse KVE 33-37, 41, 45	14
2.4.1 Verfahren	14
2.4.2 Fehlerbetrachtung	15
2.4.3 Ergebnisse	18
2.5 Thermische Analyse der Kapselversuchs- einsätze KVE 38,40	23
Literatur, Bilder (Tabellen im Text)	26 - 32
3. Spaltgasfreisetzung und -rückhaltung (H.Zimmermann)	33
3.1 Freies Spaltgas	35
3.2 Poren-Spaltgas	35
3.3 Gitter-Spaltgas	36
3.4 Diskussion	37
Literatur, Tabellen, Bilder	40 - 44
4. Leervolumen-Verlagerung (W.Dienst, G.Ondracek)	45
4.0 Einleitung	47
4.1 Aussenrisse	47
4.1.1 Messergebnisse	47
4.1.2 Diskussion der Messergebnisse	49
4.2 Zentralkanal	51
4.3 Porosität	53
4.3.1 Messergebnisse	53

	Seite
4.3.2 Korrekturverfahren	55
4.3.3 Diskussion der korrigierten Ergebnisse	57
4.4 Schlussfolgerungen zur Leervolumenanalyse	59
Literatur, Tabellen, Bilder	61 - 74
5. Mikrosondenuntersuchungen (H.Kleykamp)	75
5.1 Einleitung	77
5.2 Experimentelles	78
5.3 Die Verteilung von Uran und Plutonium im Brennstoff	78
5.4 Spaltproduktphasen im Brennstoff und im Spalt	80
5.4.1 Metallische Phasen	80
5.4.2 Oxidische Phasen	81
5.5 Hüllmaterialkomponenten im Brennstoff	82
5.6 Verträglichkeit des Brennstoffs mit der Hülle	82
5.7 Folgerungen	83
Literatur, Bilder (Tabellen im Text)	84 - 91
6. Besondere Beobachtungen zur Uran/Plutonium-Entmischung (W.Dienst)	93
6.1 Experimentelle Bedingungen	95
6.2 Typen der beobachteten Transportvorgänge	96
6.2.1 Radialer Transport in der äusseren Brennstoffzone	96
6.2.2 Transport entlang des Brennstoffumfanges	96
6.2.3 Axialer Transport im Zentralkanal	97
Literatur, Bilder	98 - 105
7. Verträglichkeit Hülle/Brennstoff (O.Götzmann)	107
Literatur, Tabelle, Bilder	111 - 116

1. Bestrahlungsversuchsdaten

1.1 Aussagekraft der Versuchsgruppe FR 2-4a

Mit der Bestrahlungsversuchsgruppe FR 2-4a wurden im Projekt Schneller Brüter zum ersten Mal Brennstabproben mit Uran-Plutonium-Mischoxidbrennstoff zum Einsatz gebracht. Es wurde eine Annäherung an die Auslegung der vorgesehenen Schnellbrüter-Brennstäbe erreicht, die schon Ergebnisse von unmittelbarem technischem Interesse für das Brennstabverhalten versprach. Die Annäherung war jedoch noch stark eingeschränkt durch die geringe Brennstabprobenlänge (Brennstofflänge 80 mm) und das Fehlen eines kontrollierten axialen Temperaturgefälles.

Daher war bei der Nachuntersuchung der Versuchsgruppe FR 2-4a von vornherein nur mit allgemeinen Aussagen über die Brauchbarkeit der angewendeten Untersuchungs- und Auswertungsverfahren sowie vor allem über die relative Bedeutung der an den bestrahlten Brennstäben beobachteten verschiedenen Erscheinungen für das Brennstabverhalten zu rechnen. Dabei bot sich jedoch auch schon Gelegenheit, die Abhängigkeit des Bestrahlungsverhaltens von Herstellungs- und Bestrahlungsparametern zu untersuchen. Denn innerhalb der Versuchsgruppe wurde die Brennstoffdichte (Sinter- und Schmierdichte) und der Abbrand variiert.

Eindeutige Aussagen über die Parameterabhängigkeit des Brennstabverhaltens waren jedoch dadurch erschwert, dass 1) Brennstoffdichte und Abbrand gleichzeitig verändert wurden (dadurch lag meistens eine Kombination von hoher Dichte mit niedrigem Abbrand oder niedriger Dichte mit mittlerem bis hohem Abbrand vor) und dass 2) im Bereich hoher Abbrände ($A > 40-50$ MWd/kg) eine beträchtliche Verminderung der Stabileistung wegen des relativ niedrigen Neutronenflusses im FR 2 eintrat. Daher ergeben sich aus diesem Bericht neben qualitativen nur halbquantitative Folgerungen, die sich auf die Schwellwerte für das Einsetzen oder für die Beendigung von Vorgängen beziehen, deren Wirkung für das Brennstabverhalten bestimmend ist.

1.2 Probenmaterial, Bestrahlungsbedingungen

Die Bezeichnung, die Zusammensetzung und die Abmessungen sowie Bestrahlungsdaten der Brennstabprüflinge aus der Versuchsgruppe FR 2-4a sind in einem zusammenfassenden Bericht über alle Oxidbrennstabbestrahlungen im FR 2 enthalten [1.1]. Die Tabellen 1.1 und 1.2 geben die zur Auswertung der Untersuchungsergebnisse benötigten Daten [1.1,1,2,1,3]. Die Prüflingsmasse gehen

im wesentlichen aus Abb.1.1 hervor.

Die Brennstabprüflinge bestehen aus Edelstahlhüllen des Materials 1.4988 (Aussendurchmesser 7,4 mm, Wandstärke 0,50 mm) mit verschweissten Endstopfen, UO_2 -15 Gew.-% PuO_2 -Brennstoff in Tablettenform sowie der Brennstoff-Transportsicherungsfeder mit Hülsen (Abb.1.1). Die Brennstoffsäulenlänge beträgt 80 mm. Die Brennstabprüflinge unterscheiden sich in der Dichte des Brennstoffes (ca.84 und 92% TD), dem Tablettendurchmesser (ca.6,20 und 6,26 mm) sowie der Anordnung der UO_2 -Isoliertabletten am oberen Ende bzw. an beiden Enden der Tablettensäule. Ein Rhodium-Plättchen im unteren Endstopfen dient zur Absorption des axialen Neutronenflussanteils. Im Führungsstück am oberen Brennstoffsäulenende sowie im oberen Endstopfen sind Sintermetallfilter eingelassen, die die Zurückhaltung von Brennstoffpartikeln gewährleisten. Die Brennstäbe werden vor dem Verschliessen mit Helium geflutet. Die chemische Analyse des Brennstoffes, der nach mechanischem Mischen von UO_2 und PuO_2 durch Pressen und Sintern zu Tabletten hergestellt wird, weist ein O/M-Verhältnis von $1,98 \pm 0,015$ nach. Die Isotopenzusammensetzung des Pu ergibt sich zu 90,9 Gew.-% Pu-239, 8,21 Gew.-% Pu-240, 0,85 Gew.-% Pu-241 sowie 0,04 Gew.-% Pu-242. Der U-235-Anteil im Uran beträgt 0,007 Gew.-%.

Die in Tab.1.2 angegebenen Abbrandwerte ergaben sich durch radiochemische Analysen von Brennstoffproben aus den bestrahlten Brennstäben [1.3]. Sie sind hier in MWd/kg Metall angegeben und können nach der Beziehung $10MWd/kg \hat{=} 1,07\%$ in prozentualen U+Pu-Abbrand umgerechnet werden. Auf den zeitlichen Verlauf der Hülltemperatur und der spezifischen Stableistung, für die in Tab.1.2 nur maximale und mittlere Werte eingesetzt sind, sowie auf die Brennstofftemperatur wird in Abschnitt 2 eingegangen.

Eine gesonderte ausführliche Darstellung der Brennstab- und Bestrahlungskapsel-Auslegung, der Bestrahlungsbedingungen und des Bestrahlungsverlaufes im FR 2 sowie der Nachuntersuchung der bestrahlten Proben in den Heissen Zellen der GfK ist in Vorbereitung [1.4]. Der vorliegende Bericht behandelt die Auswertung der Nachuntersuchungsergebnisse.

Literatur

- [1.1] Freund D.,
KFK 1376, Mai 1972
- [1.2] Schulz B.,
GfK-Interne Berichte, 1971/72
- [1.3] Dienst W.,
GfK-Interne Notiz, 1972
- [1.4] Freund D., Geithoff D., Weimar P.,
KFK 1523, in Vorbereitung

Tabelle 1.1: Bezeichnung und Beladung der Brennstabprüflinge in der Versuchsgruppe FR 2-4a

KVE Nr.	Prüfling Nr.	mittl. Brennstoff-Dichte, messer %TD	-Durch- mm	Stabaufbau	mittl. Kaltspalt, diametral μm
33 l	B 10	91,55	6,20	1 Isoliertab- lette, oben	200
	B 7 l	91,4			
	B 6	92,0			
34	B 13	91,9	6,20	1 Isoliertab- lette, oben	200
	B 12 l	91,6			
	B 11 l	91,6			
35	4A/4 l	92,3	6,20	je 1 Isolier- tablette oben und unten	200
	4A/2	92,15			
	4A/1 l	92,0			
36	4A/9	91,6	6,20	je 1 Isolier- tablette oben und unten	200
	4A/8 v	91,6			
	4A/5 v	92,2			
	4A/3 v	92,2			
37	4A/19 v	83,8	6,28	2 Isoliertab- bletten oben	120
	4A/16 v	85,2			
	4A/15 v	85,1			
	B 14	91,9			
38	4A/22 v	83,35	6,25	2 Isoliertab- bletten oben	150
	4A/21	83,6	6,27		130
	4A/20 v	83,6	6,27		130
40	4A/28	84,35	6,25	2 Isoliertab- bletten oben	150
	4A/25 v	84,55	6,26		140
	4A/26 v	84,9	6,25		150
	4A/27 v	83,95	6,25		150
41	4A/18	84,25	6,27	2 Isoliertab- bletten oben	130
	4A/23	84,8	6,26		140
	4A/17	84,25	6,28		120
45	4B/29	Prüflinge der Versuchsgruppe 4b			
	4B/28				
	4A/24 v	84,4	6,26	2 Isoliertab- bletten oben	140

Bemerkung: Isoliertablette UO_2 , 95% TD, 6,25 mm \emptyset ,
ca. 5 mm hoch
"KVE" bedeutet Kapselversuchseinsatz

Tabelle 1.2: Bestrahlungsdaten der Brennstabprüflinge in der Versuchsgruppe FR 2-4a (aus [1.1], [1.2], [1.3])

KVE Nr.	t _{Bestr.} d	Prüflg. Nr.	T _{Ha,max.} °C	T _{Ha,mittl.} °C	X _{max.} W/cm	X _{mittl.} W/cm	A MWd/kg
33	57	B 10	501	464	627	569	11,0
		B 7	~563	449	~640	547	10,4
		B 6	484	433	601	521	10,1
34	172	B 13	475	393	587	461	30,0
		B 12	550	399	701	475	30,4
		B 11	487	378	606	443	27,6
35	142	4A/4	481	423	597	506	26,6
		4A/2	532	429	675	518	27,5
		4A/1	531	432	673	523	28,6
36	163	4A/9	525	427	663	521	29,2
		4A/8	~600	445	~700	546	30,3
		4A/5	~600	400	~700	479	32,0
		4A/3	556	439	620	533	32,1
37	391	4A/19	457	341	561	401	60,8
		4A/16	425	332	512	391	62,1
		4A/15	456	345	559	403	71,9
		B 14	475	335	587	395	66,4
38	578	4A/22	487	329	606	367	96,6
		4A/21	481	314	597	344	89,0
		4A/20	468	295	578	316	90,8
40	523	4A/28	462	344	568	390	85,5
		4A/25	475	342	587	386	90,7
		4A/26	500	331	625	369	93,0
		4A/27	512	339	644	383	95,5
41	360	4A/18	475	342	587	385	46,8
		4A/23	494	360	616	412	44,8
		4A/17	478	312	593	343	35,2
45	67	4A/24	704	566	621	472	13,6

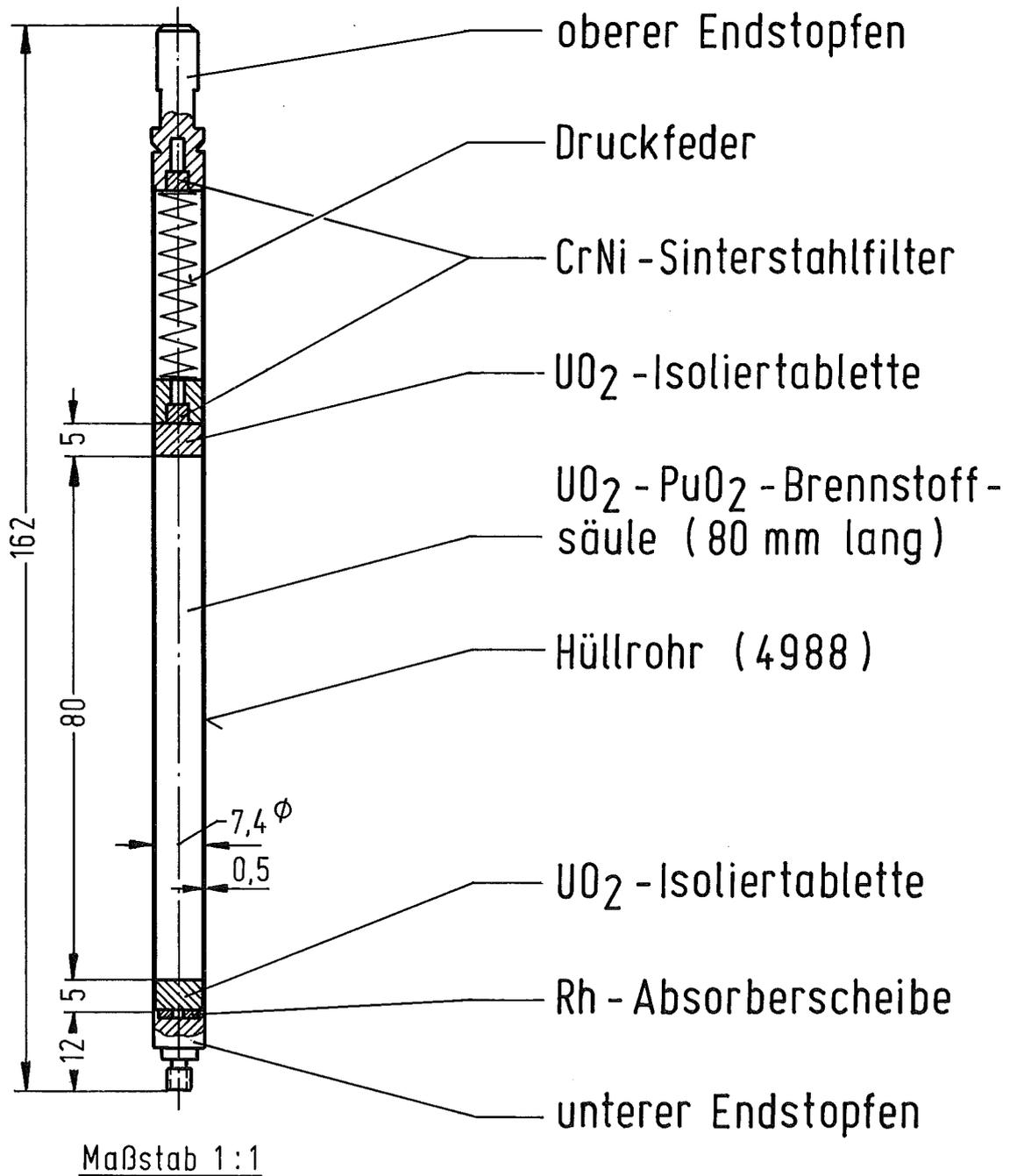


Abb. 1.1
 Brennstab - Prüfling für die Bestrahlungsversuchsgruppe
 FR 2 - 4a

2. Thermische Analyse

B.Schulz

2.1. Einleitung

Die thermische Analyse bestrahlter Prüflinge ist die Durchrechnung eines mathematisch-physikalischen Modells, z.B. eines Brennstabes, deren Ergebnis eine möglichst realistische Temperatur-Ortsfunktion im Brennstab während der Bestrahlung sein soll. Sie ist in diesem Sinne Teil der Modellstabtheorie und in den entsprechenden Rechenprogrammen, wie z.B. SATURN [2.1] enthalten. Die Einbeziehung vieler, im Grenzfall möglichst aller physikalischen Vorgänge, die während der Bestrahlung im Brennstab auftreten, in die thermische Analyse, führt zu einer Minimalisierung von systematischen Verfälschungen berechneter Temperaturprofile, die aber begleitet ist von immer grösser werdenden statistischen Fehlern. Demgegenüber ist eine thermische Analyse auf Grund eines zu einfachen Modells zwar mit geringeren statistischen Fehlern, aber mit grösseren systematischen Verfälschungen behaftet. Die thermische Analyse, wie sie im vorliegenden Bericht durchgeführt ist, geht von einem relativ einfachen Modell aus, das erweitert wird,

wenn Widersprüche zu Bestrahlungsergebnissen auftreten oder wenn die Nichtberücksichtigung eines physikalischen Zusammenhanges zu systematischen Fehlern in der Grössenordnung der statistischen Fehler führt. Dementsprechend enthält der Bericht nicht nur das Verfahren der thermischen Analyse und die Wiedergabe der Ergebnisse, sondern auch eine Abschätzung systematischer und statistischer Fehler.

2.2. Charakteristische Grössen der Prüflinge, Auswertung der Bestrahlungsdaten

Die für die thermische Analyse notwendigen Grössen der Prüflinge sind zusammengefasst in Tabelle 2.1 wiedergegeben.

KVE	PuO ₂ -Anteil (Gew.-%)	O/Me-Verhältnis	Ausgangsporosität (Vol.-%)	r _a (cm)	r _l (cm)	r _b (cm)
33-36	15	1.98	8	0,37	0,32	0,31
37,38, 40,41, 45	15	1.98	15	0,37	0,32	0,31

Tab. 2.1: Charakteristische Daten der Prüflinge (Abschnitt 1)

Den Betriebsprotokollen des FR 2 und ihrer Ausarbeitung, wie sie in [2.15] angegeben ist, wurden die Hüllaussentemperaturen und Stabileistungen entnommen. / (Abschnitt 1)

Wenn nicht besonders vermerkt, sind angegebene Hüllaussentemperaturen und

Leistungen immer zeitliche Mittelwerte über einen Bestrahlungszyklus im FR 2.

2.3 Auswahl der Materialkenndaten

Wärmeübergang im Spalt.

Der Wärmeübergang im Spalt ist die unsicherste Grösse, die den nachfolgenden Rechnungen zugrunde liegt. Nach [2.2] wird für den Einfahrvorgang eine Wärmeübergangszahl $\beta = 0,75 \text{ W/cm}^2\text{grad}$ und für den Dauerbetrieb von $1,3 \text{ W/cm}^2\text{grad}$ empfohlen. Im vorliegenden Bericht wurde bis zum Auftreten der höchsten Leistung (Einzonmodell s.u.) mit $\beta = 0,5 \text{ W/cm}^2\text{grad}$, danach (Zweizonmodell s.u.) mit $\beta = 1,0 \text{ W/cm}^2\text{grad}$ gerechnet.

Wärmeleitfähigkeit der Hülle.

Für das Hüllmaterial, ein austenitischer Chrom-Nickel-Stahl (Werkstoff Nr. 4988), der Temperaturen um ca. 500°C ausgesetzt ist, wurde nach [2.3] eine Wärmeleitfähigkeit von $\lambda_H = 0,2 \text{ W/cm grad}$ zugrunde gelegt.

Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs.

Die Wärmeleitfähigkeit des als Brennstoff eingesetzten Mischoxids wurde folgendermassen ermittelt. In [2.4] wurde aus Wärmeleitfähigkeitsmessungen an 95% dichtem UO_2 mehrerer Autoren Mittelwerte gebildet und diese einer Funktion angepasst, die inzwischen [2.5] in einem umfassenden Versuchsprogramm in den USA bis 2000°C bestätigt wurden. Wärmeleitfähigkeitsmessungen an Mischoxid mit 15 Gew.-% Pu_2 sind in [2.6] wiedergegeben.

Tab. 2.2 zeigt den Vergleich.

T [$^\circ\text{C}$]	λ_{UO_2} ($\rho = 0,95 \rho_{\text{th}}$)	λ ($0,85 \text{ U } 0,15 \text{ Pu}$) O_2 ($\rho = 0,95 \rho_{\text{th}}$)
600	0,041	0,043
1000	0,029	0,031
1600	0,023	0,026
2000	0,023	0,026
2400	0,024	0,029

Tab. 2.2: Wärmeleitfähigkeit von UO_2 und $\text{U}_{0,85}\text{Pu}_{0,15}\text{O}_2$ in W/cm grad

Auf Grund dieser Tabelle wurde die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von $(\text{U}_{0,85}\text{Pu}_{0,15})\text{O}_2$ mit der an UO_2 nach [2.5] ermittelten gleichgesetzt und ihre absolute Höhe um den Faktor 1,11 erhöht. Die analytische Form der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit lautet damit (100% theoretische Dichte):

$$(2.1) \quad \lambda(T) = 1.11 \left(\frac{41,2}{4,9+T} + 6.55 \cdot 10^{-13} T^3 \right) \quad 900 < T < 3000^\circ K$$

Für die thermische Analyse an den Kapselversuchseinsätzen Nr.33-37, 41, 45, wurde eine über den Temperaturbereich $500 < T < 2000^\circ C$ gemittelte hinsichtlich der Temperatur konstante Wärmeleitfähigkeit benutzt. Für 100% ρ_{th} ergibt sich

$$\bar{\lambda} = 0,0355 \text{ W/cm grad.}$$

Die Porositätskorrektur der Wärmeleitfähigkeit wurde zunächst an UO_2 vorgenommen. Dabei wurden empirisch ermittelte Gleichungen nach [2.7] u.[2.8] benutzt. Tab.2.3 enthält die Ergebnisse.

D	$\bar{\lambda}_p$ [2.7]	$\bar{\lambda}_p$ [2.8]
0,05	0,028	0,028
0,10	0,024	0,024
0,15	0,0218	0,020

Tab .2.3: Auf Porosität (P) korrigierte mittlere Wärmeleitfähigkeit von UO_2

Die Übereinstimmung zwischen beiden Werten ist befriedigend. Die sich aus [2.8] ergebenden Daten wurden mit dem Faktor 1,11 multipliziert und für die Rechnungen im Brennstoff mit 15 Gew.-% PuO_2 benutzt.

Brennstoffdichte	$\bar{\lambda}$ (W/cm grad)
0,95 ρ_{th}	0,031
0,92 "	0,028
0,90 "	0,026
0,85 "	0,022

Die in den Rechnungen benutzten Leitfähigkeiten des Brennstoffs sind im folgenden noch einmal zusammengestellt.

KVE	P (Vol.-%)	$\bar{\lambda}$ (W/cm grad)
33 - 36	8	0,028
32,41,45	15	0,022
38, 40	15	$\lambda=0,77_8 \left(\frac{41,2}{4,9+T} + 6.55 \cdot 10^{-13} T^3 \right) [T]=^\circ K$

Für die verdichtete Zone im Brennstoff (P = 5%) wurde mit:

KVE	$\bar{\lambda}$ (W/cm grad)
33 - 37	0,031 (W/cm grad)
41,45	
38,40	$\lambda=0,97 \left(\frac{41,2}{4,9+T} + 6.55 \cdot 10^{-13} T^3 \right) [T] = ^\circ K$ gerechnet.

2.4 Thermische Analyse KVE 33 - 37, 41, 45

2.4.1 Das Verfahren

Vorausgesetzt wird eine axial und radial konstante Wärmequellverteilung im Brennstoff, wodurch die Temperatur allein eine Funktion des Radius wird. Der Bestrahlungsablauf wird in zwei verschiedene Bereiche aufgeteilt.

- a) Im Brennstoff hat sich noch kein Zentralkanal ausgebildet (Abb. 2.1).
- b) Es ist ein Zentralkanal mit einem Radius vorhanden, der sich nach seiner Ausbildung nicht weiter verändert. Der Radius dieses Zentralkanals wird nicht berechnet, sondern metallographisch gemessen [2.11].

Zu a): Von diesem Zustand des Brennstoffs (Einzonenmodell) wird vorausgesetzt, dass die Ausgangsporosität gleichmässig verteilt ist. Es wird angenommen, dass dieser Zustand bis zum Auftreten der höchsten Leistung im Bestrahlungsablauf vorliegt, was gleichzeitig die höchste thermische Belastung des Brennstabes überhaupt bedeutet. Die irreversiblen Gefügeausbildungen (Stengelkornwachstum und Rekristallisation) sind damit im Bestrahlungsablauf zeitlich festgelegt. Die errechneten Radien für den Beginn der Stengelkornwachstums- und Rekristallisationszone sollten im Rahmen der Rechen- bzw. Messgenauigkeit mit metallographisch gemessenen Radien aus der Bestrahlungsnachuntersuchung übereinstimmen. Auf Grund von [2.9] wurde für den Beginn der Rekristallisationszone eine Brennstofftemperatur von 1300°C, für den der Stengelkornwachstumszone von 1700°C [2.10] angenommen.

Mit den Bezeichnungen aus Abb.1 ergeben sich, ϕ - Stableistung:

$$(2.2) T_i - T_a = \frac{\phi}{2\pi\lambda_H} \ln \frac{r_a}{r_i} \quad \text{für die Temperaturdifferenz in der Hülle}$$

$$(2.3) T_B - T_i = \frac{\phi}{2\pi r_B \beta_{Sp}} \quad \text{für die Temperaturdifferenz im Spalt}$$

$$(2.4) T(r) = T_Z - \frac{\phi}{4\pi\lambda} \frac{r^2}{r_B^2} \quad \text{für den Temperaturverlauf im Brennstoff}$$

In Gleichung (2.4) erhält man mit:

$$\begin{aligned} r = r_B \quad T = T_B & \quad \text{die Zentraltemperatur} \\ T = 1300^\circ\text{C} & \quad \text{den Radius } r_{1300} \text{ der Rekristallisationszone} \\ T = 1700^\circ\text{C} & \quad \text{den Radius } r_{1700} \text{ der Stengelkornwachstumszone.} \end{aligned}$$

Zu b): Mit Ausbildung des Zentralkanals, dessen Radius r_z als bekannt vorausgesetzt wird, liegt im Brennstoff keine homogene Porenverteilung mehr vor.

+) (entsprechende Kühlbedingungen vorausgesetzt)

Dem wird im sogenannten Zweizonenmodell dadurch Rechnung getragen, dass die innere Brennstoffzone ($r_z \leq r \leq r_{1300}$) als hochverdichtet angesehen wird ($\rho = 0.95 \rho_{th}$). Die Temperaturverteilung für einen Hohlzylinder hat die Form

$$(2.5) \quad T(r) = A + B \ln r - \frac{\phi}{4\pi\lambda_B (r_B^2 - r_z^2)} r^2$$

r_z = Zentralkanalradius = (0,1 cm).

Die Integrationskonstanten A und B werden für die zwei verschiedenen dichten Zonen gesondert berechnet. Die Grenze der Zonen wurde bei $r_{T=1300^\circ C}$ festgelegt. Für $r_{1300} > r > r_z$ gilt $\lambda = \lambda_{95}$ ($\rho = 0,95 \rho_{th}$), für $r_B > r > r_{1300}$ wird die Ausgangsporosität und $\lambda = \lambda_P$ (= Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs der Porosität P) angenommen. A und B ergeben sich dann aus:

$$a) \text{ dichte Zone: } r = r_{1300} \quad T = 1300; \left[\frac{\partial T}{\partial r} \right]_{r=r_z} = 0$$

$$b) \text{ poröse Zone: } r = r_B \quad T = T_B; 2\pi\lambda_P r_B \left[\frac{\partial T}{\partial r} \right]_{r=r_B} = \phi$$

Damit wird

$$(2.6) \quad T(r) = T_B + \frac{\phi}{4\pi\lambda_P (r_B^2 - r_z^2)} (r_B^2 - r^2 - 2r_z^2 \ln \frac{r_B}{r}) \quad r_B > r > r_{1300}$$

$$(2.7) \quad T(r) = 1300 + \frac{\phi}{4\pi\lambda_B (r_B^2 - r_z^2)} (r_{1300}^2 - r^2 - 2r_z^2 \ln \frac{r_{1300}}{r}) \quad r_{1300} > r > r_z$$

2.4.2 Fehlerbetrachtung

Im folgenden wird zwischen statistischen und systematischen Fehlern unterschieden. Erstere sind wie Messfehler nach dem Gauss'schen Fehlerfortpflanzungsgesetz zu behandeln. Ihr Betrag hängt nur von Unsicherheiten in den Eingabedaten ab. Er kann dann verringert werden, wenn diese Unsicherheiten kleiner werden. Die Untersuchung der systematischen Fehlerquellen führt zu einer Abschätzung über die einseitige Verfälschung berechneter Größen durch Vereinfachungen.

Statistische Fehler

Als Eingabegrößen im verwendeten Verfahren müssen gelten: die Stableistung ϕ , die Hüllaussentemperatur T_a , der Zentralkanalradius r_z , der Hüllausradius r_a , der Hüllinnenradius r_i , der Brennstoffradius r_b , die

Brennstoffporosität P sowie die Wärmeübergangszahl β u. die Wärmeleitfähigkeit von Brennstoff und Hülle λ bzw. λ_H .

Folgende Fehler der Eingabegrößen wurden nach [2.12] zugrundegelegt

$$\frac{\Delta\phi}{\phi} = \pm 0,15; \quad \frac{\Delta T_a}{T_a} = \pm 0,05; \quad \frac{\Delta r_z}{r_z} = \pm 0,15; \quad \frac{\Delta\beta}{\beta} = \pm 0,2$$

$$\frac{\Delta r_a}{r_a} = \frac{\Delta r_i}{r_i} = \frac{\Delta r_B}{r_B} = 0 \quad \frac{\Delta P}{P} = 0$$

Für die Wärmeleitfähigkeit der Hülle und des Brennstoffes wurde angenommen:

$$\frac{\Delta\lambda_H}{\lambda_H} = \pm 0,05 \quad \frac{\Delta\lambda_B}{\lambda_B} = \pm 0,10$$

In Tab. 2.4 sind die prozentualen maximalen und mittleren Fehler für die berechneten Größen im Ein- und Zweizonenmodell aufgeführt. Zugrundegelegt wurde:

$$\phi = 470 \text{ W/cm} \quad T_a = 540^\circ\text{C} \quad r_z = 0,1 \text{ cm.}$$

	ber. Größen	proz. max. Fehler	proz. mittl. Fehler
Ein-zonenmodell	T_i (560°C)	$\frac{\Delta T_i}{T_i} \cdot 100 = \pm 6\%$	$\pm 5,5\%$
	T_B (1140°C)	$\frac{\Delta T_B}{T_B} \cdot 100 = \pm 18\%$	$\pm 15\%$
	T_z (2610°C)	$\frac{\Delta T_z}{T_z} \cdot 100 = \pm 19\%$	$\pm 14\%$
	r_{1300} ($0,241\text{cm}$)	$\frac{\Delta r_{1300}}{r_{1300}} \cdot 100 = \pm 29\%$	$\pm 16,5\%$
	r_{1700} ($0,196\text{cm}$)	$\frac{\Delta r_{1700}}{r_{1700}} \cdot 100 = \pm 38\%$	$\pm 21\%$
Zwei-zonenmodell	T_i (560°C)	$\frac{\Delta T_i}{T_i} \cdot 100 = \pm 6,5\%$	$\pm 5,5\%$
	T_B (890°C)	$\frac{\Delta T_B}{T_B} \cdot 100 = \pm 15\%$	$\pm 12\%$
	r_{1350} ($0,216\text{cm}$)	$\frac{\Delta r_{1300}}{r_{1300}} \cdot 100 = \pm 21\%$	$\pm 11\%$
	T_z (1830°C)	$\frac{\Delta T_z}{T_z} \cdot 100 = \pm 29\%$	$\pm 14\%$
	r_{1700} ($0,155\text{cm}$)	$\frac{\Delta r_{1700}}{r_{1700}} \cdot 100 = \pm 74\%$	$\pm 33\%$

Tab. 2.4: Prozentuale max. und mittlere Fehler der berechneten Größen

Betrachtet man die mittleren Fehler, so müssen sie als durchaus tragbar angesehen werden. Der Wärmeübergang im Spalt führt zu einer Fehlervergrößerung um den Faktor 2 - 3, was zum grossen Teil durch den Fehler im Wärmeübergang verursacht wird. Eine Ausnahme macht der Fehler für r_{1700} im Zweizonenmodell. Hierbei ist jedoch zu beachten, dass er die letzte aller zu ermittelnden Grössen darstellt und nicht unabhängig entweder von der Zentraltemperatur oder von r_{1300} berechnet werden kann.

Systematische Fehler

1. Die Flussabsenkung bei Bestrahlung im thermischen Fluss.

Bekanntlich führt dieses Phänomen zu einer inhomogenen Wärmequellichte-
verteilung. Die Wärmequellichte wird eine Funktion des Radius und der
Anreicherung. Zur Abschätzung des Einflusses der Flussabsenkung wurde
mit dem SATURN-Programm [2.1] ein ungünstiger Fall (hohe mittlere Stab-
leistung) durchgerechnet, wobei alle anderen Parameter konstant gehalten
wurden ⁺⁾ . Hierbei wurde die Wärmequellichte mit dem Ansatz:

$$(2.8) \quad \tilde{q} = \tilde{q}_0 + \tilde{q}_1 r^2 \quad \text{behandelt, wobei}$$

$$q_0 = 0.8; q_1 = 6,3 \quad [2.13] \quad (15 \text{ Gew.-% Pu, } 85 \% \rho_{th}) \quad [q_1] = \text{cm}^{-2}$$

Das Ergebnis zeigt Tabelle 2.5.

Tabelle 2.5: Einfluss der Flussabsenkung auf T_z, r_{1300} und r_{1700}

	mit Flussabsenkung	ohne Flussabsenkung
T_z (°C)	3006	3172
r_{1300} (cm)	0,300	0,298
r_{1700} (cm)	0,271 ₁	0,273
\bar{p} (W/cm)	586	586

Die grösste Abweichung weist der Wert für die Zentraltemperatur auf. Er liegt dennoch weit innerhalb des statistischen Fehlers mit $\pm 14\%$ (s.o.). Die Abweichungen in den Radien liegen unter 1%. Die Flussabsenkung wurde daher auch weiterhin nicht berücksichtigt.

Eine inhomogene Wärmequellichteverteilung liegt ebenfalls im Zweizonenmodell (s.o.) vor. Die Brennstoffverdichtung in der Rekristallisations- und Stengelkornwachstumszone führt zu einer höheren Dichte der spaltbaren

⁺⁾ Herr DP Eibel aus der Gruppe "Modellstabtheorie" des IMF/LB hat freundlicherweise diese Rechnungen durchgeführt.

Atome. Für Brennstoffdichten von $0.85 \rho_{th}$ in der äusseren und $0.95 \rho_{th}$ inneren Zone und Flächengleichheit beider Zonen, ist die Inhomogenität mit 0.9 (verglichen mit 1 für homogene Quelldichteverteilung) in ihrer Wirkung zu vernachlässigen. Unter den oben angegebenen Bedingungen der Flussabsenkung ist die Abweichung von der homogenen Verteilung ungleich viel stärker [2.13].

2. Berücksichtigung der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit
Nach einem in [2.14] angegebenen Verfahren unter Verwendung von Gleichung (2.1) erhält man für die Temperaturverteilung im Einzonenmodell

$$(2.9) \quad 41.2 \ln T + 1.54 \cdot 10^{-13} T^4 = 41.2 \ln T_z + 1.54 \cdot 10^{-13} T_z^4 - \frac{\phi}{4\pi r_B^2 \cdot 1.11}; [T] = ^\circ K$$

Systematische Verschiebungen für die Zentraltemperatur können in Einzelfällen bis zu 10% betragen, weshalb für die Kapselversuchseinsätze KVE 38,40 (s.u.) die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit berücksichtigt wurde.

3. Die irreversible Gefügeausbildung

Das Zweizonenmodell stellt die Ausbildung zweier verschieden dichter Zonen im Brennstoff in Rechnung. Da die höchste Temperaturbelastung des Brennstoffs auftritt, wenn noch kein Zentralkanal ausgebildet ist, bzw. ehe seine Bildung abgeschlossen ist, legt dies den Beginn der Zone der Rekristallisation fest. Dieser Radius ist für den weiteren Bestrahlungsablauf unveränderlich und wird in der thermischen Analyse künftig folgendermassen berücksichtigt: In der Bestimmung der Integrationskonstanten in der $T(r)$ -Funktion heisst die erste Randbedingung nicht mehr:

$$(S.2.5) \quad r = r_{1300} \quad T = 1300^\circ C,$$

sondern $r = r_{rek.} = r_r \quad T = T_r \neq 1300^\circ C.$

Diese Abänderung der Randbedingung führt zu Verschiebungen bis zu 5% und ist in der thermischen Analyse der KVE 38,40 vorgenommen worden.

2.4.3 Ergebnisse

Eine tabellarische Zusammenfassung der berechneten Grössen findet sich in Tabelle 2.6.

Für einige ausgewählte Stableistungen sind die Temperaturprofile in Abb.2.2a, 2.2b wiedergegeben. Eine Überprüfung der Ergebnisse ist z.Zt. nur durch metallographische Untersuchung des bestrahlten Gefüges möglich. Abb.2.3 zeigt den Vergleich der gemessenen und berechneten (Einzonenmodell) Gefügeradien

Tab. 2.6: Berechnete Temperaturen und Gefügeradien der KVE
33 - 37, 41, 25

KVE	Probe	Zykl.	mittl. Stabl. (W/cm)	T _a (°C)	T _i (°C)	T _B (°C)	T _Z (°C)	r ₁₃₀₀ ber. (cm)	r ₁₇₀₀ ber. (cm)	
33	B 10	B	577	470	540	1130	2730	0,29	0,25	
		C	560	457	520	810	1880	0,26	0,18	
	B 7	B	556	455	520	1090	2630	0,29	0,24	
		C	538	443	510	780	1820	0,25	0,17	
	B 6	B	530	438	500	1040	2510	0,28	0,23	
		C	512	427	490	750	1740	0,24	0,14	
	34	B 13	C	370	327	370	750	1780	0,21	0,08
			D	390	339	380	780	1870	0,22	0,12
E			560	457	520	1110	2660	0,29	0,24	
F			510	433	490	750	1740	0,24	0,14	
H			480	402	460	700	1640	0,23	-	
I			455	402	460	690	1590	0,22	-	
B 12		C	390	339	380	780	1870	0,22	0,12	
		D	390	341	390	790	1870	0,22	0,12	
		E	550	452	520	1080	2610	0,28	0,24	
		F	520	432	490	760	1770	0,24	0,15	
		H	500	414	470	730	1700	0,24	0,10	
		I	500	414	470	730	1700	0,24	0,10	
B 11		C	380	332	380	760	1820	0,21	0,10	
		D	385	332	380	770	1840	0,22	0,11	
		E	505	427	490	1000	2400	0,27	0,22	
		F	485	402	460	710	1660	0,23	-	
		H	450	387	440	670	1560	0,21	-	
		I	450	387	440	670	1560	0,21	-	

KVE	Probe	Zykl.	mittl. Stabl. (W/cm)	T _a (°C)	T _i (°C)	T _B (°C)	T _Z (°C)	r ₁₃₀₀ ber. (cm)	r ₁₇₀₀ ber. (cm)	
35	4A/4	C	400	353	400	810	1920	0,23	0,14	
		D	570	465	540	1120	2700	0,29	0,24	
		E	550	451	520	800	1850	0,25	0,18	
		F	490	407	460	720	1670	0,23	-	
		H	520	438	500	770	1770	0,25	0,15	
	4A/2	C	400	353	400	810	1920	0,23	0,14	
		D	580	470	540	1130	2740	0,29	0,25	
		E	560	456	520	810	1880	0,26	0,18	
		F	490	410	470	720	1680	0,23	-	
		H	560	456	520	810	1880	0,26	0,18	
	4A/1	C	380	339	380	770	1830	0,22	0,11	
		D	580	470	540	1130	2740	0,29	0,25	
		E	570	465	530	830	1910	0,26	0,19	
		F	500	414	470	730	1700	0,24	0,10	
		H	585	473	540	840	1950	0,26	0,20	
	36	4A/9	D	370	327	370	750	1780	0,21	0,08
			E	560	456	520	1090	2650	0,29	0,24
			F	570	465	530	1110	2700	0,29	0,25
H			535	438	500	780	1810	0,25	0,16	
I			540	440	500	780	1820	0,25	0,18	
K			530	435	500	770	1790	0,25	0,16	
4A/8		D	545	445	510	1070	2580	0,28	0,23	
		E	500	414	470	990	2380	0,27	0,21	
		F	510	427	490	1010	2420	0,27	0,22	
		H	570	465	530	1110	2700	0,29	0,25	
		I	590	476	540	850	1960	0,26	0,20	
		K	560	-	520	810	1880	0,26	0,18	
4A/5		D	355	319	360	720	1710	0,20	0,03	
		E	420	382	430	860	2030	0,24	0,16	
		F	505	420	480	990	2400	0,27	0,22	
		H	540	440	500	1050	2550	0,28	0,23	
		I	535	438	500	780	1810	0,25	0,16	
		K	520	-	490	760	1770	0,24	0,15	
4A/3		D	370	332	380	750	1780	0,21	0,09	
		E	570	465	530	1110	2700	0,29	0,24	
		F	596	476	550	1150	2850	0,30	0,26	
		H	570	465	530	830	1920	0,26	0,19	
		I	560	456	520	810	1880	0,26	0,18	
		K	530	438	500	770	1790	0,25	0,16	
37		B 14 (68)	E	398	340	390	790	1910	0,23	0,13
			F	325	280	320	650	1550	0,16	-
			H	490	395	450	950	2310	0,26	0,21
	I		430	370	420	630	1620	0,23	-	
	K		480	390	450	690	1750	0,25	0,15	
	L		490	395	450	700	1780	0,25	0,16	

KVE	Probe	Zykl.	mittl. Stabl. (W/cm)	T _a (°C)	T _i (°C)	T _B (°C)	T _Z (°C)	r ₁₃₀₀ ber. (cm)	r ₁₇₀₀ ber. (cm)
	(69)	A	410	350	400	610	1570	0,22	-
		B	426	353	400	620	1610	0,23	-
		C	326	282	320	490	1330	0,14	-
		D	360	300	340	530	1420	0,18	-
		E	330	286	320	490	1340	0,15	-
		G	375	335	380	570	1480	0,20	-
		H	300	284	320	470	-	-	-
	4A/15	E	402	347	390	800	2260	0,25	0,19
	(68)	F	325	298	340	670	1840	0,21	0,11
		H	490	394	450	950	2730	0,28	0,24
		I	432	370	410	910	2470	0,27	0,22
		K	490	397	450	960	2730	0,28	0,24
		L	500	410	470	980	2790	0,28	0,24
	(69)	A	413	350	400	610	1580	0,22	-
		B	430	368	420	630	1620	0,23	-
		C	360	284	330	510	1410	0,18	-
		D	325	298	340	500	1340	0,15	-
		E	324	298	340	500	1330	0,15	-
		G	418	364	410	630	1600	0,23	-
		H	333	305	340	510	1360	0,16	-
37	4A/16	E	395	335	380	790	2220	0,25	0,19
	(68)	F	330	286	320	660	1860	0,21	0,11
		H	470	380	430	920	2620	0,27	0,23
		I	425	353	400	840	2370	0,26	0,21
		K	472	384	440	920	2630	0,27	0,23
		L	480	390	450	940	2670	0,28	0,23
	(69)	A	401	345	390	600	1550	0,22	-
		B	401	345	390	600	1550	0,22	-
		C	295	271	310	460	-	-	-
		D	326	282	320	490	1330	0,14	-
		E	320	278	320	480	1320	0,13	-
		G	425	366	420	630	1610	0,23	-
		H	342	308	350	520	1410	0,17	-
	4A/19	E	401	345	390	800	2250	0,25	0,19
	(68)	F	360	300	340	710	2010	0,23	0,15
		H	434	371	420	870	2440	0,26	0,21
		I	405	347	390	810	2270	0,25	0,19
		K	478	388	440	930	2660	0,28	0,23
		L	492	396	450	960	2740	0,28	0,24
	(69)	A	418	352	400	620	1590	0,23	-
		B	400	340	390	590	1540	0,22	-
		C	300	275	310	460	-	-	-
		D	324	298	340	500	1330	0,15	-
		E	368	305	350	540	1450	0,19	-
		G	462	390	440	680	1720	0,25	-
		H	374	332	380	670	1510	0,22	-
41	4A/17	I	368	332	380	750	2080	0,24	0,17
	(68)	K	325	300	340	670	1850	0,21	0,11
		L	287	278	310	600	1640	0,18	-

KVE	Probe	Zykl.	mittl. Stabl. (W/cm)	T _a (°C)	T _i (°C)	T _B (°C)	T _Z (°C)	r ₁₃₀₀ ber. (cm)	r ₁₇₀₀ ber. (cm)
	(69)	A	472	396	450	930	2640	0,28	0,23
		B	412	360	410	620	1580	0,22	-
		C	465	390	440	680	1720	0,25	0,13
		D	375	335	380	570	1480	0,20	-
		E	225	232	260	370	-	-	-
		G	320	298	340	500	1330	0,14	-
		H	248	247	290	410	-	-	-
		I	315	298	330	500	1320	0,13	-
		K	305	282	320	470	-	-	-
	4A/18	I	405	353	400	810	2280	0,25	0,20
	(68)	K	392	348	390	790	2210	0,25	0,19
		L	383	340	380	780	2160	0,24	0,18
	(69)	A	530	440	500	1040	2960	0,29	0,25
		B	445	383	430	660	1670	0,24	-
		C	477	406	460	700	1750	0,25	0,14
		D	422	366	420	630	1610	0,23	-
		E	248	248	280	420	-	-	-
		G	362	329	370	560	1580	0,23	-
		H	275	275	310	450	-	-	-
		I	353	320	360	540	1420	0,18	-
		K	325	300	340	510	1340	0,15	-
	4A/23	I	403	352	400	810	2270	0,25	0,19
	(68)	K	383	340	380	780	2160	0,24	0,18
		L	353	318	360	720	2000	0,23	0,15
	(69)	A	550	453	520	1080	3070	0,29	0,26
		B	482	407	460	710	1770	0,25	0,13
41	4A/23	C	525	435	470	740	1860	0,26	0,18
	(69)	D	462	390	440	680	1720	0,25	0,12
		E	290	279	310	460	-	-	-
		G	398	350	400	600	1540	0,22	-
		H	315	297	330	500	1320	0,13	-
		I	400	353	400	610	1550	0,22	-
		K	383	340	380	580	1500	0,21	-
45	4A/24	L	408	517	560	980	2460	0,28	0,22
		A	533	614	680	1220	3150	0,31	0,27

für alle Prüflinge. Die Übereinstimmung ist befriedigend. Eine weitere Kontrolle liegt im Auftreten von Schmelzzonen im Brennstoff. Aus Tab. 2.6 geht hervor, dass die Prüflinge 33 B 10; 35 4 A 14 A 1/2; 36 4 A/9, 4 A/8, 4 A/3; 37 4 A/19 Zentraltemperaturen sehr nah an der Schmelztemperatur (2750°C) aufweisen. Die Prüflinge 41 4 A/23, 45 4 A/24 liegen weit darüber. Nach [2.12] weist der Prüfling 41 4 A/23 Schmelzgefüge auf. Das Ergebnis ist unter Berücksichtigung der statistischen Fehler (s.o.) insgesamt befriedigend.

2.5 Thermische Analyse der Kapselversuchseinsätze KVE 38,40

Erst nach Abschluss der vorangehenden Betrachtungen und Berechnungen wurden Bestrahlungsdaten für die KVE 38 und 40 bekannt, die bis zu sehr hohem Abbrand bestrahlt worden waren (s.Abschn. 1). Die thermische Analyse für diese KVE wurde mit den im vorangegangenen Text erwähnten Verbesserungen durchgeführt. Es zeigte sich jedoch, dass für die Brennstabprüflinge aus beiden KVE keine Übereinstimmung zwischen beobachteter Gefügezonenverteilung und berechneter Temperaturverteilung erreicht werden konnte. Das ist möglicherweise auf eine aussergewöhnliche Umverteilung des Spaltstoffes (s.a. Abschn. 6) durch eine zeitweilige Überhitzung bis zum zentralen Schmelzen (s. Tab. 2.7) zurückzuführen. Daher sind im folgenden nur die berechneten Hüll-, Brennstoffoberflächen- und Brennstoffzentraltemperatur, aber keine berechneten, charakteristischen Gefügeradien angegeben.

KVE	Prüfl.	Zykl.	\emptyset (W/cm)	T_a (°C)	T_i (°C)	T_B (°C)	T_z (°C)
38	4A/20	4	506	421	480	1000	2910
	4A/21	4	521	431	491	1024	3010
	4A/22	5	586	474	540	1140	3220
40	4A/25	5	548	448	510	1070	3180
	4A/26	5	523	432	490	1030	3020
	4A/27	5	536	441	500	1050	3110
	4A/28	5	511	424	480	1000	2940

Tab. 2.7 Berechnete Zentral-, Brennstoffoberflächen- und Hüllinnentemperatur

Unter Berücksichtigung von 2.4.2 lautet die Temperaturfunktion im Einzonenmodell:

$$(2.10) \quad 41,2 \ln T + 1,54 \cdot 10^{-13} T^4 = 41,2 \ln T_z + 1,54 \cdot 10^{-13} T_z^4$$

im Zweizonenmodell:

$$(2.11) \quad 41,2 \ln T/T_B + 1,54 \cdot 10^{-13} (T^4 - T_B^4) = \frac{\phi}{4\pi(r_B^2 - r_z^2) \cdot 0,78} \\ (r_B^2 - r^2 - 2r_z^2 \ln r_B/r)$$

$$r_r < r < r_B$$

$$(2.12) \quad 4,12 \ln T/T_r + 1,54 \cdot 10^{-13} (T^4 - T_r^4) = \frac{\phi}{4\pi(r_B^2 - r_z^2) \cdot 0,97} \\ (r_r^2 - r^2 - 2r_z^2 \ln r/r_z)$$

$$r_z < r < r_r \quad [T] = ^\circ K$$

Im Zweizonenmodell wurde die Berechnung der Zentraltemperatur für KVE 40 mit $r_z = 0,125$ cm und $r_r = 0,288$ cm durchgeführt. Für die Prüflinge im KVE 38 wurde eine homogene Enddichte von ca. 95% angenommen (man vergleiche r_k und r_B in Tab. 2.8). Die Prüflinge 4 A/20 und 4 A/22 wurden mit einem Zentralkanalradius von 0,126 cm, der Prüfling 4 A/21 mit 0,16 cm durchgerechnet.

Tab. 2.8 Gemessene Gefügeradien nach [2.11]

KVE	Prüfling	r_k (cm)	r_s (cm)	r_z (cm)	r_B (cm)
38	4A/20	0,3075	0,2875	0,1275	0,31
	4A/21	0,305	0,275	0,16	0,31
	4A/22	0,300	0,275	0,125	0,31
40	4A/25	0,283	0,27	0,125	0,31
	4A/26	0,320	0,280	0,125	0,31
	4A/27	0,2875	0,260	0,125	0,31
	4A/28	0,293	0,270	0,120	0,31

r_k = Radius d.Kornwachstumszone (Grenze zwischen dichtem und porösem Brennstoff r_r)

r_s = Radius der Stengelkornwachstumszone

r_z = Zentralkanalradius

r_B = Brennstoffradius

Um dem Bestrahlungsablauf in etwa gerecht zu werden, wurden für die einzelnen Prüflinge von der höchsten mittleren Leistung ab, über je etwa 100 W/cm Unterschied zusammengefasst. Entsprechend wurde mit den Hüllaussentemperaturen verfahren. Die Ergebnisse gibt Tab.2.9 wieder.

Tab.2.9 Thermische Analyse mit dem Zweizonenmodell , Zykl.Bez.nach [2.13]

KVE	Probe	Zyklus	$\bar{\phi}$ (W/cm)	T_a (°C)	T_i (°C)	T_B (°C)	T_z (°C)
38	4A/20	18-22	439	377	428	681	1330
		23-27	300	285	320	487	770
		28-33	184	208	230	332	490
	4A/21	19-23	439	377	428	681	1190
		24-28	315	294	330	506	700
		29-33	196	216	239	352	520
	4A 22	19-25	446	381	433	683	1350
		26-29	287	276	319	479	740
		30-33	202	220	243	355	530
40	4A/27	22-27	453	386	438	695	1290
		28-31	305	288	323	493	850
		32-34	226	236	262	392	600
	4A/26	22-25	461	391	444	701	1310
		26-30	333	307	345	532	1025
		31-34	229	238	264	392	610
	4A/25	22-27	452	386	438	690	1290
		28-30	305	288	323	493	850
		31-34	221	233	258	381	600
	4A/28	22-27	449	383	435	685	1260
		28-34	328	303	341	524	1020
		33-34	230	239	266	394	610

Für die Auswertung der Untersuchungsergebnisse an diesen Kapselversuchseinsätzen ist wahrscheinlich der starke Leistungs- und damit Temperaturabfall im Bereich hohen Abbrandes von besonderer Bedeutung. Er ist in Abb.2.4a, b im Vergleich mit anderen Kapselversuchseinsätzen dargestellt.

Das im vorliegenden Text dargelegte Modell zur thermischen Analyse lässt zweifellos noch den Einfluss mehrerer Faktoren ausser Acht. Hierzu gehören z.B. der Einfluss des Abbrandes und der Riss- und Porenverteilung auf die Wärmeleitfähigkeit, der Einfluss von Reaktionen zwischen Brennstoff und Hülle auf den Wärmeübergang sowie die Frage nach dem Einfluss der Spaltstoffumverteilung auf das Temperaturprofil. Dies wird Gegenstand weiterer Arbeiten sein.

Ich habe Herrn W.Dienst für die einführende Diskussionen in das Gebiet der thermischen Analyse bestrahlter Prüflinge sowie für Hinweise auf die Beurteilung der Ergebnisse in den Kapselversuchseinsätzen KVE 38 und 40 zu danken.

Literatur

- [2.1] H.Kämpf, H.Elbel, F.Depisch, KFK 1575 (1972)
- [2.2] G.Karsten in KFK 700 (1967)
- [2.3] Y.S.Toulikian, Thermophysical Properties of High Temp. Temp. Solid Materials, Vol.3 (1967) MacMillan, New York
- [2.4] H.Kämpf, KFK 751 (1968)
- [2.5] H.E.Schmidt, pers.Mitteilung
- [2.6] H.E.Schmidt, KFK 1400 (1971)
- [2.7] I.A.E.A. Techn.Rep.Ser. Nr.59 (1966)
- [2.8] R.R. Asamoto u.a., GEAP-5493 (1968)
- [2.9] G.Karsten in KFK 700 (1967)
- [2.10] J.A.L.Robertson, J.Nucl.Mat. 7 (1962)
- [2.11] Keramographische Protokolle der Heissen Zellen der GfK
- [2.12] D.Wienst, pers. Mitteilung
- [2.13] D.Freund, pers.Mitteilung
- [2.14] H.S.Carlslaw, J.C.Jaeger, Conduction of Heat in Solids, Oxford, Clarendon Press (1959)

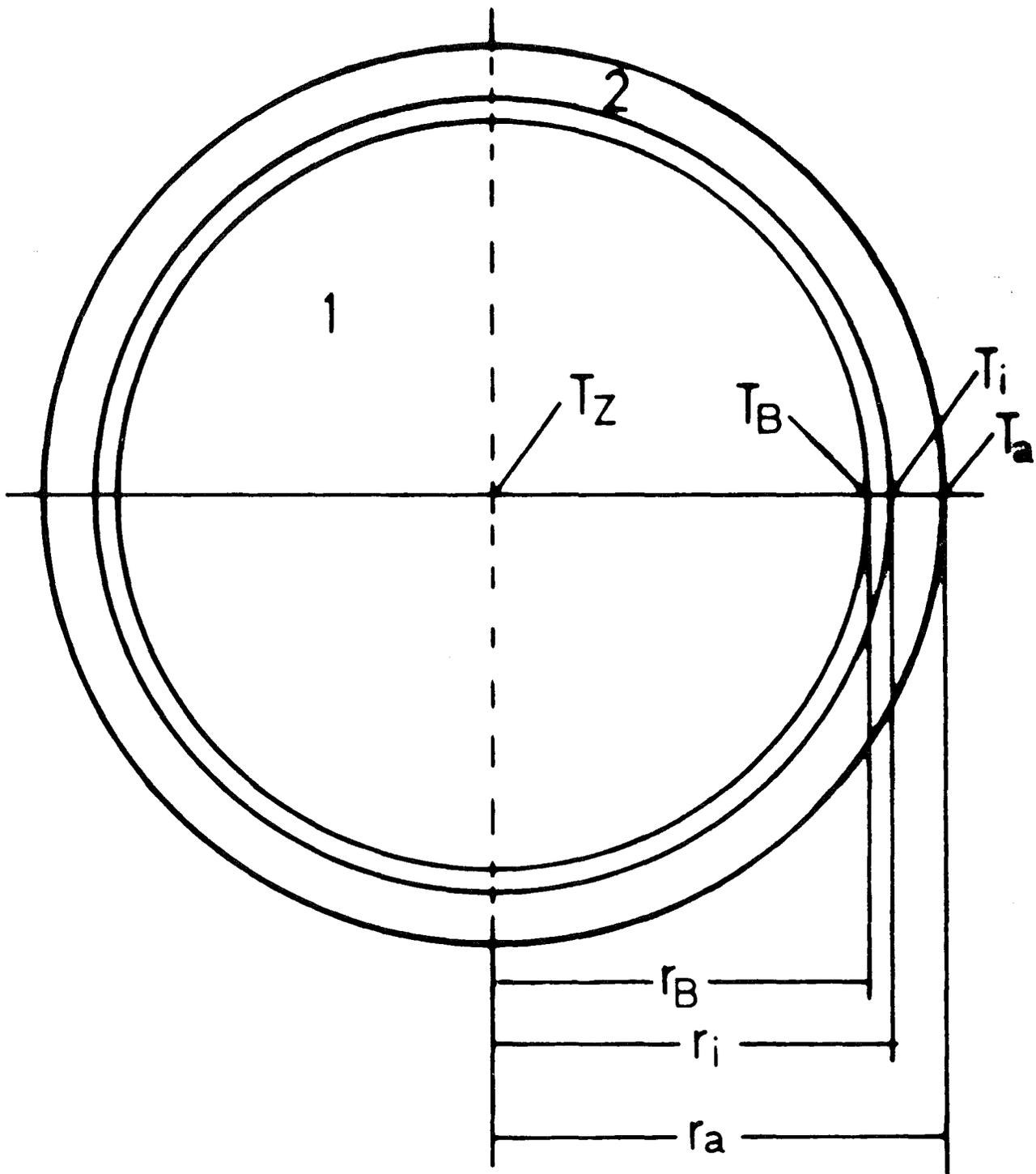


Abb. 2.1: Querschnitt eines Brennstabes

1. Brennstoff (T_Z - Zentraltemperatur, T_B - Brennstoffoberflächentemperatur, r_B - Brennstoffradius)
2. Hülle (r_i - Hüllinnenradius, T_i - Hüllinnentemperatur, r_a - Hüllausseradius, T_a - Hüllausstentemperatur)

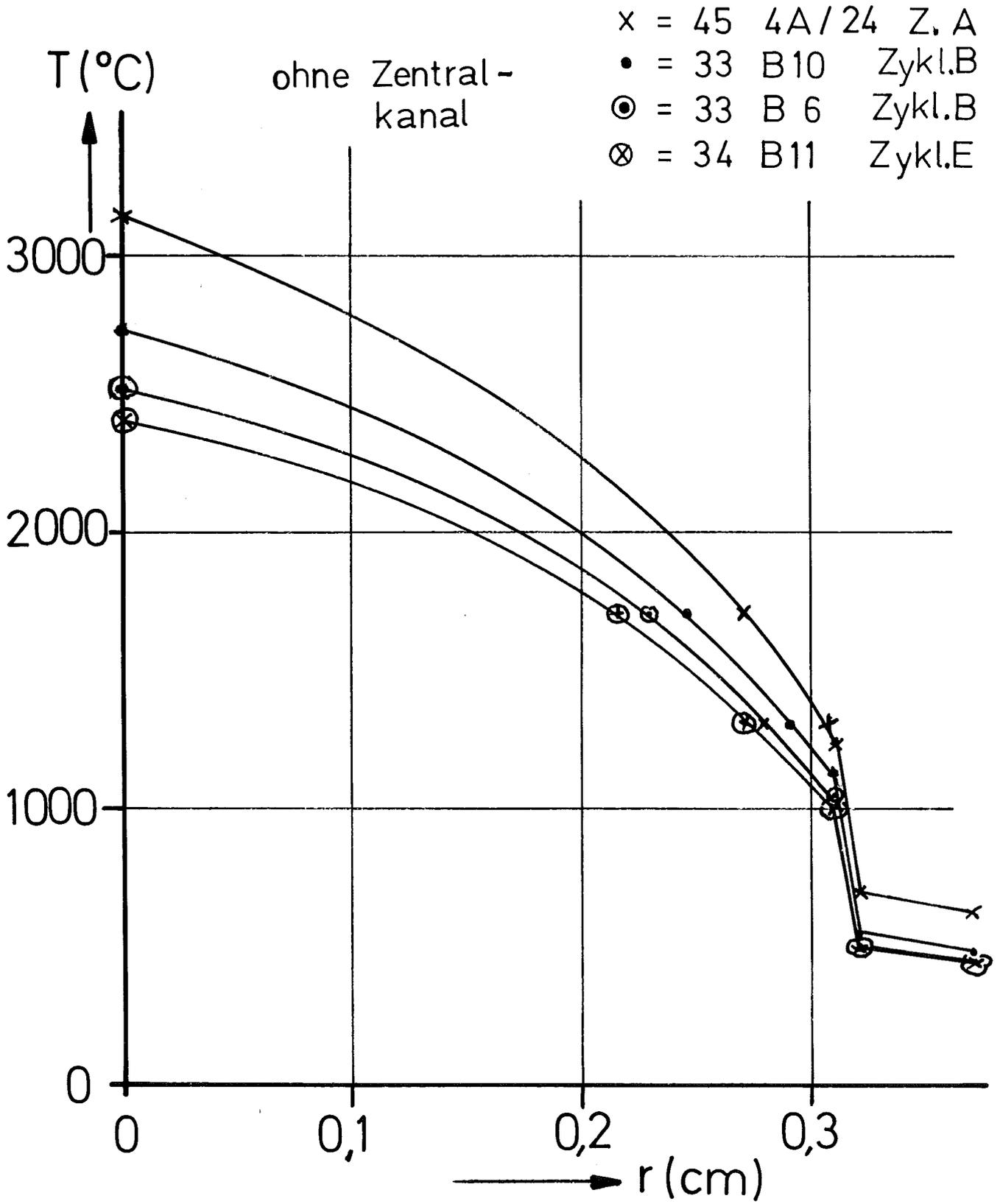


Abb. 2.2a: Temperaturprofil von Brennstäben ohne Zentralkanal

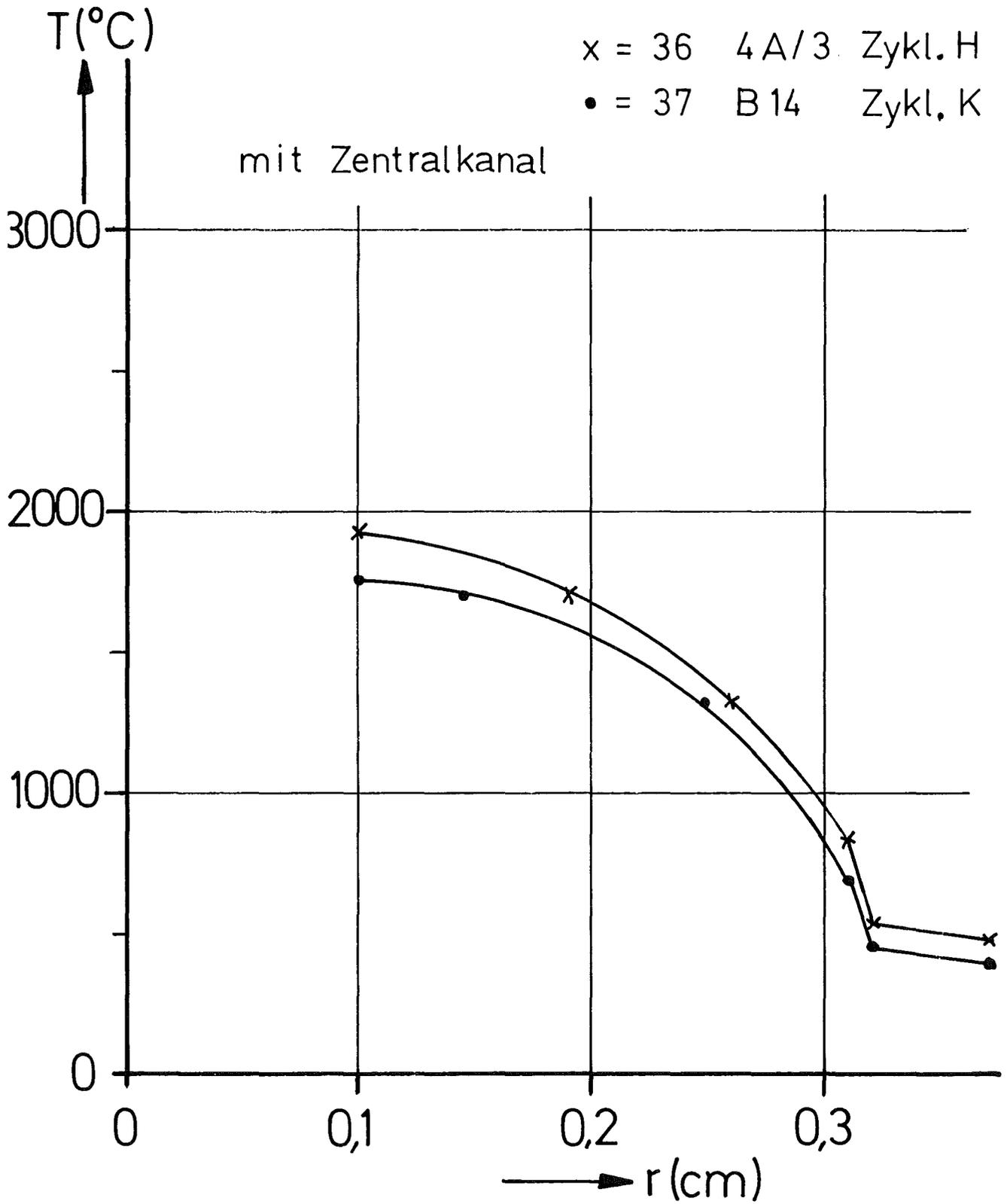


Abb. 2.2b: Temperaturprofil von Brennstäben mit Zentralkanal

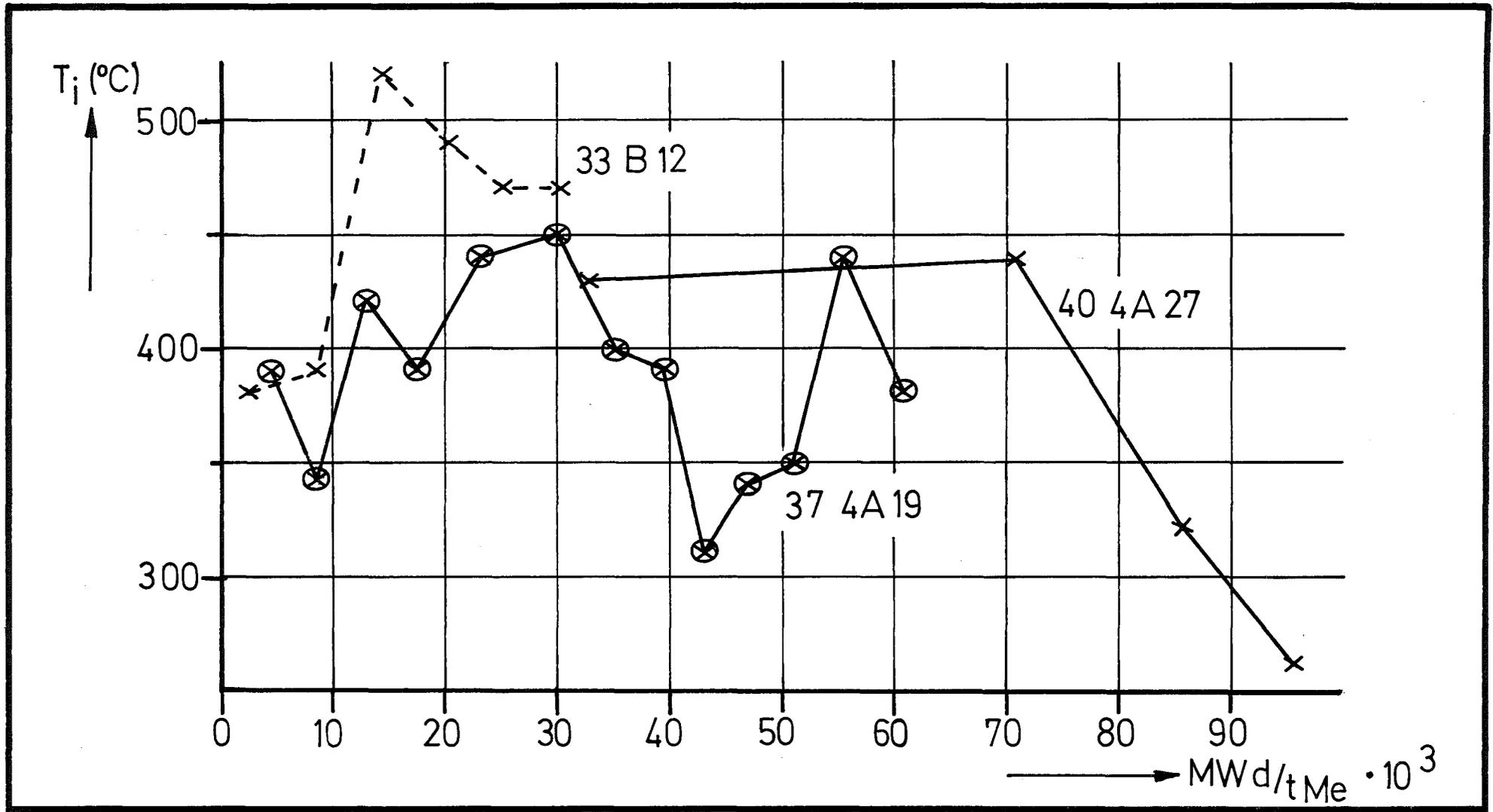


Abb. 2.4b: Verlauf der Hüllinnentemperatur während der Bestrahlung

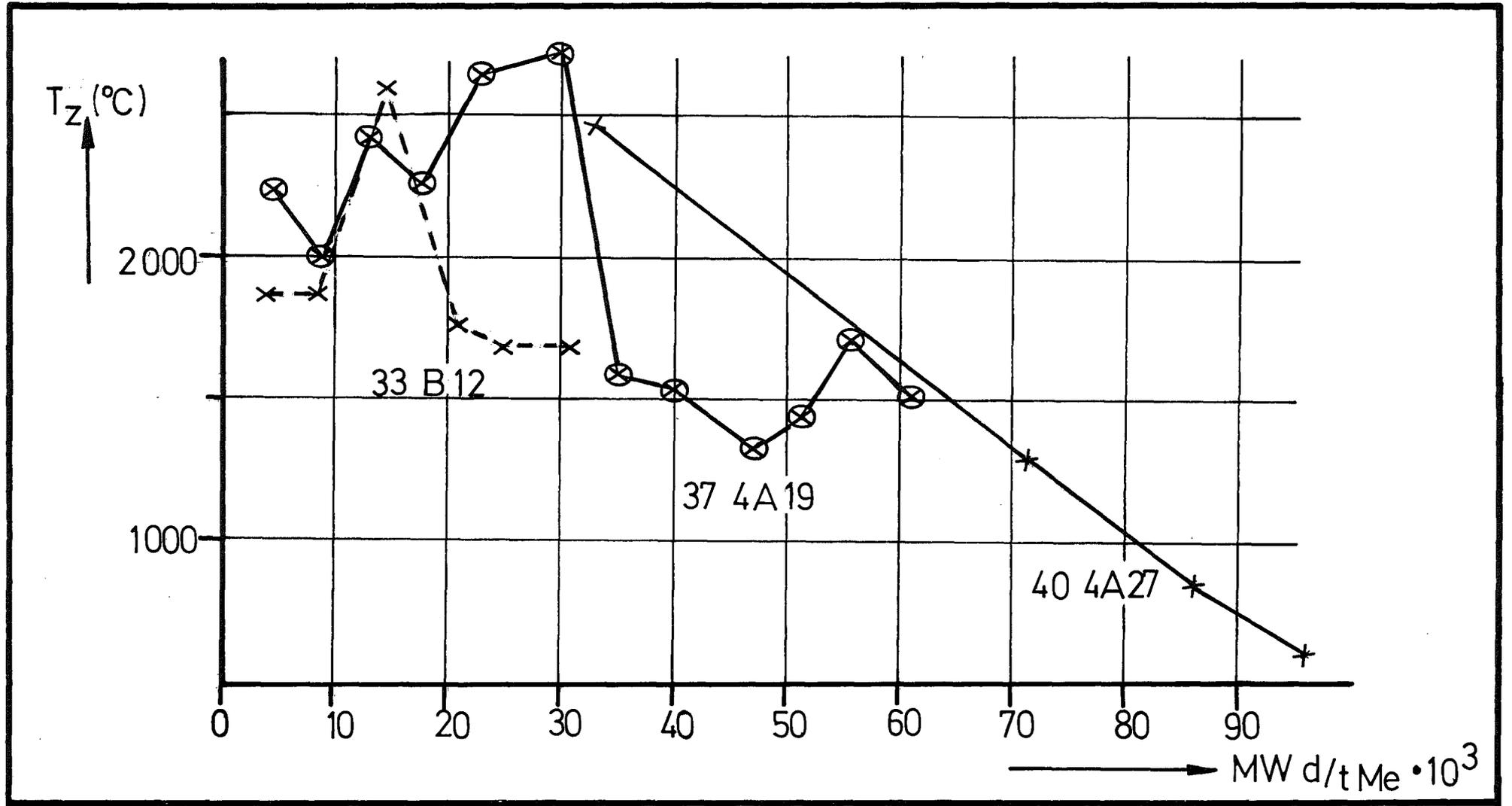


Abb. 2.4a: Verlauf der Zentraltemperatur während der Bestrahlung

3. Spaltgasfreisetzung und -rückhaltung

H.Zimmermann

3.1 Freies Spaltgas

Die aus dem Brennstoff freigesetzten Spaltgasmengen wurden nach Anbohren der Prüflinge unter Vakuum gaschromatographisch bestimmt ("freies Spaltgas"). Die gemessenen und die berechneten prozentualen Freisetzungswerte sind in der Tab. 3.1 aufgeführt, die ausserdem noch die durch Mahlen ("Poren-Spaltgas") und Auflösen ("Gitter-Spaltgas") von Brennstoffproben freigesetzten Spaltgasmengen, umgerechnet auf den gesamten Brennstoff eines Stabes, enthält. Die prozentualen Freisetzungswerte wurden auf die theoretisch entstandenen Spaltgasmengen bezogen, die unter der Annahme, dass pro Spaltung 0,27 Spaltgasatome entstehen, sowohl für den radiochemisch bestimmten als auch für den aus thermischen Daten berechneten Abbrand berechnet wurden.

In Abb. 3.1 wurde die prozentuale Spaltgasfreisetzung in Abhängigkeit vom Abbrand aufgetragen. Für diese Abbildung wurden die radiochemisch bestimmten Abbrandwerte benutzt. In die Abb.3.1 wurde zum Vergleich noch ein Streuband eingetragen, das die Spaltgasfreisetzungen in Abhängigkeit vom Abbrand zeigt, die der Literatur entnommen wurden. Die gemessenen Freisetzungswerte füllen das Streuband voll aus. Erklärungen für die stark streuenden Messpunkte können nicht in jedem Fall gegeben werden. Neben der Möglichkeit von Fehlmessungen, die wahrscheinlich beim KVE 41, dessen Werte nicht in die Abbildung eingezeichnet wurden, in Betracht gezogen werden muss, tragen unterschiedliche Betriebsbedingungen der einzelnen Stäbe zur Streuung bei, so hatte beispielsweise der Stab 4A/24 eine wesentlich höhere Betriebstemperatur als die anderen. Die stark voneinander abweichenden Freisetzungswerte der Stäbe aus den KVE 34,35 und 36, deren Abbrände ungefähr gleich sind, können auf Grund der bekannten Betriebsdaten nicht erklärt werden. Trotz der erheblichen Streuung ist aber aus der Abbildung zu ersehen, dass die Freisetzung zunächst mit dem Abbrand ziemlich stark ansteigt. Bei höheren Abbränden verflacht dann der Anstieg.

3.2 Poren-Spaltgas

Aus verschiedenen Stellen eines Brennstabes wurden Brennstoffproben entnommen und gemahlen und die während des Mahlprozesses freigesetzten

Spaltgasmengen bestimmt. Dieses Spaltgas stammt hauptsächlich aus Poren innerhalb des Brennstoffes und aus Spaltgasblasen an den Korngrenzen; denn beim Zerkleinern erfolgten die Brüche in erster Linie an durch Poren und Blasen geschwächten Stellen. Die Teilchengrößen nach dem Mahlen liegen unter $1\ \mu\text{m}$, so dass man annehmen kann, dass sämtliche Poren mit Durchmessern $>0,5\ \mu\text{m}$ geöffnet sind.

Die Versuchsergebnisse sind in Tab. 3.1 aufgeführt und in Abb.3.2 dargestellt. Der Gehalt an Poren-Spaltgas steigt zunächst bis zu ca. 30 MWd/kg Abbrand nahezu linear mit dem Abbrand auf ca. $7 \cdot 10^{18}$ Spaltgasatome pro g Brennstoff an. Danach verflacht der Anstieg. Erst über 55 MWd/kg steigt der Gehalt an Poren-Spaltgas wieder merklich an, um bei 90 MWd/kg einen Wert von ca. $18 \cdot 10^{18}$ Spaltgasatomen pro g Brennstoff zu erreichen. Dieser Anstieg ist mindestens zum Teil durch die gegen Bestrahlungsende stark abfallende Betriebstemperatur in den KVE 38 und 40 bedingt. Jedoch deutet der mit zunehmendem Abbrand steigende prozentuale Anteil des Poren-Spaltgases am gesamten im Brennstoff zurückgehaltenen Spaltgas an, dass sich auch nach mittleren und höheren Abbränden noch neue Spaltgasblasen bilden bzw. dass das Spaltgasaufnahmevermögen vorhandener Poren noch nicht erschöpft ist. Der Anteil des Poren-Spaltgases steigt von ca. 60% bei Abbränden um 20 MWd/kg auf ca. 70% bei 90 MWd/kg.

3.3 Gitter-Spaltgas

Die gemahlten Proben, an denen der Gehalt an Poren-Spaltgas bestimmt wurde, wurden anschliessend aufgelöst und das dabei freigesetzte Spaltgas bestimmt. Dieses Spaltgas besteht hauptsächlich aus den Anteilen, die sich im Brennstoffgitter in dynamischer Lösung oder in kleinen Blasen innerhalb der Körner befanden.

Die Versuchsergebnisse sind ebenfalls in Tab.3.1 aufgeführt und in Abb.3.2 dargestellt. Der Gehalt an Gitter-Spaltgas ist etwa halb so hoch wie der an Poren-Spaltgas. Die Konzentration des Gitter-Spaltgases steigt ebenfalls bis ca. 30 MWd/kg nahezu linear mit dem Abbrand an. Danach bleibt sie bis über 60 MWd/kg mit ca. $3,5 \cdot 10^{18}$ Gasatomen pro g Brennstoff ungefähr konstant, so dass dieser Wert bei der gegebenen Temperaturverteilung als Sättigungswert anzusehen ist. Der

daraufliegende Anstieg erklärt sich durch die abfallende Betriebstemperatur. So ist die für die Gitter-Spaltgaskonzentration ausschlaggebende Zone mit $T < 1300^{\circ}\text{C}$ bei den KVE 38 und 40 am Bestrahlungsende um den Faktor 2,5 grösser als der Mittelwert dieser Zone bei ca. 30 MWd/kg. Um ungefähr den gleichen Faktor ist auch die Konzentration des Gitter-Spaltgases gestiegen.

3.4 Diskussion

Die Spaltgasfreisetzung erfolgt beim stationären Betrieb eines oxidischen Brennstabes durch Blasenwanderung zum Zentralkanal, über die Korngrenzen in den Zonen mittlerer und niedriger Temperatur sowie durch knock-out and recoil-Prozesse. Beim Lastwechseln kommt es durch Rissbildung zur Erhöhung der Freisetzung durch plötzliche Freigabe aus gerissenen Korngrenzen und zerstörten Poren. Ausserdem wird die Freisetzungsrates durch Vergrösserung der freien Oberfläche erhöht.

Trotz dieser relativ einfachen Beschreibung der Vorgänge bei der Spaltgasfreisetzung war es nicht möglich, ein Freisetzungsmodell auf dieser Basis zu entwickeln, das mit den Bestrahlungs- und Brennstoffdaten die gemessenen Freisetzungswerte für die Einzelmessungen richtig wiedergibt. Der Versuch scheitert wahrscheinlich vor allem daran, dass sich mit bekannten Daten, wie Abbrand, Stabileistung, Zahl der thermischen Zyklen, Brennstoffdichte usw., nicht die Rissbildung erfassen lässt. Vergleicht man die Freisetzungswerte und Bestrahlungsdaten der KVE's 34 bis 36, die alle ca. 30 MWd/kg Abbrand haben, so muss man schliessen, dass mindestens bis zu diesem Abbrand die nicht erfassbaren instationären Vorgänge bei der Spaltgasfreisetzung entscheidend sind.

Im folgenden soll versucht werden, den über den Brennstoffquerschnitt gemittelten Sättigungswert des Gitter-Spaltgases von $3,5 \cdot 10^{18}$ Spaltgasatomen pro g Brennstoff zu deuten. Geht man von den Annahmen aus, dass sich in der Brennstoffzone ohne so schnelle Blasenwanderung wie in der Stengelkristallzone durch Wachstum und Wiederauflösung der Blasen eine Gleichgewichtsgrösse von ca. 40 \AA Durchmesser [3.1] und eine Keimdichte von 10^{17} cm^{-3} [3.2] unter den gegebenen Bestrahlungsbedingungen einstellen u. enthält eine solche Blase, deren Innendruck mit der Oberflächenspannung im Gleichgewicht steht, ca. 400 Spaltgasatome, so be-

finden sich in dieser Zone ca. $4 \cdot 10^{18}$ Spaltgasatome/g Brennstoff. Bei einem mittleren Innenradius dieser Zone von 0,2 cm sind das gemittelt über den gesamten Querschnitt $2,3 \cdot 10^{18}$ Gasatome/g Brennstoff. Die Menge des Spaltgases in Blasen ändert sich nicht, wenn in den heisseren Zonen infolge höherer Beweglichkeit die Blasen zusammenschlagen und sich vereinigen, wodurch sie sich vergrössern und ihre Dichte abnimmt.

Zusätzlich befindet sich noch ein Teil des Spaltgases in dynamischer Lösung. Aus dem Rest der gemessenen Gitter-Spaltgasmenge ergibt sich dieser Anteil zu ca. $1,2 \cdot 10^{18}$ Spaltgasatome pro g Brennstoff oder ca. $6 \cdot 10^{-4}$ Gasatome pro Schwermetallatom. Dieser Wert könnte grössenordnungsmässig richtig sein, denn Nelson [3.2] errechnete für 10% angereichertes UO_2 in einem thermischen Neutronenfluss von $3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ bei einem Gasatomdiffusionskoeffizienten von $10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ eine Sättigungskonzentration von ca. $3 \cdot 10^{-4}$ Gasatome/Metallatom. Der Sättigungswert des Gitterspaltgases lässt sich also durch das Spaltgas in kleinen Blasen und in dynamischer Lösung erklären.

Die Kr:Xe-Verhältnisse der verschiedenen Spaltgasanteile sind in der Tab. 3.2 aufgeführt. Beim erzeugten Spaltgas (freies Spaltgas+Poren+Gitter-Spaltgas) beträgt es 1:17,7. Das Kr:Xe-Verhältnis des freien Spaltgases entspricht dem des erzeugten. Dagegen ist das des Poren-Spaltgases grösser und das des Gitter-Spaltgases kleiner als es der Erzeugung entspricht. Das bedeutet, dass thermische Diffusion ein wesentlicher Prozess bei der Spaltgasaufnahme durch Poren ist.

Das aus der Stengelkristallzone freigesetzte Spaltgas sollte das gleiche Kr:Xe-Verhältnis haben wie bei der Entstehung, denn die schnell wandernden Blasen nehmen die Gasatome unabhängig von deren Beweglichkeit im Gitter auf. Ebenso dürfte die strahleninduzierte Diffusion beider Gasarten in den äusseren Brennstoffzonen ungefähr gleich sein, wodurch das Kr:Xe-Verhältnis in den Korngrenzenblasen ungefähr dem der Entstehung entspricht. Damit wird die Auffassung gestützt, dass das freie Spaltgas hauptsächlich aus der Stengelkristallzone und aus Korngrenzenblasen der äusseren, nicht plastischen Zone stammt. Auch bei knock-out- und recoil-Freisetzung dürfte kein unterschiedliches Verhalten von Xe und Kr bestehen.

Auf Grund der vorstehenden Ergebnisse lässt sich für Zwecke der Modellrechnung an Oxidbrennstäben eine empirische Formel für die Spaltgasfreigabe angeben. Ihr liegen folgende Annahmen zugrunde:

- In der Brennstoffzone mit $T > 1300^{\circ}\text{C}$ ist die Menge des gespeicherten Spaltgases relativ gering und der Sättigungswert wird rasch erreicht.
- In der Zone ohne Gefügeänderung ($T < 1300^{\circ}\text{C}$) wird Spaltgas in erheblichen Konzentrationen gespeichert und die Einstellung der Sättigungskonzentration erfolgt langsam. Es scheint gerechtfertigt, diese Zone noch einmal zu unterteilen, und zwar in eine Zone mit $T < 1000^{\circ}\text{C}$ in der wahrscheinlich nur strahlungsinduzierte Diffusion stattfindet und in eine Zone mit $T = 1000 - 1300^{\circ}\text{C}$, in der thermische Diffusion bereits eine Rolle zu spielen beginnt.
- Die Freisetzung aus der Zone ohne Gefügeänderung erfolgt im wesentlichen durch den break-away-Mechanismus. Dieser Vorgang wird nach 3 bis 4% Abbrand wirksam, wenn die Belegung der Korngrenzen mit Spaltgasblasen so dicht wird, dass die Blasen untereinander in Verbindung treten und die Korngrenzen aufreißen.

Die Formel für die Freisetzung lautet dann:

$$F = F_1 + F_2 + F_3$$

mit

$$F_1 = \left[1 - \frac{8 \cdot 10^{-4}}{0,27A} (1 - e^{-A/0,005}) \right] \frac{r_{1300}^2 - r_{zk}^2}{r^2 - r_{zk}^2}$$

$$F_2 = \begin{cases} 0 & \text{für } A \leq 0,03 \\ \left[1 - \frac{6 \cdot 10^{-3}}{0,27(A-0,03)} (1 - e^{-(A-0,03)/0,03}) \right] \frac{r_{1000}^2 - r_{1300}^2}{r^2 - r_{zk}^3} & \text{für } A > 0,03 \end{cases}$$

$$F_3 = \begin{cases} 0 & \text{für } A \leq 0,04 \\ \left[1 - \frac{1 \cdot 10^{-2}}{0,27(A-0,04)} (1 - e^{-(A-0,04)/0,04}) \right] \frac{r^2 - r_{1000}^2}{r^2 - r_{zk}^2} & \text{für } A > 0,04 \end{cases}$$

A Abbrand

r Brennstoffradius

- r_{zk} Radius des Zentralkanals
 r_{1300} Radius der 1300°C Isothermen
 r_{1000} Radius der 1000°C Isothermen

Für die mittleren FR 2-4a-Werte $r = 3,1$ mm, $r_{1300} = 2,5$ mm, $r_{1000} = 2,8$ mm und $r_{zk} = 1$ mm ist die Spaltgasfreisetzung nach obiger Formel in Abb.3.1 eingetragen. Für die hochabgebrannten Proben aus dem KVE 38 und 40 treffen diese Temperaturzonen nicht mehr zu. Das Temperaturniveau dieser Proben liegt wesentlich niedriger, demzufolge ist auch die Spaltgasfreisetzung kleiner. Die bei diesen Proben gegen Bestrahlungsende abgefallene Temperatur lässt die Anwendung obiger Formel in ihrer einfachen Form nicht zu, da diese Formel die direkte Einstellung von Gleichgewichtszuständen zur Voraussetzung hat. Diese Voraussetzung ist jedoch bei den genannten Proben nicht gegeben. Hinzu kommen irreversible Gefügeänderungen, die die Konzentration des gebundenen Spaltgases ebenfalls beeinflussen. Bessere Übereinstimmung mit der gemessenen Freisetzung zeigt die Formel bei ansteigender Temperatur, wie das Beispiel der bei niedrigem Abbrand überhitzten Probe 4A/24 zeigt. In Abb.3.1 ist neben dem entsprechenden Messpunkt der für die spezielle Temperaturverteilung dieser Probe berechnete Verlauf der Spaltgasfreigabe eingetragen.

Für die sichere BE-Auslegung sollte im Hinblick auf das breite Streuband der Spaltgasfreigabewerte, das durch die hier behandelten Messungen nicht eingeengt, sondern in seiner Breite durchaus bestätigt wurde, nicht die angegebene Formel, sondern die obere Grenze des Streubandes in Abb.3.1 zugrunde gelegt werden.

Literatur

- [3.1] A.J.Manley
The Behaviour of Fission Gases in Irradiated UO_2 : A Re-Solution Process, TRG-1681, 1968
- [3.2] R.S.Nelson
The Stability of Gas Bubbles in an Irradiation Environment
J.Nucl.Mat. 31 (1969) 153

Tabelle 3.1: Spaltgasdaten der Versuchsgruppe FR 2 - 4a

KVE	Prüfling	Abbrand (radio- chem.) Mwd/kg	Spalt- gas (theor. ret.) cm ³	Freies Spaltgas F				Poren-Spaltgas P				Gitter-Spaltgas G				ges. Spaltgas (F+P+G)	
				cm ³	%theor.	% (F+P+G)	Kr:Xe	cm ³	%theor.	% (F+P+G)	Kr:Xe	cm ³	%theor.	% (F+P+G)	Kr:Xe	cm ³	Kr:Xe
33	B 10	11,0	6,97	2,68	38,5	36,0	1:15,7	2,87	41,2	38,5	1:17,7	1,90	27,3	25,5	1:19,0	7,45	1:17,2
	B 7	10,4	6,57	2,60	39,6	39,3	1:19,6	2,06	31,4	31,1	1:12,6	1,96	29,8	29,6	1:21,5	6,62	1:17,1
	B 6	10,1	6,40	2,39	37,3	37,4	1:17,5	2,43	38,0	38,0	1:16,3	1,57	24,5	24,6	1:17,1	6,39	1:16,9
34	B 13	30,0	18,68	8,87	47,5	48,3	1:32,2	6,07	32,5	33,1	1:17,8	3,42	18,3	18,6	1:14,8	18,36	1:21,7
	B 12	30,4	19,17	13,45	70,2	47,3	1:28,9	7,73	40,3	27,2	1:13,5	7,28	38,0	25,5	1:22,1	28,46	1:20,9
	B 11	27,6	17,45	13,87	79,5	-	1:16,0	-	-	-	-	8,87	50,8	-	1:21,1	-	-
35	4A/4	26,6	16,93	3,27	19,3	23,8	1:7,0	6,65	39,3	48,4	1:17,5	3,81	22,5	27,8	1:23,3	13,73	1:13,8
	4A/2	27,5	17,43	3,82	21,9	28,1	1:5,6	6,19	35,5	45,6	1:15,9	3,57	20,5	26,3	1:23,3	13,58	1:11,4
	4A/1	28,6	18,33	4,13	22,6	27,2	1:5,6	7,26	39,7	47,8	1:16,8	3,81	20,8	25,0	1:22,1	15,20	1:11,7
36	4A/9	29,2	18,41	7,11	38,6	43,8	1:10,2	6,28	34,1	38,6	1:17,6	2,86	15,5	17,6	1:18,8	16,25	1:13,5
	4A/8	30,3	19,17	4,87	25,4	36,7	1: 9,4	5,22	27,2	39,3	1:15,2	3,18	16,6	24,0	1:22,1	13,27	1:13,3
	4A/5	32,0	20,31	9,67	47,6	50,1	1:23,0	5,30	26,1	27,5	1:14,0	4,33	21,3	22,4	1:26,4	19,30	1:20,1
	4A/3	32,1	20,44	-	-	-	-	5,08	24,9	-	1:14,0	2,17	10,6	-	1:15,1	-	-
37	4A/19	60,8	36,18	-	-	-	-	5,44	15,0	-	1:24,2	-	-	-	-	-	-
	4A/16	62,2	37,56	31,56	84,0	82,8	1:20,6	5,30	14,1	13,9	1:21,3	1,27	3,4	3,3	1:25,1	38,13	1:20,8
	4A/15	71,8	42,62	32,59	76,5	73,0	1:16,7	10,15	23,8	22,7	1:21,9	1,89	4,4	4,3	1:24,1	44,63	1:18,9
	B 14	66,3	41,73	24,22	58,0	58,0	1:20,3	13,70	32,8	32,8	1:19,5	3,87	9,3	9,2	1:14,6	41,79	1:19,5
38	4A/22	96,6	57,15	47,65	83,4	73,0	1:18,5	11,21	19,6	17,2	1:17,6	6,38	11,2	9,8	1:24,5	65,24	1:18,9
	4A/21	89,0	53,12	54,13	(101,9)	76,3	1:17,5	11,59	21,8	16,3	1:17,5	5,20	9,8	7,4	1:23,4	70,92	1:17,9
	4A/20	90,8	54,02	42,86	79,3	68,3	1:17,9	13,67	25,3	21,8	1:17,1	6,26	11,6	9,9	1:22,6	62,79	1:18,2
40	4A/28	85,5	50,86	36,56	71,9	59,5	1:18,7	16,97	33,4	27,6	1:16,5	7,87	15,5	12,9	1:21,5	61,40	1:18,4
	4A/25	90,7	54,12	38,35	70,9	58,5	1:18,7	23,03	42,6	35,1	1:16,9	4,23	7,8	6,4	1:22,3	65,61	1:18,3
	4A/26	93,0	55,20	36,20	65,6	57,6	1:15,4	18,05	32,7	28,7	1:16,9	8,59	15,6	13,7	1:19,6	62,84	1:16,4
	4A/27	95,5	56,76	41,73	73,5	63,4	1:20,6	16,14	28,9	24,5	1:16,7	8,00	14,1	12,1	1:23,2	65,87	1:19,9
41	4A/18	46,8	28,03	38,08	(136)	-	1:18,3										
	4A/23	44,8	27,02	37,38	(138)	-	1:17,9										
	4A/17	35,2	20,98	38,62	(184)	-	1:17,2										
45	4A/24	13,6	8,13	7,38	90,8	69,0	1:23,8	2,64	32,5	24,7	1:12,3	0,68	8,4	6,3	1:22,5	10,70	1:19,4

keine gebundenen Spaltgase bestimmt

Tabelle 3.2: Kr:Xe-Verhältnisse der verschiedenen Spaltgasanteile

	Kr:Xe
entstandenen Spaltgas	1:17,7
freies Spaltgas	1:17,6
Poren-Spaltgas	1:17,0
Gitter-Spaltgas	1:19,5

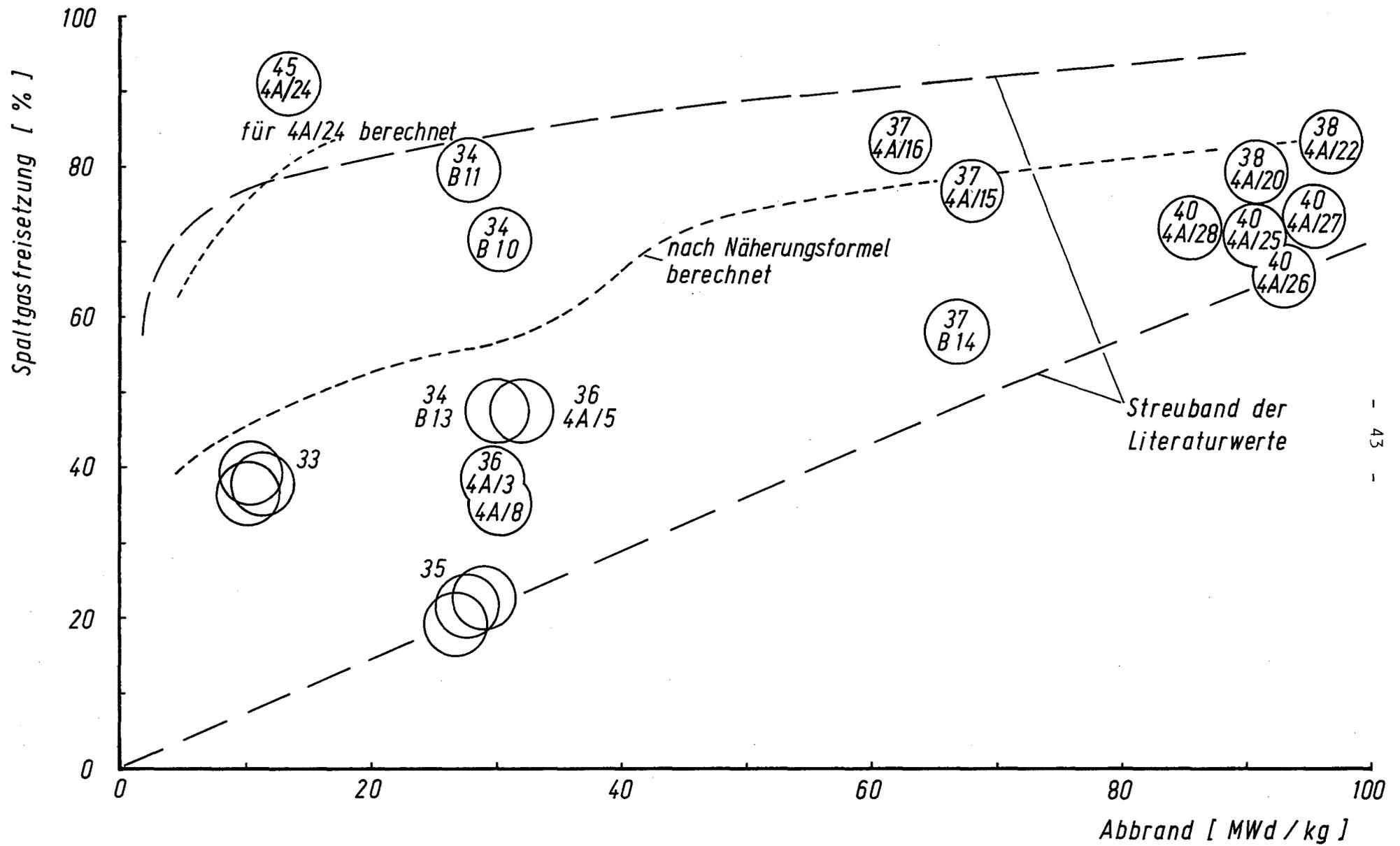


Abb. 3.1: Spaltgasfreisetzung in Abhängigkeit vom Abbrand

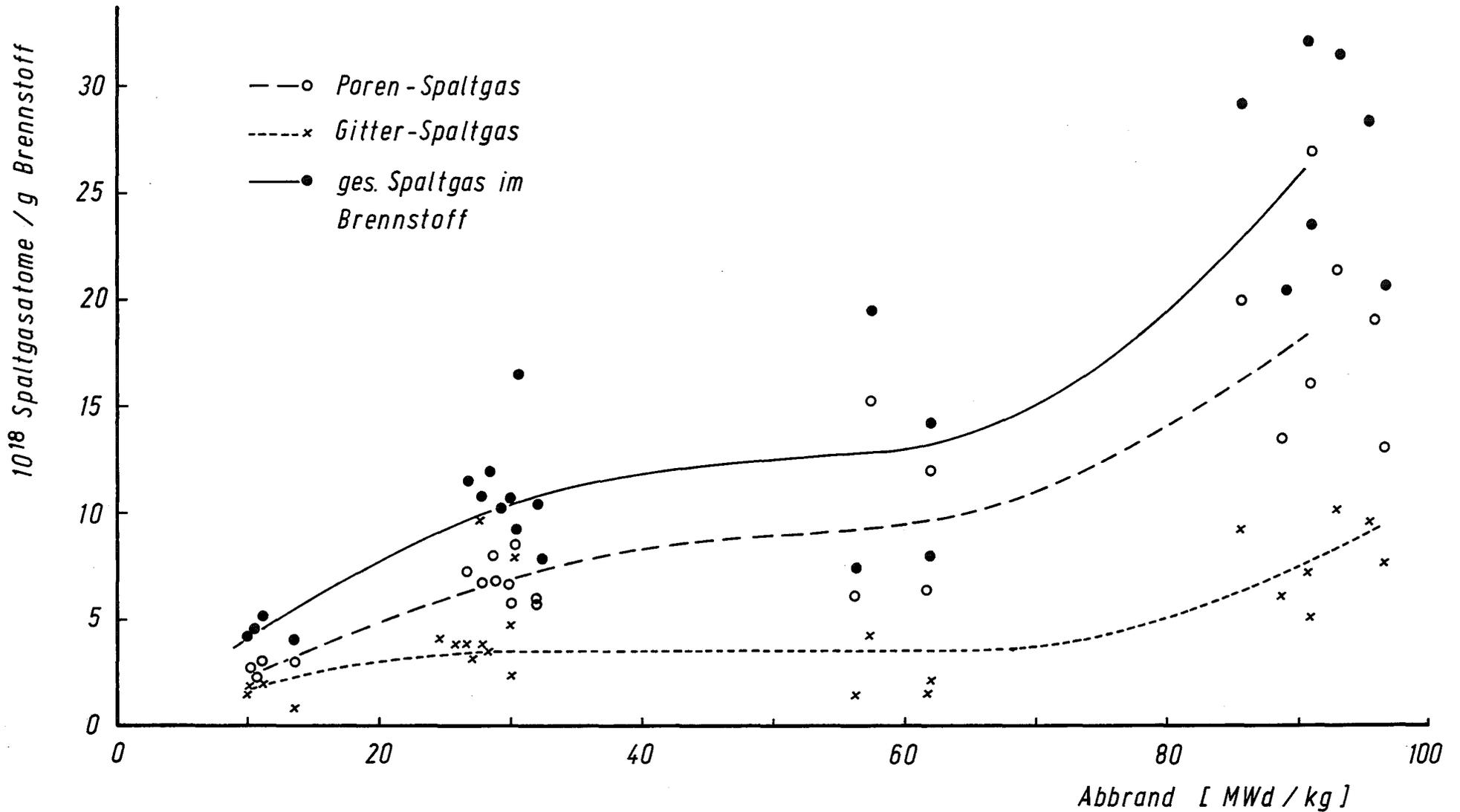


Abb. 3.2: Spaltgasgehalt des Brennstoffes in Abhängigkeit vom Abbrand

4. Leervolumen-Verlagerung

W.Dienst, G.Ondracek

4.0 Einleitung

Die Brennstoffgefügestruktur, die sich in Oxidbrennstäben bei hohen spezifischen Stableistungen normalerweise ausbildet, ist aus vielen Veröffentlichungen bekannt. Abb.4.1 zeigt als Beispiel zwei Brennstabquerschnitte aus der hier untersuchten Versuchsgruppe. Die Aussenradien der rekristallisierten Brennstoffzone, der Säulenkristallzone und des Zentralkanals wurden bereits im Zusammenhang mit der mikroskopischen Gefügeuntersuchung in den Heissen Zellen vermessen und für jeden Brennstabprüfling in einer Tabelle zusammengestellt, wie sie Abb.4.2 zeigt.

Die Kenntnis der anteiligen Grösse der verschiedenen Brennstoffgefügezonen ist vor allem für die Durchführung, Überprüfung und Verbesserung der Analyse der Temperaturverteilung im Brennstab von Bedeutung (s. Abschnitt 2). Für die Analyse der Leervolumenverteilung bringt sie dagegen nur eine Teilaussage (Grösse des Zentralkanals), die durch Vermessung des anteiligen Riss- und Porenvolumens sowie der radialen Porenvolumenverteilung stark erweitert werden muss. Dadurch werden -neben einer weiteren Verfeinerung der thermischen Analyse- erst die Voraussetzungen für Aussagen über das Sinter-, Schwell- und Kriechverhalten des Brennstoffes unter Bestrahlung sowie über die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle erreicht.

4.1 Aussenrisse

4.1.1 Messergebnisse

Ein relativ grob verteilter Leervolumenanteil liegt -ausser im Zentralkanal- in den breiten radialen Aussenrissen vor, die von der äusseren Brennstoffoberfläche ausgehen (s. Abb.4.1). Eine Vermessung der Breiten und der Querschnittsflächen dieser Risse erscheint grundsätzlich geeignet, Aussagen über den Vorgang, durch den der Brennstoff unter Beseitigung des ursprünglich vorhandenen Spaltes in Kontakt mit der Hülle kommt, sowie über Schwell- und Sintereffekte in der äusseren Brennstoffzone zu liefern.

Zur Ermittlung der Rissbreiten und -querschnittsflächen wurden mikroskopische Bilder mit 15-facher Vergrösserung verwendet, die gerade den ganzen Brennstabquerschnitt erfassen (s. Abb.4.1). Mit einer 20-fach

vergrößernden Messlupe wurden die Rissbreiten am Brennstoffumfang (unter Korrektur deutlich erkennbarer Ausbrüche) gemessen. Die Querschnittsflächen der Risse wurden nach zeichnerischer Übertragung auf transparentes Millimeterpapier abgeschätzt. Ausserdem wurde die mittlere radiale Tiefe der Risse bestimmt. Die Tabelle 4.1 enthält für jede Bestrahlungskapsel (je 3 - 4 Brennstabprüflinge mit 1 - 2 untersuchten Querschnitten) die mittleren Messwerte (unter Angabe der Schwankungsbreite der Einzelwerte) für die Summe der Rissbreiten und -querschnittsflächen je Brennstabquerschnitt, die mittlere Anzahl und radiale Tiefe der ausgewerteten Risse, die Zahl der thermischen Zyklen (=Reaktorabschaltungen) während der Bestrahlung sowie den mittleren Abbrand des Brennstoffes.

Wenn die Messwerte in der Tabelle 4.1 untereinander verglichen werden, zeigt sich, dass

- 1) in dem erfassten Abbrandbereich nirgends eine Vergrößerung der Brennstoff-Aussenrisse mit steigendem Abbrand erkennbar ist,
- 2) in dem Abbrandbereich von etwa 10 - 30 MWd/kg auch keine Verkleinerung der Aussenrisse mit steigendem Abbrand sicher nachweisbar ist (das gilt vor allem im Hinblick auf die Rissflächen-Summen),
- 3) oberhalb von 40 MWd/kg Abbrand eine deutliche Verkleinerung der Aussenrisse beobachtet wurde.

Die Rissflächenmessung kann dabei keine grundsätzlich andere Aussage als die Rissbreitenmessung liefern. Sie bietet jedoch eine wertvolle Kontrolle der Rissbreitenmessung, weil ihre Ergebnisse eine mittlere Rissbreite beinhalten, die weniger anfällig für Schliffpräparationsfehler (Ausbrüche, Randeffekte) und gegen ungleichmässige Veränderungen der Rissbreite ist, als die Rissbreite am Brennstoffumfang.

Die gemessenen Aussenrisse sind auf jeden Fall das Ergebnis verschieden grosser relativer Volumenänderungen der inneren, sehr heissen und daher plastischen Brennstoffzone und der äusseren, kälteren, verhältnismässig starren Brennstoffzone. Die Aussenrisse haben ihre maximal mögliche Grösse erreicht, wenn der äussere Brennstoffdurchmesser bis zum innigen, auch im kalten Zustand haftenden Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle vergrössert worden ist. Wenn sich dabei weder der Hüll-

durchmesser noch das spezifische Volumen der äusseren, starren Brennstoffzone geändert hat, führt eine einfache geometrische Betrachtung zum Ergebnis, dass die Summe der Rissbreiten $= 2\pi d$ ist, wenn d die Breite des ursprünglichen radialen Kaltspaltes zwischen Brennstoff und Hülle ist. In Tab.4.1 ist neben den ermittelten Messwerten auch ihr Verhältnis zu diesem "geometrisch möglichen Maximalwert" angegeben.

4.1.2 Diskussion der Messergebnisse

Die Bildung der Aussenrisse, d.h. der breiten radialen Risse in der äusseren, verhältnismässig starren Brennstoffzone, kann durch die Spaltgasschwellung der inneren, plastischen Brennstoffzone verursacht sein oder durch einen Riss-Rastmechanismus, bei dem ein Volumenanteil der bei Temperaturänderungen durch thermische Spannungen erzeugten Risse jeweils nach einem vollen Temperaturzyklus als zusätzliches Leervolumen im Brennstoff zurückbleibt. Dieser Anteil kann durch mechanische Verschiebungen, Sintervorgänge oder durch Abtransport im Temperaturgefälle stabilisiert worden sein.

Der Rissbildungsvorgang scheint bereits im Abbrandbereich bis zu 10 MWd/kg vollständig abzulaufen; denn bei höheren Abbränden war keine weitere Vergrösserung der Risse nachzuweisen. Die geringe Zahl von nur acht thermischen Zyklen bis zum Abbrand von 10 MWd/kg (KVE 33) sowie die Unwirksamkeit der vielen folgenden Zyklen bezüglich einer Vergrösserung der Risse lassen einen Riss-Rastmechanismus für den Rissbildungsvorgang wenig wahrscheinlich erscheinen.

Zwanglos lässt sich die Rissbildung durch die Spaltgasschwellung der inneren Brennstoffzone erklären, deren Temperatur zur schnellen Bildung grosser Spaltgasblasen ausreicht. Die relative Vergrösserung des äusseren Brennstoffumfanges durch die oben erwähnte maximale Rissbreiten-Summe $2\pi d$ beträgt d/R , wenn R der ursprüngliche Brennstoffradius ist. Mit $d \approx 100\mu\text{m}$ und $R \approx 3,1\text{ mm}$ ergibt sich ein Zuwachs von 3,2%. Bei einer Risstiefe $\Delta R_{\text{Riss}} \approx 0,2 R$ wird dieser Zuwachs durch eine lineare Spaltgasschwellung von 4% am Rande der inneren Brennstoffzone vor der Rissfront erreicht. Demnach müsste dort bei Beginn der Bestrahlung bis zu einem Abbrand von etwa 10 MWd/kg eine Volumenschwellgeschwindigkeit von mindestens 12 Vol.-%/10 MWd/kg vorgelegen haben. Entsprechende Schwellgeschwindigkeiten sind tatsächlich von fast frei, d.h.

ohne wesentlichen Hüllwiderstand schwellenden Oxidbrennstoffproben bei etwa 1700°C erreicht worden [4.1]. Der Schwelldruck lag dabei sehr niedrig [4.2] und wäre für eine messbare Kriechverformung der Hülle an den hier untersuchten Brennstabproben bei weitem nicht ausreichend. Die Aufweitung der Aussenrisse und die entsprechende Vergrösserung des Brennstoffdurchmessers muss daher bei enger Berührung des Brennstoffes mit der Hülle enden.

Bisher ist nur die Änderung der Messwerte in Tab. 4.1 bis zu mittlerem Abbrand diskutiert worden, aber nicht ihr absoluter Betrag. Tab.4.1 zeigt, dass die Summe der gemessenen Rissbreiten im allgemeinen weit über 100% der geometrisch möglichen Maximalwerte liegt. Diese Abweichung ist wahrscheinlich auf Ausbrüche an den Rissrändern zurückzuführen, die während der Bestrahlung und vor allem während der Schlifffprobenvorbereitung entstehen. Im Abschnitt 4.3 wird im Zusammenhang mit der Porositätsmessung die Berücksichtigung von Verfälschungen bei der Schlifffpräparation durch einen Korrekturfaktor erörtert.

Hier bleibt zunächst festzustellen, dass die gemessenen Rissbreiten-summen bis zu einem Abbrand von etwa 30 MWd/kg im Mittel um 80% höher liegen, als sie für einen Brennstoff unveränderter Dichte maximal zu erwarten wären. Dieses Ergebnis könnte -ausser auf Präparationseffekte- auch auf eine bestrahlungsbedingte Nachsinterung der äusseren Brennstoffzone zurückgeführt werden. Dann müsste ihm jedoch eine lineare Sinterschrumpfung von 0,8.3,2% (s.o.) und damit eine Porositätsabnahme von 7,7% zugrundeliegen. Eine derartig starke Nachverdichtung des Brennstoffes ist bei der Sinterdichte von etwa 92% TD äusserst unwahrscheinlich und wird auch durch die in den Schlifffbildern sichtbare beträchtliche Porosität der äusseren Brennstoffzone widerlegt, wie im besonderen noch im Abschnitt 4.3 quantitativ gezeigt wird. Demnach ergibt sich die Folgerung, dass das Ergebnis der Rissbreitenmessung zwar eine bestrahlungsbedingte Nachsinterung der äusseren Brennstoffzone nicht ausschliesst, für ihren Nachweis aber wegen einer viel zu grossen Fehlerbreite ungeeignet ist.

Schliesslich ist noch die Verfügbarkeit des Leervolumens in den Aussenrissen für die Schwellung der äusseren Brennstoffzone zu diskutieren.

Gleichmässig über den Brennstoffumfang verteiltes, frei zugängliches Spaltvolumen wird durch die starke anfängliche Schwellung der inneren plastischen Brennstoffzone in die Aussenrisse verlagert und liegt dort grob diskontinuierlich verteilt vor. Das tangential (und entsprechend auch axial) gerichtete Schwellen des Brennstoffes in die Aussenrisse wird bei Kontakt zwischen Hülle und Brennstoff durch Reibungskräfte behindert. Die Rissbreiten- und Rissquerschnittsflächen-Messwerte in Tab.4.1 lassen den Schluss zu, dass das Leervolumen in den Aussenrisse aufgrund dieser Lage bis zu einem Abbrand von 30 MWd/kg nicht durch die Brennstoffschwellung in Anspruch genommen wird. Erst bei höheren Abbränden beginnen sich die Aussenrisse vom Brennstoffumfang her zu schliessen. Das lässt sich aus den Messwerten in Tab.4.1 entnehmen und wird durch Abb.4.3 demonstriert.

4.2 Zentralkanal

Der am einfachsten und relativ am zuverlässigsten messbare Anteil des Leervolumens in den bestrahlten Brennstabproben ist das Zentralkanal-Volumen. Seine Untersuchung bietet sich daher als geeigneter erster Zugang zur Analyse der gesamten Leervolumenverteilung an. Der Zentralkanal-Durchmesser an sich wird als Eingangsgrösse für die Berechnung der radialen Temperaturverteilung im Brennstoff unter Bestrahlung benötigt.

Für die Untersuchung der Leervolumen-Verteilung in einer Brennstabprobe wurden jeweils Mittelwerte der Gefügezonennradien in den Messtabellen gemäss Abb.4.2 verwendet. Die Zuverlässigkeit dieses Verfahrens wurde bezüglich des Zentralkanaldurchmessers durch Vergleichsmessungen an Betatron-Röntgenbildern der Brennstabproben aus der Versuchsgruppe FR 2-4a geprüft. Dabei wurde der mittlere Zentralkanaldurchmesser durch planimetrische Vermessung des Flächeninhaltes der Zentralkanal-Projektion bestimmt. Systematische Abweichungen durch die verschiedenen Abbildungsverfahren liessen sich durch unmittelbare Vermessung des Zentralkanaldurchmessers in der Schnittebene der Schliffproben ausschliessen. Die Vergleichsmessungen ergaben, dass der Mittelwert der Messwerte aus den verfügbaren Schliffbildern den tatsächlichen mittleren Zentralkanaldurchmesser mit einer möglichen relativen Ungenauigkeit von $\delta D_{ZK} = \pm 15\%$ wiedergibt.

In dem hier überstrichenen Abbrandbereich von etwa 10 - 95 MWd/kg konnte keine systematische Abhängigkeit der Zentralkanal-

Querschnittsfläche, die als Messgrösse verwendet wurde, vom Abbrand gefunden werden. Dabei reichte die Messgenauigkeit jedoch nicht dazu aus, eine allmähliche Verkleinerung des Zentralkanals durch die langsame Schwellung der relativ kalten äusseren Brennstoffzone auszuschliessen. Es ergab sich jedoch ein deutlicher Zusammenhang der Zentralkanal-Querschnittsfläche mit der maximalen Stableistung, aber nicht mit der mittleren Stableistung. Das ist insofern verständlich, als sich die charakteristischen Brennstoffgefügezonen bei der maximalen Stableistung in ziemlich kurzer Zeit mit dem grössten (bezügl. der Bestrahlungsbedingungen) möglichen Radius bilden und bei niedrigeren Stableistungen nicht reversibel umgeformt werden können. Dabei ist unter der "maximalen" Stableistung hier und im folgenden -abweichend von Tab. 1.2- die mittlere Stableistung für den Bestrahlungszyklus mit der höchsten Leistungsbelastung zu verstehen.

Für die Analyse der Leervolumenverteilung in den Brennstabproben ist vor allem das Verhältnis des Zentralkanal-Volumens zu den sonstigen Leervolumen-Anteilen von Interesse. In Abb.4.4 sind daher die Verhältnisse des Zentralkanal-Volumens zum Porenvolumen in der gesamten Kornwachstumszone, $F_{ZK}/F_{\text{rekrist.}} \cdot P$, und zum gesamten Leervolumen, $F_{ZK}/F_i \cdot P^+$ mit $P^+ = (1 - \text{Schmierdichte})$, in Abhängigkeit von der maximalen Stableistung χ_{max} dargestellt. F_{ZK} , $F_{\text{rekrist.}}$ und F_i sind die Querschnittsflächen des Zentralkanals, der gesamten Kornwachstumszone (einschl. Zentralkanal) sowie des gesamten Hüllinnenraumes, P ist die Sinterporosität des Brennstoffes. Einem Vorschlag aus Dounreay [4.3] folgend, wurde für die Auftragung in Abb.4.4 eine bezügl. der Schmierdichte normierte Stableistung $\chi_{\text{max.norm.}} = \chi_{\text{max}}/1-2P^+$ verwendet, die in erster Linie den Einfluss des Leervolumens auf die Wärmeableitung und damit auf die Brennstofftemperatur einbezieht.

In dieser Darstellung lassen sich die Messwerte von fast allen Brennstabquerschnitten aus der Versuchsgruppe FR 2-4a in geradlinig begrenzten Ergebnisbänder einordnen, deren Breite etwa der obigen Ungenauigkeits-Angabe für den Zentralkanal-Durchmesser, $\delta D_{ZK} = \pm 15\%$, entspricht. Diese Bänder weisen einen deutlichen Anstieg mit der maximalen Stableistung auf. Der resultierende Zusammenhang $F_{ZK}/F_i \cdot P^+ = f(\chi_{\text{max}})$ erscheint unmittelbar für Modellrechnungen zum Brennstabverhalten verwendbar.

Abb.4.4 zeigt, dass als Einzugsbereich für den Zentralkanal die gesamte ursprüngliche Leervolumen-Verteilung im unbestrahlten Brennstab in Betracht gezogen werden muss. Der Transport von Brennstoffporen allein würde offenbar nur bei den niedrigen Stabileistungen für das beobachtete Zentralkanalvolumen ausreichen, auch wenn als Einzugsbereich die gesamte Kornwachstumszone ($F_{\text{rekrist.}}$) angenommen wird. Denn $F_{\text{ZK}}/F_{\text{rekrist.}} \cdot P$ überschreitet oberhalb $\chi_{\text{max}} \approx 550 \text{ W/cm}$ die 100%-Grenze.

Ohne Kenntnis der im Brennstoff verbliebenen Restporosität lässt sich daraus nur folgern, dass die durch Spaltgasswellung oder Riss-Rastvorgänge in die innere, plastische Brennstoffzone aufgenommenen Leervolumenanteile aus dem Spalt zwischen Brennstoff und Hülle ebenso einem Transport im radialen Temperaturanstieg unterliegen wie die Sinterporen. Der in den Zentralkanal transportierte Anteil steigt mit der Stabileistung.

4.3 Porosität

4.3.1 Messergebnisse

Aus den vorangehenden Abschnitten geht hervor, dass ohne eine quantitative Vermessung des Poren- und Rissvolumenanteiles im bestrahlten Brennstoff keine eindeutigen Aussagen über den Mechanismus der Leervolumenverlagerung und nur relativ grobe, zusammenfassende Angaben über die Leervolumenverteilung gemacht werden können. Daher wurden ausgedehnte Entwicklungsarbeiten zur Messung der im Brennstoff fein verteilten Leervolumenanteile mit einem elektronischen Bildanalysator durchgeführt. Diese Messung erfordert einen sehr hohen Aufwand, im besonderen für die geeignete Präparation der untersuchten keramographischen Schliffproben [4.4]. Daher wurde in der Versuchsgruppe FR 2-4a geprüft, ob sich auch an Schliffproben, die nur nach den für die visuelle Beobachtung üblichen Verfahren behandelt worden sind, brauchbare Porositäts-Messergebnisse erzielen lassen.

Zur Vermessung wurden zunächst 30 Schliffproben aus den KVE 33-37 und 45 herangezogen, die Abbrandwerte von etwa 10 bis 65 MWd/kg aufwiesen (s.a. Abschnitt 1). Die Schliffbilder der Proben aus den KVE 38 und 41 lagen erst sehr spät vor, und diejenigen aus dem KVE 40 waren für die Auswertung ungeeignet.

Die Messungen zur Porosität und zum Rissvolumen wurden bewusst an 15-fach vergrösserten Übersichtsaufnahmen durchgeführt, und zwar aus folgendem Grunde: Der kalkulierte maximale Arbeitsumfang beträgt mehrere 100 Schliffe pro Jahr. Da die maximale Messfeldgrösse auf dem Monitor eines elektronischen Bildanalysators beschränkt ist, wächst die Anzahl der nötigen Messungen mit der Vergrösserung. Um mit möglichst geringem zeitlichen Aufwand möglichst viele Bilder auszuwerten, ist die Vergrösserung klein gehalten, höchstens allerdings so klein, dass die Messgenauigkeit den Informationswert nicht beeinträchtigt. Um dies bei den Messungen zur Porosität und zum Rissverhalten richtig einzuschätzen, sind zwei Betrachtungsweisen empfehlenswert:

- a) Es sollen absolute Poren- und Rissvolumina ermittelt werden.
- b) Es genügt die Ermittlung relativer Werte.

Die Ermittlung absoluter Werte mit hoher Genauigkeit ist bislang vor allem durch Unsicherheiten in der Präparation und der mikroskopischen Aufnahmetechnik nicht sichergestellt. So ist nicht auszuschliessen, dass das Vibrieren des Brennstabes beim Trennen die Randzonen der Tabletten beschädigt. Allerdings sind hier grobe Fehler kaum zu befürchten. Die sehr sorgsame und detailliert beschriebene Probenpräparation in den heissen Zellen lässt auch keine groben Gefügefehler durch Probenahme (Trennen) und Einbetten erwarten [4.5]. Wohl aber wurde festgestellt, dass unterschiedliche Poliermittel und die Polierdauer merklichen Einfluss auf den Absolutbetrag der Schliffporosität haben [4.4, 4.5]. Hinzu kommt, dass das bisher verwendete Vibrationspolieren höhere Porositäten im Schliffbild hinterlässt, als das -bisher nicht benutzte- Polieren auf rotierender Scheibe. Auch die Verwendung von Papieren verschiedener Gradation im fotografischen Wiedergabeprozess spielt hier eine Rolle. Im Beispiel der Abb.4.5 ist dies bereits visuell erkennbar. Ausserdem macht sich die unterschiedliche Verschleissfestigkeit von Hülle und Brennstoff am Spalt mehrfach nachteilig bemerkbar. Die Aussenzone des Brennstoffs erreicht oft nicht die gleiche Schliffqualität, ist leicht ungleichmässig poliert und erscheint infolge der Randverzeichnungen niedrig vergrössender Objektive dunkel. Die dadurch vorgetäuschte "Porosität" ist im allgemeinen unecht. Der Vergleich zweier Vergrösserungen desselben Schliffes in Abb.4.6 demonstriert diesen Fall.

Aus diesen Gründen sind die bisher und auch hier mitgeteilten Absolutwerte zur Porosität systematisch fehlerbehaftet. Es gibt keine Möglichkeit, sie zu korrigieren. Die Relativwerte über die Schliffebene dagegen könnten die Porositätsverteilung richtig wiedergeben.

Von den vermessenen Schliffbildern wurden nur diejenigen ausgewertet, bei denen die genannten Fehlerquellen am geringsten sind. Ein Beispiel ist in Abb.4.7 wiedergegeben. Gemessen wurde die Porosität und das Rissvolumen sowie die Summe beider. Ausserdem sind die wichtigsten Kenndaten der Tabletten aufgeführt. Die Abbrandwerte wurden auf Atomprozent mit $8,7 \text{ MWd/kg} \hat{=} 1 \text{ At.-% U+Pu}$ umgerechnet.⁺⁾ Ihre Streubreite beträgt $\pm 15\%$. Da anderen Berichten und den Prüfblättern der Heissen Zellen einheitliche Spaltbreiten zwischen Hülle und Brennstoff vor der Bestrahlung nicht entnommen werden konnten, wurden diese Angaben aufgrund des Herstellungsberichtes ermittelt. Die Spaltbreite nach der Bestrahlung ist ein Mittelwert aus Messungen an Längs- und Querschliffen, die den Prüfprotokollen der Heissen Zellen entnommen werden konnten.

Aus den angegebenen Porositäten wurde die mittlere integrale Porosität für jeden Schliff errechnet und über dem Abbrand aufgetragen. Wie Abb. 4.8 zeigt, ist ein funktioneller Zusammenhang nicht erkennbar. Um die erwähnten systematischen Fehler mindestens teilweise zu kompensieren, wurden die für die verschiedenen Messbereiche im Schliff ermittelten Porositäten normiert. Es wurde ihr Verhältnis zur mittleren integralen Porosität des Schliffes gebildet. In Abb.4.9 sind die normierten Porositäten für die verschiedenen Messbereiche über der Messbereichsposition im Schliff aufgetragen. Die Streubreite bei den einzelnen Positionen ist sehr gross und nicht abbrandzugeordnet; d.h. dass keine hinreichend sichere Aussage über die Porositätsverteilung in Abhängigkeit von Ort und Abbrand gegeben werden kann.

4.3.2 Korrekturverfahren

Eine genauere Betrachtung zeigt jedoch, dass alle Proben mit der hohen Brennstoffsinterdichte von etwa 92% TD einen ähnlichen radialen Verlauf

^{+) Das gilt hier nur für die Abb. 4.8 u. 4.9, für die übrigens auch ältere, aus thermischen Bestrahlungsdaten berechnete Abbrandwerte verwendet wurden. Die Aussagen im nächsten Absatz werden dadurch nicht eingeschränkt.}

der normierten Porosität zeigen, und dass nur an den weniger dichten Proben mit etwa 84% TD (das sind ^{in Abb. 4.9} die letzten vier Proben mit 6,47% und 7,13-7,14% Abbrand) deutlich abweichende Porositätsprofile gemessen wurden. Diese Beobachtung ermutigte zu dem Versuch, durch ein Korrekturverfahren eine Näherung für den radialen Verlauf der absoluten Porosität zu ermitteln.

Die Korrektur wurde mittels einer Leervolumenbilanz durchgeführt, die das gesamte im Zentralkanal, in den Poren und Rissen sowie im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle nach Bestrahlung gemessene Leervolumen erfasst und mit dem ursprünglich vorhandenen Leervolumen vergleicht. Die Differenz zwischen dem vor Bestrahlung vorhandenen und nach Bestrahlung gemessenen (grösseren) Leervolumen wurde auf einen präparations-, abbildungs- u. messbedingten Fehler bei der Vermessung der Poren und Risse im Brennstoff zurückgeführt und durch Anwendung eines Korrekturfaktors eliminiert. Dabei werden die Leervolumenanteile -wie bei der Vermessung- durch die entsprechenden Querschnittsflächenanteile wiedergegeben.

$$\text{Ursprüngl. LV} = F_i P^x = \pi R^2 \cdot P + \pi d(2R + d)$$

$$\begin{aligned} \text{Soll-Riss u. Poren-LV} &= \text{ursprüngl. LV} - [F_{ZK} + \pi d(2R + d_{\text{bestr.}})] \\ \text{nach Bestrahlung} & \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Soll-Riss u. Poren-"Porosität"} &= \frac{\text{Soll-Riss u. Poren-LV}}{F_i - [F_{ZK} + \pi d(2R + d_{\text{bestr.}})]} \\ \text{nach Bestrahlung} & \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Ist-Riss u. Poren-"Porosität"} &= \frac{\sum_k P_k (r_k^2 - r_{k+1}^2)}{\sum_k (r_k^2 - r_{k+1}^2)} \\ \text{nach Bestrahlung} & \end{aligned}$$

$$\text{Porositäts-Korrekturfaktor} = \frac{\text{Soll-Riss u. Poren-"Porosität"}}{\text{Ist-Riss u. Poren-"Porosität"}}$$

Hier sind

F_i Querschnittsfläche des gesamten Hüllinnenraumes

F_{ZK} Querschnittsfläche des Zentralkanals

d Spaltbreite Brennstoff/Hülle vor Bestrahlung

$d_{\text{bestr.}}$ Spaltbreite Brennstoff/Hülle nach Bestrahlung

R ursprüngl. Brennstoffradius

P Sinterporosität des Brennstoffes

P^* "Schmierporosität" $\approx (1 - \text{Schmierdichte})$

P_k gemessener Volumenanteil von Poren und Rissen in k-ten Messbereich (s. Abb.4.7)

r_k, r_{k+1} Aussen- und Innenradius des k-ten Messbereiches

$r_1 = R+d$ (=Hüllinnenradius)

Porositäts-Korrekturfaktoren wurden für 8 Schliffproben berechnet, deren Brennstoffgefüge besonders gut erhalten sowie normal ausgebildet erschien und im besonderen keine Anzeichen für eine zeitweilige beträchtliche Überhitzung ergab. Tabelle 4.2 enthält die Bezeichnung der Proben, ihre Brennstoff-Sinterdichte, ihren Abbrand und den jeweils berechneten Porositäts-Korrekturfaktor sowie die korrigierte Porosität der ganz aussen liegenden Brennstoffzone (s. Abb.4.7). Der $\frac{PK\text{-Faktor}}{P_k}$ wurde auf die zonenweise gemessene Porosität (ohne Risse) in Zeile 2 der Messtabellen gemäss Abb.4.7 angewendet. Die korrigierten Porositätswerte sind in Abb.4.10 über dem radialen Abstand von der Brennstabhülle aufgetragen. Sie geben das wahre Porositätsprofil wieder, wenn der durch Schliffpräparation, Abbildung und Messverfahren bedingte Messfehler für den Poren- und den Rissvolumenanteil in allen Brennstoffzonen durch einen übereinstimmenden Faktor darstellbar ist.

4.3.3 Diskussion der korrigierten Ergebnisse

Die berechneten Porositäts-Korrekturfaktoren, die das Verhältnis des für Poren und Risse im Brennstoff tatsächlich verfügbaren Leervolumens zu dem aus den Messwerten ermittelten angeben, zeigen keine systematische Verschiebung mit der Sinterdichte oder mit dem Abbrand der ausgewerteten Proben. Sie streuen aber zwischen 0,66 und 0,30, d.h. die gemessene Porosität liegt stets mindestens um einen Faktor 1,5 zu hoch. Das hier gewählte Messverfahren, im besonderen die Verwendung von niedrig vergrösserten Bildern normal präparierter Schliffproben, ist damit für quantitative Untersuchungen zum Brennstabverhalten wenig geeignet.

Wie Abb.4.10 zeigt, ergibt die Anwendung der Porositäts-Korrekturfaktoren jedoch für die Proben mit einer Sinterdichte von etwa 92% TD ein schraffiert eingezeichnetes Messwerteband, das für eine vorsichtige Diskussion des radialen Porositätsprofils geeignet erscheint. Nur die Einzelprobe 36-4A/3-3 weicht von diesem Band deutlich ab. Das Band zeigt eine leichte Porositäts-

abnahme (von der Sinterporosität) in der randnahen Brennstoffzone, nach innen anschliessend eine breite, stark verdichtete Zone mit einer minimalen Restporosität von etwa 2% und in der Umgebung des Zentralkanals einen -jedenfalls durch Spaltgasblasen bedingten- Wiederanstieg der Porosität auf 5-10%. Das Porositätsprofil scheint in dem erfassten Abbrandbereich von etwa 10-65 MWd/kg (s.Tab. 4.2) keine ausgeprägte Änderung mit dem Abbrand zu zeigen.

Wie schon früher erwähnt wurde, weichen die Proben mit der niedrigeren Sinterdichte von etwa 84% TD, die allerdings meistens auch einen höheren Abbrand aufwiesen, im Porositätsprofil nach Bestrahlung deutlich von demjenigen der 92% TD-Proben ab. In Abb.4.10 ist als Beispiel des Porositätsverlaufes in Brennstäben aus den KVE 37 und 41 (d.h. nach mittleren Abbränden von 43 und 65 MWd/kg) die Probe 37-4A/19-6 mit aufgenommen. Wahrscheinlich enthalten diese Proben eine mittlere Brennstoffzone, deren Struktur Ausbrüche in der Schlifflfläche besonders begünstigt, so dass die Anwendung des Porositäts-Korrekturfaktors an Sinn verliert. Der ebenfalls eingezeichnete Porositätsverlauf für die Probe 38-4A/22-4 zeigt diese Tendenz nicht. Möglicherweise ist das Brennstoffgefüge durch den sehr hohe Abbrand ($A = 97$ MWd/kg) weniger empfindlich gegen Ausbrüche geworden. Es muss jedoch bedacht werden, dass die Brennstofftemperaturzonen in dieser Probe bei sinkender Stableistung sehr stark verschoben wurden, so dass die Brennstoffzentraltemperatur schliesslich weit unterhalb 1000°C lag. Damit ist eine technisch brauchbare Aussage über den Porositätsverlauf ohnehin nicht zu erwarten.

Die Brennstoffrandzone in Abb.4.10 zeigt für die meisten Proben eine Verminderung der Porosität gegenüber der ursprünglichen Sinterdichte. Die 92% TD-Proben ergaben Porositätsabnahmen um 0-2,5% (s.a.Tab.4.2). Die auf den Abbrand bezogenen Abnahmeraten betragen 0-0,9 Vol.-%/Abbrand, ihr Mittelwert lag bei ca. 0,5 Vol.-%/Abbrand. Diese Werte lassen sich mit der Inanspruchnahme von Porenvolumen durch die Brennstoffschwellung durch kondensierte Spaltprodukte (feste Spaltprodukte und Spaltgase in sehr kleinen Blasen) deuten. Daher ergibt sich kein Grund, in der Randzone der 92% TD-Proben eine bestrahlungsbedingte Nachsinterung anzunehmen.

Für die Probe 37-4A/19-6 würde dagegen bei Zugrundelegung der obigen Porositätsabnahmerate von 0,5%/Abbrand noch eine zusätzliche Abnahme

von 9,5% verbleiben, die durch Nachsinterung unter Bestrahlung zu deuten wäre. Wie oben erwähnt, dürfte die Porositäts-Korrektur bei dieser Probe nicht zutreffend sein und eine zu niedrige Porosität in der Brennstoffrandzone liefern. Aber auch ohne jede Korrektur des Porositätsmesswertes würde sich noch eine bestrahlungsbedingte Sinterschrumpfung von etwa 6% ergeben (16,2% Sinterporosität -3,5% Schwellung -6,8% gemessene Restporosität). An der hoch abgebrannten Probe 38-4A/22-4 lässt sich bei gleicher Betrachtung nur noch eine Sinterschrumpfung von höchstens 3,5% nachweisen. Das ist jedoch offensichtlich durch die Überlagerung einer Spaltgasblasenverteilung über die ursprüngliche Porosität der äusseren Brennstoffzone zu erklären (Abb.4.11).

4.4 Schlussfolgerungen zur Leervolumenanalyse

Aus dem gesamten Inhalt des Abschnittes 4 lassen sich zusammenfassend die folgenden wesentlichen Schlüsse ziehen:

- Die hier gewählten Untersuchungsverfahren ergeben fast nur qualitative Aussagen über die Tendenz und den Mechanismus der Leervolumenverlagerung. Sie erscheinen ungeeignet für genaue quantitative Aussagen über Vorgänge des Nachsinterns, Schwellens und Riss-Rastens im Brennstoff, wie sie zur Analyse der mechanischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle erforderlich sind. Möglicherweise bietet die Untersuchung von ausgewählten Bildern höherer Vergrösserung, im besonderen aus der Brennstoffrandzone, bessere Erfolgsaussichten. Das gilt mit Sicherheit für eine spezielle Schliffpräparation [4.4], die jedoch einen sehr hohen Aufwand erfordert.
- Nur die Angaben über die Abhängigkeit des Zentralkanalquerschnittes von der Stableistung (Abb.4.4) und über das radiale Porositätsprofil im Brennstoff relativ hoher Sinterdichte (Abb.4.10) erscheinen quantitativ brauchbar, und zwar als Eingabe- oder Vergleichsdaten für die thermische Auslegung und Analyse.
- Bei hoher Stableistung ($\chi \approx 480 - 600 \text{ W/cm}$) erfolgt in einem frühen Abbrandstadium ($A \leq 10 \text{ MWd/kg}$) eine schnelle Brennstoffdurchmesser-Vergrösserung bis zum Kontakt mit der Hülle. Sie ist wahrscheinlich durch starke Spaltgasschwellung der inneren plastischen Brennstoffzone verursacht und führt zur Bildung breiter Risse in der äusseren

Brennstoffzone. Die dabei aus dem Spalt zwischen Brennstoff und Hülle in das Brennstoffinnere verlagerten Leervolumenanteile werden zum grössten Teil in den Zentralkanal transportiert.

- Die in den breiten Aussenrissen verbliebenen Leervolumenanteile werden erst bei Abbränden oberhalb 30 MWd/kg nachweisbar für Brennstoffverlagerungen in Anspruch genommen. Diese sind nicht mit Sicherheit auf das Schwellen des Brennstoffes zurückzuführen.
- Die Porosität der äusseren Brennstoffzone wird unter Bestrahlung durch Brennstoffschwellen oder Nachsintern vermindert. Bei einer Brennstoffsinterdichte von etwa 92% TD findet keine wesentliche Nachsinterung statt. Die Ergebnisse an 84% TD-Proben legen dagegen die Annahme einer beträchtlichen Nachsinterung für Brennstoff niedriger Sinterdichte nahe. Eine quantitative Angabe über die Nachsinterung ist hier jedoch nicht möglich, weil der Sinterdichte durch ^{Änderungen} Verschiebungen anderer Einflussgrössen, wie vor allem des Abbrandes, überlagert waren.

Literatur

- [4.1] Chubb W., Hilbert R.F., Storhok V.W., Keller D.L.;
Materials Sci.Eng.9 (1972) 293

- [4.2] Bauer A.A.;
Nucl.Technology 14 (1972) 65

- [4.3] Powell;
UKAEA, Dounreay, persönl.Mitteilung, 1971

- [4.4] Hoffmann H., Hellriegel W., Spieler K.;
in KFK-Ext.Bericht 6/71-3, 1971, S.81
(Hrsg. G.Ondracek)

- [4.5] Enderlein H., Hellriegel W., Pejsa R.;
KFK-Nachrichten 3 (1971) Nr.2, S.26

Tabelle 4.1: Mittelwerte der Rissanzahl, Risstiefe, Rissflächen- und Rissbreiten-Summe sowie der normierten Rissbreiten-Summe (bezogen auf die geometrisch möglichen Maximalwerte) für die breiten radialen Aussenrisse im Brennstoff

Kapsel Nr.	Abbr. MWd/ kg	therm. Zy- klen	Riss- An- Zahl	Riss- tiefe mm	Rissflächen- Summe mm ²	Rissbreiten- Summe mm	Rissbr.-S. $\frac{1}{2\pi d}$ Spalt
33	11	8	19	0,58	0,65 ^{+0,29} -0,22	1,36 ^{+0,42} -0,71	2,1 ^{+0,6} -1,1
35	28	32	22	0,75	0,59 ^{+0,12} -0,12	1,08 ^{+0,08} -0,19	1,7 ^{+0,1} -0,3
34	29	38	23	0,74	0,50 ^{+0,22} -0,08	1,12 ^{+0,56} -0,60	1,8 ^{+0,9} -1,0
36	31	42	20	0,69	0,69 ^{+0,35} -0,24	1,02 ^{+0,21} -0,23	1,6 ^{+0,3} -0,4
41	43	59	9	*)	*)	0,40 ^{+0,67} -0,40	0,9 ^{+1,1} -0,9
37 92%TD	65	79	18	nicht gem.	0,37 ^{+0,06} -0,06	0,79 ^{+0,11} -0,12	1,3 ^{+0,2} -0,2
37 85%TD	65	79	7	0,51	0,15 ^{+0,11} -0,07	0,52 ^{+1,92} -0,52	1,1 ^{+4,1} -1,1
38	92	~100	4	*)	*)	0,27 ^{+0,79} -0,27	0,06 ^{+1,6} -0,6

*) Die Schlifffbilder dieser Proben wurden erst nach Abschluss der betroffenen Messreihen angeliefert. Schlifffbilder von Proben aus Kapsel Nr.40 waren nicht auswertbar.

Tabelle 4.2: Porositätskorrektur an einigen ausgewählten
Schliffproben
(s.a. Abb. 4.10)

Proben- bezeichnung	Sinter- dichte % TD	Abbrand MWd/kg	Porositäts- korrektur- faktor	korrigierte Por - sität in der äus- sersten Zone
33-B7-4	91,4	10,4	0,40	7,6%
34-B12-6	91,6	30,4	0,66	6,3%
35-4A/4-3	92,3	26,6	0,46	9,2%
36-4A/3-3	92,2	32,1	0,47	8,7%
37-B14-4	91,9	66,4	0,30	7,4%
37-B14-6	91,9	66,4	0,53	5,6%
37-4A/19-6	83,8	60,8	0,47	3,2%
38-4A/22-4	83,4	96,6	0,57	7,8%

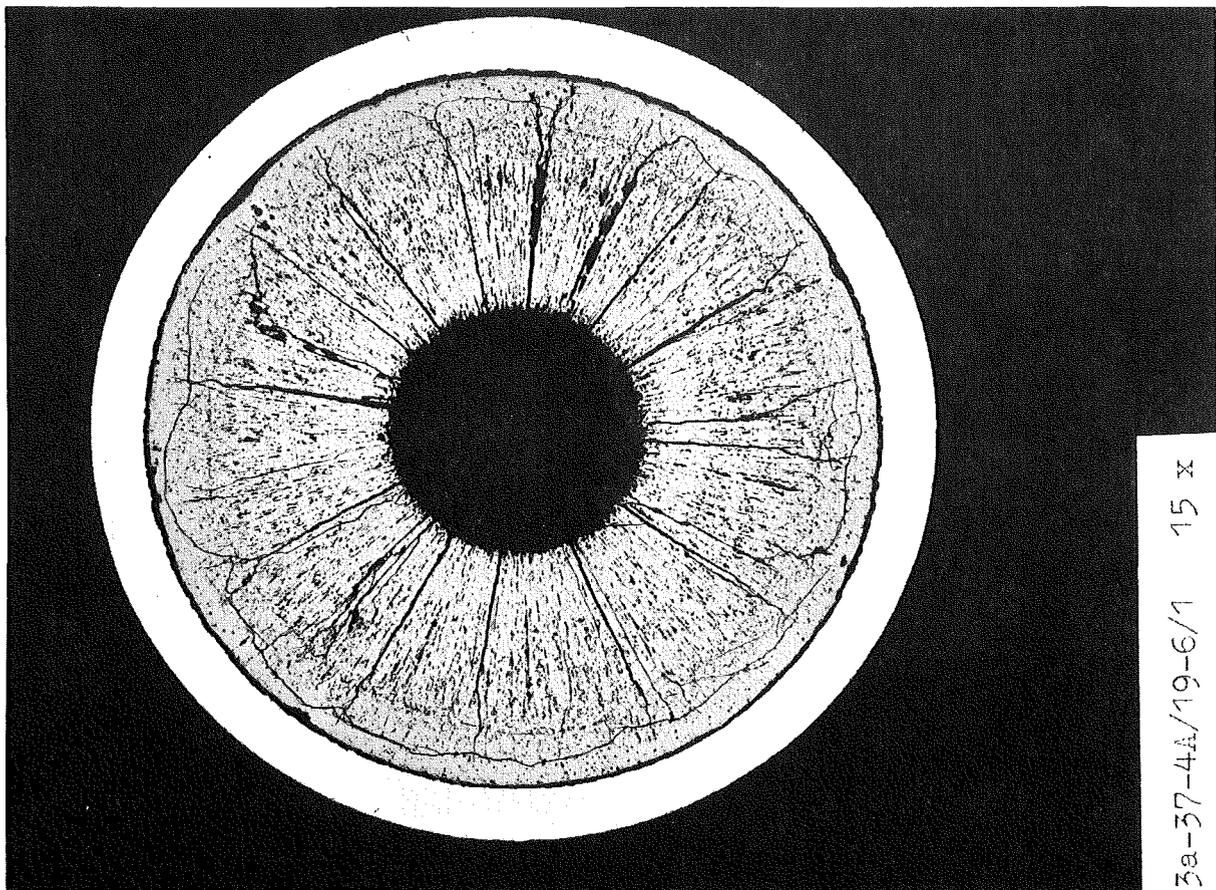
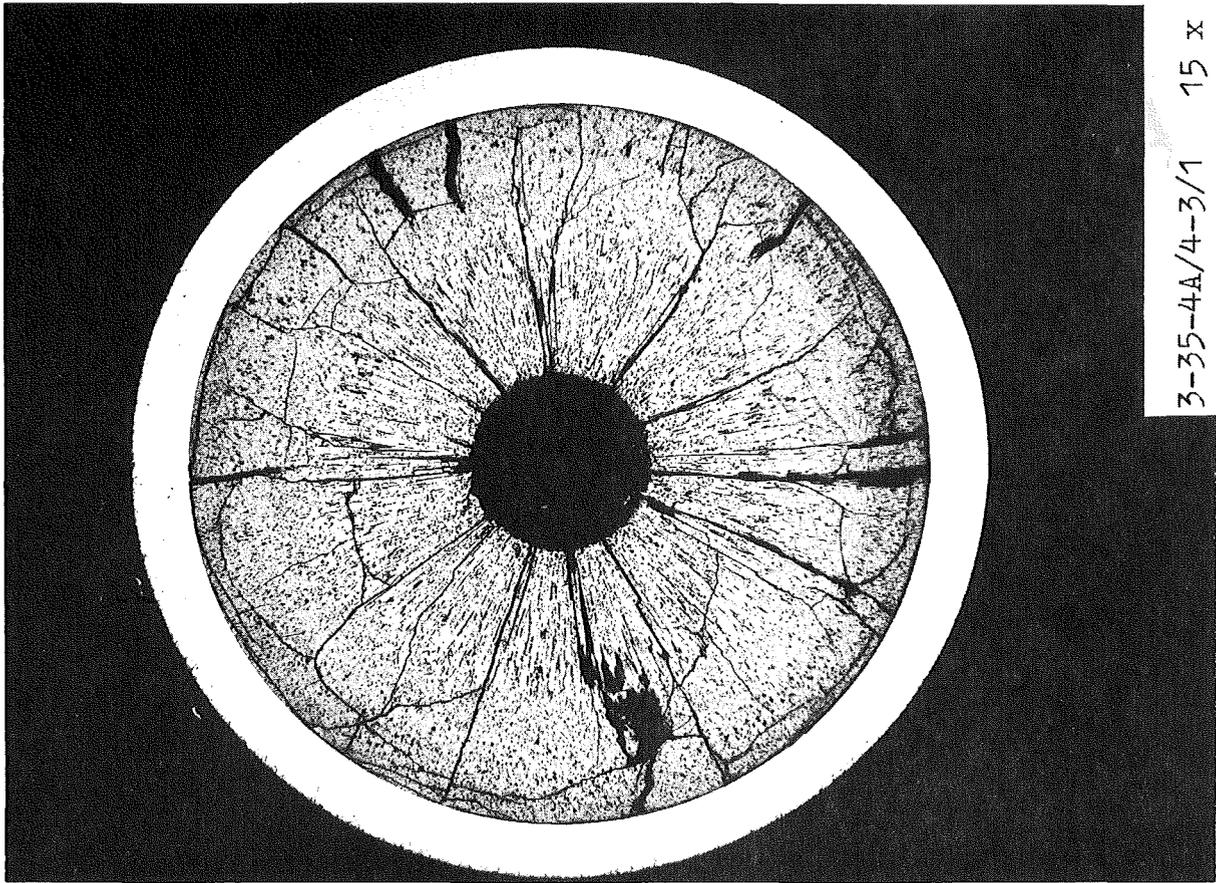


Abb.4.1: Zwei typische Brennstabquerschnitte aus den Prüflingen KVE 35-4A/4 (oben) und KVE 37-4A/19 (unten). Auslegungs- und Bestrahlungsdaten in Tab. 1.1 und 1.2

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe Abteilung Reaktorbetrieb	HZ	3	34	B13	0
	Projekt		Obereinheit	Untereinheit	Probe
zugehörige Proj. Nr.					
Datum: 30.09.1969	Unterschrift: <i>Hellwig</i>		Blatt: von:		

Keramographische Untersuchung

Brennstoffzusammensetzung: $UO_2 - PuO_2$
 Brennstoff-Form **Tabletten**
 Brennstoffdichte [% d.theor.D.] **91,7**
 Rad. Spalt zwischen Brennstoff u. Hülle [μm] **100**
 Hüllmaterial **16/13 4988 7,4 ϕ x 0,5**
 errechn.max. Stableistung [W/cm] **630**
 Abbrand [MWd/t] **33 920**

1	Probe Nr.	1	3	5	6
2	Metallogr. Proben-Nr.	1155 1	1156	1157 1	1158
3	radialer Spalt zwischen Brennstoff u. Hülle [μm]	10/40 30/10	15/- -/-	-/- 100/-	20/60 30/30
4	rekristallisierter Bereich [äußerer Radius mm]	3,0	3,0	3,0	3,0
5	Bereich m.gerichtetem Kornwachstum "	2,7	2,75	2,75	2,8
6	Bereich mit Säulenkristallen "	2,4	2,5	2,4	2,5
7	dichter, porenfreier Bereich "	-	-	-	-
8	Seigerzone "	-	-	-	-
9	Zentralkanal [Radius i.mm]	0,8	0,95	1,0	1,0

Abb.4.2: Wertetabelle mit den Brennstoff-Gefügezonradien in verschiedenen Querschnitten einer Brennstabprobe, die bei der mikroskopischen Untersuchung in den Heissen Zellen ermittelt wurden

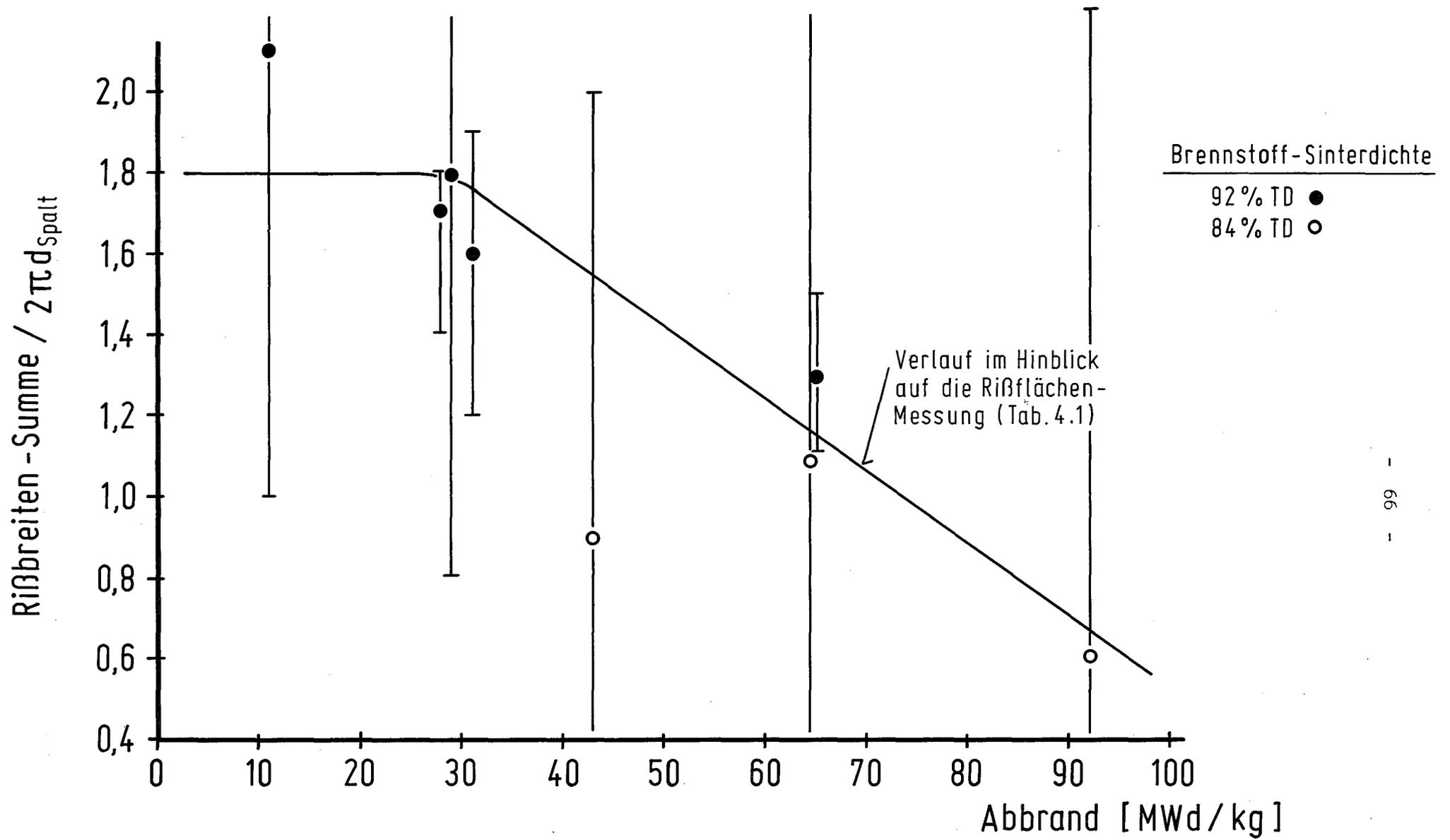
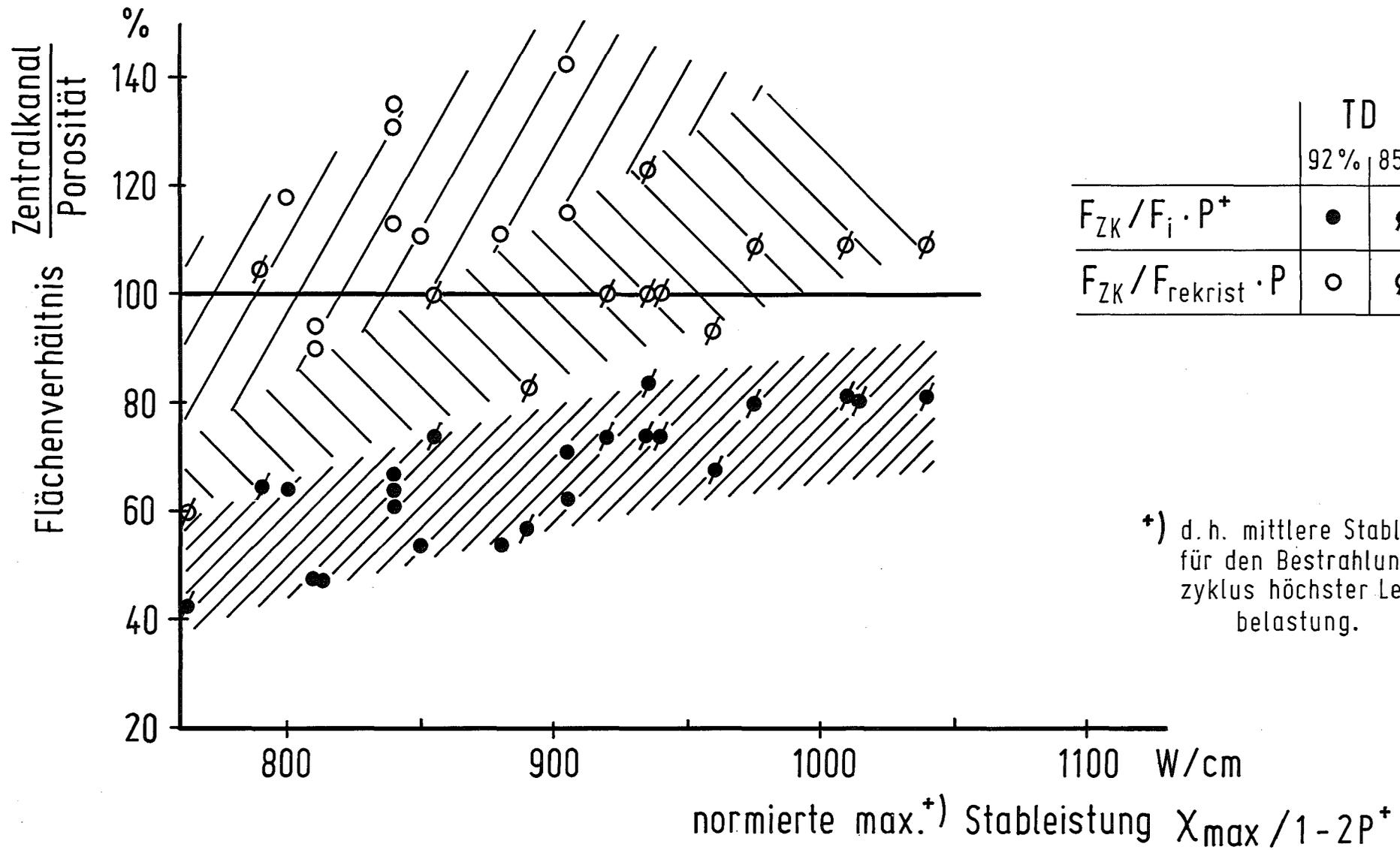


Abb. 4.3
 Normierte Außenrißbreiten - Summe in Abhängigkeit vom Abbrand



*) d. h. mittlere Stabileistung für den Bestrahlungszyklus höchster Leistungsbelastung.

Abb. 4. 4
Verhältnis des Zentralkanals zum ursprünglichen Leervolumen in Abhängigkeit von der maximalen^{*)} Stabileistung

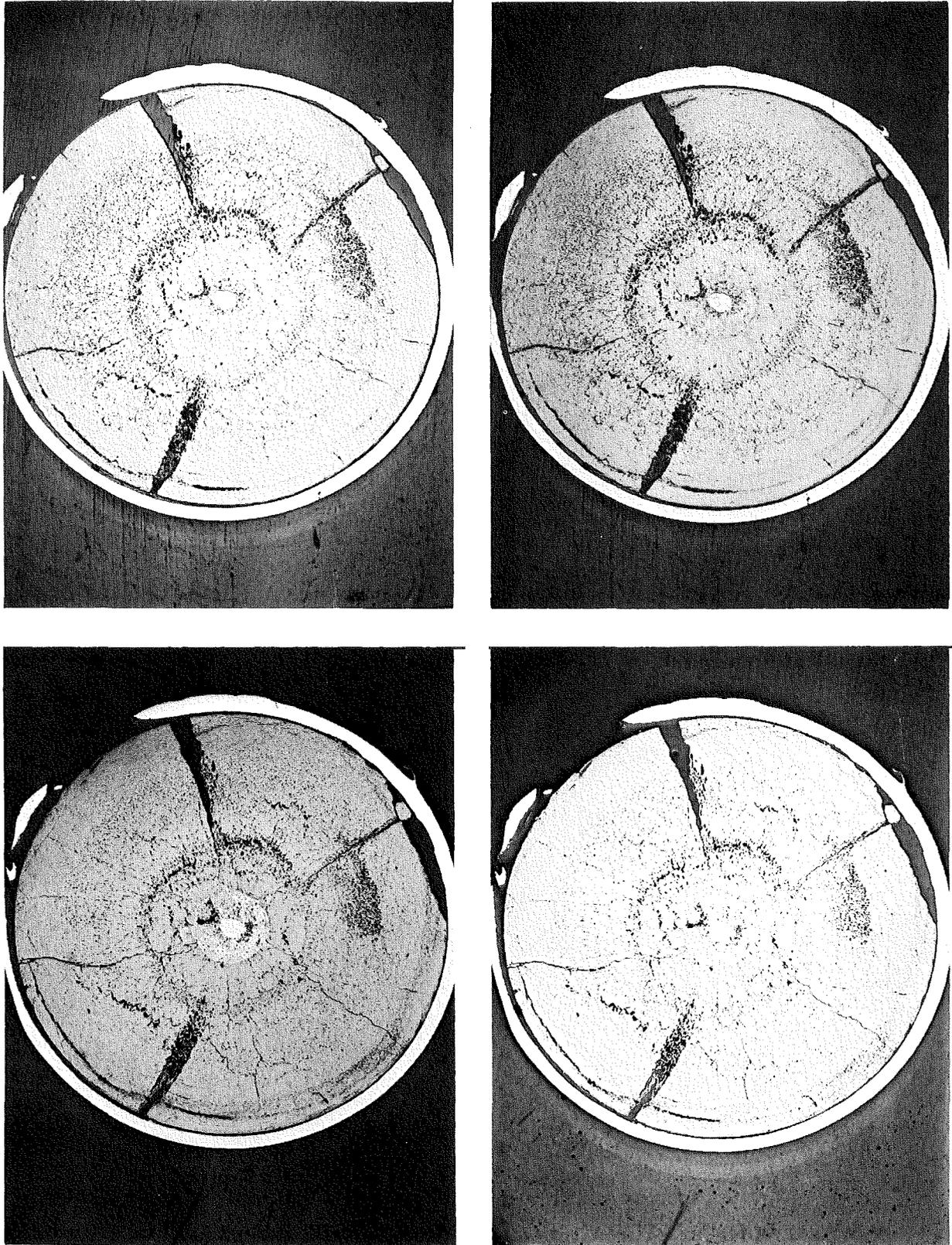
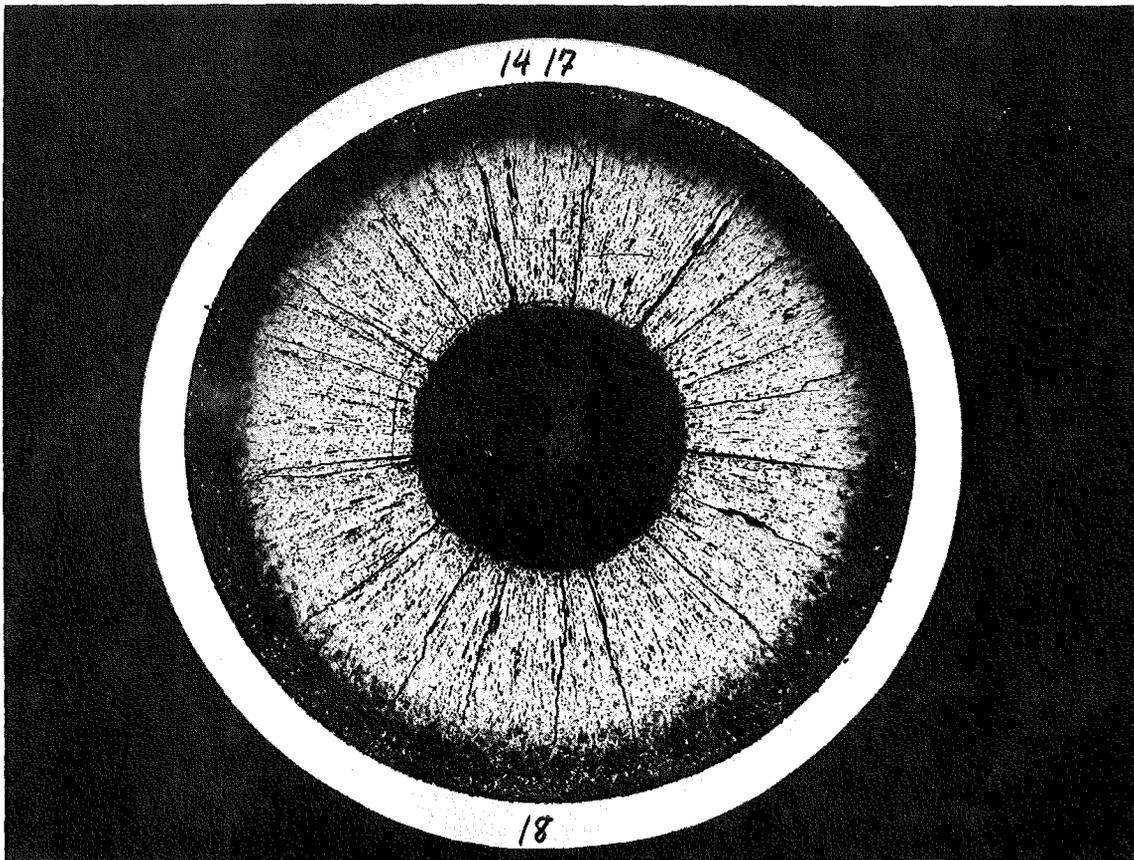


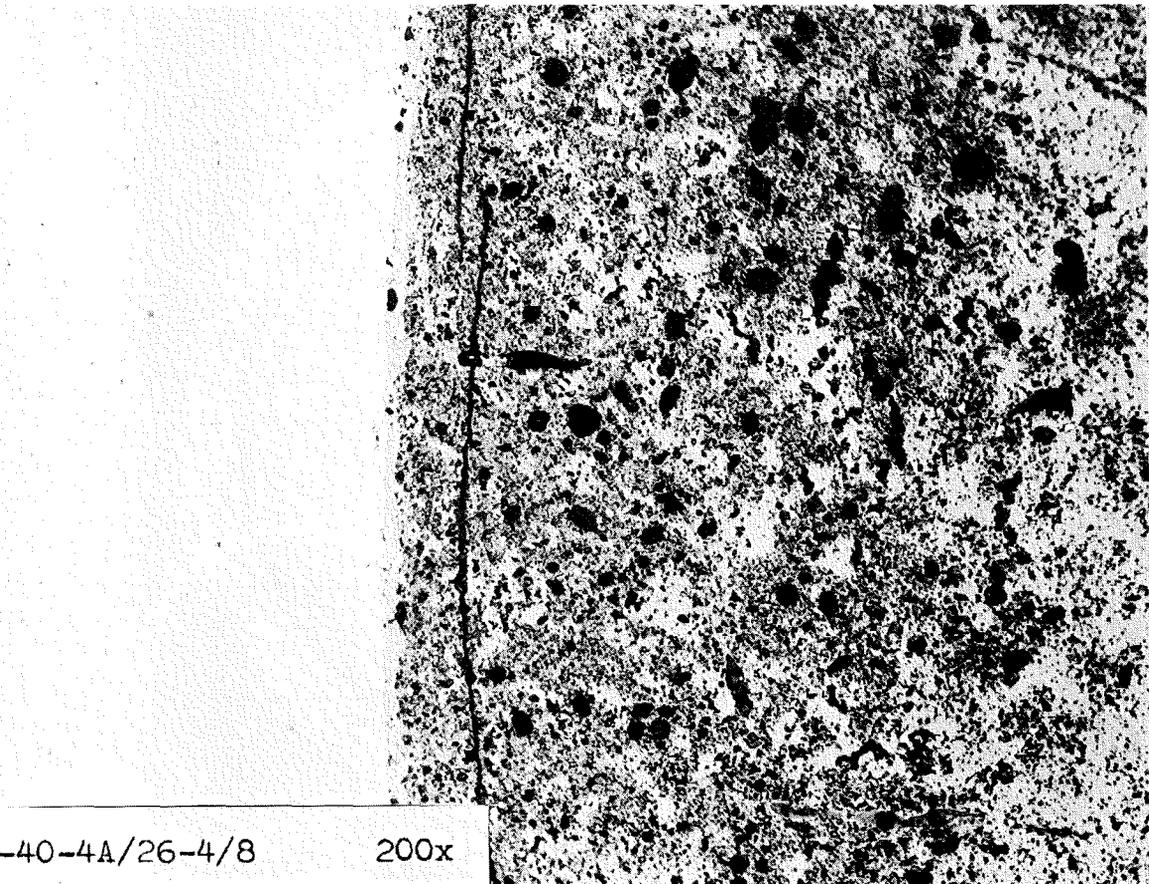
Abb. 4.5: $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Gefüge nach unterschiedlichen Präparationsbedingungen

- Vibrationspoliert ($\text{Al}_2\text{O}_3+\text{CrO}_3$), Abzug weich
- Vibrationspoliert ($\text{Al}_2\text{O}_3+\text{CrO}_3$), Abzug hart
- poliert auf rotierender Scheibe ($\text{Al}_2\text{O}_3+\text{CrO}_3$; 300 U/min; 5 min;)
Abzug weich
- poliert auf rotierender Scheibe ($\text{Al}_2\text{O}_3+\text{CrO}_3$; 300 U/min; 5 min;)
Abzug hart



15x

3a-40-4A/26-4/3



3a-40-4A/26-4/8

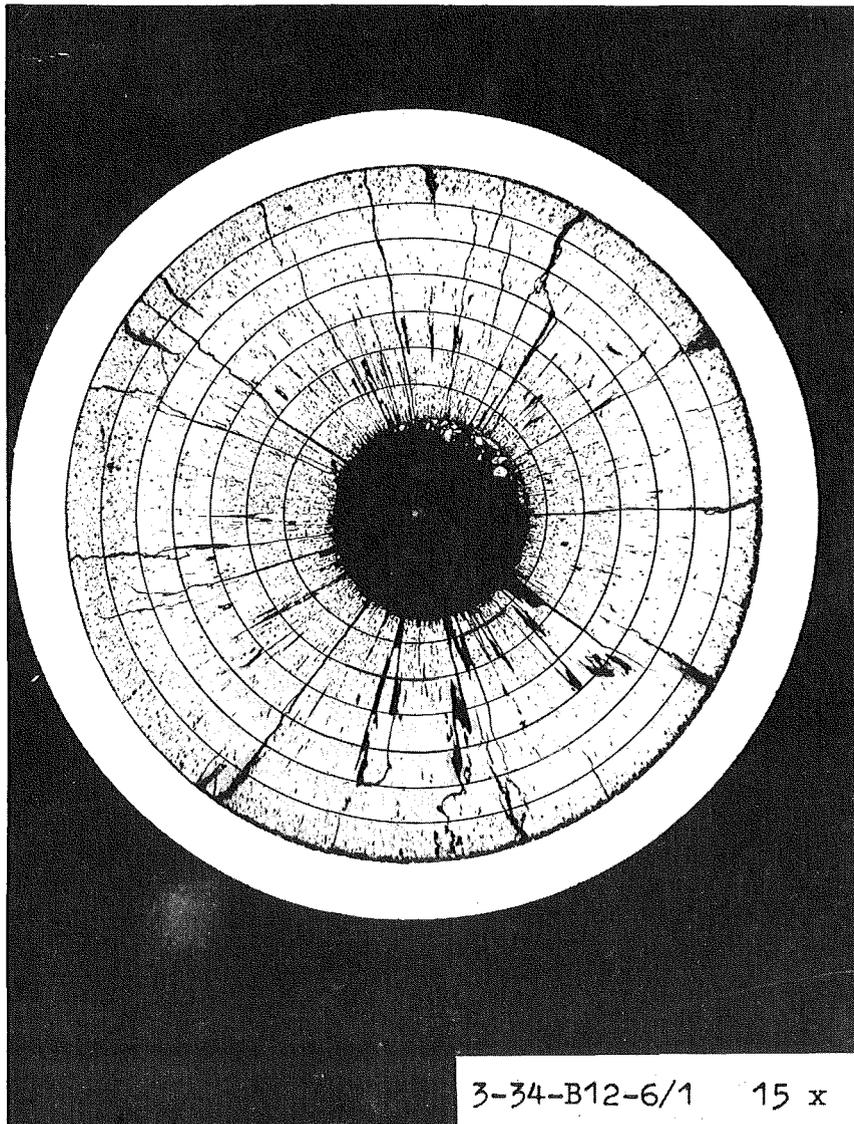
200x

Abb. 4.6: Übersichtsaufnahme (15x) und Ausschnitt (200x) aus der Randzone eines UO_2 - PuO_2 -Gefüges

Abb.: 4.7: Leervolumen-Messwerte an der Schliiffprobe 3-34-B12-6/1

Meßbereich (Entfernung v. Probenrand)	0-0,35 mm	0,35-0,69 mm	0,69-1,02 mm	1,02-1,37 mm	1,37-1,7 mm	1,7-2,04 mm	2,04-2,38 mm
Poren %	9,5	3,01	1,77	2,75	4,42	6,95	13,7
Poren und Risse %	13,87	6,0	7,3	7,47	9,57	15,31	20,39
Risse %	4,37	2,94	5,53	4,72	5,15	7,36	6,69

1. Abbrand (At.% U + Pu): $3,97 \pm 0,60$
2. Brennstoffdichte vor der Bestrahlung (% TD): 91,6
3. Spaltbreite Hülle-Brennstoff vor der Bestrahlung (μm): $93 \pm 28,5$
4. Spaltbreite Hülle-Brennstoff nach der Bestrahlung (μm): 10,4



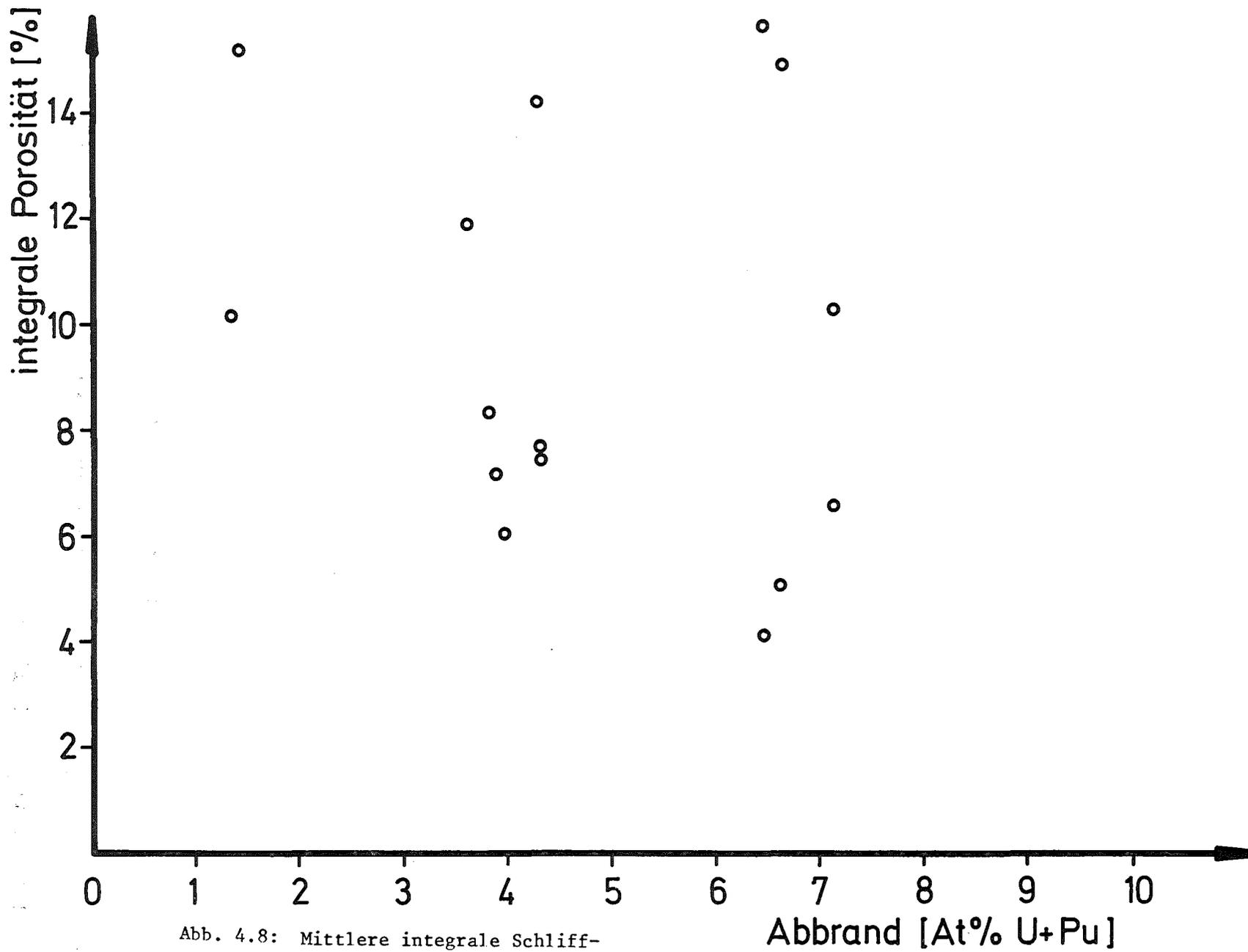


Abb. 4.8: Mittlere integrale Schliffporosität in Abhängigkeit vom Abbrand

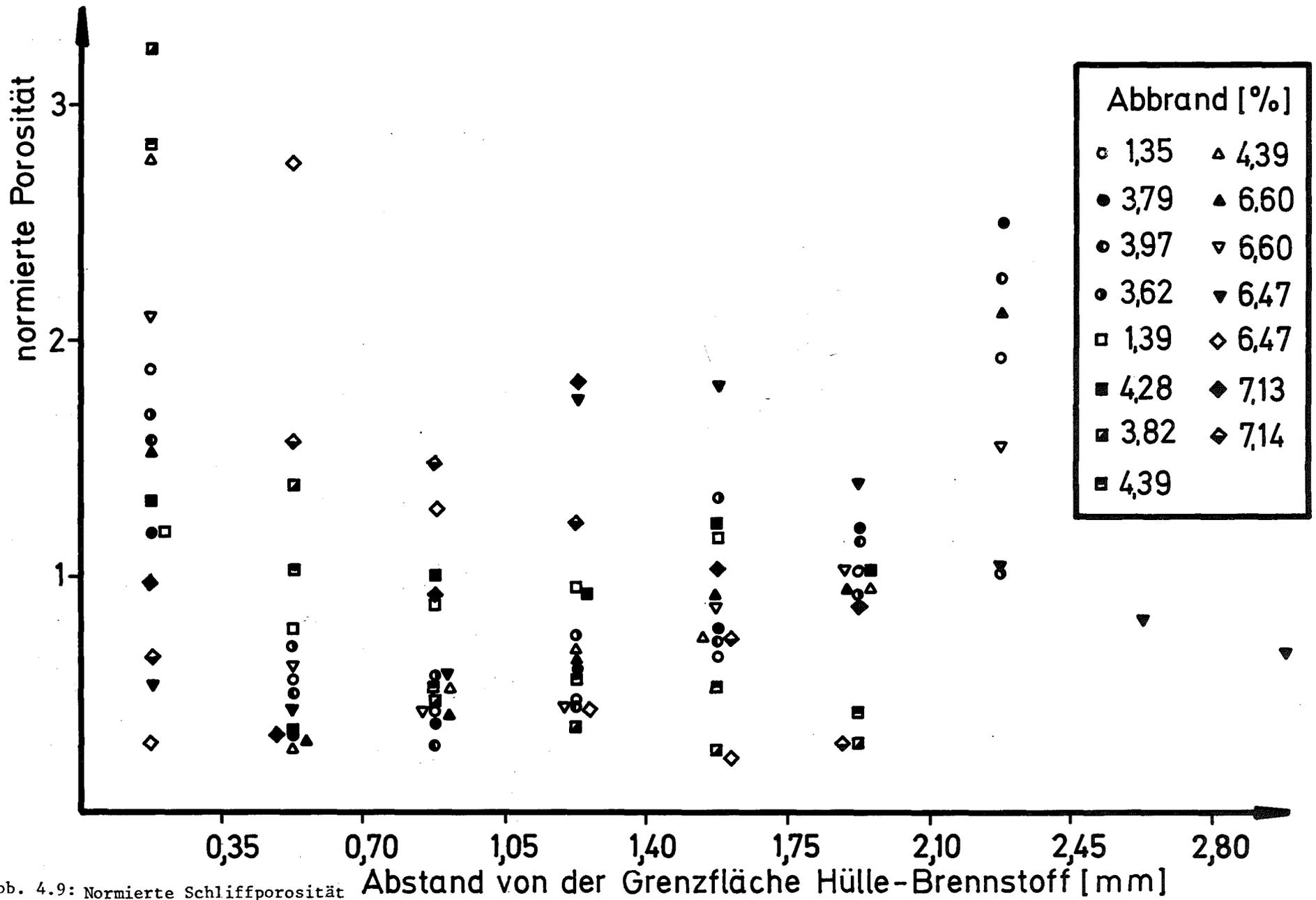


Abb. 4.9: Normierte Schliiffporosität in Abhängigkeit von der Position im Gefüge

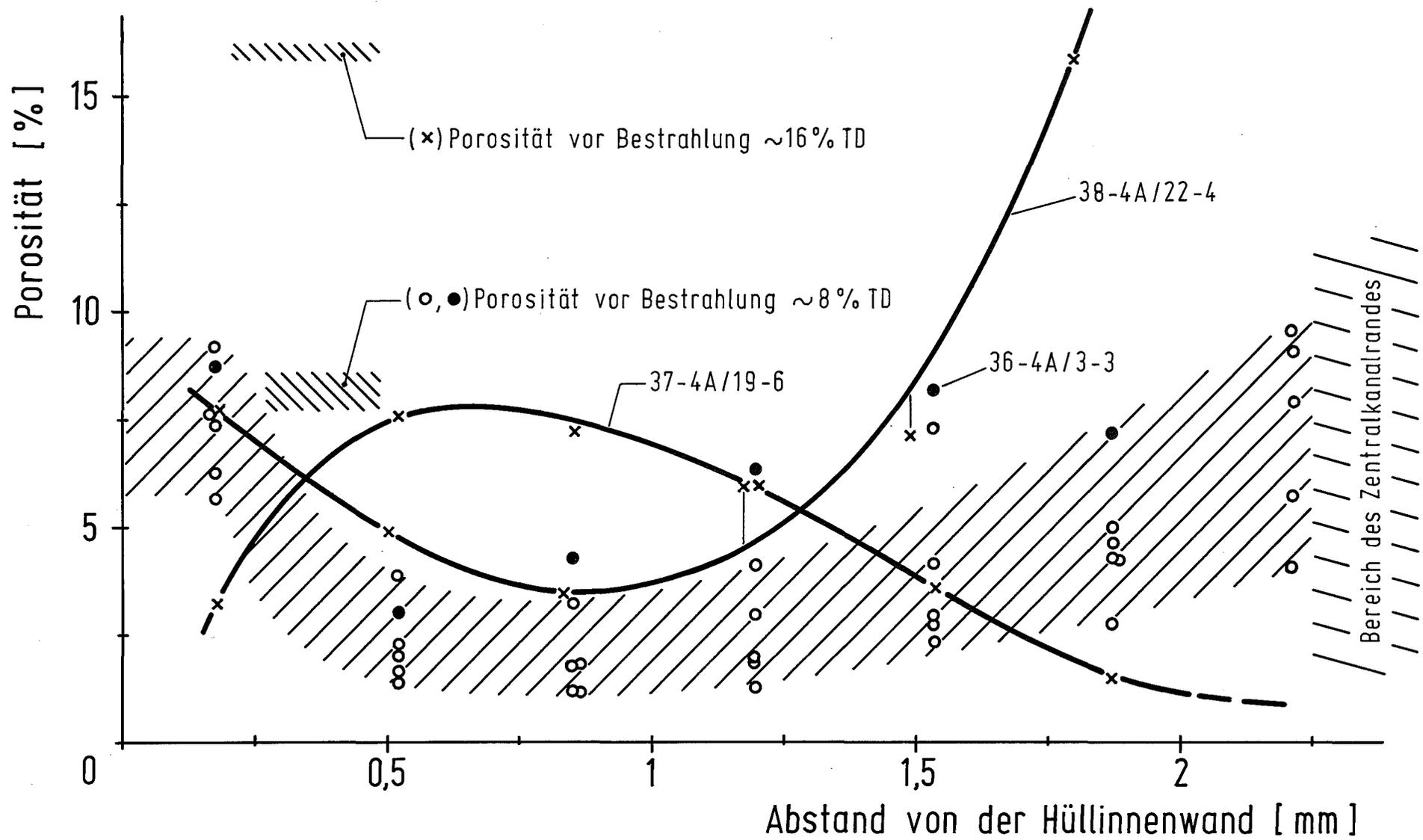


Abb. 4.10

Korrigierter radialer Porositätsverlauf nach Bestrahlung in 8 Brennstab-Schliffproben

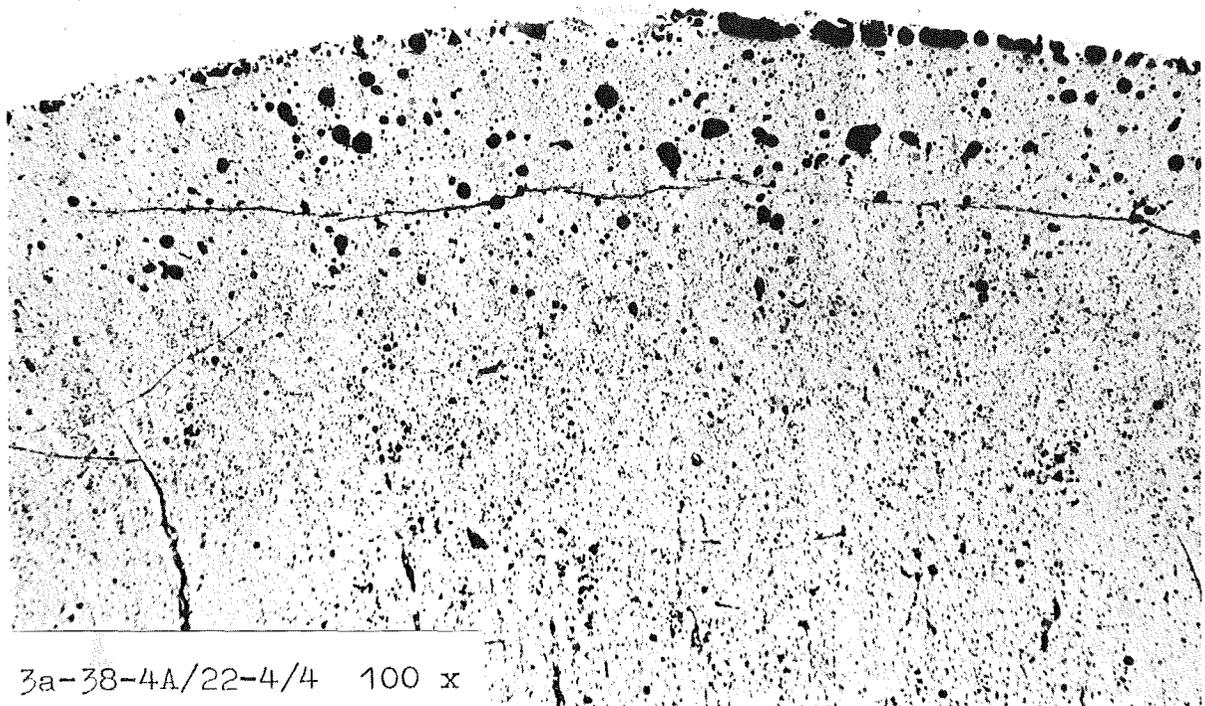
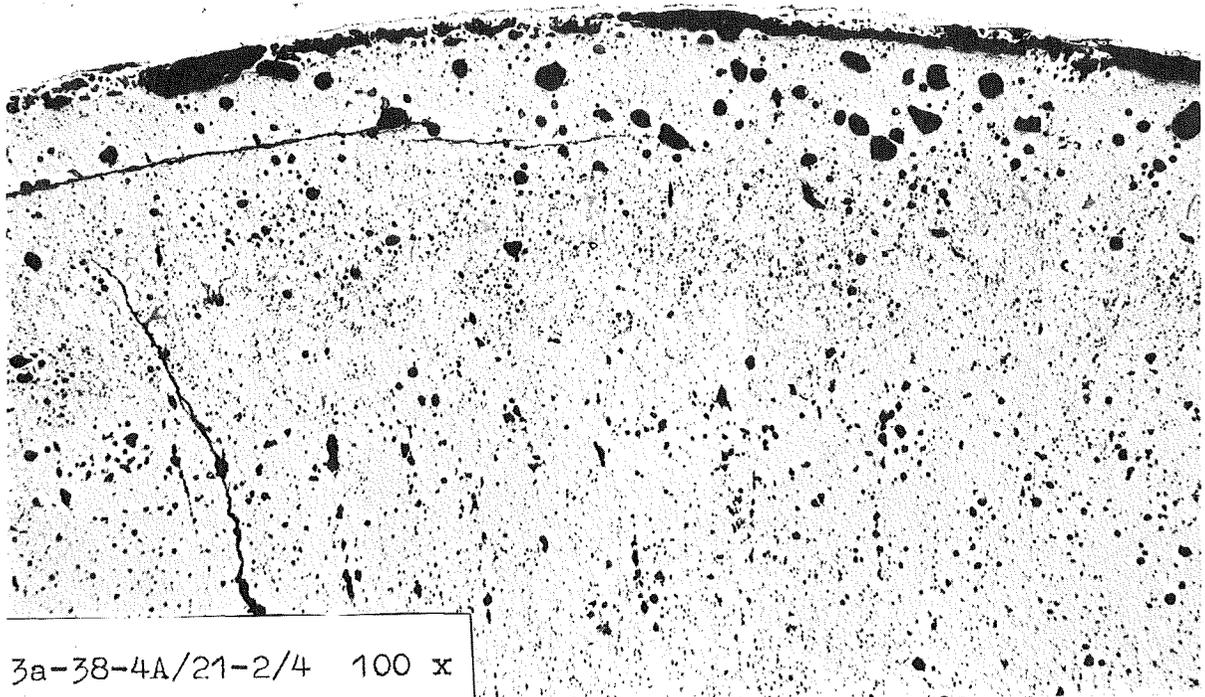


Abb.4.11: Spaltgasblasen in der äusseren Brennstoffzone von zwei Brennstäben aus KVE 38 nach ca. 10% Abbrand

5. Mikrosondenuntersuchungen

H.Kleykamp

5.1 Einleitung

Die abgeschirmte Cameca-Mikrosonde MS 46 hat sich bei der zerstörenden Analyse bestrahlter Kernbrennstoffe bereits bei früheren Untersuchungen gut bewährt [5.1-5.3]. Diese Untersuchungen wurden an einigen Proben der Versuchsgruppen 3 und 4a der FR 2-Kapselbestrahlungen fortgesetzt, wobei durch die Auswahl ein gewisser Einblick in die Abhängigkeit von Brennstoff- und Bestrahlungsparametern gewonnen werden sollte [5.4,5.5]. Eine Beschränkung der Probenzahl war dabei jedoch notwendig. Die Auswahl beruhte auf den Gefügaufnahmen, auf den α - und β - γ -Autoradiographien sowie auf unveröffentlichten Herstellungs- und Bestrahlungsberichten. Die Schwerpunktsuntersuchungen bestanden aus der radialen Uran- und Plutoniumverteilung, der Analyse und Verteilung der im Brennstoff und im Spalt ausgeschiedenen Spaltproduktphasen sowie der Verträglichkeit des Brennstoffs mit der Hülle. Wegen der sehr hohen Strahlenbelastung wurde nur ein Längsschliff untersucht, die übrigen Proben waren Querschliffe.

Dieser Bericht beschränkt sich auf die wesentlichen Ergebnisse der Proben aus der Versuchsgruppe 4a. In Tabelle 5.1 sind die Proben zu-

Tabelle 5.1: Ausgewählte Proben und deren Dosisleistung

KVE	Prüfling	Probe	Dosisleistung (mrem/h)	Probendicke (mm)
33	B7	4a	x	x
33	B7	6a	x	x
35	4A/1	3a	600	x
35	4A/2	4	350	x
36	4A/8	1	7000	+
37	4A/15	4	1500	0,6
37	4A/16	6	2000	0,3
37	4A/19	4	1000	0,8

x nicht gemessen

+ Längsschliff parallel zur Stabachse, der für Verträglichkeitsuntersuchungen auf 0,3 mm abgeschliffen wurde

sammen mit deren Dosisleistung angegeben. Dieser Wert bezieht sich auf die β - und γ -Strahlung in einem Abstand Quelle - Messgerät von 30 cm unmittelbar vor der Mikrosondenuntersuchung. Schliffproben aus den KVE 38,40, 41 waren für die Mikrosondenuntersuchungsreihe FR 2-4a nicht rechtzeitig verfügbar.

5.2 Experimentelles

Die für metallographische Untersuchungen hergestellten Proben wurden auf eine Höhe einiger Zehntel mm aktiven Materials abgeschliffen und poliert und in der Dekontamination dekontaminiert. In Ausnahmefällen wurden stärkere Proben untersucht, die ursprünglich nicht für die Mikrosonde vorgesehen waren. Sie hatten einschliesslich der Araldit-Einbettmasse die Abmessungen von 5/4 Zoll Durchmesser und 19 mm Höhe. Da die leicht flüchtigen Spaltprodukte Cäsium und Jod bei der metallographischen Bearbeitung und der Dekontamination mit Wasser herausgewaschen werden können, wurden die zuletzt untersuchten Proben KVE 37-4A/15-4 und -4A/19-4 wasserfrei mit einer Dispersion aus Dekalin und Tonerde mit einem Zusatz von 5 μ m-Diamantpulver behandelt.

Die Mikrosondenuntersuchungen erfolgten bei einer Strahlspannung von 20 bis 25 kV, einem Strahlstrom in der Probenebene von 50 bis 120 nA und einer Zählzeit von 100 s bei Punktanalysen. Da die aktiven Proben nicht bedampft werden konnten, mussten Justierungsschwierigkeiten und ein geringeres Auflösungsvermögen in Kauf genommen werden. Einzelheiten über die Probenvorbereitung sowie über Einstelldaten der Mikrosonde, quantitative Erfassung des Plutoniums und der Analyse mit defokussiertem Elektronenstrahl sind in [5.4] beschrieben.

5.3 Die Verteilung von Uran und Plutonium im Brennstoff

Da die Uran- und Plutonium-Verteilung in den Brennstäben einen beträchtlichen Einfluss auf die Änderung des Dopplerkoeffizienten oder die Neutronenfluss- und Temperatur-Verteilung haben kann und für die Abhängigkeit des chemischen Potentials des Sauerstoffs vom Brennelementradius mit den sich daraus ergebenden Folgerungen für die Verträglichkeit von Bedeutung ist, wurden in allen Mischoxidproben Messungen des Uran- und Plutonium-Profiles durchgeführt, die entweder durch eine Registrierung

der Profile mit einem Linienschreiber bei kontinuierlichem Verschieben der Probe oder durch Punktanalysen ausgewählter Probenstellen in geeigneten Abständen erfolgten.

Aus Gründen der Kristallbestückung und Abschirmung der Spektrometer war die Messung von Uran und Plutonium nur zeitlich nacheinander möglich. Verschiebungen bis zu einigen μm bei der Messung und der Auswertung der Konzentrationsprofile dieser Elemente sind die Folge.

Entmischungserscheinungen von Uran und Plutonium im Temperaturgradienten mit einer Plutonium-Anreicherung am Zentralkanal wurden bereits mehrfach beobachtet [5.2, 5.3, 5.6-5.8]. Aus simulierten Versuchen an einer zylindrischen Probe in einem axialen Temperaturgradienten [5.9, 5.10] ergab sich eine Plutonium-Anreicherung am heißen Ende, die auf eine selektive Verdampfung von Uran und Plutonium an der Oberfläche, auf selektive Verdampfungs-Kondensationseffekte in Poren und Hohlräumen infolge des Temperaturgefälles sowie auf eine Thermodiffusion zurückgeführt werden kann. Oberhalb eines O/M-Verhältnisses von 1,97 herrscht in der Dampfphase des Mischoxids ($\text{U}_{0.85}\text{Pu}_{0.15}$) O_2 das UO_3 -Molekül vor, während das PuO -Molekül in geringerer Konzentration auftritt. Es wird also bevorzugt Uran verdampft, das sich an den kälteren Stellen niederschlägt. Als Langzeiteffekt kommt die Thermodiffusion von PuO_2 in Richtung des Temperaturgradienten hinzu. Notwendigerweise folgt hieraus eine Plutonium-Anreicherung auf der heißen Seite.

Die Ergebnisse konnten an den bestrahlten Mischoxidproben der Ausgangszusammensetzung ($\text{U}_{0.85}\text{Pu}_{0.15}$) $\text{O}_{1.98}$ bestätigt werden. Beispiele für die Profile des Urans und Plutoniums sind in den Abb. 5.1 und 5.2 dargestellt. Die gemessenen Plutonium-Profile stimmen qualitativ mit den α -Autoradiographien überein. Allen Profilen gemeinsam ist ein Plutonium-Maximum am Zentralkanal von etwa 23 bis 26% PuO_2 mit nicht horizontaler Tangente. Eine Ausnahme bildet die Probe KVE 33-B7-6a. Im allgemeinen zeigt die Plutonium-Kurve ein schwaches Minimum im kälteren Bereich der Säulenkristallzone bei den Proben höherer Dichte oder ein leicht nach aussen abfallendes Plateau bei den Proben niedrigerer Dichte. Der Mechanismus der Verdampfung greift bei Proben der geringeren Ausgangsdichte (85% th.D.) soweit in den mittleren Temperatur-

bereich über, dass die Thermodiffusion nicht mehr wirksam werden kann. Die PuO_2 -Konzentration ^{am Zentralkanal} ist in diesem Fall höher. Bei niedrigeren Brennstoffdichten ist also wegen der höheren Spaltungsdichte eine höhere Zentralkanaltemperatur zu erwarten.

In der Porositätszone ist die Ausgangsstruktur der UO_2 - und PuO_2 -Körner weitgehend erhalten geblieben. Es werden oft dichtere Bereiche neben porösen gefunden. In diesen liegt eine erhöhte Plutonium-Konzentration, in jenen eine erhöhte Uran-Konzentration vor. Die grössere Porosität in den PuO_2 -Körnern kann durch die Entstehung von Spaltprodukten erklärt werden.

5.4 Spaltproduktphasen im Brennstoff und im Spalt

Die Spaltprodukte, die während des Abbrandes im Brennstab entstehen, treten fast nie frei auf, sondern als metallische Legierungen in Form von Ausscheidungen entweder untereinander oder zusammen mit Hüllmaterialkomponenten, ferner bilden sie oxidische Verbindungen oder lösen sich im Brennstoff. Die Phasen treten in gewissen Elementkombinationen auf und werden in bestimmten Bereichen des Brennstabs bevorzugt angetroffen, wenn auch Einzelercheinungen von der Regel abweichen. Das lokale chemische Potential des Sauerstoffs im Brennstoff und an der Hülle ist der wichtigste Faktor für die Art der Ausscheidung. Die Entscheidung über den oxydischen Charakter kann nur lichtoptisch gefällt werden, weil eine Einstellung des Spektrometerkristalls für die Sauerstoffmessung wegen der Abschirmung nicht möglich ist.

5.4.1 Metallische Phasen

Der bisher am häufigsten beschriebene metallische Einschluss besteht aus den Elementen Mo, Tc, Ru, Rh und zuweilen Pd [5.2, 5.3, 5.6, 5.8, 5.11 - 5.18]. Eine inhomogene Verteilung der Komponenten in den Einschlüssen wurde nicht festgestellt. Es wurde jedoch ein Anstieg des Mo/Ru-Verhältnisses mit zunehmender Entfernung vom Zentralkanal beobachtet, die Werte sind von der Stöchiometrie des Brennstoffs abhängig und liegen in der Säulenkristallzone zwischen 0,3 und 0,6, also weit unterhalb des Verhältnisses der Spaltproduktausbeuten von $\text{Mo/Ru} = 1,2$. Daraus ist zu schliessen, dass Molybdän auch im zentralkanalnahen Bereich noch weitere Phasen bildet, die wegen des mit dem Brennstoff vergleichbaren

chemischen Potentials des Sauerstoffs oxidischen Charakter besitzen können. - In einigen Fällen fehlt Molybdän in den metallischen Ausscheidungen (Abb.5.3). In der Kornwachstums- und Porositätszone werden diese Phasen immer feiner ($<2\ \mu\text{m}$) und können mit der Mikrosonde nicht mehr untersucht werden.

Die Edelmetalle sollten in den Ausscheidungen nach der Spaltproduktausbeute ungefähr im Verhältnis Ru:Rh:Pd = 3:1:2 stehen. Aus den experimentellen Ergebnissen folgt jedoch, dass Palladium in den Edelmetallausscheidungen in der Säulenkristallzone in sehr viel geringerer Konzentration vorliegt, zuweilen sogar fehlt (Abb.5.3), dieses Metall dafür bevorzugt in der Porositätszone und im Spalt in Verbindung mit Hüllmaterialkomponenten sowie mit den Spaltprodukten Zinn, Antimon und Tellur auftritt. Der zuletzt genannte Typ wird mit 60 bis 80% Palladium oft zweiphasig im gesamten Brennstoffbereich beobachtet, wobei das komplementäre Verhalten der drei Begleitelemente auffallend ist (Abb.5.3). In den meisten Fällen wird Palladium jedoch frei oder zusammen mit Eisen (bis zu 90%) oder Ni (in geringen Anteilen) in der Nähe der Brennstoffoberfläche oder im Spalt beobachtet (Abb.5.4).

In den bisher untersuchten KVE-Proben konnte Tellur nur selten als Verbindung mit Hüllmaterialkomponenten (Chrom- oder Cäsiumtellurid, s. Abb. 5.4) gefunden werden, meistens jedoch in freier Form in hülnnahen Rissen des Brennstoffs oder im Brennstoff in der Nähe der Brennstoffoberfläche, vermutlich als (U,Pu)-Oxidtellurid (Abb.5.5). Möglicherweise waren die Temperaturen der Hülle für eine Reaktion mit Tellur zu niedrig.

5.4.2 Oxidische Phasen

Fast alle oxidischen Ausscheidungen enthalten Molybdän oder Zirkon als Sauerstoff bindende Komponente. Das Molybdän tritt an der Brennstoffoberfläche und im Spalt, aber auch im Innern des Brennstoffs neben der metallischen in oxidischer Form auf, in der Säulenkristallzone zuweilen im Gleichgewicht mit einer intermetallischen Phase. So wurde eine Mo-Tc-Edelmetall-Phase neben einer Ba-Molybdat-Ausscheidung beobachtet (Abb.5.6). Aufgrund gleicher Mo-Aktivitäten in den beiden Phasen ist hier ein Ansatz zur Berechnung des chemischen Potentials des

Sauerstoffs und somit der Stöchiometrie des Brennstoffs gegeben. Weitere oxidische Phasen bestehen aus Ba-Cerat, -Ferrit, -Zirkonat und Niobdat sowie Cs-Molybdat, die vorwiegend in der Porositätszone und im Spalt beobachtet werden (Abb.5.5). Cer und Zirkon sollten sich ausschliesslich im Brennstoff lösen, die Nachweisempfindlichkeit der Mikrosonde ist jedoch zu gering, um diese Elemente in der Matrix nachzuweisen. Caesium wird weiterhin als Chromat und Uranat, jedoch nicht als Plutonat im Spalt identifiziert.

5.5 Hüllmaterialkomponenten im Brennstoff

Im Brennstoff werden häufig Hüllmaterialkomponenten gefunden, vor allem Eisen, in geringeren Konzentrationen Nickel, selten Chrom (Abb. 5.5). Diese Elemente bilden vorzugsweise mit sich selbst oder mit Palladium metallische Phasen in Rissen des Brennstoffs bis zu 100 µm von der Brennstoffoberfläche entfernt. Ob die in den oxidischen Phasen beobachteten Elemente Niob und evtl. z.T. Molybdän aus der Hülle stammen, ist fraglich.

5.6 Verträglichkeit des Brennstoffs mit der Hülle

Mit Ausnahme der Proben aus dem KVE 33 mit dem geringsten Abbrand von etwa 1,1% traten in allen anderen untersuchten Proben Reaktionen des Brennstoffs und der Spaltprodukte mit der Hülle auf. Es werden typische Merkmale einer Korngrenzenreaktion, die sich bis zu einer Tiefe von 90µm erstreckt (Abb.5.7), oder eine schichtförmige Reaktion an der Hülloberfläche und im Spalt bis zu 50 µm (Abb.5.5) oder beide Merkmale beobachtet. Der in Abb.5.7 erkennbare Korngrenzenangriff beträgt in radialer Richtung etwa 90 µm, da die Schliffebene der Probe nicht in der Achse, sondern nur etwa 0,3 mm von der Brennstoffoberfläche entfernt liegt. Beide Reaktionsarten weisen gemeinsame Charakteristika auf, die in Übereinstimmung mit neueren amerikanischen Arbeiten stehen [5.19-5.23]. Eisen ist am weitesten aus der Reaktionszone herausgewandert und findet sich zwischen Brennstoff und Hülle (Schichtdicke bis zu 10 µm) und im Brennstoff wieder, meist als eines der beschriebenen Reaktionsprodukte mit Spaltprodukten. Chrom wandert langsamer und ist im Fall einer Korngrenzenreaktion (Abb.5.7) in den Korngrenzen der Hülle, im Fall einer Schichtreaktion (Abb.5.5) an der Hüllinnenseite bis zu einer Schichtdicke

von 20 μm angereichert, aufgrund der metallographischen Bilder wahrscheinlich als Oxid. Nickel als die am langsamsten bewegliche Komponente bleibt bei der Korngrenzenreaktion beidseitig der Korngrenzen in den Körnern und bei der Schichtreaktion in der Oberfläche angereichert zurück.

Die untersuchten Proben der KVE 35 und 36 zeigen einen überwiegenden Korngrenzenangriff, der zum Teil von mehreren, Spaltprodukte enthaltenden Reaktionsschichten im Spalt überlagert ist, während die Proben des KVE 37 ausschliesslich durch schichtförmige Spaltprodukt- und Hüllmaterialschichten im Spalt und an der Hülloberfläche gekennzeichnet sind. Vermutlich ist dieser Unterschied in den verschiedenen Brennstoff- und Bestrahlungsbedingungen begründet:

KVE	mittl. Hüll- aussentemp. $^{\circ}\text{C}$	Abbrand %	Brennstoff- dichte % th.D.
35/36	440	3	92
37	340	7	85

Bei den tieferen Hülltemperaturen kann sich eine bevorzugte Schichtstruktur ausbilden, die bei höheren Temperaturen nicht auftritt oder durch flüchtige Spaltprodukte wieder aufgelöst wird, so dass unter diesen Bedingungen dann der Korngrenzenangriff dominant ist.

5.7 Folgerungen

Für die radiale Uran- und Plutoniumverteilung im Brennstoff zeichnet sich ein Verständnis und eine Reproduzierbarkeit der Ergebnisse ab, so dass die Rückwirkung auf die Temperaturverteilung quantitativ erfasst werden kann. Die Plutoniumkonzentration am Zentralkanal liegt etwa zwischen 23 und 26% PuO_2 , für die Proben höherer Brennstoffdichte liegt sie niedriger als für diejenigen niedrigerer Dichte.

Es konnte eine grosse Zahl von metallischen und oxydischen Spaltproduktphasen, die teilweise auch Hüllmaterialkomponenten enthalten, aufgefunden werden. Diese Phasen treten in bestimmten Elementkombinationen auf und bilden sich bevorzugt in thermodynamisch günstigen Bereichen des Brennstoffs.

Aus den Verträglichkeitsuntersuchungen ist noch kein geschlossenes Bild zu gewinnen. Mit zunehmendem Abbrand scheinen sich aus den unzusammenhängenden Hüllmaterial- und Spaltproduktausscheidungen an der Brennstoffoberfläche geschlossene schichtförmige Phasen bevorzugt bei niedrigeren Hülltemperaturen zu bilden, während bei höheren Temperaturen wegen einer erhöhten Aggressivität flüchtiger Spaltprodukte ein Korngrenzenangriff dominant ist. Bei der Art und dem Ausmass des Angriffs kann jedoch auch die Brennstoffdichte eine Rolle spielen [5.19, 5.20].

Literatur

- [5.1] G.Giacchetti, J.Ränsch, in G.Möllenstedt, K.H.Gaukler (Ed.),
Vth Intern.Congress on X-Ray Optics and Microanalysis, Tü-
bingen, 9.-14.9.68, Springer-Verlag, 1969, S.250
- [5.2] B.Kegel, Kerntechnik 11 (1969) 631
- [5.3] B.Kegel, Microchim.Acta, Suppl. IV (1970) 179
- [5.4] H.Huber, H.Kleykamp, KFK-1324 (1972)
- [5.5] H.Huber, H.Kleykamp, in G.Pfefferkorn (Ed.),
Beiträge zur elektronenmikroskopischen Direktabbildung von
Oberflächen, Graz, 5.-7.4.1972
- [5.6] N.R.Stalica, C.A.Seils, Ceram.Nucl.Fuels, Proc.Int.Symp.,
Am.Ceram.Soc., Columbus, 1969
- [5.7] R.Natesh, D.R. O'Boyle, E.M.Butler, 4th Natl.Conf.Electron
Microprobe Anal., Pasadena, 1969
- [5.8] D.R. O'Boyle, F.L.Brown, J.E.Sanecki, J.Nucl.Mat.29
(1969) 27
- [5.9] G.Schumacher, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Ext.Ber.,
INR-4/70-27 (Juli 1970)
- [5.10] M.Bober, C.Sari, G.Schumacher, J.Nucl.Mat.39 (1971) 265
- [5.11] B.T.Bradbury, J.T.Demant, P.M.Martin, D.M.Poole,
J.Nucl.Mat 17 (1965) 227
- [5.12] B.M.Jeffery, J.Nucl.Mat.22 (1967) 33
- [5.13] C.E. Johnson, C.E.Crouthamel, H.Chen, P.Blackburn,
2nd Ann.Techn.Meeting, Int.Met.Soc., San Francisco, 1969
- [5.14] R.N.Stalica, C.A. Seils, ANL-7575 (1969) 98
- [5.15] C.E.Crouthamel, C.E.Johnson, ANL-7753 (1970) 118
- [5.16] J.H.Davies, F.T.Ewart, AERE-R 6310 (1970)
- [5.17] C.E.Johnson, N.R.Stalica, C.A.Seils, K.E.Anderson,
ANL-7675 (1970) 102

- [5.18] W.V.Cummings, H.S.Rosenbaum, R.C.Nelson, Proc.18th
Conf.Remote Systems Technol., Washington, 16.-18.Nov.
1970, S. 179
- [5.19] C.E.Johnson, C.E.Crouthamel, J.Nucl.Mat.34 (1970) 101
- [5.20] C.E.Johnson, C.E.Crouthamel, Trans. ANS 14 (1971) 173
- [5.21] C.M.Cox, A.R.Olsen, R.B.Fitts, E.L.Long, Trans.ANS 14
(1971) 173
- [5.22] J.W.Weber, E.D.Jensen, Trans.ANS 14 (1971) 175
- [5.23] C.E.Johnson, C.E.Crouthamel, Trans. ANS 14, Suppl. 1 (1971) 17

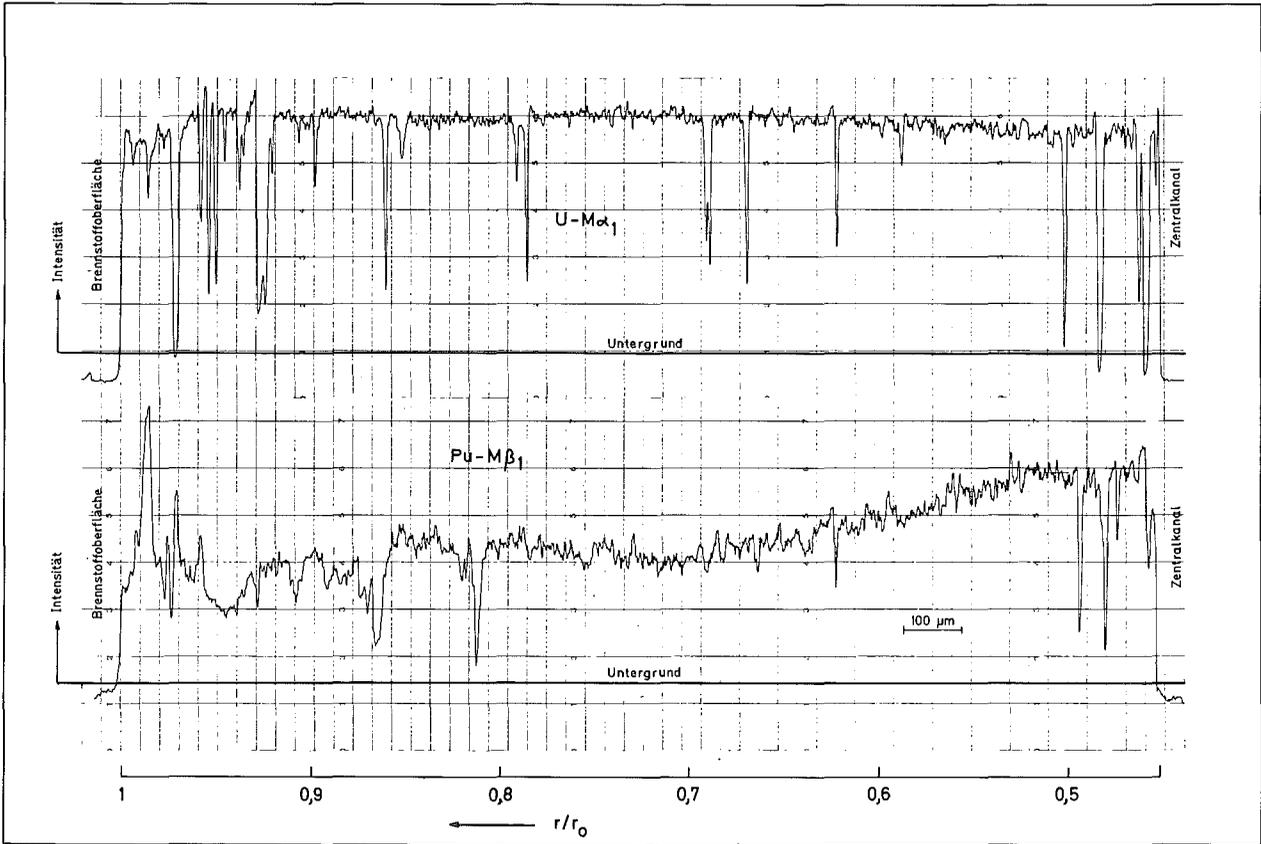
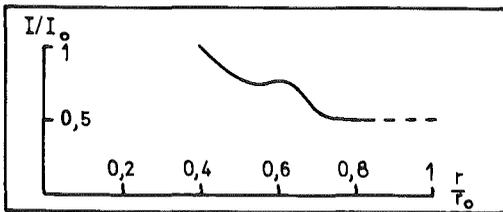
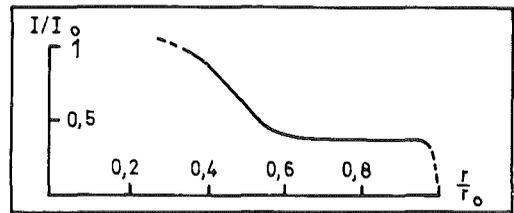


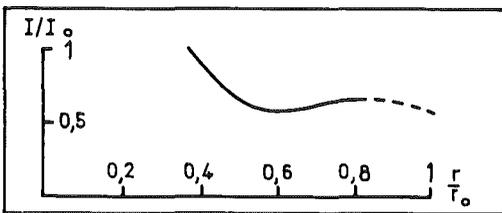
Abb. 5.1 Radiales Uran- und Plutoniumprofil der Mischoxidprobe $(U_{0,85}Pu_{0,15})O_{1,98}$ (KVE 36-4A/8-1) bei etwa 3% Abbrand



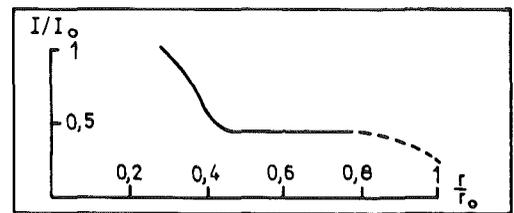
KVE 33-B7-4a



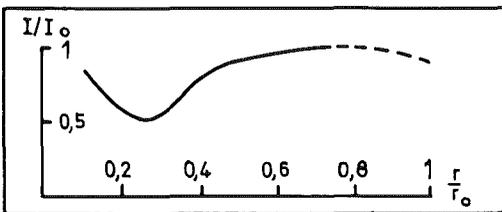
KVE 37-4A/16-6



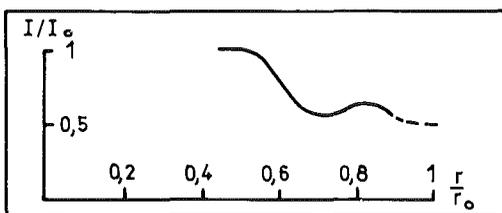
KVE 35-4A/1-3a



KVE 37-4A/19-4



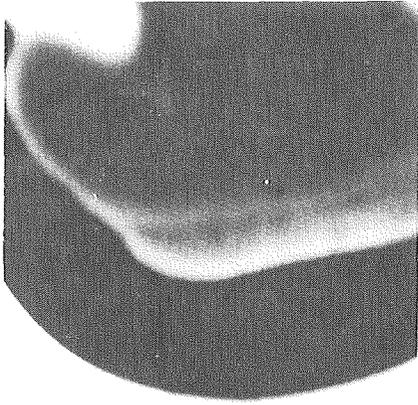
KVE 35-4A/2-4



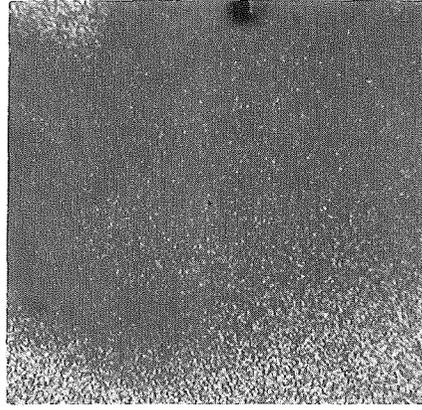
KVE 36-4A/8-1

Abb. 5.2

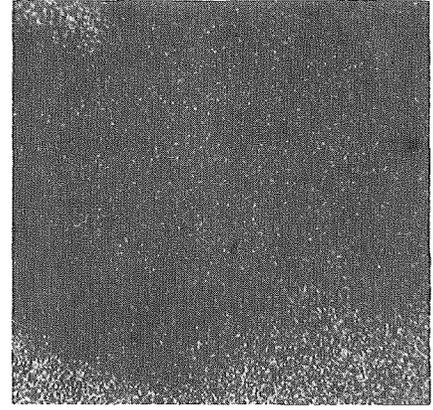
Radiale Plutoniumprofile der Mischoxidproben $(U_{0,85}Pu_{0,15})O_{1,98}$ mit verschiedenen Brennstoffdichten von 92% th. D. (KVE 33/35/36) und 85% th. D. (KVE 37)



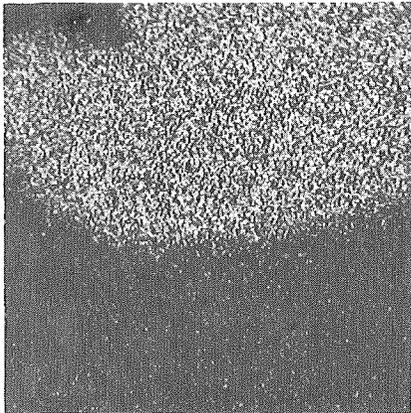
PrStr.



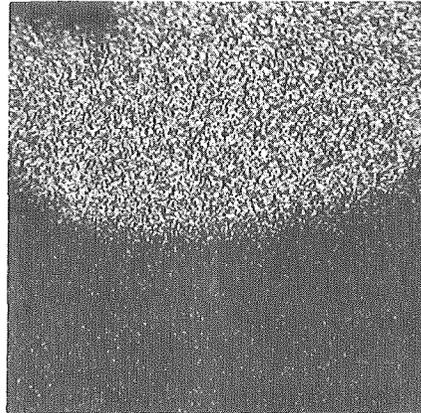
U



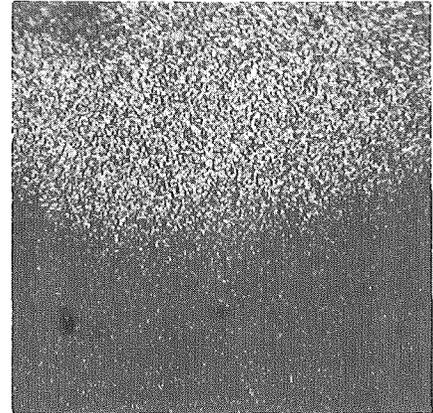
Pu



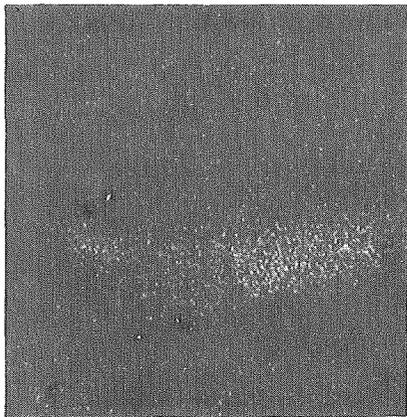
Tc



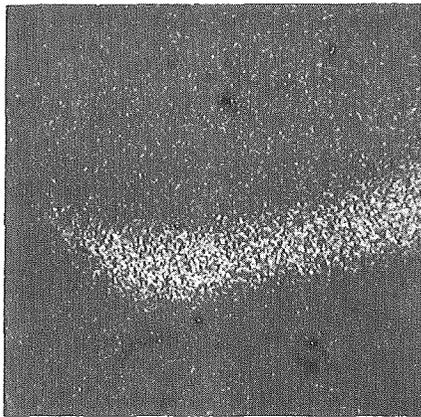
Ru



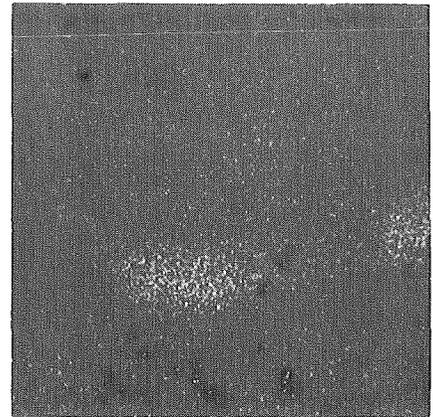
Rh



Te



Pd



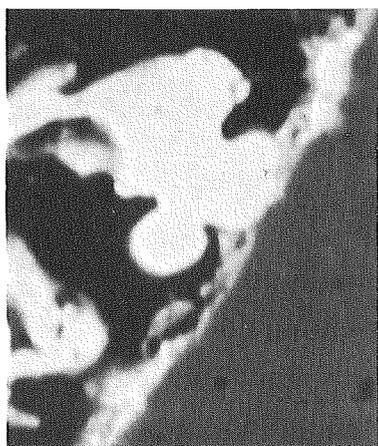
Sn



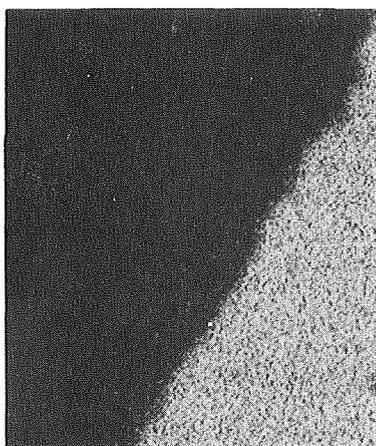
Gefügeaufnahme

Abb. 5.3

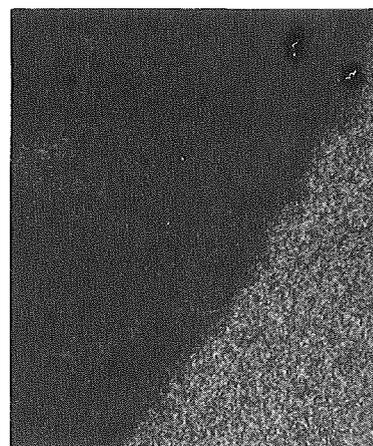
Zweiphasiger metallischer Einschluß
mit Tc, Ru und Rh (kein Mo) sowie
Pd, Te und Sn (+Sb?), Te- und Sn-
Verteilung sind komplementär.
KVE 37-4A/16-6, Vergr. 2000fach



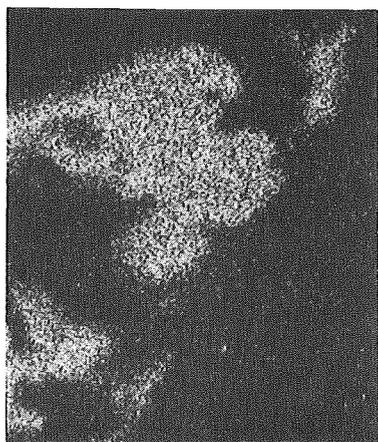
Probenstrom -



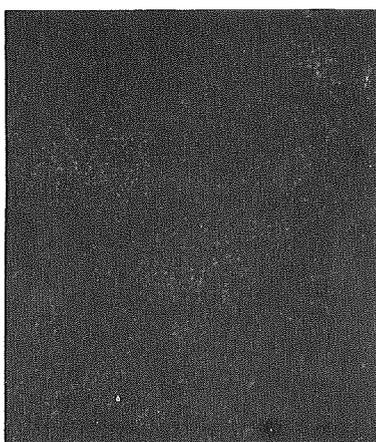
Fe, Ni



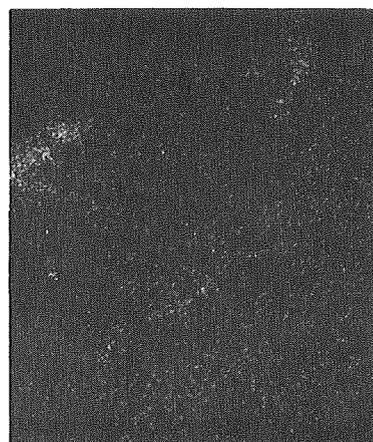
Cr



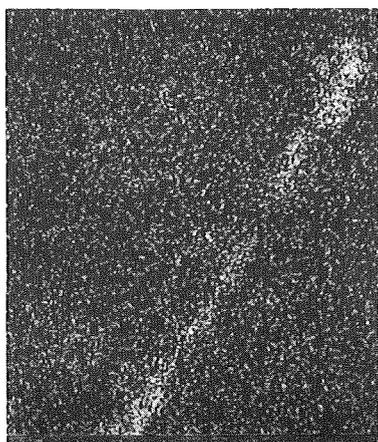
U



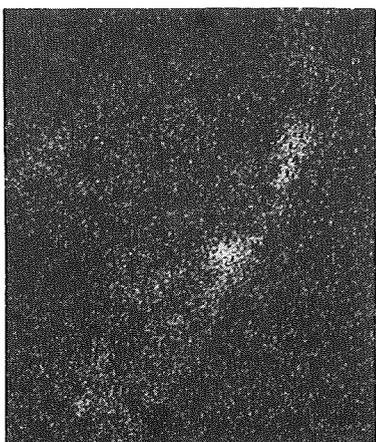
Ba



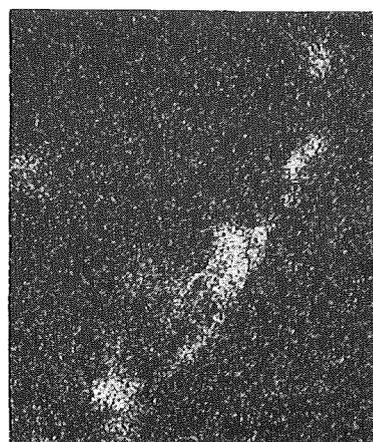
Mo



Pd

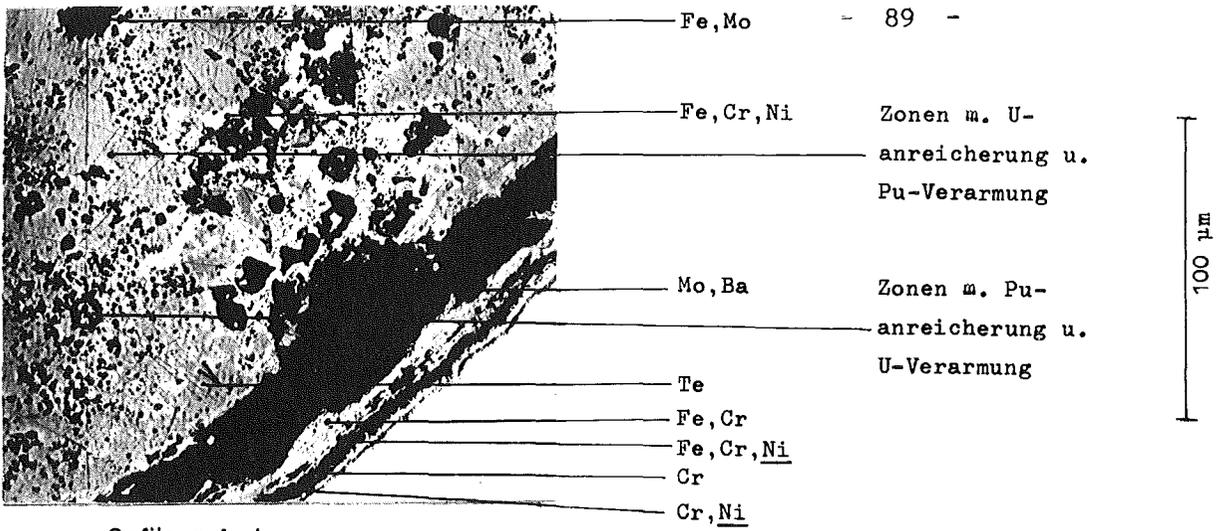


Cs

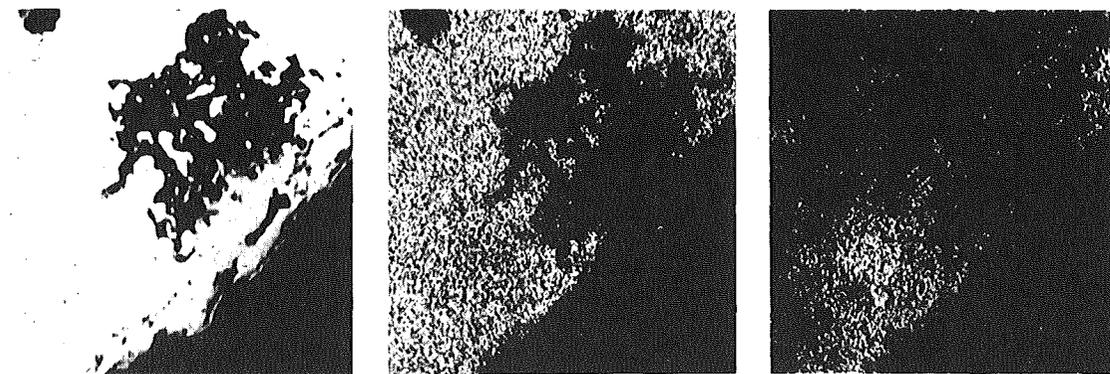


Te

Abb.5.4 Spaltproduktausscheidungen im Spalt und an der Hülloberfläche bestehend aus Pd, Cs-Tellurid (oxydiert?) und Ba-Molybdat, KVE-35-4A/1-3a, Vergrößerung 600fach



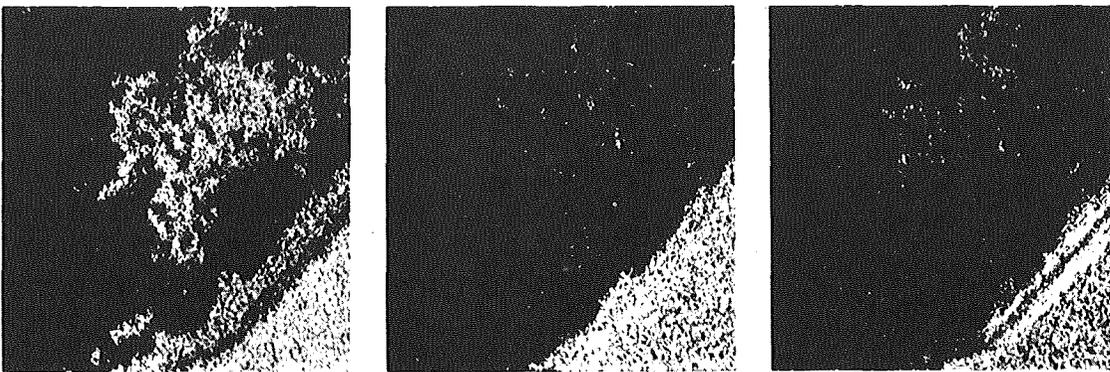
Gefügeaufnahme



Probenstrombild -

U

Pu

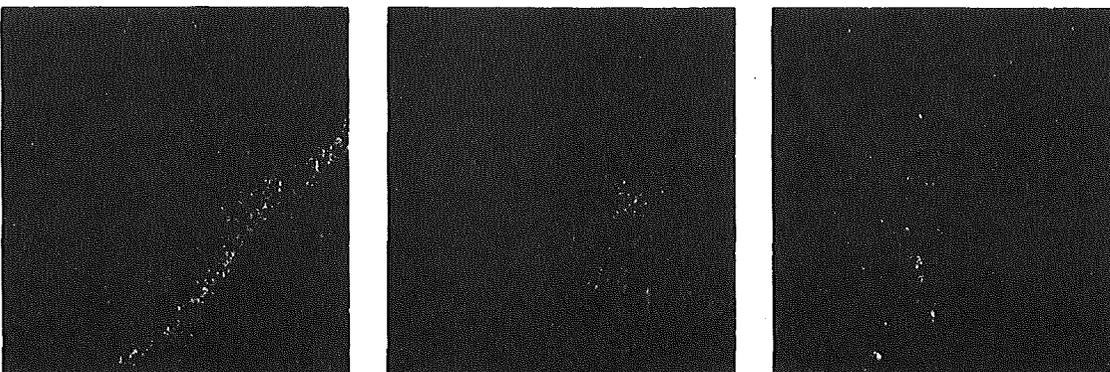


Fe

Cr

Ni

100 μm

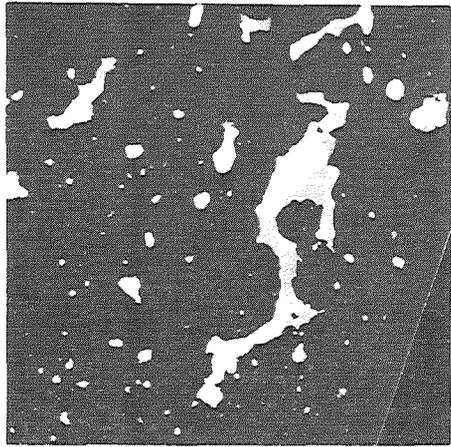


Mo

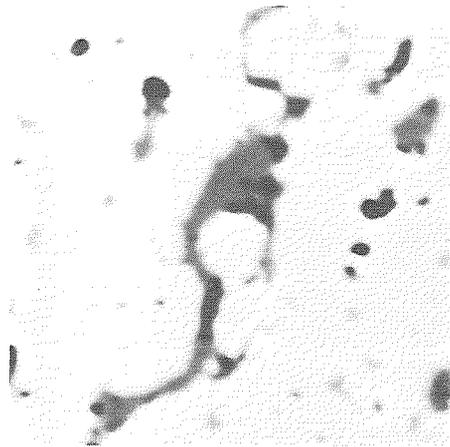
Ba

Te

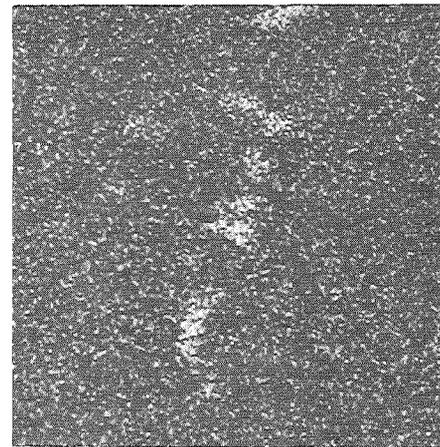
Abb. 5.5 Verschiedene metallische (Fe, Mo; Fe, Ni, Cr; Te) und oxidische (Ba, Mo) Ausscheidungen im Brennstoff und im Spalt sowie schichtförmiger Angriff der Hülle, Gesamtdicke der Schichten etwa 40 μm , KVE 37-4A/19-4



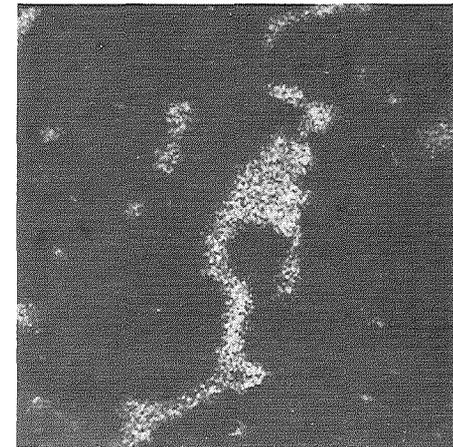
Gefüge



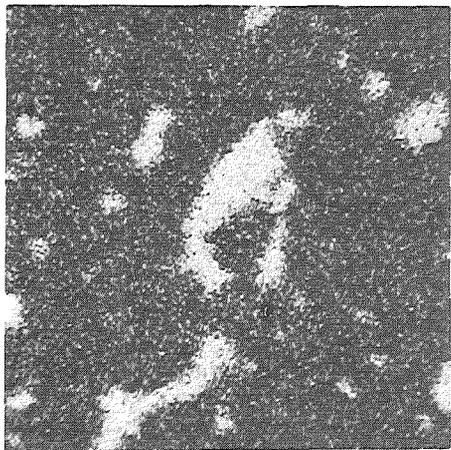
PrStr.



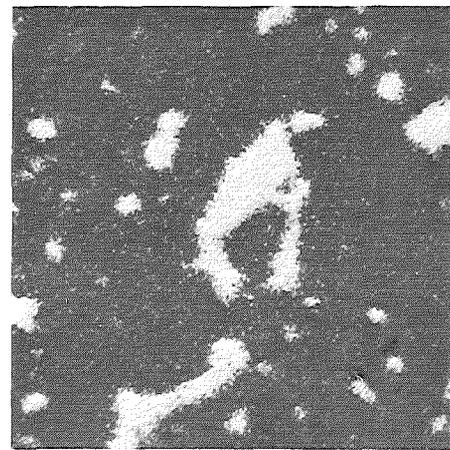
Ba



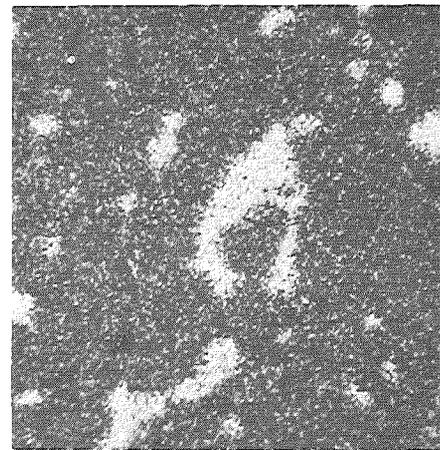
Mo



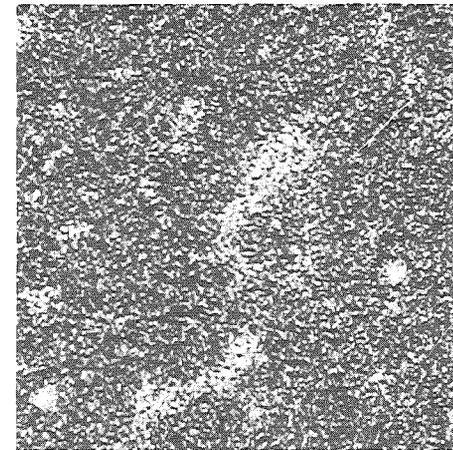
Tc



Ru



Rh



Pd

Abb. 5.6 Oxidische Ba-Molybdat- neben einer metallischen Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Ausscheidung im Brennstoff, KVE 37-4A/15-4, Vergrößerung 600fach

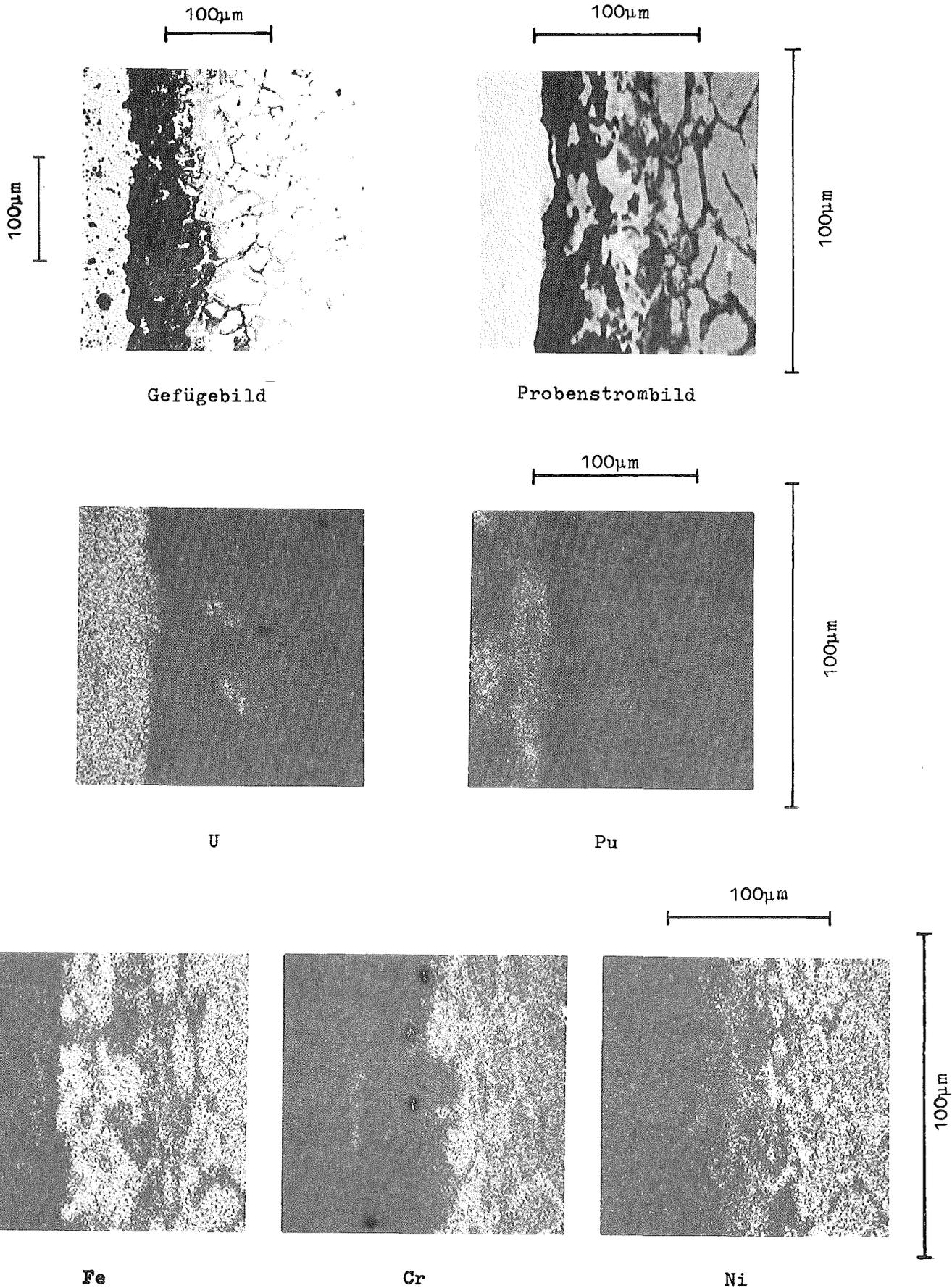


Abb. 5.7 Korngrenzenangriff der Hülle: Cr-Anreicherung sowie Fe- und Ni-Verarmung in den Korngrenzen, Tiefe des Korngrenzenangriffs in radialer Richtung etwa 90 µm, KVE 36-4A/8-1

6. Besondere Beobachtungen zur Uran/Plutonium-Entmischung

W. Dienst

6.1 Experimentelle Bedingungen

In Abschnitt 5 wurde schon gezeigt, dass sich im Verlauf von Brennstofftransportvorgängen eine U/Pu-Entmischung ergeben kann, die lokal zu erheblichen Verschiebungen der Pu-Konzentration und damit der Wärmequellendichte unter Bestrahlung führt. Dieser Effekt müsste vor allem in einer verfeinerten thermischen Analyse für Mischoxidbrennstäbe berücksichtigt werden. Zuvor ist jedoch eine vollständige Erfassung sowie eine systematische Sichtung und Ordnung der beobachtbaren Pu-Anreicherungsstrukturen erforderlich.

Ein gleichmässig ringförmiger Pu-Anreicherungsbereich wird in der Säulenkristallzone am Rande ^[6.1,6.2] des Zentralkanals bestrahlter (U,Pu)₂O₂-Brennstäbe regelmässig beobachtet (s.a. Abschnitt 5). Abb.6.1 zeigt den Pu-angereicherten Saum in einer α -Autoradiographie des Pu-Gehaltes in einem Brennstabquerschnitt. Die U/Pu-Entmischung in (U,Pu)₂O₂-Proben unter der Einwirkung eines steilen Temperaturgradienten wurde auch in Laborversuchen nachgewiesen und durch einen Verdampfungs-Kondensationsmechanismus gedeutet [6.3]. Hier soll auf Transportvorgänge unter U/Pu-Entmischung hingewiesen werden, die -im Gegensatz zur Porenwanderung in der Säulenkristallzone um den Zentralkanal- nur gelegentlich beobachtet werden, in den bestrahlten Brennstäben der Versuchsgruppe FR 2-4a aber ziemlich häufig in Erscheinung traten. Sie werden in der äusseren Brennstoffzone und am Brennstoffrand sowie im Zentralkanal über grössere Entfernungen in axialer Richtung wirksam. Zu diesen Vorgängen gehört auch das Schmelzen, Abfließen und Erstarren von Brennstoff im zentralen Bereich überhitzter Brennstäbe. Der Nachweis stützte sich in erster Linie auf die in α -autoradiographischen Bildern erkennbaren Pu-Anreicherungen bzw. -Abreicherungen.

Die in Karlsruhe bisher untersuchten bestrahlten Brennstäbe aus Stab-bündel-Einsätzen in den Versuchsreaktoren BR 2(Mol) und DFR (Dounreay) zeigten nur die gewöhnliche Pu-Anreicherung in der Umgebung des Zentralkanals. Die im folgenden dargestellten Brennstofftransportvorgänge unter U/Pu-Entmischung scheinen demnach überwiegend durch Besonderheiten der Kapselbestrahlung im FR 2 ermöglicht worden zu sein. Es könnte sich dabei sowohl um die Selbstabschirmung des Brennstoffes im thermischen Neutronenfluss als auch um Überhitzungen durch die ungleichmässige

und relativ schlecht kontrollierbare Stabileistungs- und Temperaturführung der Brennstäbe handeln. Die Entmischungseffekte in der Brennstoffrandzone sind möglicherweise auch mit durch den Einsatz von Proben besonders niedriger Sinterdichte (ca. 84% TD) bedingt.

6.2 Typen der beobachteten Transportvorgänge

6.2.1 Radialer Transport in der äusseren Brennstoffzone

Bei sehr hoher Brennstofftemperatur tritt in der äusseren Brennstoffzone durch Verdampfungs-Kondensations-Vorgänge in Poren, die in Richtung des Temperaturgradienten wandern, eine ähnliche U/Pu-Entmischung ein, wie sie gewöhnlich in der Umgebung des Zentralkanals beobachtet wird. Abb.6.2 zeigt im Randbereich der Brennstoffsäule den hoch verdichteten Saum, der durch den Kondensationsvorgang entstanden ist. Abb.6.3 lässt erkennen, dass dieser Saum stark Pu-verarmt ist. Demnach erfolgte eine selektive Verdampfung des Oxidbrennstoffes mit erhöhtem U-Gehalt. Durch die Verdichtung des Brennstoffes am Rande ist innen eine sehr poröse Zone entstanden (Abb.6.2). Eine hoch verdichtete Pu-verarmte Schicht kann auch durch Verdampfung und Kondensation des Brennstoffes an den einander gegenüberliegenden Grenzflächen eines Risses entstehen, der quer zum Temperaturgradienten verläuft. Abb.6.4 gibt ein Beispiel wieder.

6.2.2 Transport entlang des Brennstoffumfanges

Bei ungleichmässiger Temperaturverteilung entlang des Brennstoffumfanges erfolgt anscheinend auch ein peripherer Verdampfungs-Kondensations-Transport im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle. In Abb.6.5 sind Bereiche, in denen Brennstoff durch Verdampfung abgebaut oder durch Kondensation angelagert worden ist, durch starke Pu-Anreicherung bzw. Pu-Verarmung erkennbar. Abb.6.6 zeigt die zugehörige Gefügestruktur, in der sich der Pu-verarmte Kondensationsbereich (vor allem links oben) durch besonders geringe Porosität abhebt, soweit er nicht noch in der Randzone im Aufbau begriffen ist. Ein entsprechender Brennstofftransport über kleine Entfernungen am Brennstoffumfang kann zum Verschluss der breiten Risse in der äusseren Brennstoffzone führen.

6.2.3 Axialer Transport im Zentralkanal

Wenn an der Zentralkanaloberfläche eines Brennstabes ein Temperaturgradient in axialer Richtung besteht, kann durch Verdampfung und Kondensation ein Brennstofftransport entlang des Zentralkanals erfolgen. Bei den FR 2-4a-Bestrahlungen im thermischen Neutronenfluss war mit Leistungsspitzen und demzufolge mit Brennstofftemperaturspitzen an den Brennstabenden zu rechnen. Demnach könnte dort eine Erweiterung des Zentralkanals durch Brennstoffverdampfung erwartet werden, der eine Verengung in einem kälteren Zentralkanalabschnitt gegenübersteht. Dieser Erwartung entspricht der "Flaschenhals" des Zentralkanals in Abb.6.2 und 6.3. Er war -z.T. viel stärker ausgeprägt- in mehreren Brennstäben der Versuchsgruppe FR 2-4a sowohl an oberen als auch an unteren Stabenden zu finden.

Ein Brennstofftransport entlang des Zentralkanals kann auch durch das Abfließen einer Brennstoffschmelze von der Zentralkanaloberfläche erfolgen. Selbstverständlich ist dabei nur eine Materialverlagerung von oben nach unten möglich. Auch in diesem Fall tritt bei hinreichend schneller Erstarrung der ablaufenden Schmelze eine U/Pu-Entmischung auf, weil sich zu Beginn aus der $(U,Pu)O_2$ -Schmelze Pu-verarmte Mischkristalle und am Schluss Pu-angereicherte Mischkristalle bilden. Im Falle einer länger andauernden Überhitzung sammelt sich die Brennstoffschmelze am unteren Ende des Zentralkanals und führt dort zu einer zusätzlichen Steigerung der spezifischen Stableistung. Es scheint dann zu einer verstärkten U/Pu-Entmischung durch Brennstoffverdampfung aus der Schmelze zu kommen. Der mit selektiv erhöhtem U-Gehalt verdampfte Brennstoff kondensiert sich in einem kälteren Bereich des Zentralkanals oberhalb der Schmelze. Abb.6.7 zeigt das Erstarrungsgefüge einer solchen Schmelze in etwa 10 mm Abstand vom unteren Brennstabende, Abb.6.8 gibt in der α -Autoradiographie die starke Pu-Anreicherung im inneren Bereich der Schmelze wieder. Abb.6.9 und 6.10 zeigen 40-50 mm weiter oberhalb den gesamten Zentralkanalquerschnitt durch stark Pu-verarmten Brennstoff ausgefüllt.

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

Literatur

- [6.1] Huber H., Kleykamp H.,
KFK 1324, 1972
- [6.2] Meyer R.O., Butler E.M., O'Boyle D.R.,
ANL - 7929, 1972
- [6.3] Bober M., Sari C., Schumacher G.,
J.Nucl.Mat.40 (1971) 341

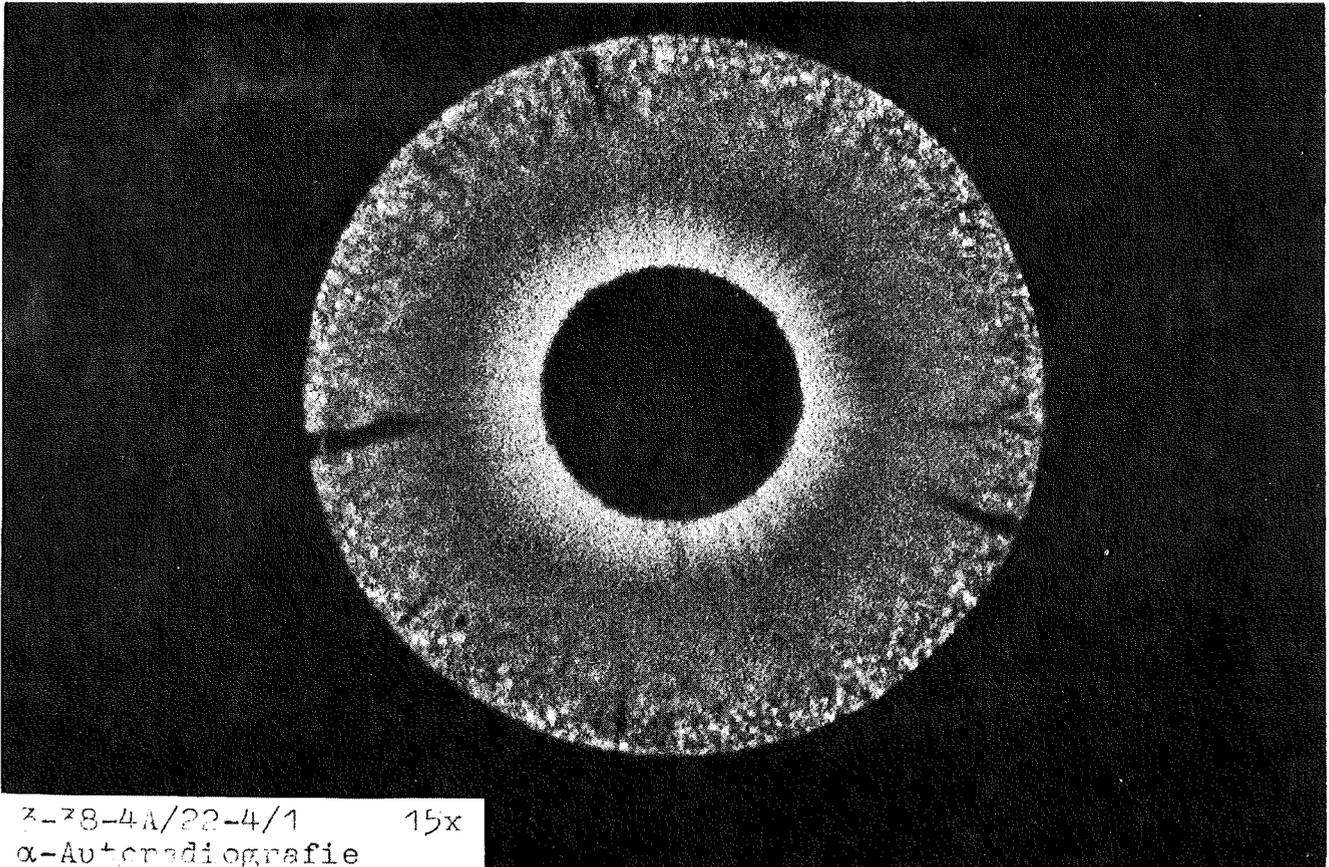


Abb. 6.1: α -autoradiographische Abbildung der typischen Pu-Konzentrationsverteilung in einem UO_2 - PuO_2 -Brennstab mit gleichmässiger Pu-Anreicherung entlang des Zentralkanalumfanges

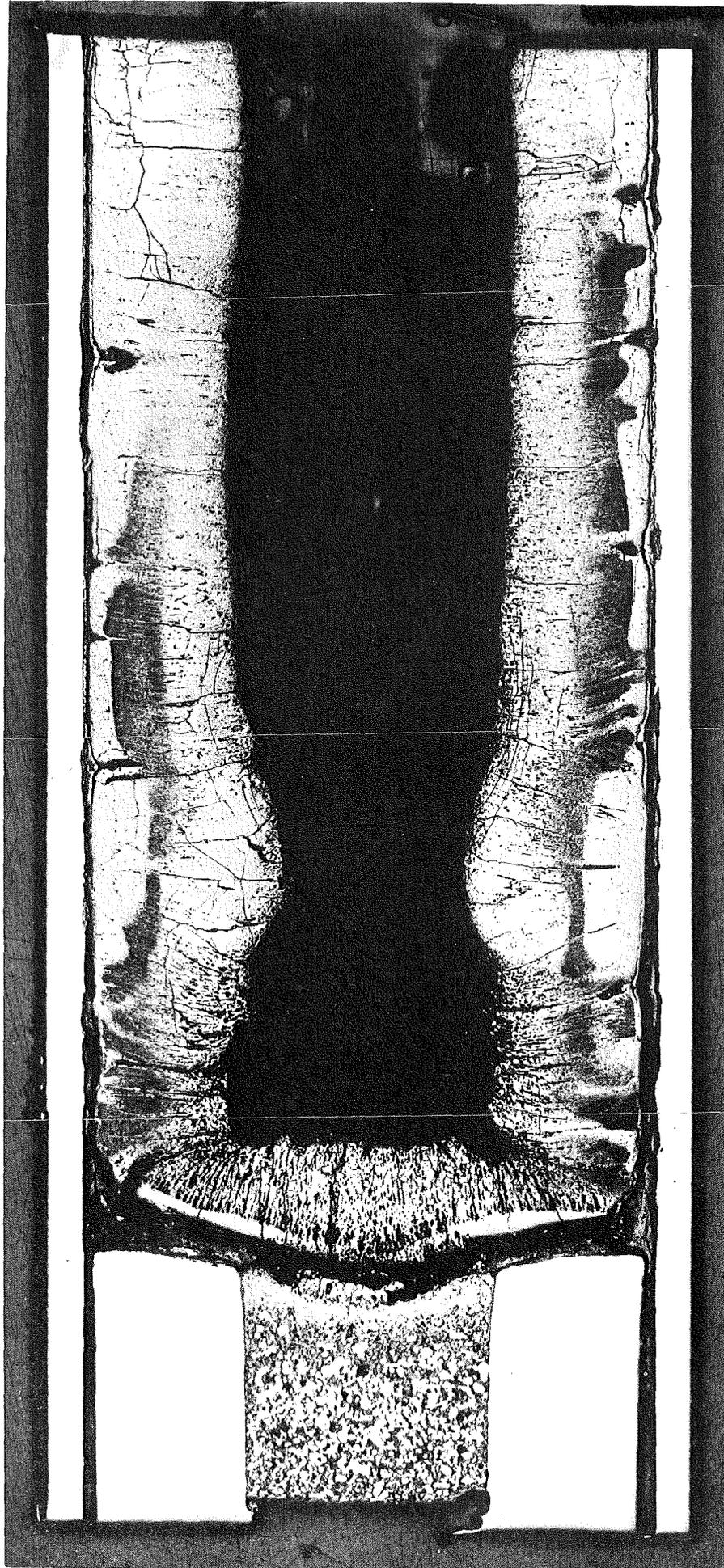


Abb.6.2: Axialer Längsschnitt vom oberen Ende des Brennstabes 38 - 4A/20 (Vergr. 15x)

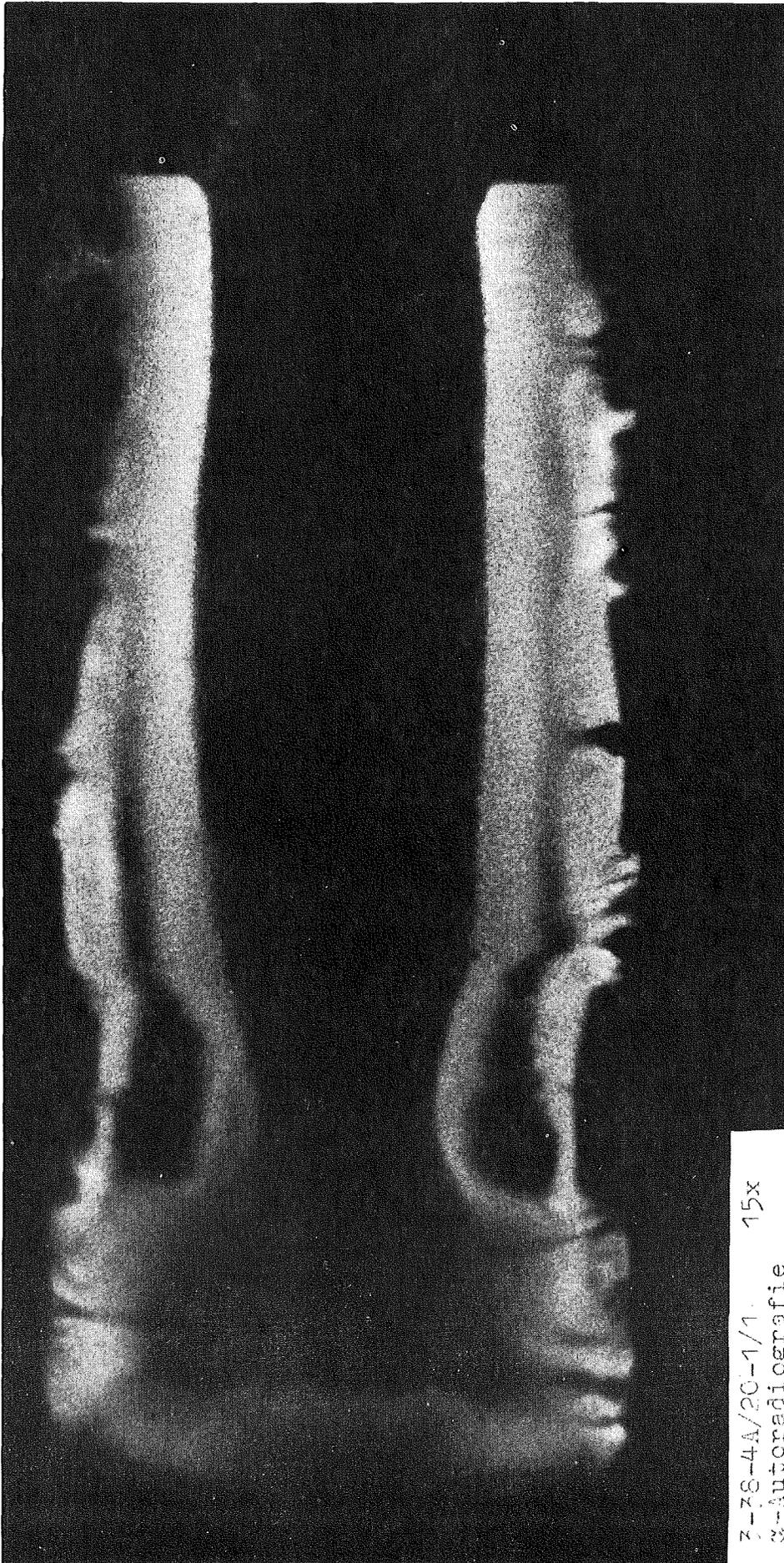
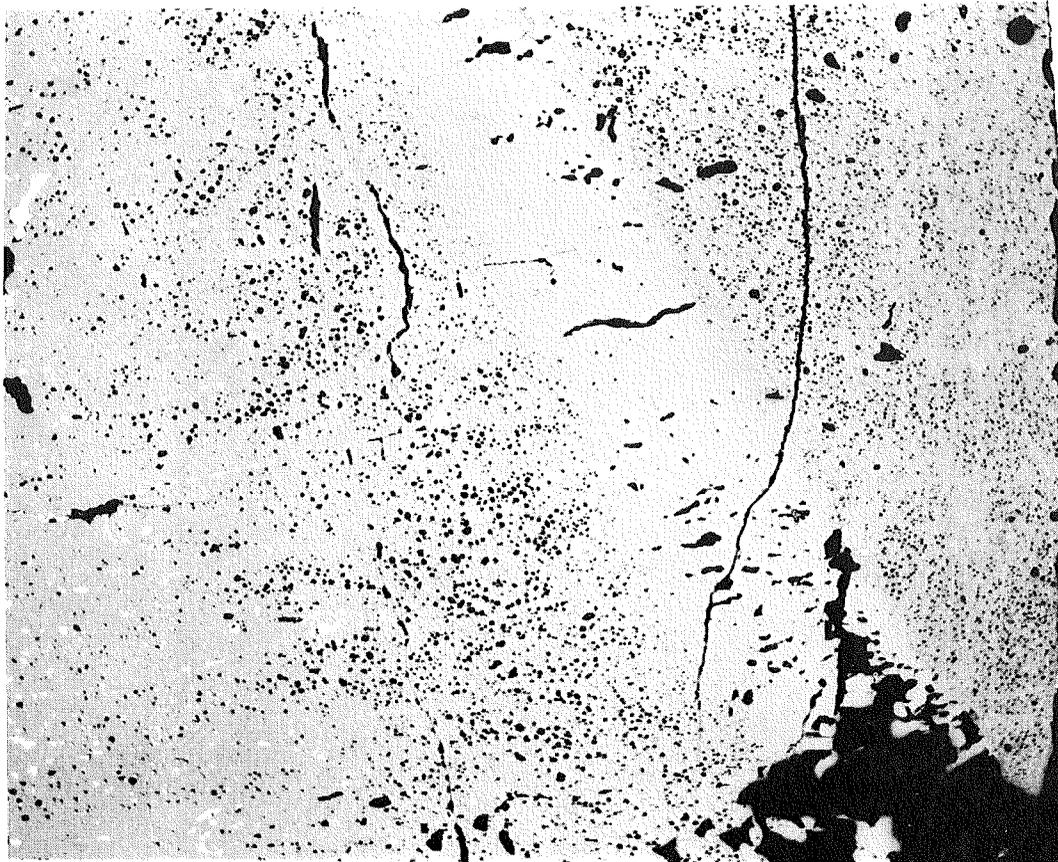
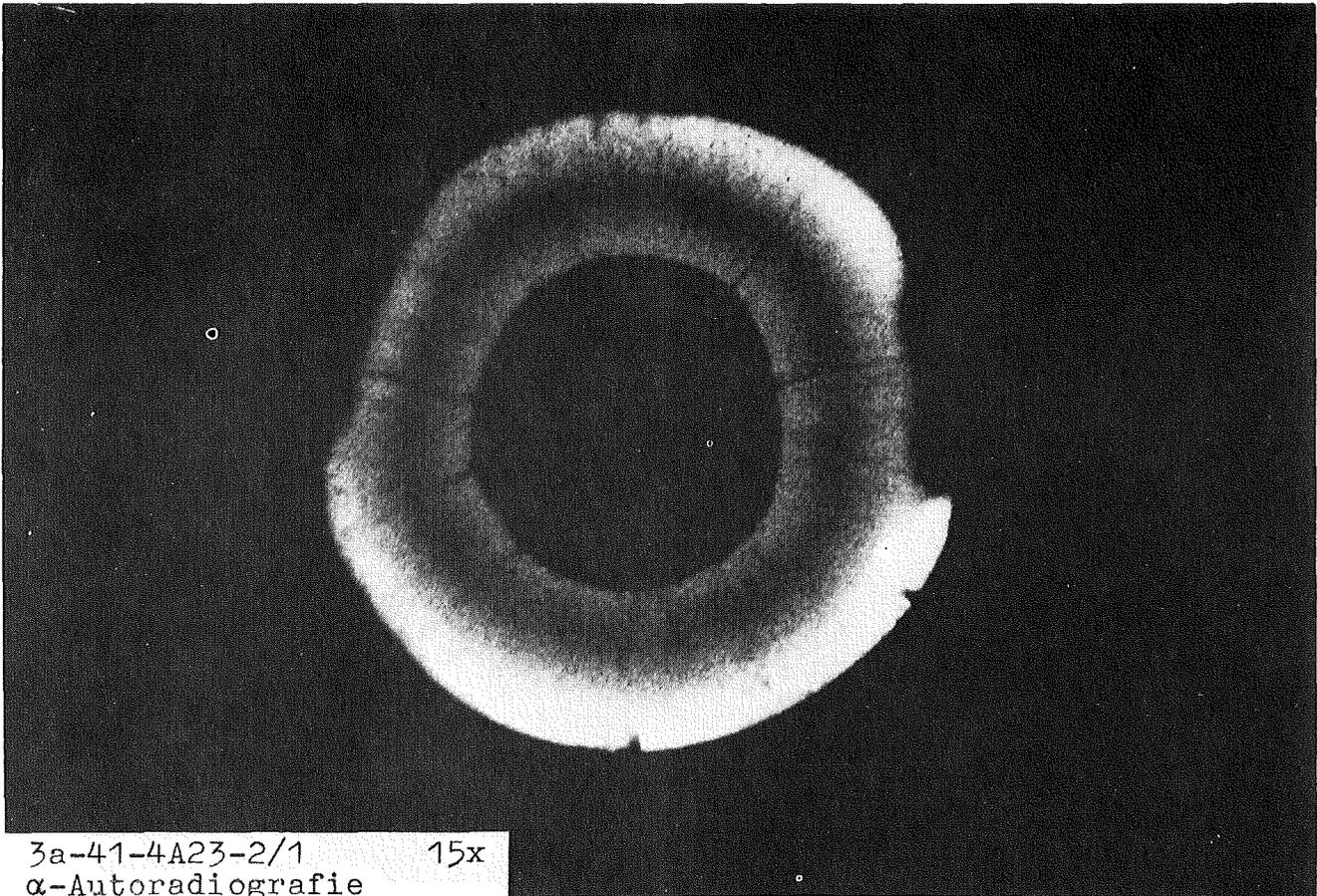


Abb. 6.3: α -autoradiographische Abbildung der Pu-Konzentrationsverteilung in Abb. 6.2



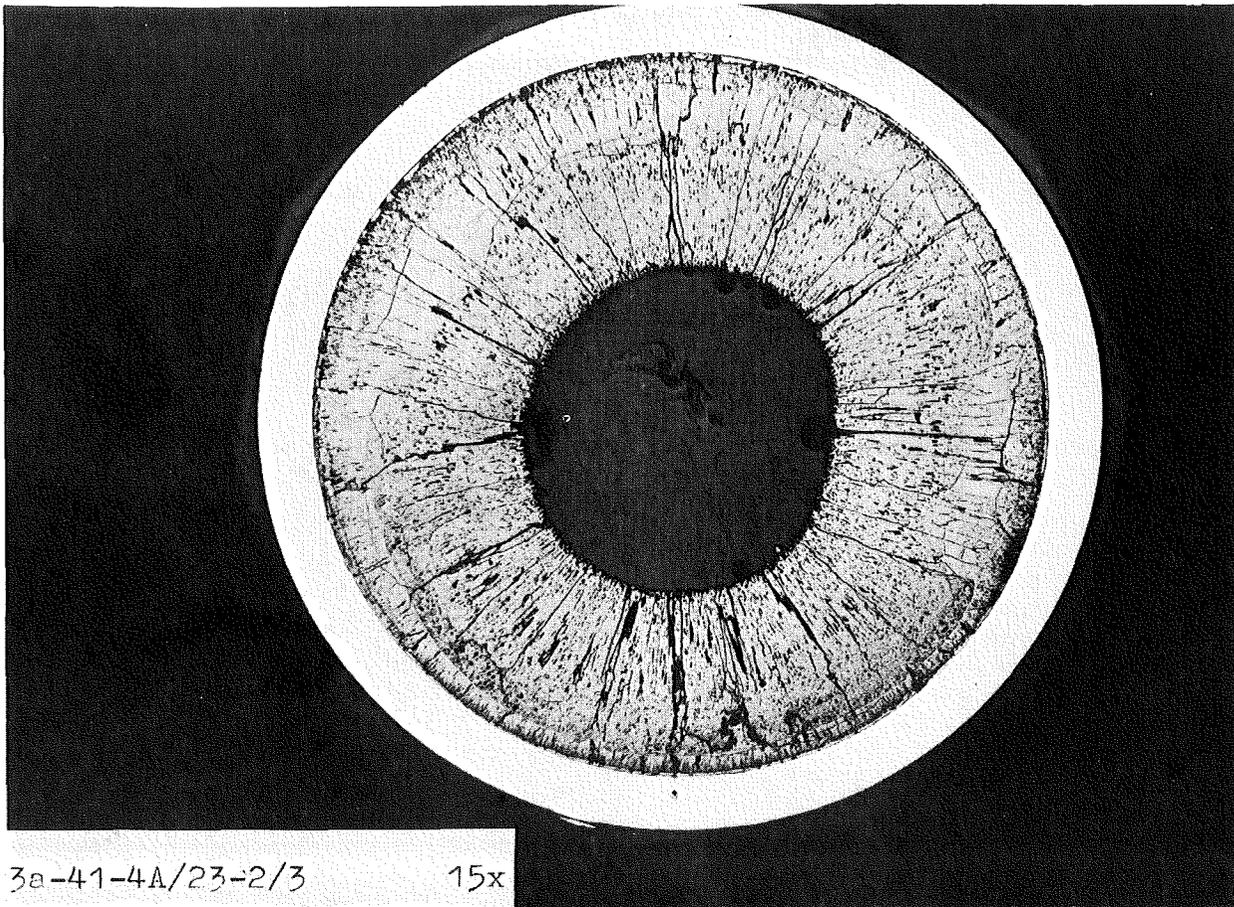
3a-37-B14-6/6 200 x

Abb. 6.4: Verdichtete Pu-verarmte Brennstoffschicht im Bereich eines früheren Risses



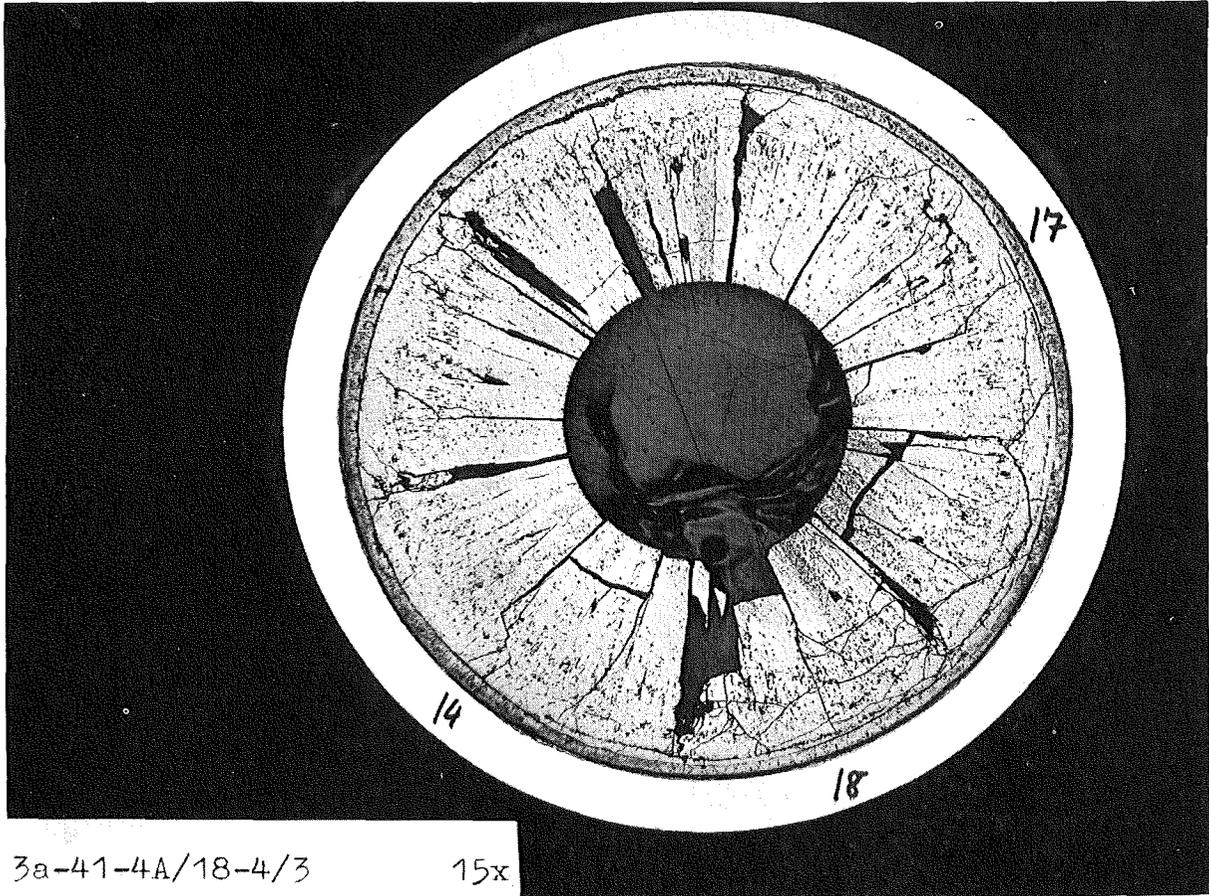
3a-41-4A23-2/1 15x
 α -Autoradiografie

Abb.6.5: α -autoradiographische Abbildung der Pu-Konzentrationsverteilung in der Mitte des Brennstabes 41-4A/23



3a-41-4A/23-2/3 15x

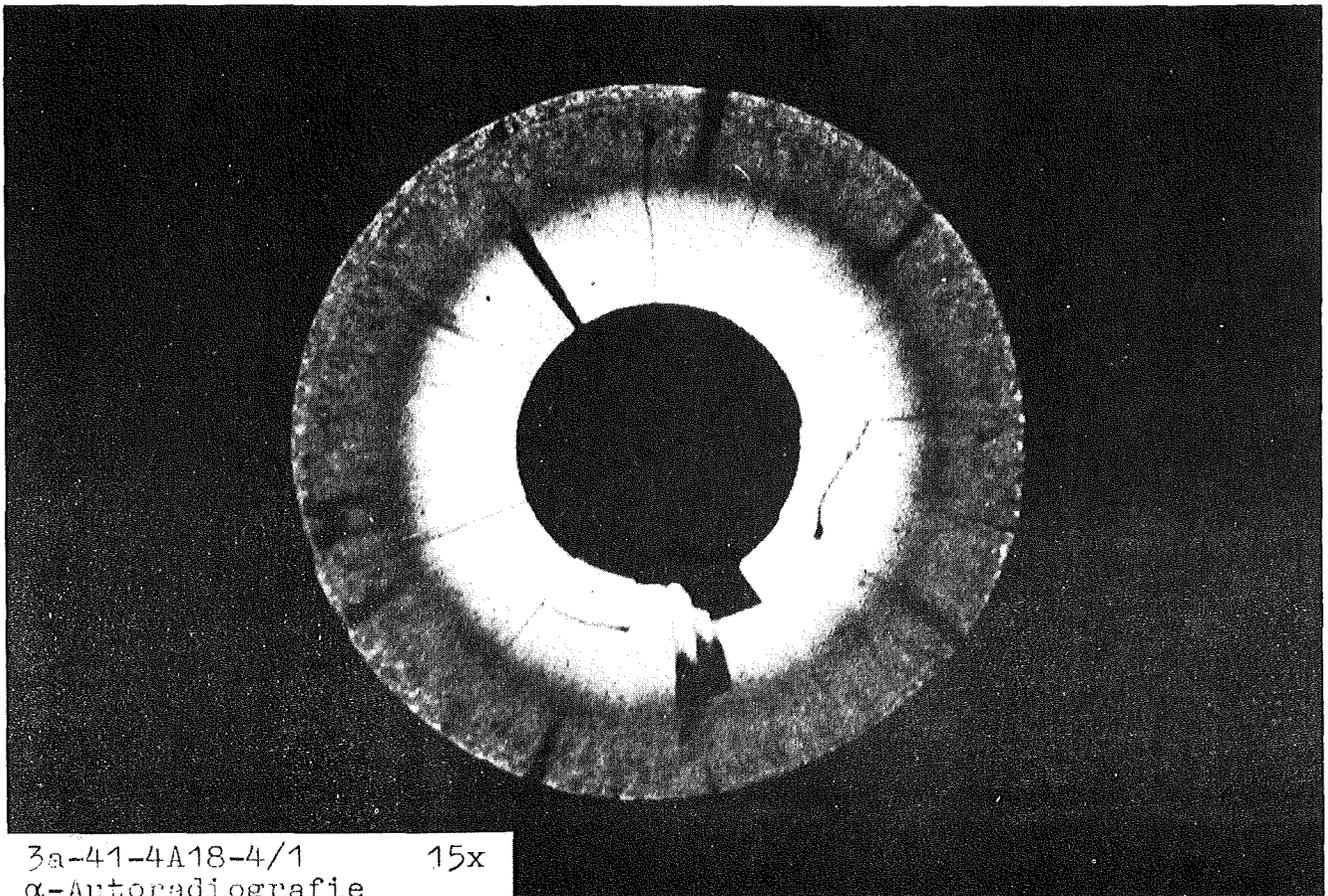
Abb.6.6: Brennstoffgefügebild zu Abb. 6.5



3a-41-4A/18-4/3

15x

Abb. 6.7: Erstarrungsgefüge vorübergehend geschmolzenen Brennstoffes im inneren Bereich eines Querschnittes vom unteren Ende des Brennstabes 41 - 4A/18



3a-41-4A18-4/1

15x

α -Autoradiografie

Abb.6.8: α -Autoradiografie der Pu-Verteilung in Abb. 6.7

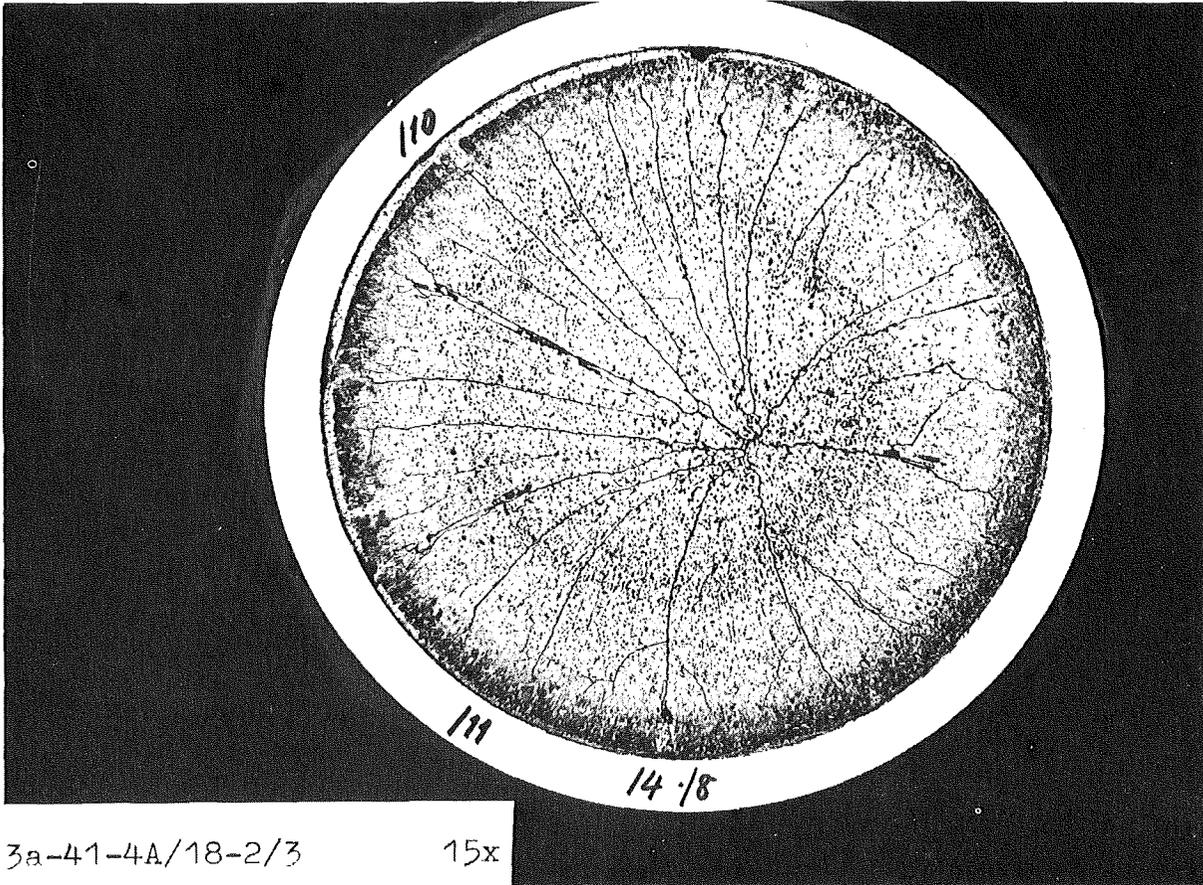


Abb. 6.9: Querschnitt in der Mitte des Brennstabes 41-4A/18 mit Pu-verarmter Füllung im früheren Zentralkanal

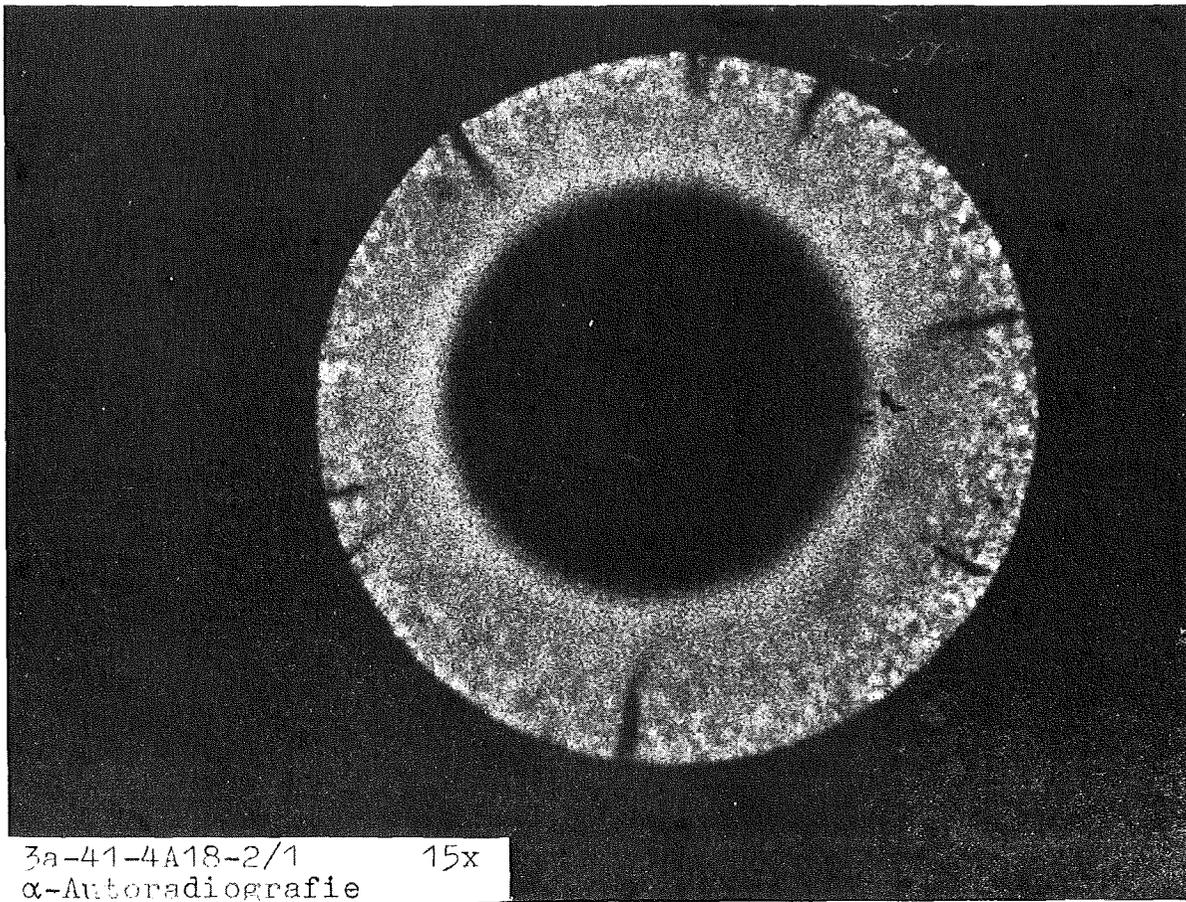


Abb.6.10: α -Autoradiographie der Pu-Verteilung in Abb.6.9

7. Verträglichkeit Hülle/Brennstoff

O.Götzmann

Im Abschnitt 5 ist auch schon das Problem des chemischen Angriffes an der Innenseite der Brennstabhülle angesprochen worden, der durch den Brennstoff aufgrund seines mit dem Abbrand steigenden Spaltproduktgehaltes und Sauerstoffpotentials verursacht wird. Im folgenden ist das Ergebnis einer systematischen Sichtung aller keramographischen Schliffbilder aus den Brennstäben der Versuchsgruppe FR 2-4a im Hinblick auf die beobachtbaren Reaktionen zwischen Hülle und Brennstoff dargestellt. Die Deutung dieses Ergebnisses ist schwierig wegen der wenig übersichtlichen Versuchsbedingungen (s. Abschnitt 1.1), im besonderen wegen der starken Hülltemperaturschwankungen im Verlauf der Bestrahlung. Es liefert jedoch sehr nützliche Hinweise in Bezug auf das Hüllangriffsbild und die Hüllangriffstiefe sowie deren Parameterabhängigkeit, denen bei weiteren Untersuchungen gezielt nachgegangen werden kann.

Die bei den einzelnen Proben ermittelten Hüllangriffstiefen sind mit den dazugehörigen Bestrahlungsdaten in der Tab.1 zusammengestellt. Der stärkste Angriff ist immer im oberen Brennstoffbereich der Kurzstäbe beobachtet worden. In den mittleren und unteren Stabbereichen war der Hüllangriff dagegen vergleichsweise gering. Dies deutet daraufhin, dass im oberen Brennstoffbereich eine höhere Temperatur geherrscht hat.

Die grössten Angriffstiefen lagen bei 100 μm ; es handelte sich dabei immer um einen Korngrenzenangriff. Nur bei den Prüflingen der KVE 38 fand offensichtlich ein Abtrag von Hüllmaterial statt (Abb.7.1-7.4). Die Angriffstiefe scheint, nach dieser Versuchsgruppe zu urteilen, eher eine Funktion der Hüllinnentemperatur als des Abbrandes zu sein. Dort, wo die Hüllinnentemperatur während einiger Zyklen über 500 $^{\circ}\text{C}$ lag, konnte auch ein starker Angriff festgestellt werden. Lagen die Temperaturen während des grössten Teils der Bestrahlungszeit unter 500 $^{\circ}\text{C}$, fand kein nennenswerter Hüllangriff statt. Eine Ausnahme macht hier der Stab 4A 16 des KVE 37. Der maximale Angriff von 80 μm , der für diesen Prüfling angegeben wird, wurde nur an einer lokal begrenzten Stelle gefunden. Die Temperaturangaben für die Prüflinge des KVE 36, bei denen die stärksten Angriffe beobachtet worden sind, können nur mit Vorbehalt gemacht werden, da hier die Thermoelemente wegen Überhitzung ausgefallen sind.

Wahrscheinlich sind die maximal erreichten Temperaturen nicht gemessen worden.

Die Zuordnung einer charakteristischen Temperatur zu jedem Prüfling war schwierig. Die Temperaturen der einzelnen Zyklen waren stark unterschiedlich und auch innerhalb der einzelnen Zyklen schwankte die Temperatur oft erheblich. In der Tabelle werden deshalb drei Temperaturen genannt: Die mit "max.abs." bezeichnet die während der gesamten Bestrahlungszeit höchste erreichte Temperatur. In der Rubrik unter $\overline{\text{max.}}$ wird die mittlere Temperatur des Zyklus angegeben, bei dem die über den ganzen Zyklus gemittelte Temperatur den höchsten Wert erreichte. Ein Zyklus erstreckte sich über etwa 30 Tage. Die dritte Angabe mit $\overline{\text{min.}}$ bezeichnet die mittlere Temperatur des Zyklus mit der niedrigsten mittleren Temperatur. Diese drei Temperaturangaben spiegeln natürlich nicht den Temperaturverlauf der Bestrahlungszeit exakt wieder. Die scheinen jedoch einigermaßen repräsentativ für die jeweilige Temperaturgeschichte zu sein.

Der Grad des Abbrandes scheint bei dieser Versuchsgruppe keinen grossen Einfluss auf den Reaktionsumfang gehabt zu haben. Dies wird deutlich, wenn man den Prüfling B 10 des KVE 33 mit den Prüflingen des KVE 40 vergleicht. Möglicherweise war das Temperaturniveau allgemein zu niedrig, so dass das durch den Abbrand geschaffene Reaktionspotential nicht vollständig abgebaut werden konnte. Auch eine Abhängigkeit des Hüllangriffs von der Tablettendichte lässt sich aus diesen Versuchen nicht herleiten. Die Annahme, dass bei geringerer Brennstoffdichte grössere Hüllangriffe stattfinden, wird durch diese Versuchsserie eher widerlegt.

Das Aussehen der Angriffszonen und der Reaktionsprodukte lassen vermuten, dass der Hüllangriff durch eine von Spaltprodukten (Cs) verstärkte Oxidation des Hüllmaterials hervorgerufen wurde. Die Ergebnisse der Mikrosondenanalyse, die in Abschnitt 5 beschrieben sind, bestätigen diese Annahme bezüglich der Oxidation. Spaltprodukte konnten jedoch in den Reaktionsprodukten in der Hülle nicht nachgewiesen werden. Vermutlich liegt das in der Herstellungsmethode der Schiffe begründet. Vergleicht man die hier beobachteten Hüllreaktionen mit denen in den Brennstäben der Versuchsgruppen DFR 305 und Mol 7A [7.1], so ergibt sich

der Eindurck, dass die Temperaturangaben hier vergleichsweise zu tief liegen. Die Hüllangriffstiefen in der Versuchsgruppe FR 4-4a würden besser in das bisher gewonnene Bild passen, wenn die dazugehörigen Temperaturen um etwa 50°C höher gewesen wären.

Literatur

- [7.1] Götzmann O.,
GfK, Interne Notizen, 1972

Hüllangriffstiefen und Bestrahlungsdaten der Prüflinge der KVE 33 bis 41

KVE	Prüfling	Tabl. Dichte % TD	Abbrand (%U+Pu)	max. Stabl. (W/cm)	Hüllinnentemp. (°C)			Bestrahl. Zeit (d)	Hüllangriff (µm)	
					min.	max.	max. abs.		mittel	max.
33	B 6	92,0	1,08	590	485	500	545	57	0-10	15
	B 7	91,4	1,10	660	505	520	600	57	0-10	15
	B10	91,6	1,18	630	525	535	575	57	10	100
34	B11	91,6	2,95	590	375	485	545	170	0-10	10
	B12	91,6	3,25	630	380	515	575	170	0-10	-
	B13	91,9	3,20	570	370	520	535	170	-	-
35	4A/1	92,0	3,06	665	385	540	605	142	15-20	30
	4A/2	92,1	2,95	645	380	535	590	142	10-20	50
	4A/4	92,3	2,84	590	395	530	545	142	0-10	35
36	4A/3	92,2	3,43	630	575	575	575	161	10-40	80
	4A/5	92,2	3,42	610	360	360	560	161	0-30	110
	4A/8	91,6	3,24	610	470	470	560	161	0-50	100
	4A/9	91,6	3,12	620	360	360	560	161	0-10	30
37	B14	91,9	7,10	550	340	460	515	389	0- 5	5
	4A/15	85,1	7,69	550	340	470	515	389	0-10	10
	4A/16	85,2	6,65	495	310	445	470	389	10-30	80
	4A/19	83,8	6,50	515	315	465	485	389	10-30	40
38	4A/20	83,6	9,70	580	205	480	535	578	10-20	60
	4A/21	83,6	9,52	595	215	490	550	578	10-20	25
	4A/22	83,4	10,3	605	220	540	550	578	10-20	100
40	4A/28	84,4	9,15	570	265	485	530	523	0-20	20
	4A/25	84,5	9,70	585	235	510	545	523	0-20	20
	4A/26	84,9	9,95	625	250	495	575	523	0-20	20
	4A/27	83,9	10,2	645	250	505	585	523	0-20	20
41	4A/17	84,3	3,76	590	280	465	545	358	10-20	20
	4A/23	84,8	4,79	590	325	520	545	358	10-20	40
	4A/18	84,3	5,00	580	295	510	535	358	20	30

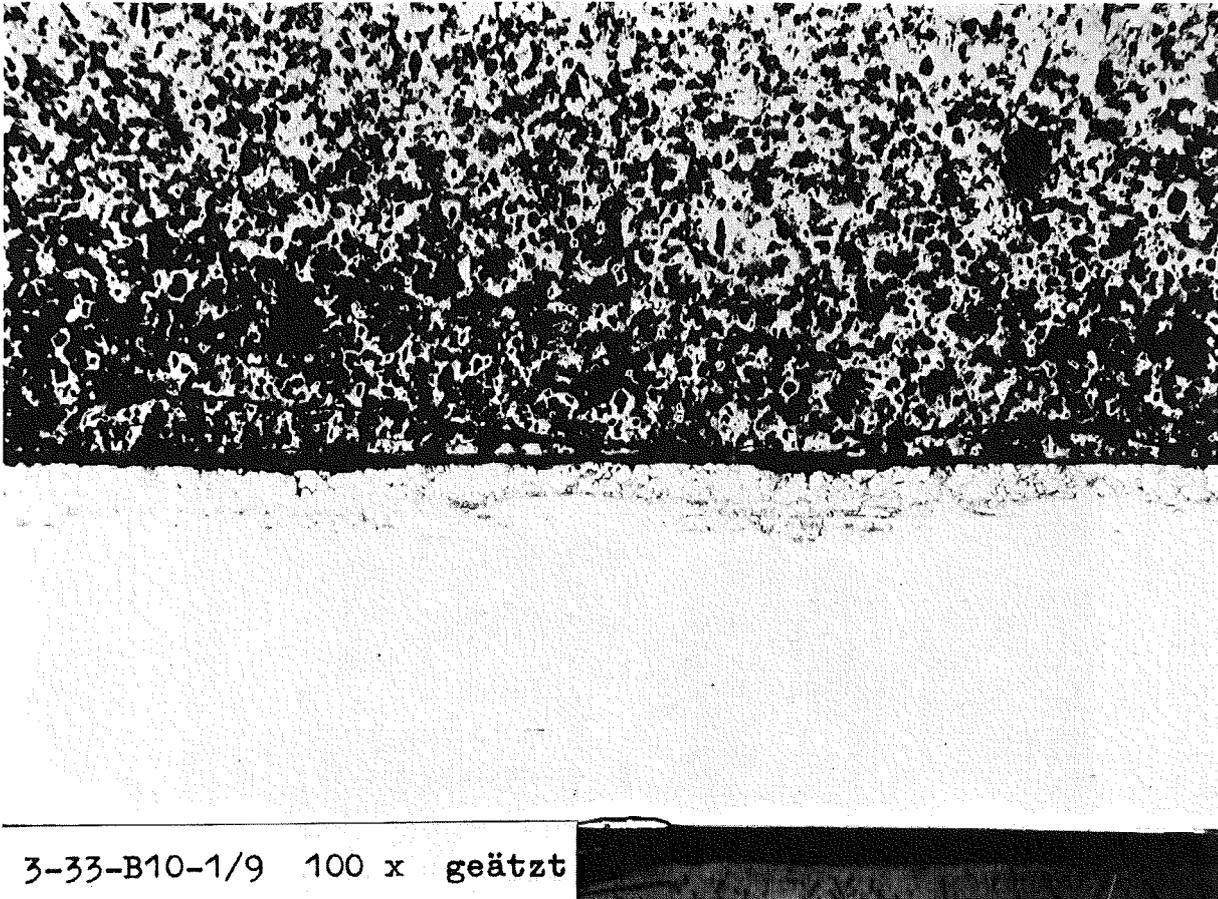


Abb. 7.1: Hüllangriff im Stab B 10 des KVE 33
(oberer Brennstoffbereich)

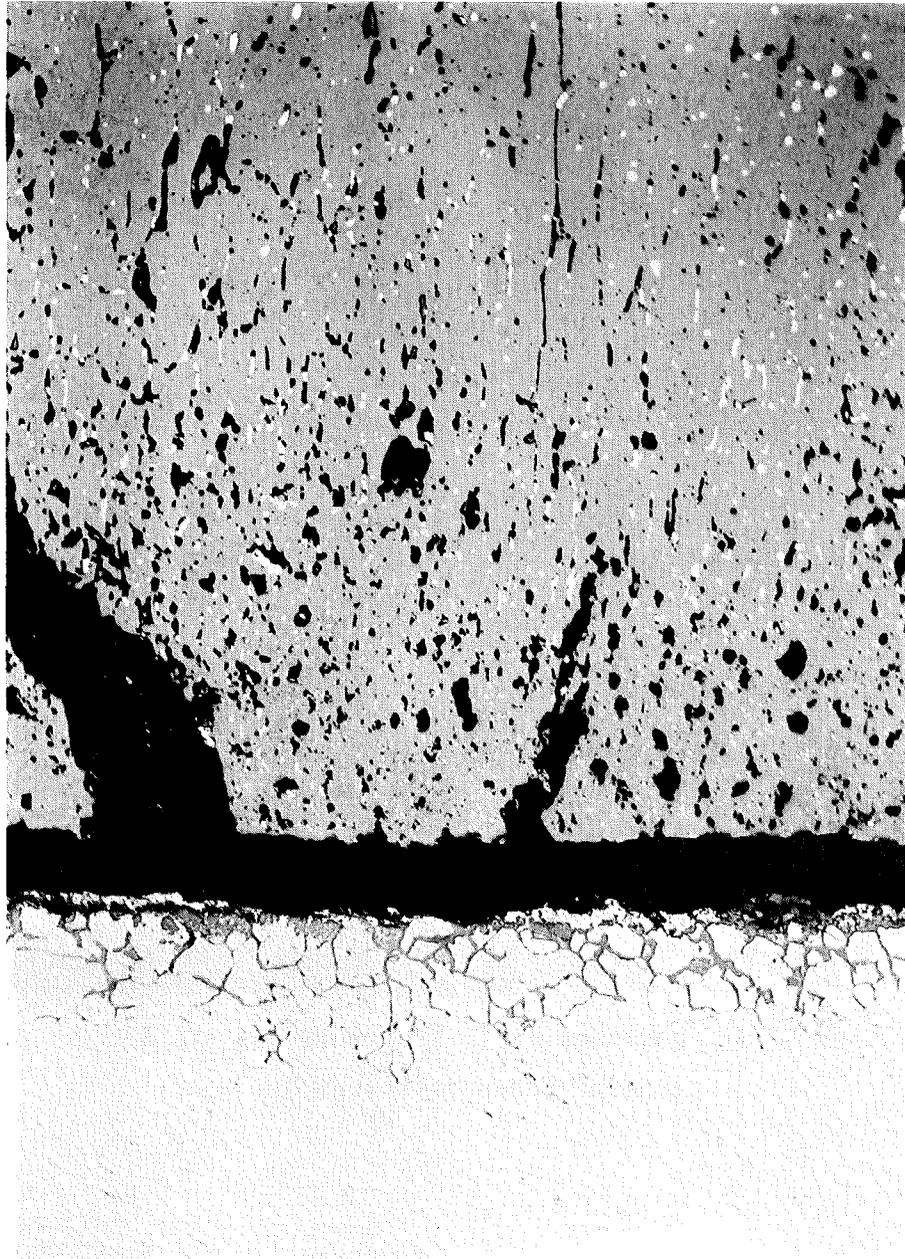


Abb. 7.2: Hüllangriff im Stab 4A 8 des KVE 36
(oberer Brennstoffbereich) 200x

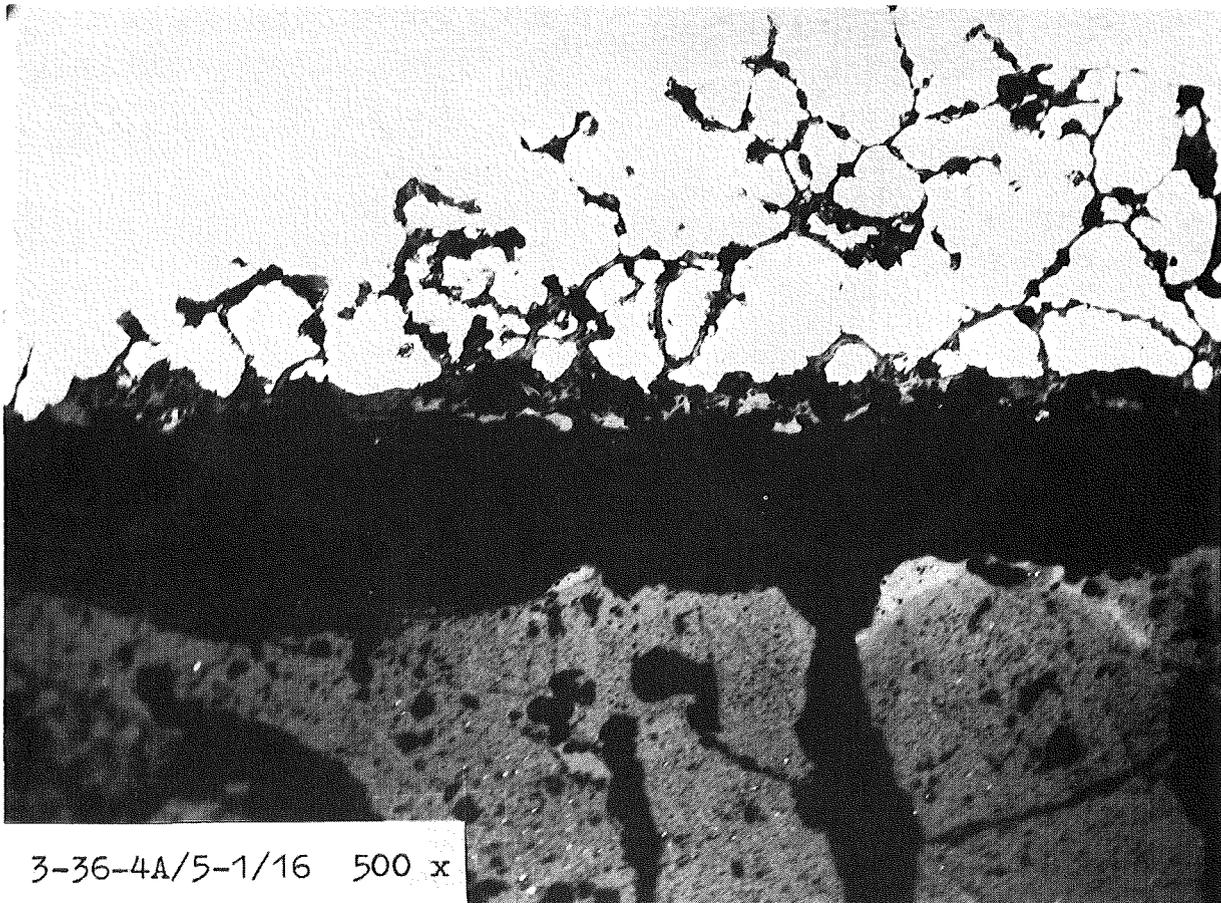


Abb. 7.3: Hüllangriff im Stab 4 A 5 des KVE 36 (oberer Brennstoffbereich)

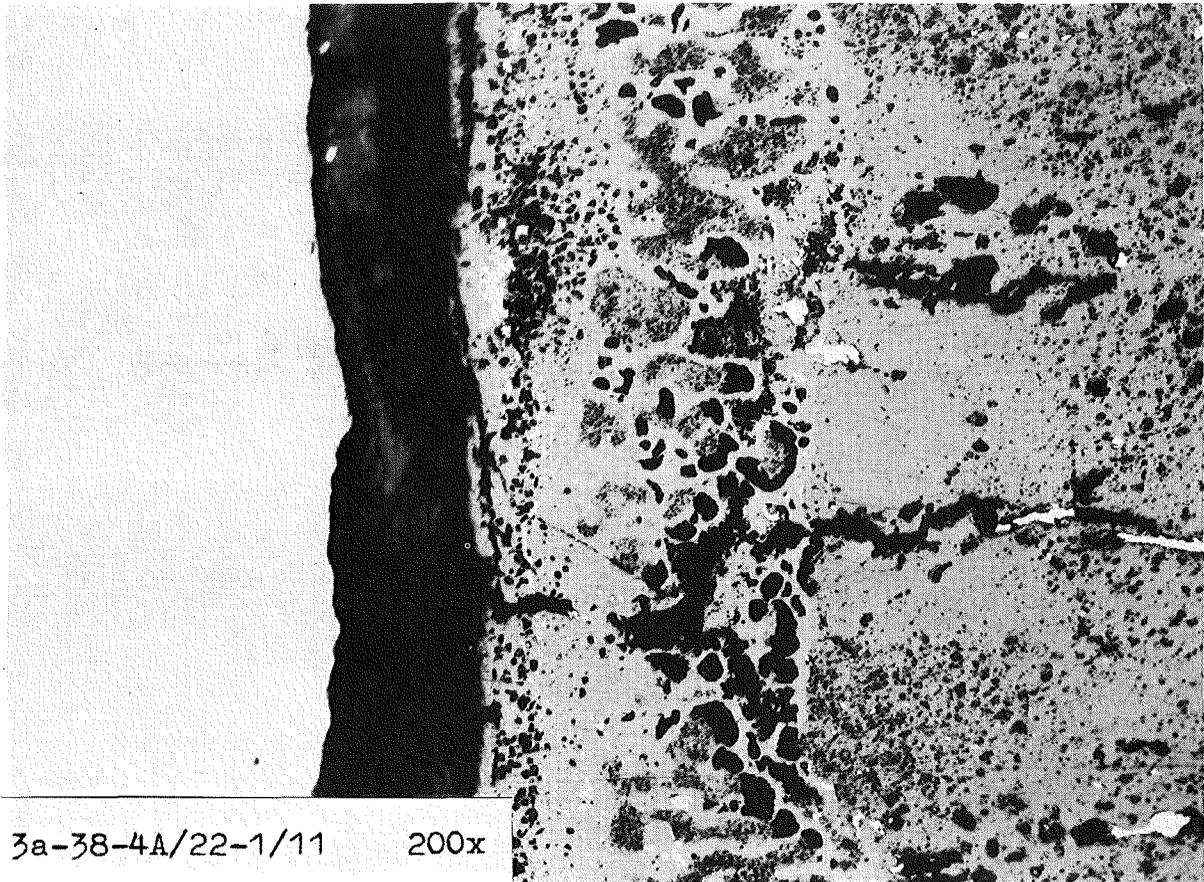


Abb. 7.4: Hüllangriff im Stab 4 A 22 des KVE 38 (oberer Brennstoffbereich) Angriff durch Materialabtrag