

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

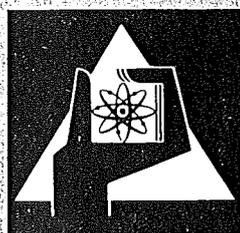
April 1973

KFK 1761

Institut für Reaktorbauelemente

**Druckausgleichsystem für Brennstäbe wasser-
und dampfgekühler Reaktoren
Out-of-pile-Versuche**

S. Malang, S. Müller, G. Thun



**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 1761

Institut für Reaktorbauelemente

Druckausgleichsystem für Brennstäbe
wasser- und dampfgekühlter Reaktoren
Out-of-pile-Versuche

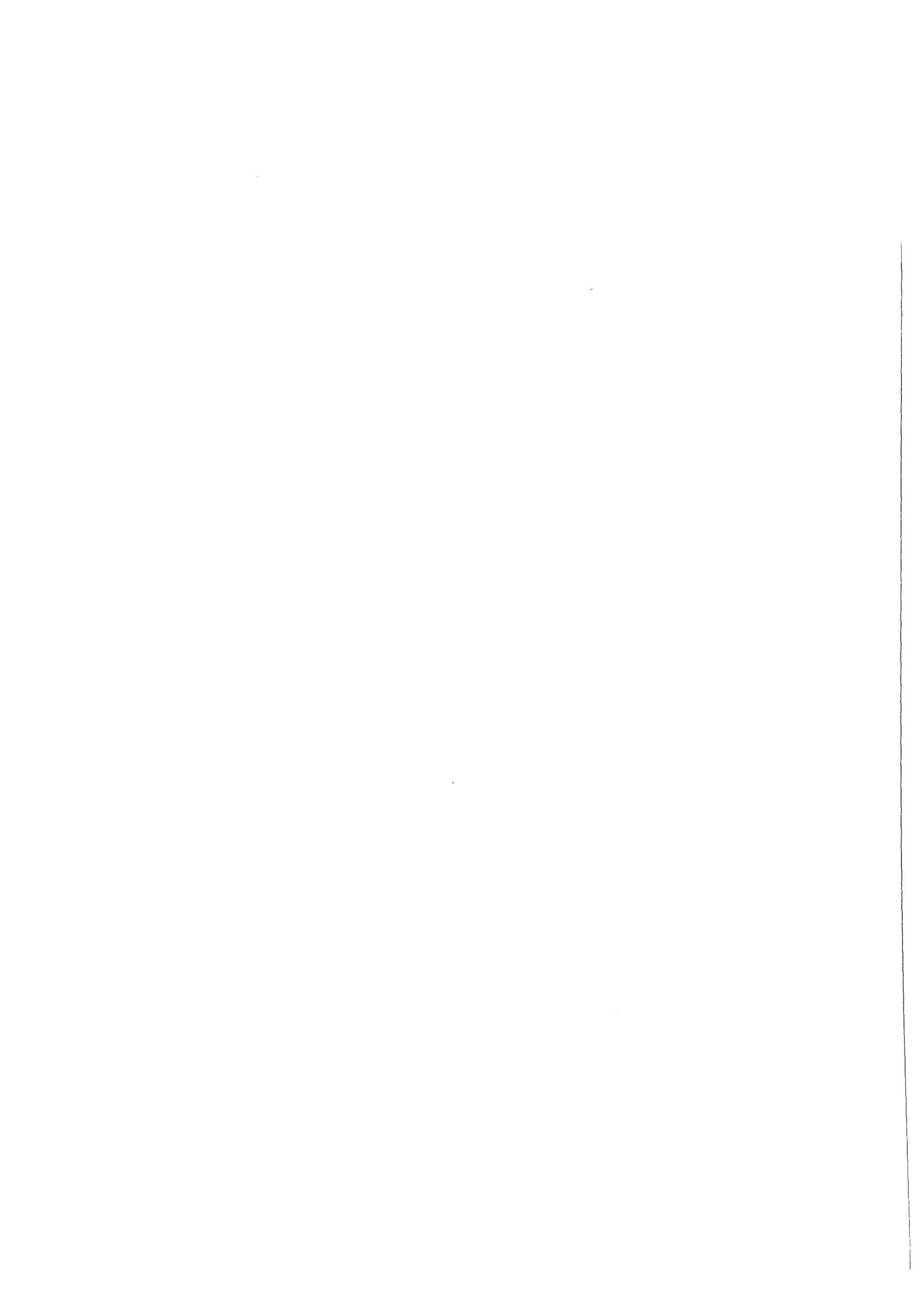
von

S. Malang, S. Müller, G. Thun

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H., KARLSRUHE



Die Verfasser danken den Herren I. Michael, K. Wiehr
und P. Schöffner für ihre wertvolle Unterstützung zu
Beginn der Entwicklungsarbeiten.



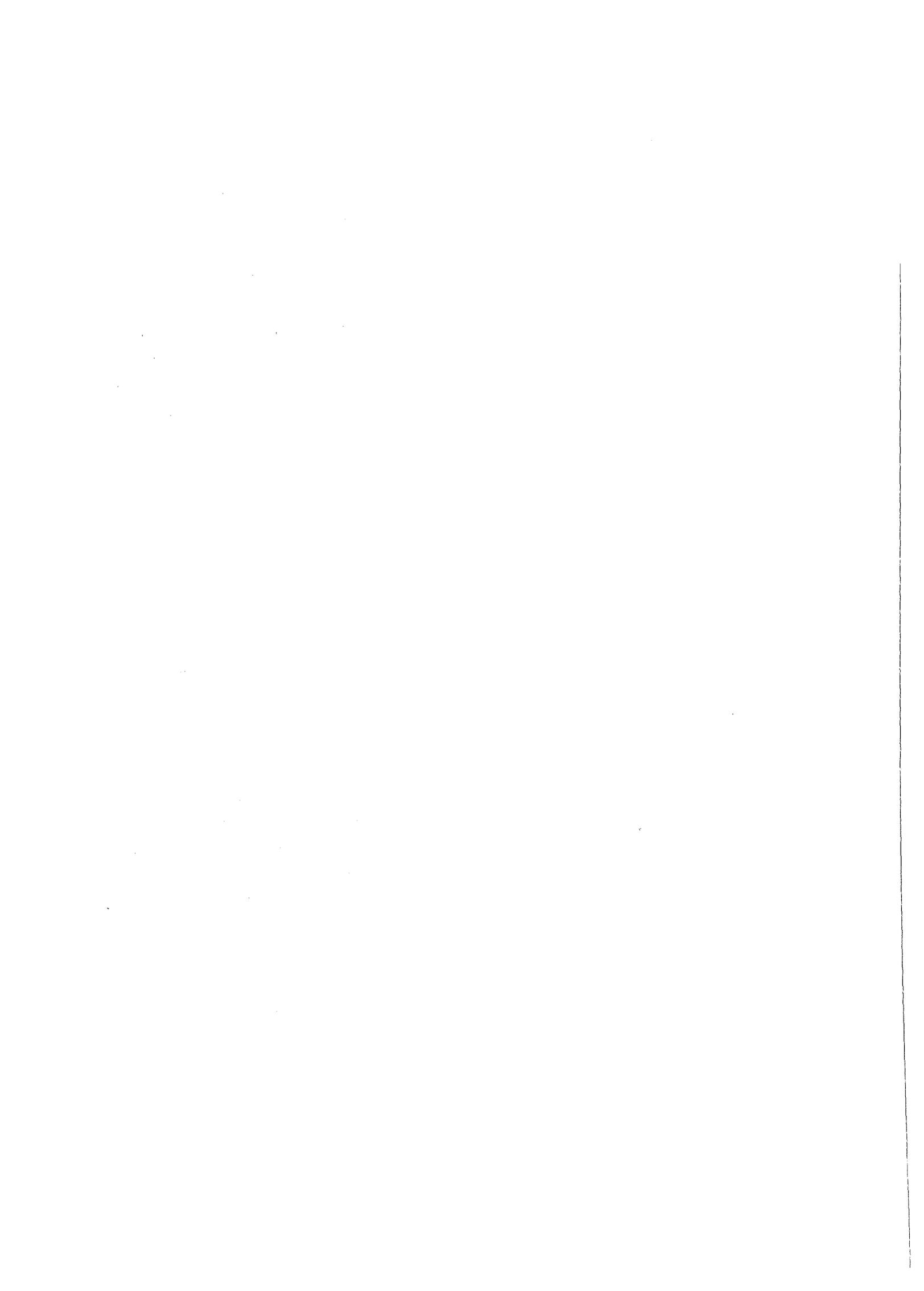
Zusammenfassung

Für Brennstäbe wassergekühlter Reaktoren und dampfgekühlter schneller Brüter wurde ein Druckausgleichssystem entwickelt, das es gestattet, die mechanische Beanspruchung der Hüllrohre entscheidend zu verkleinern. Bei Siedewasserreaktoren und Dampfbrütern kann erreicht werden, dass während der gesamten Standzeit der Druck in den Brennstäben stets gleich dem Kühlmitteldruck ist. Dadurch wird das Aufkriechen der Hüllrohre auf den Brennstoff verhindert. Ausserdem wird bei kleinen Lecks ein Austausch zwischen Kühlmitteln und Spaltgas vermieden. Die Funktionsfähigkeit dieses Systems wurde in Out-of-Pile-Versuchen nachgewiesen.

Pressure Equalization System for Fuel Rods of Water Cooled Reactors and Steam Cooled Fast Breeders. Out-of-Pile Investigations

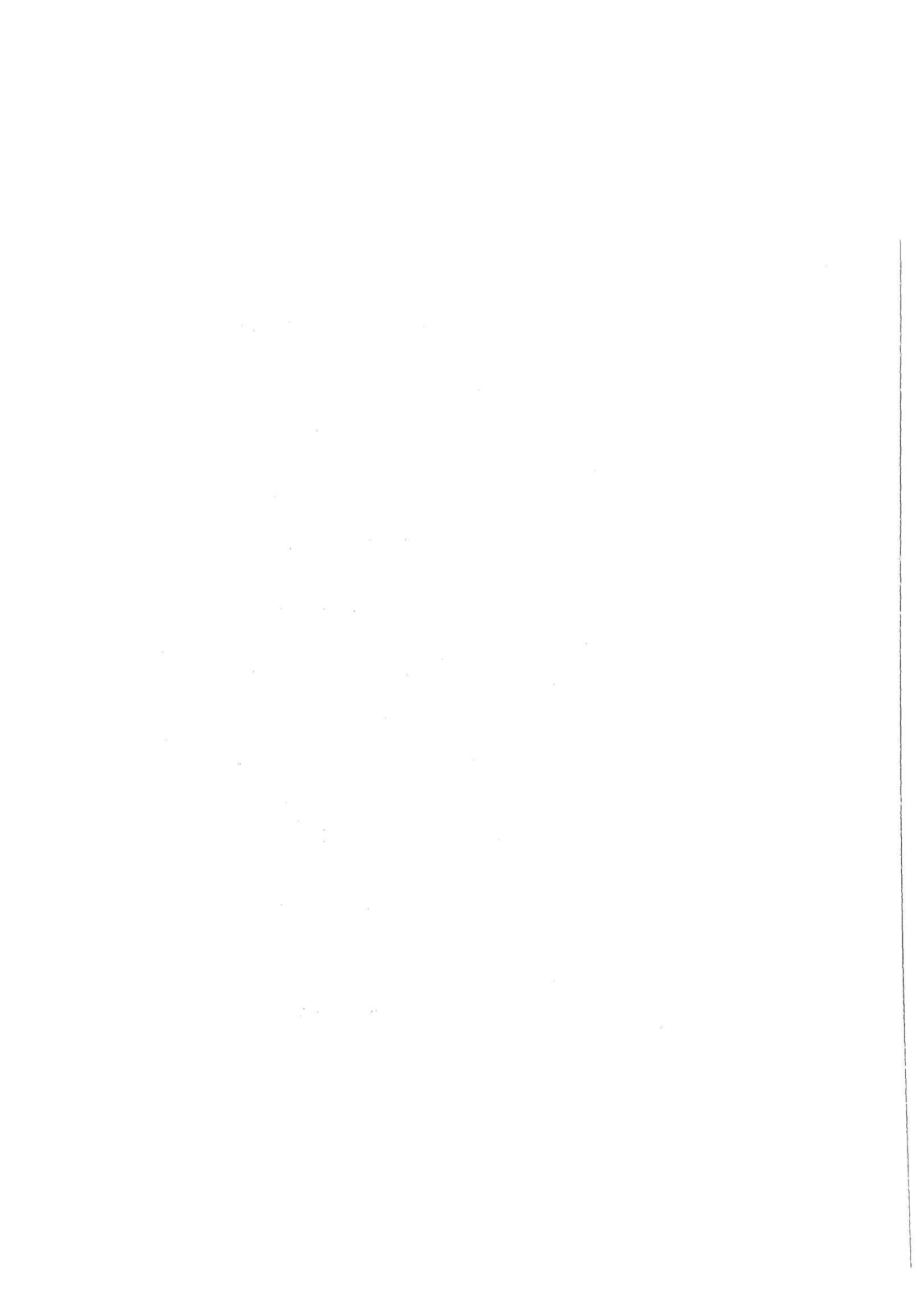
Abstract

A pressure equalization system has been developed for fuel rods of water cooled reactors and steam cooled fast breeders. That system makes possible an important reduction of mechanical stresses in the claddings. In boiling water - and steam cooled breeder reactors, a complete equalization of the internal and external pressure can be achieved over the whole lifetime of the fuel rods. That prevents a creep collapsing of the cladding onto the fuel, avoids any exchange between the coolant and fission gases in the case of small leak defects. Satisfactory operating of the system has been tested in out-of-pile tests.



Inhaltsverzeichnis

	<u>Seite</u>
1. Problemstellung	1
2. Beschreibung des vorgeschlagenen Druckausgleichsystems	2
3. Untersuchung des Verhaltens einzelner Systemkomponenten	4
3.1 Chemische Verträglichkeit der Stoffe	4
3.2 Eignung des Wismuts im festen und flüssigen Zustand zur Trennung von Wasser und Spaltgas	6
3.2.1 Verhalten des Wismuts beim Erstarren und Dichtheit in festem Zustand	6
3.2.2 Dichtheit in flüssigem Zustand	8
4. Untersuchungen des kompletten Systems	8
4.1 Der Testkreislauf	9
4.2 Konstruktion und Fertigung der Versuchsstäbe	10
4.3 Verhalten des Druckausgleichsystems im Testkreislauf	10
4.3.1 Verhalten des Druckausgleichsystems bei Temperaturen über dem Schmelzpunkt des Wismuts	11
4.3.2 Verhalten des Druckausgleichsystems beim Erstarren des Wismuts	12
5. Überlegungen zum Bestrahlungsverhalten des Druckausgleichsystems	13
6. Länge des Druckausgleichsystems in Druck- und Siedewasserreaktoren, Ausführungsbeispiel	15
7. Schlussbetrachtung	16
8. Literatur	17



1. Problemstellung

Nahezu alle Leistungsreaktoren verwenden stabförmige Brennelemente, bei denen der Brennstoff in gasdichten Hüllrohren eingeschlossen ist. Sowohl bei wassergekühlten Reaktoren als auch bei dem Entwurfskonzept eines dampfgekühlten Brutreaktors kommt zu Beginn der Standzeit die Hauptbeanspruchung der Hüllrohre von dem hohen Kühlmitteldruck. Dieser äussere Überdruck würde bei einem dampfgekühlten Brutreaktor zum Kriechbeulen der Hüllrohre führen, da der Brennstoff bei den auftretenden hohen Temperaturen nur eine sehr geringe Stützwirkung hat. Bei wassergekühlten Reaktoren, insbesondere bei Druckwasserreaktoren, kann es zum Aufkriechen der Hülle auf den Brennstoff kommen, was bei Leistungsänderungen zu Wechselbeanspruchungen der Hüllen führt. Es ist möglich, dass hierdurch die Standzeit der Brennelemente begrenzt wird. Die naheliegendste Abhilfemassnahme, nämlich die Vergrösserung der Wandstärke, würde neben neutronenphysikalischen Nachteilen erhöhte Wärmespannungen in der Hülle zur Folge haben.

Deshalb war bei dem Entwurfskonzept des dampfgekühlten Brutreaktors von Anfang an beabsichtigt, durch eine Heliumfüllung bei der Stabfertigung einen erhöhten Innendruck vorzugeben. Diese Massnahme wurde inzwischen bei allen Druckwasserreaktoren ergriffen.

Durch die Spaltgasfreisetzung steigt jedoch der Innendruck während der Standzeit an. Um zu vermeiden, dass ein innerer Überdruck zum Aufweiten der Hülle führt, ist ein ausreichend grosser Gasspeicher in Form eines Plenums am Ende der Brennstäbe erforderlich. Je grösser dieses Plenum ist, um so geringer ist die Änderung des Innendruckes während der Standzeit. Gleichzeitig wird jedoch die Corehöhe und damit auch der Druckverlust im Kühlkreislauf vergrössert.

zum Druck eingereicht: 15.2.1973

Eine grundsätzlich andere Möglichkeit zur Druckentlastung der Hüllrohre stellt das im nächsten Abschnitt beschriebene Druckausgleichssystem dar, mit dem z.B. bei Siedewasserreaktoren erreicht werden kann, dass bei jedem Betriebszustand der Druck in den Brennstäben gleich dem Kühlmitteldruck ist.

2. Beschreibung des vorgeschlagenen Druckausgleichsystems

Das System beruht auf der Tatsache, dass bei wasser- und dampfgekühlten Reaktoren immer ein bestimmter Zusammenhang zwischen Kühlmitteltemperatur und Kühlmitteldruck besteht. Dies gilt insbesondere für Siedewasserreaktoren sowie für dampfgekühlte Reaktoren und in geringerem Masse auch für Druckwasserreaktoren. Bei einem dampfgekühlten Reaktor strömt Sattedampf ins Core ein, während sich bei einem Siedewasserreaktor am Coreaustritt Nassdampf befindet.

In beiden Fällen sind Druck und Temperatur miteinander gekoppelt und liegen auf der Sättigungslinie von Wasser. Füllt man nun Wasser in das Stabplenum ein und ordnet dieses am Reaktoreintritt (Dampfbrüter) bzw. Reaktoraus- tritt (Siedewasserreaktor) an, so nimmt die Wasserfüllung die an dieser Stelle herrschende Kühlmitteltemperatur an und verdampft so weit, bis der Innendruck im Stab dem Sättigungsdruck entspricht und damit gleich dem Kühlmittel- druck ist. Voraussetzung hierfür ist ein beweglicher Trenn- mechanismus zwischen Wasserfüllung und Brennstoffzone.

In Abb. 1, welche das Prinzip des Druckausgleichsystems zeigt, erfolgt diese Trennung durch einen verschiebbaren Kolben, bei der praktischen Ausführung durch ein flüssiges Metall nach dem U-Rohr-Prinzip.

Ändert sich nun der Kühlmitteldruck und damit auch die Kühlmitteltemperatur, so passt sich der Innendruck durch teilweises Verdampfen bzw. Kondensieren der Wasserfüllung

automatisch an. Dieses Gleichgewicht zwischen Innen- und Aussendruck bei allen Betriebszuständen bleibt während der ganzen Standzeit der Brennstäbe erhalten, da auch die Spaltgasfreisetzung nicht zu einem Druckanstieg führen kann.

In Abb. 2 ist das System bei verschiedenen Abbrandstadien gezeigt. Dargestellt ist die für einen Dampfbrüter vorgesehene Ausführung, welche aus zwei konzentrischen Rohren besteht und anstelle eines Gasplenums an das untere Brennstabende angeschweisst wird.

Das innere Rohr ist zur Brennstoffzone hin geöffnet und nimmt die Spaltgase auf. In dem äusseren Ringraum, welcher durch flüssiges Wismut nach dem U-Rohr-Prinzip von dem Innenraum getrennt ist, befindet sich die Wasserfüllung.

Zu Beginn der Standzeit ist der grösste Teil des Wassers verdampft. Werden nun Spaltgase freigesetzt, so führt dies nicht - wie bei einem Gasplenum - zu einem Druckanstieg, sondern zur Kondensation einer bestimmten Dampfmenge. Durch Verschieben des flüssigen Wismuts vom Innenrohr zum äusseren Ringraum wird hierbei der Wasserraum verkleinert und im Innenrohr Raum für das Spaltgas frei. Zu Ende der Standzeit ist der grösste Teil der Wasserfüllung kondensiert und der Raum im Innenrohr steht für die Spaltgase zur Verfügung.

Das Prinzip und die Funktion des Druckausgleichsystems ist bei wassergekühlten Reaktoren grundsätzlich gleich. Die Anordnung am oberen Brennstabende erfordert lediglich eine andere konstruktive Ausführung, welche schematisch in Abb. 3 dargestellt ist. Durch diese Ausführung als Einsatzpatrone ergeben sich gegenüber der normalen Stabfertigung keinerlei Komplikationen, da nur der fertige Einsatz in das Hüllrohr eingeschoben werden muss. Dieser Einsatz besteht aus zwei konzentrischen Stahlrohren und ist nach unten verschlossen. Das Spaltgas gelangt aus der Brennstoffzone über den Spalt zwischen Hüllrohr und Einsatzpatrone zu dem Druckausgleichsystem.

3. Untersuchung des Verhaltens einzelner Systemkomponenten

Während der gesamten Standzeit der Brennstäbe im Reaktor muss die Wasserfüllung zuverlässig von den Spaltgasen getrennt werden. Wie in Abschnitt 2 erwähnt wurde, erfolgt diese Trennung nach dem U-Rohr-Prinzip mit einem Metall, welches bei Betriebstemperatur flüssig und in kaltem Zustand erstarrt ist. Zur Auswahl dieses Trennmediums wurden vor der Erprobung des kompletten Systems folgende chemische und physikalische Untersuchungen durchgeführt:

- a) chemische Verträglichkeit der in Kontakt zueinander befindlichen Werkstoffe.
- b) Eignung des Trennmediums im festen und flüssigen Zustand zur Trennung von Spaltgas und Wasser.

Da beim Betrieb des Reaktors das Trennmedium flüssig sein muss, sollte der Schmelzpunkt nicht über 300 °C liegen. Ausserdem muss es mit Edelstahl und Wasser verträglich sein. Für diese Anforderungen kommen in erster Linie die Metalle Blei und Wismut in Frage. Die erste Wahl fiel auf Wismut, da sich dieses Metall beim Erstarren ausdehnt und somit die Dichtung im festen Zustand unproblematisch erscheint.

3.1 Chemische Verträglichkeit der Stoffe

Obgleich nach [1] und [2] bei einer Temperatur unter 400 °C keine Verträglichkeitsprobleme zwischen Wismut und den verwendeten Edelstählen bzw. dem Wasser zu erwarten waren, wurden zur Sicherheit Langzeituntersuchungen in Kleinautoklaven durchgeführt. Hierbei wurden in den Autoklaven Wismut, Wasser und Wasserdampf sowie V2A-Stahl bzw. Incoloy 800 in gegenseitigen Kontakt gebracht. Die Versuche wurden bei einer Temperatur von 360 °C bis zu 5000 Stunden durchgeführt.

Die anschliessenden chemischen und metallographischen Untersuchungen ergaben: ¹⁾

- a) Das Gewicht des Wismuts hatte sich nicht geändert. Seine Oberfläche war blank.
- b) Im Wasser konnten keine Verunreinigungen nachgewiesen werden.
- c) Die Stärke der Korrosionsschicht auf den Stählen betrug etwa 0,5 µm.

Nachdem sich die Verträglichkeit der verwendeten Materialien als ausgezeichnet erwiesen hatte, wurde noch die Frage untersucht, welchen Einfluss die Spaltgase auf das Wismut haben könnten.

Von der freiwerdenden Menge und der chemischen Aggressivität her betrachtet, kommt für eine Reaktion vor allem Jod in Frage. Deshalb wurden Wismut und Jodkristalle in ein Edelstahlröhrchen gegeben, in dem mittels einer Heliumfüllung ein Innendruck von 30 ata eingestellt wurde. Dieses Röhrchen wurde 50 Stunden bei einer Temperatur von 360 °C geschüttelt, so dass sich ein intensiver Kontakt von Jod, Wismut und Edelstahl ergab. Nach dem Erstarren des Wismuts befand sich auf seiner Oberfläche ein schwarzgraues Pulver ohne Agglomerate. Die Oberfläche selbst war, abgesehen von kleinen lokalen Schwarzfärbungen, blank.

Es ist daher damit zu rechnen, dass beim Betrieb des Druckausgleichsystems auf der Oberfläche des Trennmediums eine Jod-Wismut-Verbindung schwimmt, wodurch jedoch die Funktion des Systems nicht beeinträchtigt wird. Die gesamte anfallende Jodmenge in den Spaltgasen ist so gering, dass durch die chemische Verbindung weniger als 1 % der Wismutmenge verloren gehen kann.

¹⁾ Diese Untersuchungen wurden im Institut für Material- und Festkörperforschung von Frau Dr. H. Schneider und Herrn Dr. S. Leistikow durchgeführt.

3.2 Eignung des Wismuts im festen und flüssigen Zustand zur Trennung von Wasser und Spaltgas

Das Trennmedium muss im festen und flüssigen Zustand verhindern, dass Spaltgase bzw. die bei der Stabfertigung eingebrachte Heliumfüllung in den Wasserraum gelangen oder umgekehrt Wasser auf die Spaltgasseite übertritt. Hierbei ist die Abdichtung gegenüber Helium am schwierigsten. Alle Dichtheitsuntersuchungen wurden deshalb mit diesem Medium durchgeführt.

3.2.1 Verhalten des Wismuts beim Erstarren und Dichtheit im festen Zustand

Es wurde untersucht, auf welche Länge ein Rohr mit Wismut gefüllt werden muss, um es heliumdicht zu verschliessen. Vorversuche mit Blei hatten ergeben, dass das Blei durch das Schwinden beim Erstarren von der Rohrwand abhebt, wodurch ein Leck entsteht.

Wismut ist dagegen einer der wenigen Stoffe, welche ihr Volumen beim Übergang vom flüssigen in den festen Zustand vergrössern. Infolge dieses Schwellens beim Erstarren um ca. 3 Volumen-% [3] kann kein Spalt zwischen dem Wismut und der Rohrwand entstehen. Dies war der wichtigste Grund für die Wahl von Wismut als Trennmedium. Zur Untersuchung der Dichtheit wurde ein Rohr mit den Abmessungen 7 x 0,5 mm an einem Ende verschlossen und auf eine Länge von 100 mm mit Wismut gefüllt. Nach dem Erstarren des Wismuts wurde der Endverschluss abgetrennt und das gegenüberliegende Rohrende an 150 atü Heliumdruck angeschlossen. Durch sukzessives Verkürzen des Rohres wurde untersucht, ab welcher Länge des Wismutpfropfens mit einem Heliumlecksucher (Empfindlichkeit besser als 10^{-8} Torr ltr/sec) erstmals eine Leckrate festgestellt werden kann. Die Prüfdauer für jede Dichtlänge betrug ca. 20 Stunden. Nach diesem Verfahren wurden ca. 30 Rohre untersucht. Bei keinem von ihnen konnte bei einer Dichtlänge über

20 mm eine Leckrate nachgewiesen werden. Die tatsächliche Dichtlänge bei dem kompletten Druckausgleichssystem ist jedoch mindestens 400 mm.

Durch das Schwellen des Wismuts beim Erstarren ist eine zuverlässige Dichtheit gewährleistet. Dieses Schwellen bringt jedoch vor allem bei zyklischer Belastung die Gefahr mit sich, dass das Rohr bleibend verformt wird. Deshalb wurde versucht, durch Zulegieren von Blei die Schwellrate so weit zu verkleinern, dass die Dichtheit noch gewährleistet, die Belastung des Rohres jedoch verringert wird.

Nach [4] schwindet die eutektische Blei-Wismut-Legierung mit 43 % Pb und 57 % Bi um 1,5 %, während reines Wismut um 3 % schwillt. Es muss eine Legierung mit einem Wismutgehalt zwischen 43 und 100 % geben, welche weder schwillt noch schwindet. Bei der Suche nach dieser Zusammensetzung zeigte sich jedoch ein Effekt, welcher ein Zulegieren auch eines geringen Bleianteiles nicht erlaubt.

Da zwischen Wismut und Blei im festen Zustand vollkommene Unlöslichkeit besteht, wird auch der geringste Bleizusatz eine eutektische Legierung bilden, welche beim Abkühlen zuletzt an den Korngrenzen erstarrt bzw. beim Erwärmen bei 125 °C zuerst schmilzt. Wenn nun beim Erwärmen des Trennpfropfens auf einer Seite ein höherer Gasdruck herrscht als auf der anderen, so wird beim Erreichen des Schmelzpunktes des Eutektikums dieses zwischen den festen Wismutkörnern hindurchgeschoben, wodurch der Trennpfropfen undicht wird. Das Herausblasen einiger Perlen aus Eutektikum aus der Stirnseite des Pfropfens ist aus Abb. 4 zu ersehen. Aus diesem Grunde wurde das Zulegieren von Blei aufgegeben und nur noch mit reinem Wismut weitergearbeitet.

3.2.2 Dichtheit im flüssigen Zustand

Mit einer 300 mm langen Patrone, welche bis auf die Wasserfüllung dem fertigen Druckausgleichssystem entsprach, wurde die Dichtwirkung des flüssigen Wismuts untersucht. Im äusseren Ringraum befand sich Argon, im Innenrohr Helium. Die Versuche wurden bei 300 °C und einem Druck von 100 ata durchgeführt. Durch getrenntes Aufheizen der Gasräume war es möglich, das Wismut vom Innenraum zum Aussenraum und umgekehrt zu verschieben. Durch dieses zyklische Verändern des Wismutstandes sollte festgestellt werden, ob Gas zwischen der Rohrwand und dem Flüssigmetall eingeschlossen wird und dadurch von einem Gasraum in den anderen transportiert werden kann. Nach einer Betriebsdauer von ca. 200 Stunden wurden von beiden Gasräumen Proben entnommen und massenspektrometrisch auf Anteile des "Gegengases" untersucht. Hierbei waren im Argon geringe Spuren von Helium nachzuweisen. Extrapoliert man das Ergebnis auf eine Einsatzdauer von einem Jahr, so ergibt dies, dass ca. 4 Ncm³ Helium vom Innenrohr in den Aussenraum übergewechselt sind. Der hierdurch in dem Dampfraum entstehende Helium-Partialdruck ist im Vergleich zu dem hohen Dampfdruck vernachlässigbar klein.

4. Untersuchung des kompletten Systems

Die Out-of-pile-Versuche mit dem kompletten Druckausgleichssystem sollten die Funktionsfähigkeit des Systems bei allen im Reaktor vorkommenden Betriebszuständen nachweisen. Hierfür wurden insgesamt 70 Einzelstäbe in einem hierfür gebauten Testkreislauf untersucht.

4.1 Testkreislauf

Der Testkreislauf sollte die thermischen Verhältnisse in einem Reaktor möglichst gut simulieren. Hierzu wurden folgende Anforderungen an den Kreislauf gestellt:

- a) Dauerbetrieb bei Temperaturen bis zu 350 °C,
- b) mindestens gleich grosse Temperaturänderungsgeschwindigkeiten wie im Reaktor,
- c) Wärmetransport vom Stab zum Kühlmittel möglichst ähnlich wie im Reaktor.

Da es bei der Untersuchung des Druckausgleichsystems nur auf die Kühlmitteltemperatur und nicht auf den Kühlmitteldruck ankam, wurde als Kühlmittel Öl anstelle von Wasser oder Satttdampf verwendet. Dies hatte den Vorteil, dass der Kreislauf nur für einen Druck von 2 atü ausgelegt werden musste und nicht, wie es sonst notwendig gewesen wäre für 170 atü. Neben einem wesentlich einfacheren Aufbau und Betrieb wurden hierdurch grössere Temperaturänderungsgeschwindigkeiten ermöglicht. Der einzige Nachteil der Verwendung von Öl als Kühlmittel war, dass das Gleichgewicht zwischen dem Druck im Stab und dem Kühlmitteldruck nicht direkt gemessen werden konnte. Es musste zu der gemessenen Öltemperatur mit Hilfe der Sättigungslinie von Wasser ein fiktiver Kühlmitteldruck bestimmt und mit dem gemessenen Druck im Stab verglichen werden.

Nähere Angaben und Daten über den Kreislauf sind in Abb. 5 enthalten. In diesem Bild ist weiterhin der Messanschluss eines Stabes während des Einsatzes im Testkreislauf schematisch dargestellt.

4.2 Konstruktion und Fertigung der Versuchsstäbe

Der Aufbau der hauptsächlich untersuchten Version ist aus Abb. 6 ersichtlich. Es ist ein konzentrisches Rohrsystem mit flächengleichem Innen- und Ringraumquerschnitt. Im oberen Stopfen sind Einfüllöffnungen für Wismut und Wasser angeordnet. Der eingezeichnete Kegelstift ist zusätzlich verschweisst und dichtet damit zuverlässig den Wasserraum. Alle Schweissnähte werden auf Dichtheit mit Helium-Lecksuchgeräten (Empfindlichkeit besser als 10^{-8} Torr ltr/sec) geprüft.

Da das flüssige Wismut im Kontakt mit Luftsauerstoff oberflächlich oxydiert, hat es sich als zweckmässig erwiesen, das Füllen der Stäbe unter Vakuum bzw. Edelgasathmosphäre vorzunehmen.

Für alle Versuche wurde Wismut mit einer Reinheit von 99,9995 % verwendet.

4.3 Verhalten des Druckausgleichsystems im Testkreislauf

Abb. 5 zeigt schematisch, wie die Stäbe in den Kreislauf eingesetzt wurden. Ein nach aussen geführtes Kapillarrohr ermöglichte die Druckmessung im Innenrohr des Stabes. Dieser Druck und die Öltemperatur wurden synchron aufgezeichnet. An die Druckmessleitung war zusätzlich ein kleiner Gasbehälter angeschlossen, welcher das Gasvolumen im Brennstoffteil des Brennstabes simulierte. Durch Beheizen dieses Behälters wurde Gas in das Innenrohr des Stabes verdrängt, was der Spaltgasfreisetzung im Reaktor entspricht. Neben einer Simulation der Spaltgasfreisetzung wurde das Verhalten des Druckausgleichsystems bei Temperaturänderungen und insbesondere beim Erstarren des Wismuts untersucht.

Alle durchgeführten Untersuchungen und ihre Ergebnisse sind in Tab. I zusammengefasst.

4.3.1 Verhalten des Druckausgleichsystems bei Temperaturen über dem Schmelzpunkt des Wismuts

Es wurden folgende Fragen untersucht:

- a) Wie schnell passt sich der Innendruck bei einer Änderung der Kühlmitteltemperatur an?
- b) Verliert das System Wasser oder gelangt Helium in den Wasserraum?

Zu a) Bei einer Änderung der Kühlmitteltemperatur entsteht eine Temperaturdifferenz zwischen dem Kühlmittel und dem Wasser im Stab. Ausserdem wird sich bei einer geänderten Temperatur der Wasserfüllung nicht sofort auch der Innendruck ändern (Siede- bzw. Kondensationsverzögerung). Durch diese Effekte wird sich im Reaktor der Druck in den Brennstäben nur mit einer gewissen Verzögerung an einen geänderten Kühlmitteldruck anpassen. Bei den Untersuchungen in dem Testkreislauf zeigte es sich jedoch, dass diese Verzögerung bei den im normalen Betrieb eines Reaktors vorkommenden Temperaturänderungsgeschwindigkeiten zu Druckunterschieden von weniger als 1 at führen kann. Lediglich bei einer sehr schnellen Temperaturabsenkung, wie sie in einem Reaktor durch Schnellabschaltung verursacht werden kann, treten grössere Druckunterschiede auf. Abb. 7 zeigt den gemessenen Verlauf des Innendrucks und den aus der Öltemperatur berechneten Sattedampfdruck bei der sehr hohen Absenkgeschwindigkeit der Temperatur von $2,5 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{sec}$. Die beiden Drücke hatten hierbei eine maximale Abweichung von 3,5 at. Die Abb. 7 gilt für einen Stab, wie er für den Einsatz in einem Dampfbrüter in Frage käme. Bei der für Wasserreaktoren geeigneten Ausführung nach Abb. 3 ist die Verzögerung grösser, weil eine weitere Trennwand mit zugehörigem Gasspalt hinzukommt.

Andererseits ist die in einem wassergekühlten Reaktor zulässige Geschwindigkeit der Temperaturabsenkung wesentlich kleiner als $2,5 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{sec}$. Diese beiden Unterschiede zu dem Versuch dürften sich etwa aufheben.

zu b) Es wurde nachgewiesen, dass auch bei längerer Betriebsdauer mit zyklischem Verschieben des Wismutstandes kein Wasser durch das Wismut hindurch gelangen kann. Hinsichtlich des Übertretens von Helium in den Wasserraum bestätigte sich der in Abschnitt 3.2.2 beschriebene Wert aus dem Vorversuch. Die auf ein Jahr extrapolierte Heliummenge im Wasserraum lag bei allen Stäben unter 5 Ncm^3 und hat damit keinen Einfluss auf die Funktionsfähigkeit des Systems.

4.3.2 Verhalten des Druckausgleichsystems beim Erstarren des Wismuts

Wie schon erwähnt, hat Wismut die seltene Eigenschaft, sich beim Erstarren auszudehnen. Hieraus resultiert für das System eine zuverlässige Dichtheit im festen Zustand, aber auch eine starke Belastung des Innen- und Aussenrohres beim Erstarren.

Bei einer gleichmässigen Ausdehnung nach allen Richtungen würde die volumetrische Schwellrate von 3 % zu einer Durchmesserervergrösserung von ca. 1 % führen, was weit über der Streckgrenze der verwendeten Rohre liegt. Die tatsächliche Durchmesserervergrösserung ist jedoch wesentlich kleiner, da der flüssige Kern bei der von aussen nach innen verlaufenden Erstarrung axial ausweicht und so der grösste Teil der Schwellrate nicht zu einer Durchmesser-, sondern zu einer Längenvergrösserung führt. So wurde bei den in Abschnitt 3.2.1 beschriebenen Versuchen bei einmaligem Erstarren des Wismuts keine bleibende Dehnung des Rohres gemessen.

Um den Einfluss einer wiederholten Belastung zu untersuchen, wurden die Stäbe im Testkreislauf durch Pendeln der Kühlmitteltemperatur um den Schmelzpunkt des Wismuts einer zyklischen Belastung ausgesetzt. Abb. 8 zeigt das Protokoll eines solchen Versuches. In Tab. I sind alle untersuchten Stäbe und die mit ihnen erzielten Ergebnisse zusammengestellt.

Es zeigte sich, dass glatte Innenrohre etwa nach 20 bis 30 Zyklen eingebeult wurden. Die Stäbe blieben zwar dicht und funktionsfähig, doch kann eine solche Verformung im Reaktor nicht zugelassen werden. Bei einer Vergrößerung der Wandstärke des Innenrohres von 0,2 mm auf 0,5 mm blieb dieses unbeeinträchtigt, dafür wurde jedoch das Aussenrohr aufgeweitet.

Eine Lösung des Problems stellen Innenrohre mit Längswellen dar. Durch diese Längswellen wird das Rohr so elastisch, dass eine wesentlich grössere Durchmesseränderung ohne bleibende Verformung möglich ist. Diese Elastizität kann nur zur Auswirkung kommen, wenn sich das Wismut entweder im Innenrohr oder im äusseren Ringraum befindet, was bei dem Druckausgleichssystem leicht erreicht werden kann. Bei Stäben mit solchen Innenrohren wurden auch nach 100 Erstarrungszyklen keine Schäden oder bleibenden Verformungen festgestellt.

5. Überlegungen zum Bestrahlungsverhalten des Druckausgleichsystems

Das System erfährt beim Einsatz in einem Reaktor eine zusätzliche Beanspruchung durch die Spaltgase und durch die Neutronen- und die γ -Strahlung.

Die Auswirkung der Spaltgase hinsichtlich einer verstärkten Korrosion wurde bereits in Abschnitt 3.1 untersucht. Es ist keine Beeinträchtigung der Funktionsfähigkeit zu erwarten. Bei der Untersuchung des Einflusses der Neutronen- und γ -Strahlung ist zu berücksichtigen, dass das Druckausgleichssystem am oberen oder unteren Ende der Brennstäbe angeordnet

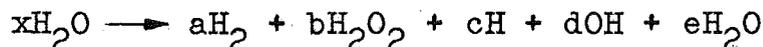
wird und deshalb einer wesentlich niedrigeren Strahlungsbelastung ausgesetzt ist als der Brennstoffbereich. Ein Einfluss der Bestrahlung auf die verwendeten Edelstahlrohre ist deshalb nicht zu erwarten.

Wismut hat einen geringen Einfangsquerschnitt für schnelle und thermische Neutronen und wird deshalb häufig in Bestrahlungskapseln verwendet. Ausserdem wurde es schon als Bonding-Material für UO_2 -Brennstäbe vorgeschlagen. [5]

Die Wärmeentwicklung im Wismut durch γ -Strahlen ist bei dem am Coreende vorhandenen Strahlungspegel kleiner als 1 W/cm^3 . Dies ergibt bei einer Systemlänge von z.B. 700 mm eine Wärmeentwicklung von weniger als 10 Watt.

Den grössten Einfluss wird die Bestrahlung auf die Wasserfüllung des Systems haben. Die Wassermoleküle können durch ionisierende Strahlung aufgespalten werden (Radiolyse).

Für diese Radiolyse gilt die allgemeine Summengleichung



Dieses Ungleichgewicht, welches zur fortlaufenden Zersetzung von Wasser führen würde, gilt jedoch nur für offene Systeme, in denen die einzelnen Produkte entweichen können. In einem geschlossenen System, wie es der Wasserraum des Druckausgleichsystems darstellt, findet eine dauernde Rekombination der Zerfallsprodukte zu Wasser statt. Es wird sich hierbei ein Gleichgewicht einstellen, bei dem nach [6] nur eine sehr geringe Konzentration von Wasserstoff vorliegt. Wenn sichergestellt ist, dass der Wasserstoff nicht aus dem System entweichen kann, sind daher keine schädlichen Auswirkungen der Radiolyse zu erwarten. Es wurde untersucht, welche Wasserstoffmenge durch ein Incoloy-800-Rohr mit den Abmessungen $7 \times 0,4 \times 300 \text{ mm}$ bei einer Temperatur von $300 \text{ }^\circ\text{C}$ diffundiert. Das Rohr war mit Argon gefüllt und von Wasserstoff mit einem Druck von 760 Torr umgeben. Durch massenspektrometrische Untersuchung der Argonfüllung wurde festgestellt,

dass nach einer Betriebszeit von 24 Stunden ca. $1 \text{ Ncm}^3 \text{ H}_2$ in das Rohr eindiffundierten.

Nach [6] ist zu erwarten, dass der tatsächliche Partialdruck des Wasserstoffes im Reaktorbetrieb bei Gleichgewicht von Radiolyse und Rekombination unter 10 Torr liegt. Dies würde bedeuten, dass nach einer Standzeit des Brennstabes von 1 Jahr weniger als 1 % des in der Wasserfüllung enthaltenen Wasserstoffes durch die Rohrwand diffundieren könnte.

Einen endgültigen Aufschluss über die Auswirkungen der Bestrahlung kann erst der Einsatz in einem Reaktor ergeben.

6. Länge des Druckausgleichsystems in Druck- und Siedewasserreaktoren, Ausführungsbeispiel

Bei der Beschreibung des Systems in Abschnitt 2 wurde davon ausgegangen, dass während der gesamten Standzeit in dem äusseren Ringraum sowohl Wasser als auch Dampf vorliegt. Dies würde bedeuten, dass der Innendruck im Stab immer gleich dem zur vorliegenden Kühlmitteltemperatur gehörenden Sättigungsdruck ist. Da das Druckausgleichsystem bei einem Siedewasserreaktor von siedendem Wasser, bei einem dampfgekühlten Brutreaktor von Sattedampf umströmt wird, wäre bei diesen Reaktortypen ein dauerndes Gleichgewicht von Innendruck und Kühlmitteldruck gegeben. Bei Druckwasserreaktoren dagegen liegt der Innendruck um ca. 30 at unter dem Kühlmitteldruck.

Um das Druckausgleichsystem so kurz wie möglich zu halten, ist es besonders bei Druckwasserreaktoren vorteilhaft, das System so zu bemessen, dass die gesamte Dampfzuführung schon vor dem Ende der Standzeit kondensiert ist und dann der Innendruck über den Sättigungsdruck hinaus ansteigt.

In Abb. 9 ist für einen Druck- und einen Siedewasserreaktor die erforderliche Länge des Druckausgleichsystems in Abhängigkeit von der Spaltgasfreisetzung und dem zulässigen Innendruck am Ende der Standzeit aufgetragen.

Abb. 10 zeigt die konstruktive Ausführung des für einen Bestrahlungsversuch im MZFR vorgesehenen Druckausgleichsystems.

7. Schlussbetrachtung

Das untersuchte Druckausgleichssystem stellt eine Möglichkeit dar, die mechanische Belastung der Brennstäbe wasser- und dampfgekühlter Reaktoren entscheidend zu verkleinern und damit die Zuverlässigkeit der Brennelemente wesentlich zu steigern. Insbesondere bei Siedewasserreaktoren sowie bei dem Entwurfskonzept des dampfgekühlten Brutreaktors passt sich durch dieses System der Gasdruck in den Brennstäben nahezu vollständig an den Kühlmitteldruck an, so dass beim Auftreten kleiner Lecks in den Hüllrohren weder Wasser in den Brennstab eintreten kann, noch Spaltgase entweichen können. [9]

Vor allem aber wird das Aufkriechen des Hüllrohres auf den Brennstoff vermieden, so dass Laständerungen nicht zu Wechselfpannungen führen können.

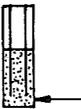
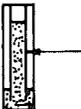
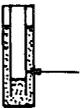
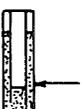
Die Funktionsfähigkeit des Systems kann endgültig erst nach Abschluss der geplanten Bestrahlungsuntersuchungen beurteilt werden. Nachdem die Out-of-Pile-Untersuchungen [7], [8] bislang erfolgreich verlaufen sind und die Bestrahlung voraussichtlich keinen wesentlichen Einfluss hat, wird ein positives Ergebnis erwartet.

Bei der Untersuchung der wirtschaftlichen Verwendbarkeit ist zu berücksichtigen, dass das System völlig getrennt von der normalen Brennstabfertigung und daher mit wesentlich niedrigeren Gemeinkosten hergestellt werden kann. Ausserdem handelt es sich hierbei nicht nur um eine Kostenoptimierung; vielmehr wird durch das System die Sicherheit gegen Brennstabversagen mit Spaltproduktaustritt wesentlich erhöht.

8. Literatur

- [1] Richard N. Lyon:
Liquid-Metals Handbook
Oak Ridge National Laboratory 1954
Navexos-P-733
- [2] Gmelin:
Handbuch der anorg. Chemie 8. Aufl. System Nr. 19,
Wismut Ergänzungsband
Verlag Chemie, Weinheim/Bergstr. 1964
- [3] Landold-Bönstein:
6. Aufl. Bd. IV/2b Springer Verlag 1964
- [4] W. Hofmann:
Blei und Bleilegierungen
Springer Verlag 1962
- [5] T. Kubota:
Verhalten einer sich zwischen pulverförmigem
keramischen Brennstoff und Hülle befindlichen wärme-
leitenden Wismutschicht
Journal of Atomic Energy Society of Japan
Vol. 10 (1968) Heft 12, S. 678 - 83
- [7] S. Malang, St. Müller, K. Wiehr:
"Druckausgleichsystem für Brennelemente"
Tagungsbericht Seite 517
Reaktortagung 1970 Berlin
- [8] S. Malang, St. Müller:
"Druckausgleichsystem für Brennstäbe wassergekühlter
Reaktoren"
Kerntechnik 14. Jahrgang (1972) Nr. 3 Seite 117 - 117
- [9] S. Malang
Kernreaktorbrennelement
DT-PS 1816544 Nov. 1970

Tabelle I: Zusammenstellung der Einzelstabversuche

Innenrohrform Wandstärke s	Hi-Stand beim Erstarren	Anzahl der versuchsstäbe	ca. Einfrier- zyklen/Stab	Art der Schäden	Abhilfemassnahmen, Bemerkungen
 s = 0,2		11	30	Ausbeulen des Innen- und Aussen- rohres im unteren Bereich des Stabes	Vermeiden des gezeichneten Standes beim Einfrieren Durchmesser - Zunahme bis zu 0,5 mm
 s = 0,2		5	30	Aufweiten bzw. Ausbeulen des Innenrohres	Auch diesen Einfrierstand ver- meiden
 s = 0,2		36	von 5 bis 60	Einbeulen des Innenrohres nach ca. 20 Zyklen An scharfen Knickfalten Risse	Abschaltzyklenzahl ist bei dieser Rohrform begrenzt, Rohr muss fester oder elastischer sein
 s = 0,5		22	10	Am Innenrohr keine Schäden, da das Aussenrohr nachgibt, ausgebeult	Da das Aussenrohr nicht aufgeweitet werden darf scheidet diese Kombi- nation aus
 s = 0,2		1	2 x 30	Einbeulen des Wellenrohres	nicht elastisch genug
 s = 0,2		3	2 x 30 1 x 30 1 x 30	Bei zieharter Ausführung keine Schäden bis 60 Zyklen; bei weichge- glühter, Einbeulen nach 30 Zyklen	ziehhart, Innenrohr 2 x verwendet 2 x weichgeglüht funktionfähig bis zum Schluss
 s = 0,2		1	4 x 30	Keine Schäden	4 Versuchsreihen mit je 30 Abschalt- zyklen, Innenrohr 4 x verwendet, funktionfähig
 s = 0,2		4	50	Keine Schäden	Grössere Version des Druckausgleich- systems, funktionfähig

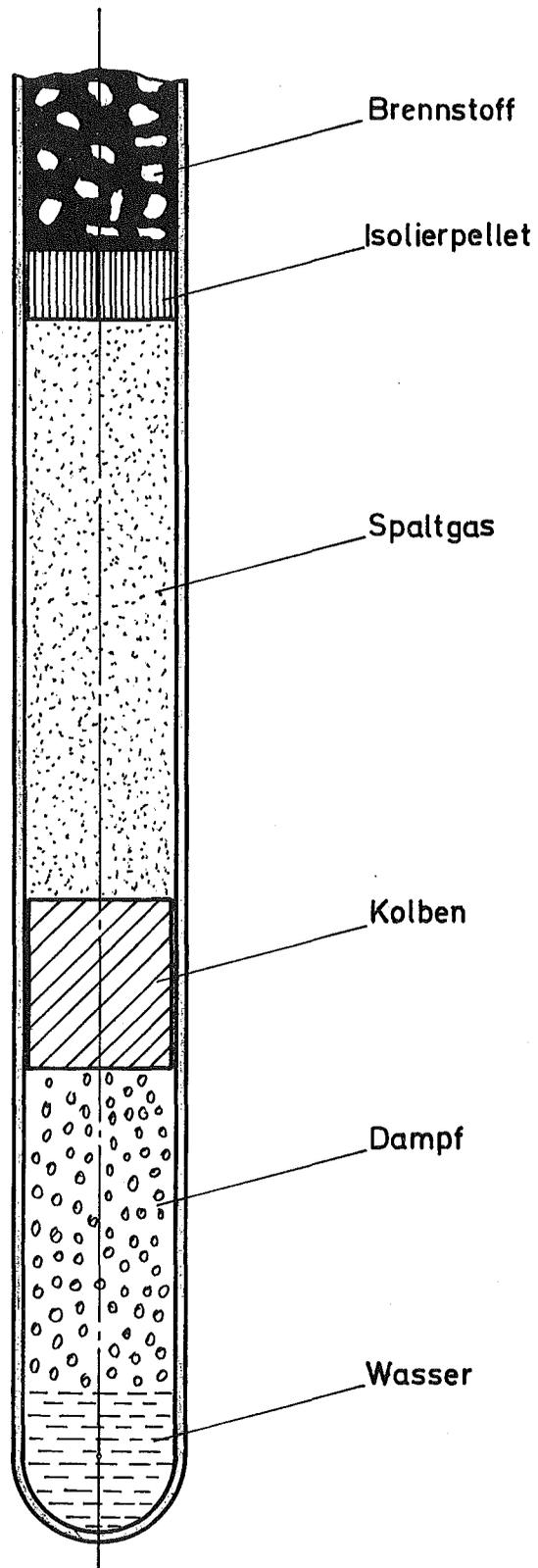


Abb.1 Prinzip des Druckausgleichsystems für Brennstäbe

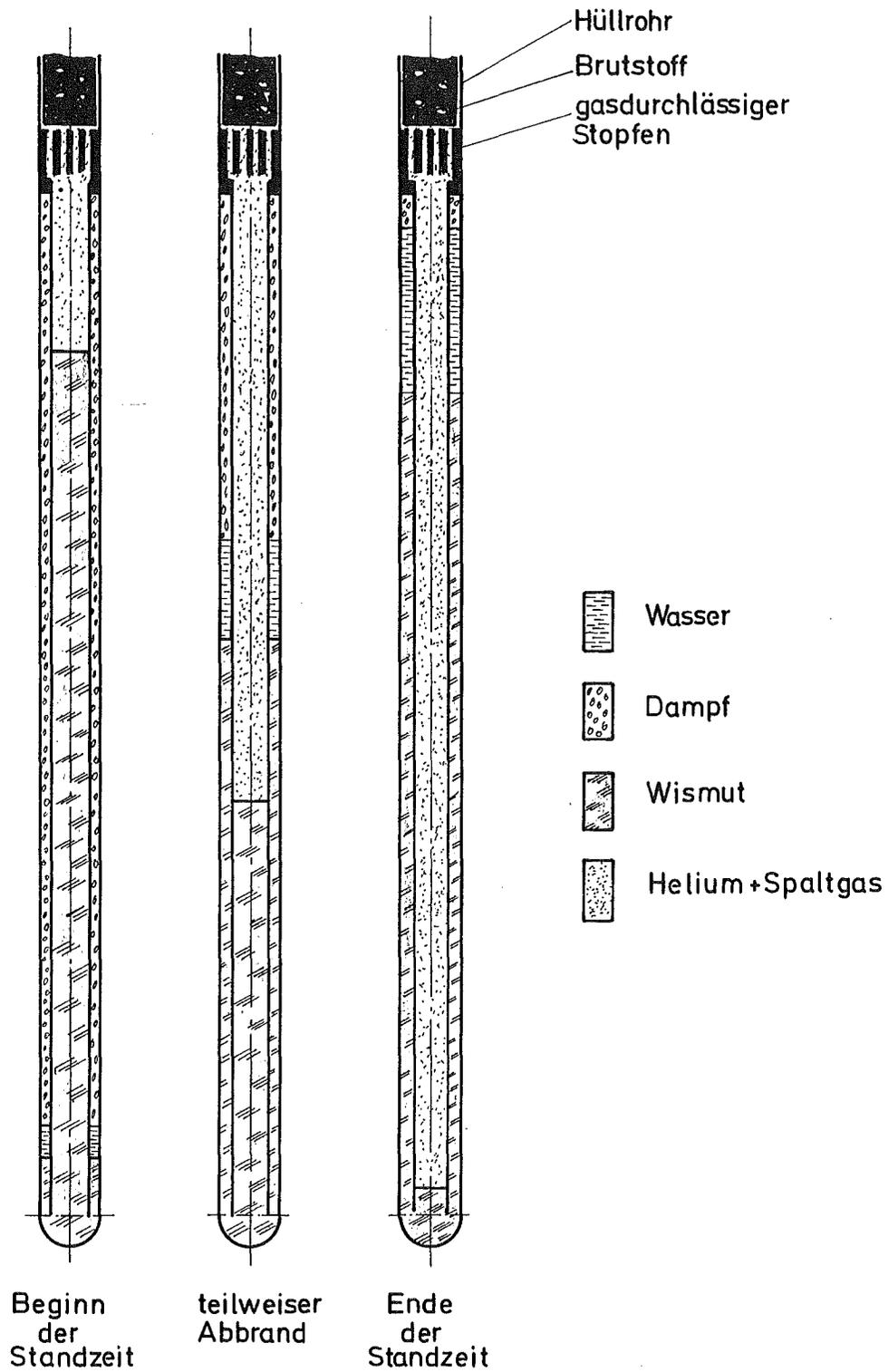


Abb.2 Das Druckausgleichssystem bei verschiedenen Abbrandstadien

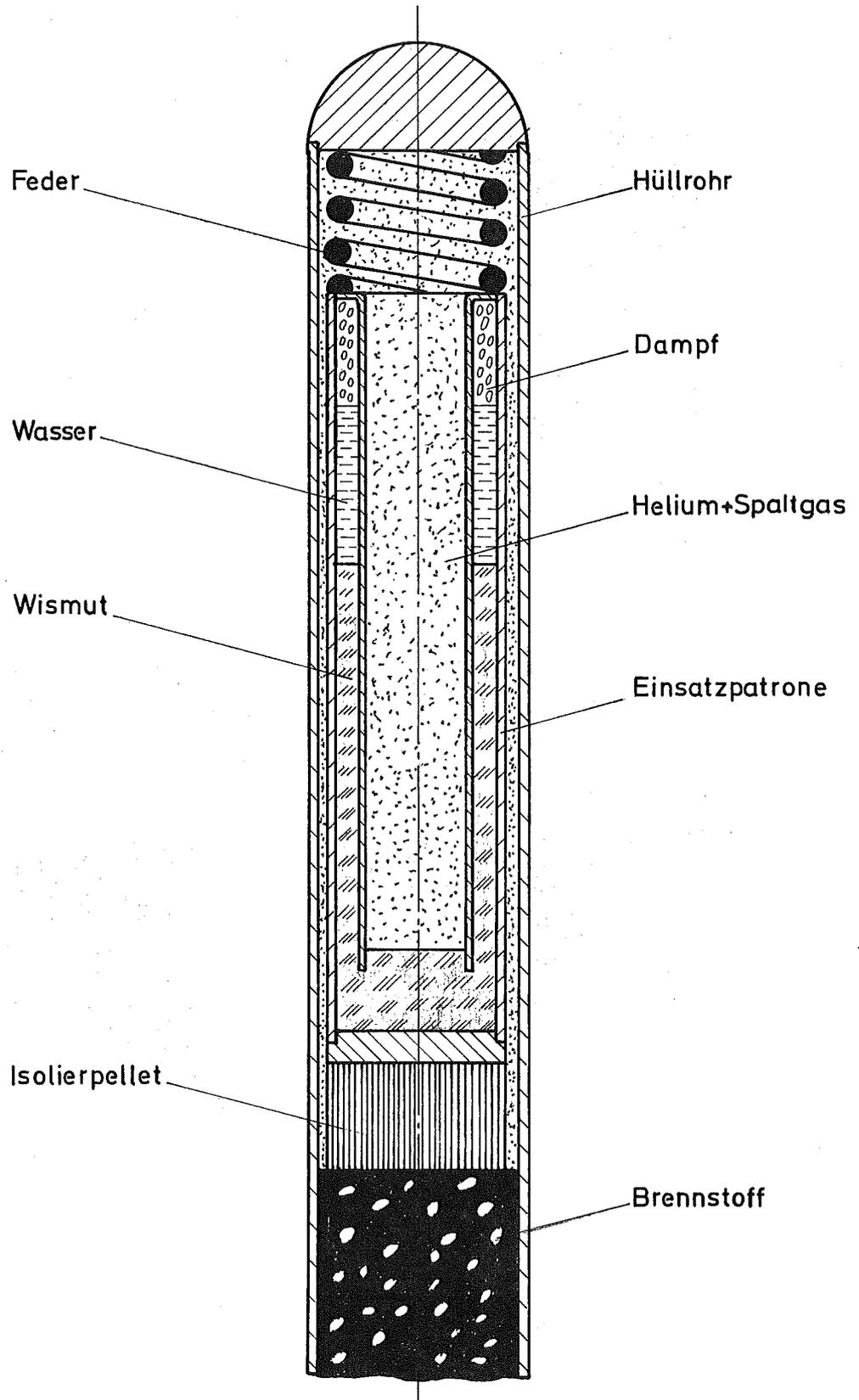
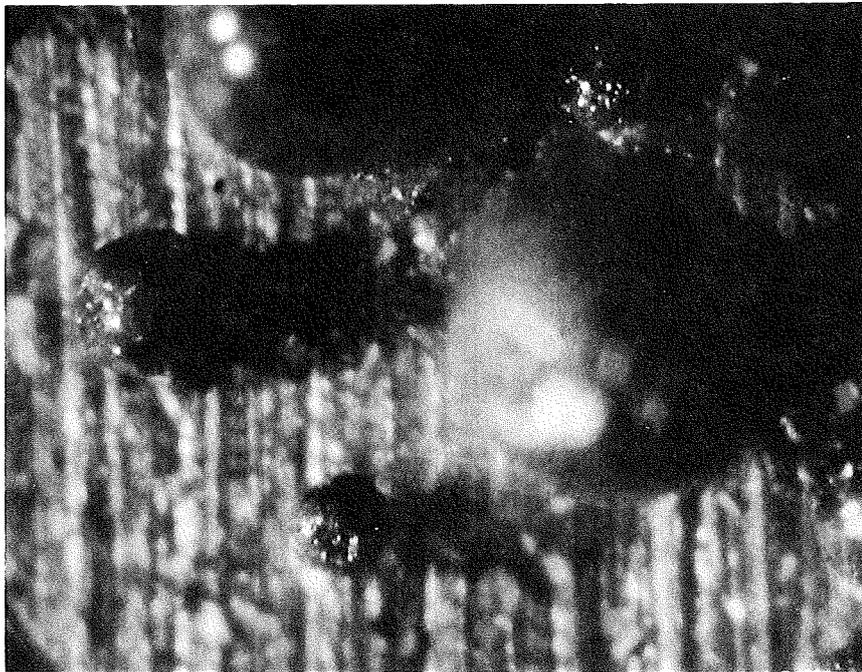
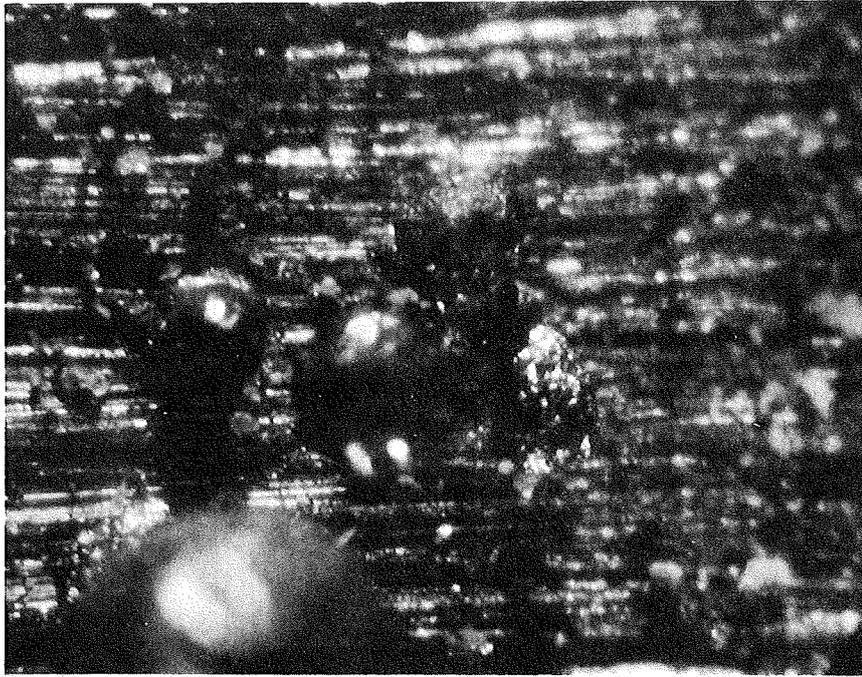


Abb.3 Druckausgleichssystem für Siede- und Druckwasserreaktoren



1 mm

Vergrößerung 58 X

Abb.4 Herausgedrückte Eutektikum-Perlen aus dem Festgefüge Wismut-Blei

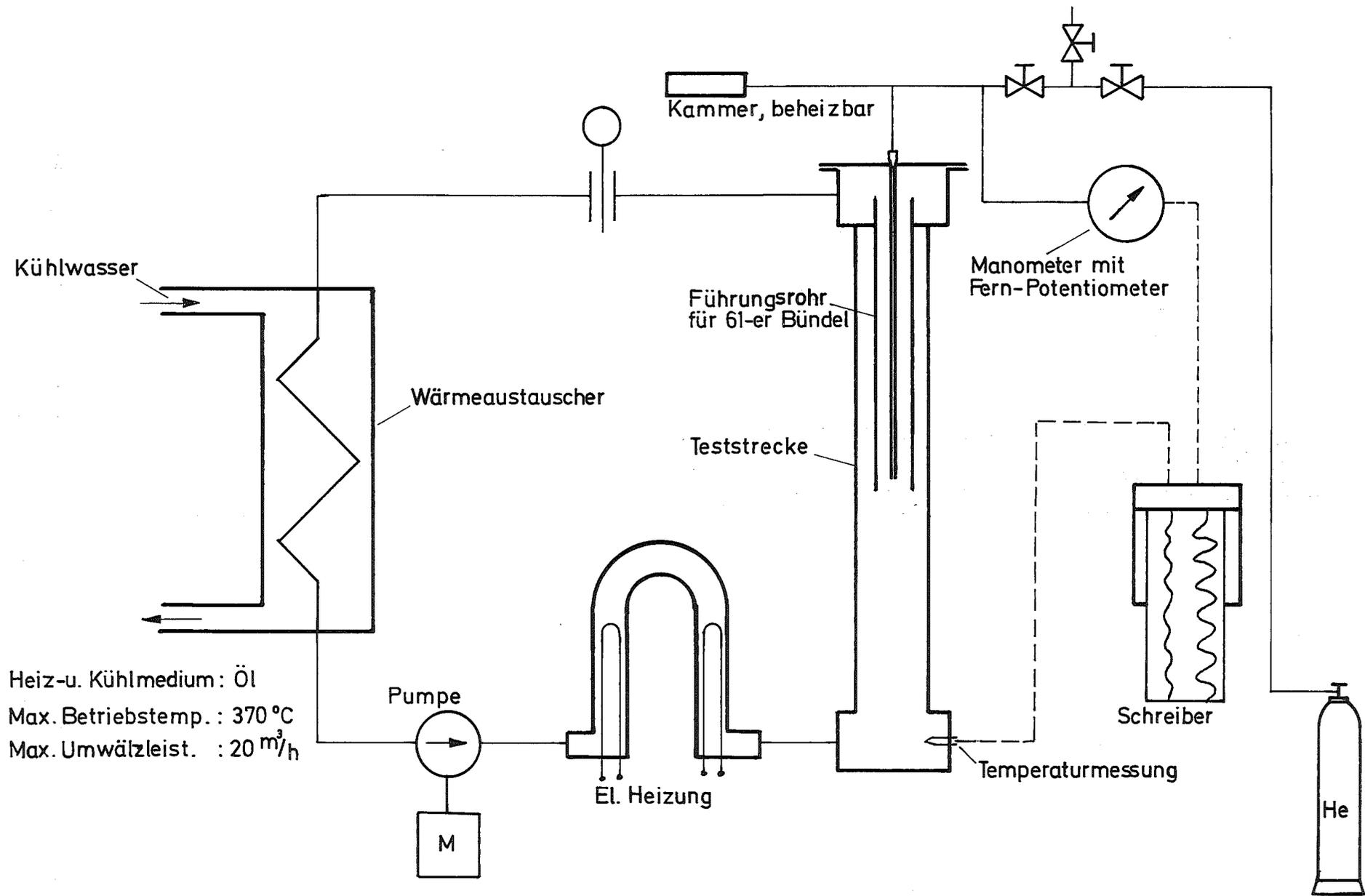


Abb.5 Testkreislauf und Versuchsanordnung für Druckausgleichstäbe

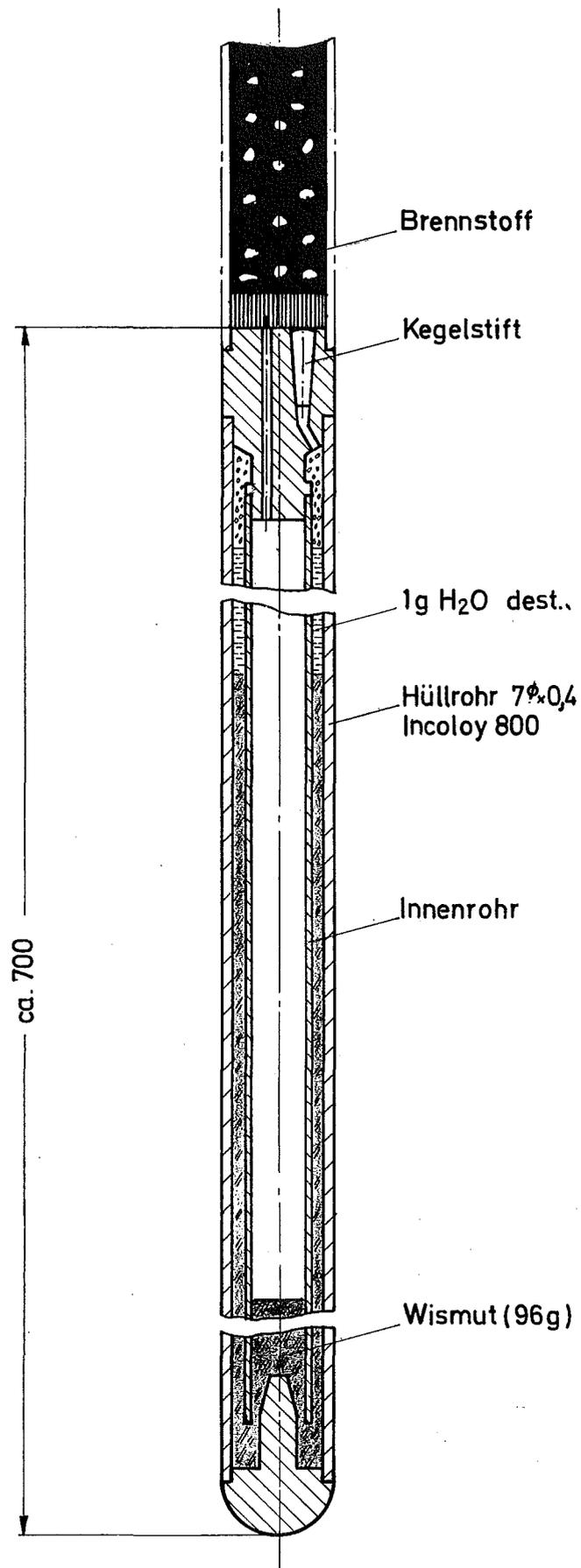


Abb.6 Konstruktive Ausführung eines Brennstabes mit Druckausgleichssystem

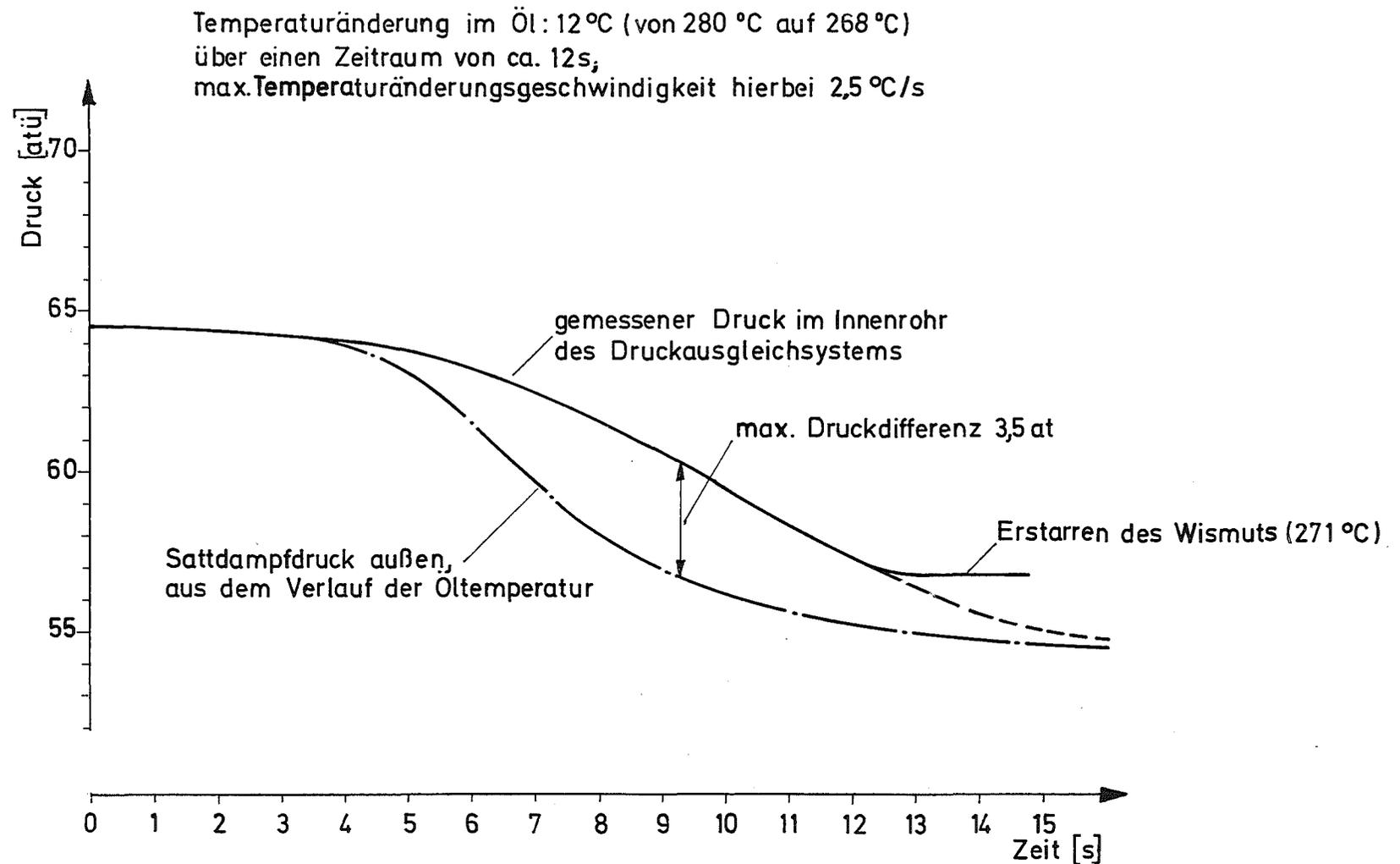


Abb. 7 Maximale Druckdifferenz innen-außen am Druckausgleichsystem bei schneller Temperaturänderung im Kühlmittel

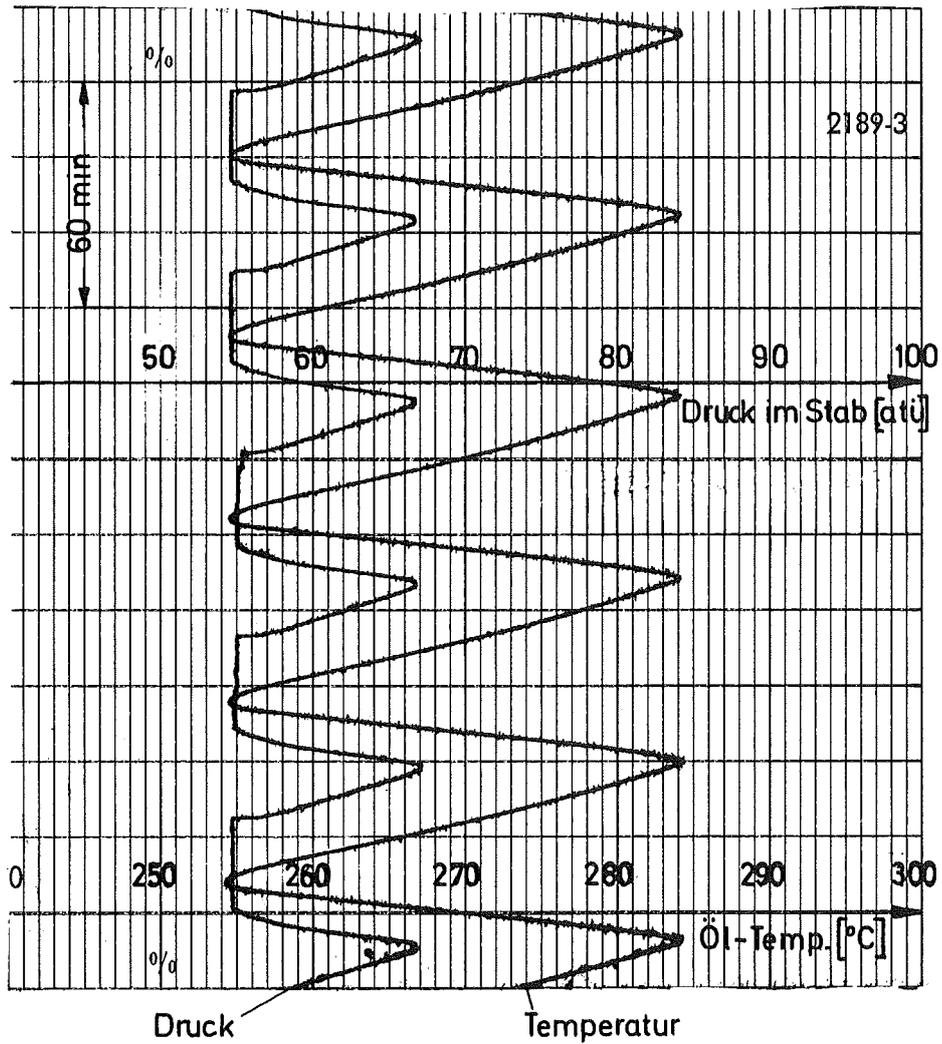
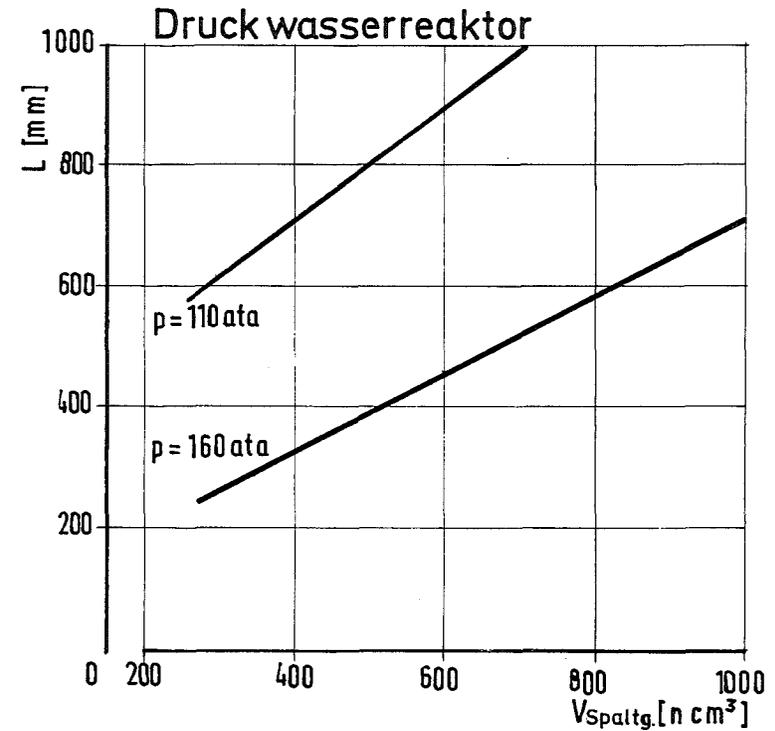
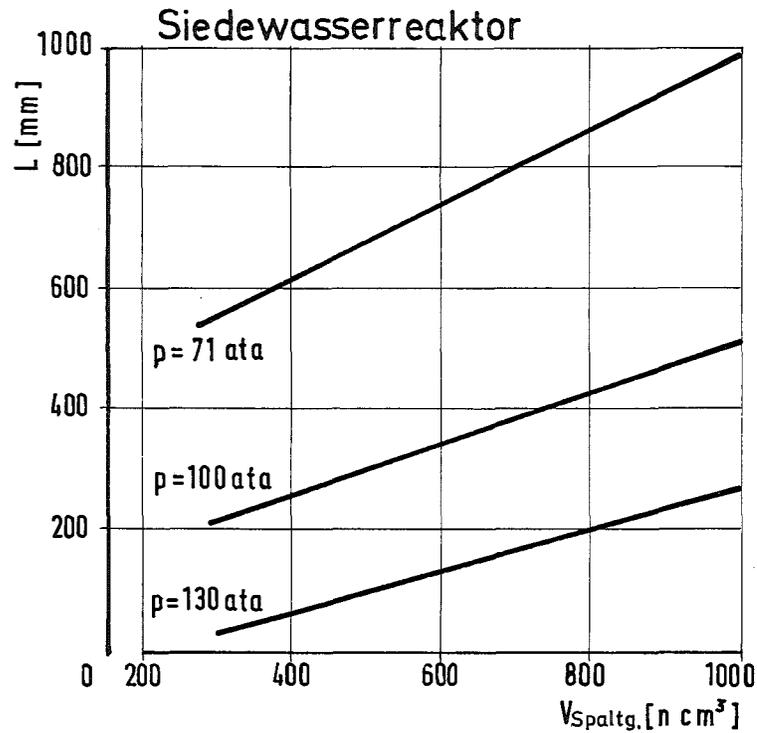


Abb. 8 Druck - und Temperaturverlauf bei einem Dauerstandstest des Systems



d_i = innerer Hüllrohrdurchmesser = 12,7 mm
 l = Länge der Brennstoffzone = 3660 mm

d_i = innerer Hüllrohrdurchmesser = 9,3 mm
 l = Länge der Brennstoffzone = 2985 mm

Bezeichnung: L = Länge des Druckausgleichsystems [mm]

p = Druck im Brennstab am Ende der Standzeit [ata]

$V_{Spaltg.}$ = Während der Standzeit freigesetzte Spaltgasmenge [$n\ cm^3$]

ϵ = Anteil der offenen Hohlräume im Brennstoffbereich 5 %

$$\epsilon = \frac{V_{Dishing} + V_{Gap} + V_{offene\ Poren}}{\frac{d_i^2 \cdot \pi \cdot l}{4}} \cdot 100$$

Abb.9 Länge des Druckausgleichsystems in Druck.-u. Siedewasserreaktoren

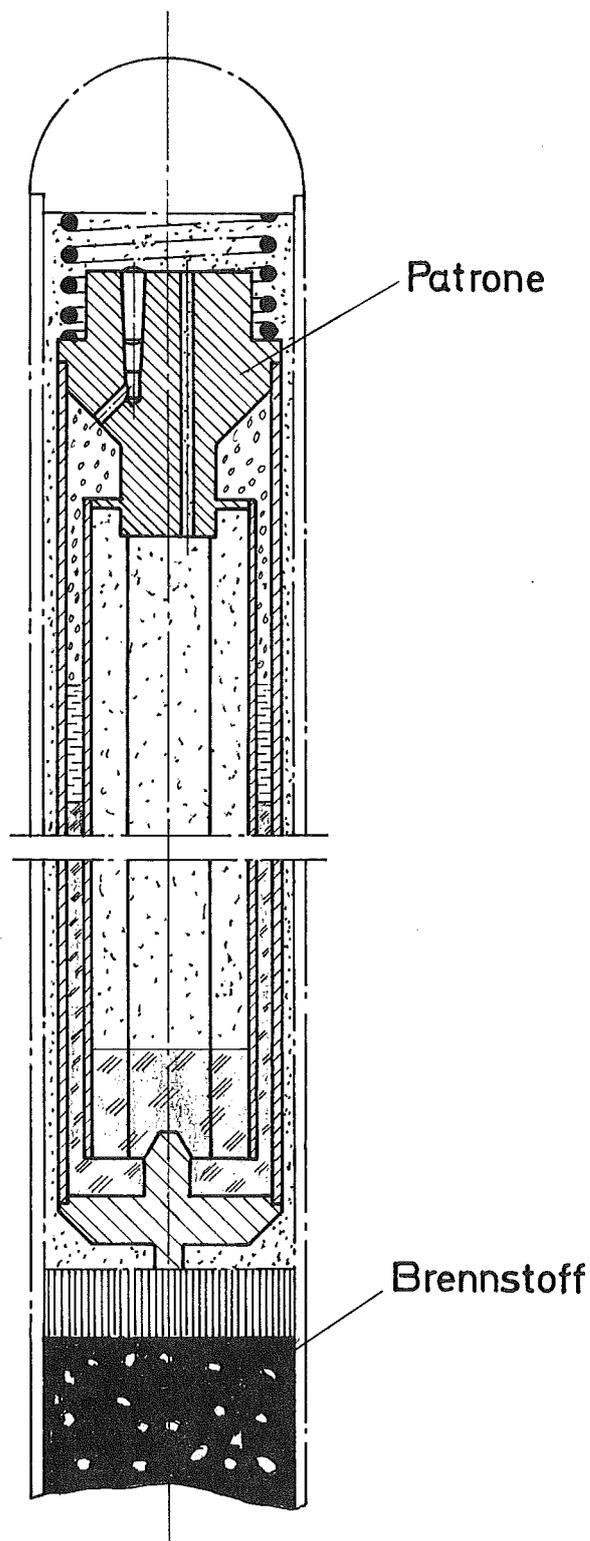


Abb.10 Ausführungsbeispiel einer Patrone für einen Bestrahlungstest