

# **KERNFORSCHUNGSZENTRUM**

# KARLSRUHE

März 1973

Projekt Schneller Brüter

KFK 1272/4 EUR 4854d

4. Vierteljahresbericht 1972



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H.

KARLSRUHE



#### KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1272/4 EUR 4854 d

### Projekt Schneller Brüter

4. Vierteljahresbericht 1972

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

G

.

3

#### Zusammenfassung

Der Bericht beschreibt Arbeiten des 4. Vierteljahres 1972, die im Rahmen des Projektes Schneller Brüter (PSB) bei der Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe oder in deren Auftrag durchgeführt worden sind. Als einige der wesentlichsten Ergebnisse aus den Teilprojekten seien genannt:

#### Brennstabentwicklung:

Als Resultat erster Versuche hat sich die Möglichkeit gezeigt, unter Einhaltung aller sonstigen Spezifikationen Mischoxidtabletten mit einem stöchiometrischen Verhältnis Sauerstoff:Metall zwischen 1.93 und 2.00 herzustellen. Zur Übertragung der Ergebnisse auf große Tablettenmengen sind weitere gezielte Vorversuche notwendig. Niedrige Brennstoffstöchiometrie erweist sich zunehmend als einer der wesentlichsten Parameter für das Langzeitverhalten von Brennstäben.

Aus Bestrahlungsversuchen liegen Ergebnisse der Mikrosonden-Untersuchungen von Mol 7A sowie der Auswertung der FR2-Versuchsgruppe 4a vor.

Berechnungen zur Auslegung eines Karbidbrennstabes, die mit dem Programm SATURN I durchgeführt wurden, deuten darauf hin, daß bei der gegenwärtigen Kenntnis des Materialverhaltens von Karbidbrennstoff die vorliegenden Brennstabkonzepte nur mit Einschränkungen die an sie geknüpften Erwartungen erfüllen können.

#### Materialuntersuchung und -entwicklung:

Bestrahlungsnachuntersuchungen am Werkstoff Nr. 1.4970, dessen Kriecheigenschaften Gegenstand eines Mol 5B-Experimentes waren, sind abgeschlossen. Die bis zu der erreichten maximalen Neutronendosis  $(1.9 \cdot 10^{21} \text{ n/cm}^2 \text{ für}$ E >0.1 MeV) gemessenen geringen Unterschiede im Kriechverhalten gegenüber unbestrahlten Proben sind vermutlich weitgehend durch Schwierigkeiten bei der Einhaltung der Versuchsparameter während der Bestrahlung beeinflußt.

#### Physik:

Zur Übertragbarkeit der Dopplermessungen in SEFOR auf den SNR haben Untersuchungen ergeben, daß die Unsicherheit des Doppler-Energie-Koeffizienten, die in SEFOR experimentell <u>+</u> 8% beträgt, nach der Übertragung auf den SNR auf insgesamt <u>+</u> 14% anwächst. Doppler-Leistungskoeffizienten des SNR lassen sich

aufgrund der SEFOR-Versuche mit etwa 15% Genauigkeit voraussagen. Ohne die SEFOR-Versuche müßte man für den SNR mit Unsicherheiten nahe 25% für diese Größen rechnen.

#### Sicherheit und Instrumentierung:

Für die Berechnung schwerer hypothetischer Unfälle sind wichtige Teilprogramme weitgehend fertiggestellt worden und werden erprobt.

Aufgrund einer erstellten Durchführbarkeitsstudie erscheint es sinnvoll, geeignete Modellversuche zum tankinternen Notkühlsystem des SNR 300 mit Wasser durchzuführen. Die Versuche sollen der Bestätigung von analytischen Berechnungsmethoden dienen.

#### Technologie:

Es wird u.a. über ein neues Eichverfahren berichtet, das eine geeignete Meßwertkorrektur für die Bestimmung der Hüllrohroberflächentemperatur bei lokalen Wärmeübergangsmessungen erlaubt. Für einen Wandstab des SNR-Brennelementes beträgt der bei dieser Methode noch verbleibende maximale Fehler weniger als 4 <sup>o</sup>C.

Bei Untersuchungen zur Kühlmittelquervermischung in Na-gekühlten Brennelementen wurden in Schieflastexperimenten die Mischungsbeiwerte bestimmt und zur Berechnung der Kühlmittel-Mittentemperaturen in den Unterkanälen des Bündelquerschnittes benutzt. Die derart berechneten Werte konnten experimentell mit gutem Ergebnis für das Rechenprogramm MISTRAL bestätigt werden.

Für einen 1000 MWe He-gekühlten Schnellbrüter mit direktem Kühlkreislauf wird die Vorauslegung der Heliumturbine beschrieben.

Der Bericht wurde zusammengestellt von R. Hüper.

#### Abstract

This report describes work performed in the fourth quarter of 1972 by Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe or on its behalf within the framework of the Fast Breeder Project.

Some of the most important results achieved in various sectors of the project will be listed below:

#### Fuel Pin Development:

Preliminary experiments have shown the possibility of fabricating mixed oxide pellets with a stoichiometric ratio between oxygen and metal of 1.93 - 2.00, all other specifications being maintained. Additional specific experiments are necessary to extrapolate these results to large amounts of pellets. Low fuel stoichiometry increasingly is felt to be one of the main parameters influencing the long time behavior of fuel pins.

In-pile experiments have furnished results of microprobe studies of Mol 7A and an evaluation of the FR2 group of experiments 4a.

Calculations of the design of a carbide fuel pin performed with the SATURN 1 program seem to indicate that on the basis of our present knowledge of the material behavior of carbide fuel the present fuel pin concepts will be able to fulfill all requirements only to a limited extent.

#### Material Studies and Development:

Post irradiation examinations of the material No. 1.4970, whose creep characteristics were the subject of a Mol 5B experiment, have been finished. The minor differences in creep behavior as compared with unirradiated specimens measured up to the maximum neutron dose achieved ( $1.9 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  for E > 0.1 MeV) have probably been influenced to a large extent by difficulties associated with maintaining the experimental parameters during irradiation.

#### Physics:

Studies of the extrapolability to SNR of Doppler measurements in SEFOR have indicated that the uncertainty of the Doppler energy coefficient, which was experimentally determined to be  $\pm$  8% in SEFOR, increases to a total of  $\pm$ 14% after extrapolation to SNR. Doppler power coefficients of SNR can be predicted from the SEFOR experiments with an accuracy of approximately 15%. Without the SEFOR experiments, uncertainties close to 25% would have to be assumed for SNR with respect to these parameters.

#### Safety and Instrumentation:

Important subprograms drawn up for the calculation of major hypothetical accidents have largely been finished and are being tested.

From a feasibility study it appears to be meaningful to perform suitable model scale tests of the in-vessel emergency cooling system of SNR 300 with water. These experiments are to confirm the analytical methods of calculation.

#### Technology:

One of the items reported refers to a new method of calibration allowing suitable correction of measured values for the determination of the cladding surface temperature in measurements of local heat transfer. For a wall pin of the SNR fuel element the maximum error remaining in this method is below  $4^{\circ}$ C.

In studies on coolant cross-mixing in sodium cooled fuel elements the mixing coefficients were determined in uneven load experiments and used to calculate the coolant central temperatures in the subchannels of the bundle cross-section. The values calculated in this way have been confirmed experimentally with a good result for the MISTRAL computer program.

The preliminary design of a helium turbine is described for a 1000 MWe helium cooled direct cycle fast breeder reactor.

This report was compiled by R. Hüper.

## Inhaltsübersicht +)

- 112. Brennstabentwicklung
- 113. Materialuntersuchung und -entwicklung
- 114. Korrosionsversuche und Kühlmittelanalysen
- 115. Arbeiten zum Brennstoffzyklus
- 121. Physikalische Experimente
- 122. Reaktortheorie
- 123. Sicherheit schneller Reaktoren
- 124. Instrumentierung und Signalverarbeitung zur Kernüberwachung
- 125. Auswirkung von Reaktorstörfällen auf die Umwelt, Aktivitätsfreisetzung
- 126. Natrium-Technologie-Versuche
- 128. Entwurfsstudien zu gas- und dampfgekühlten Brutreaktoren
- 129. Entwurfsstudien zu natriumgekühlten Brutreaktoren

#### Erläuterungen

Die Einzelbeiträge sind durch \*\*, F und/oder G gekennzeichnet, je nachdem ob sie vorwiegend dem Bauzugehörigen F+E Programm des SNR 300, dem SNR-Folgeprogramm (für einen Demonstrations-SNR) oder dem <u>G</u>rundlagenprogramm (Hochleistungsbrüter, Gas- und Dampfkühlung, reaktorphysikalische Grundlagen) zuzuordnen sind.

Zur Erleichterung der Suche nach früheren Berichten, deren Fortsetzung der jeweils vorliegende Beitrag bildet, wird fortan der betr. frühere PSB-Vierteljahresbericht zitiert. Fehlendes Zitat bedeutet stets, daß der letzte Beitrag im unmittelbar vorhergehenden PSB-Vierteljahresbericht erschienen ist.

<sup>+)</sup>Teilprojekte mit den zugehörigen PSB-Basisprogramm-Nummern. Die Seiten sind innerhalb jedes Teilprojektes durchnumeriert.

Zum Druck eingereicht im Februar 1973

. .

and the state of the state of the

and the second second

where  $M_{\rm eff} = 0$  , the matrix  $M_{\rm eff} = 0$  ,  $M_{\rm eff} = 0$  ,  $M_{\rm eff} = 0$  . The  $M_{\rm eff} = 0$  , the matrix  $M_{\rm eff} = 0$ 

and a second A second secon

and the second state of the sec

.

× .

a de la construir de la constru A de la construir de la constru A de la construir de la construi

• • • •

and the second second second strategies and the second

#### 112 BRENNSTAB-ENTWICKLUNG

1120 Brennstabmodelltheorie \* FG

# Anwendung des Rechenprogramms SATURN 1

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

Mit den beiden Versionen la  $\begin{bmatrix} 1 \\ 7 \end{bmatrix}$  und lb des Rechenprogramms SATURN l wurden im Berichtszeitraum wieder verschiedene Parameterstudien und Rechnungen zu Bestrahlungsexperimenten durchgeführt.

Die Parameterstudien befaßten sich im wesentlichen mit zwei Themen. Die geplante Vergrößerung des Durchmessers des Schnellbrüter-Brennstabes von 6 mm auf 7,5 mm war der Anlaß zu einer Studie 27, in der das unter Normalbedingungen zu erwartende Verhalten eines 7,5 mm-Stabes dem des 6 mm-Stabes gegenübergestellt wurde. Die Ergebnisse der mit SATURN 1 durchgeführten Rechnungen lassen unter den gewählten Auslegebedingungen keine gravierenden Unterschiede erkennen.

Die Mitte des Jahres 1972 begonnene Parameterstudie zur Auslegung eines Karbidbrennstabes  $\boxed{3}$  wurde mit weiteren Rechnungen zu dem Referenzentwurf der AEG  $\boxed{4}$  fortgesetzt. Ihr Ergebnis deutet darauf hin, daß bei der gegenwärtigen Kenntnis des Materialverhaltens von Karbidbrennstoff die vorliegenden Brennstabkonzepte nur mit Einschränkungen die daran geknüpften Erwartungen erfüllen können  $\boxed{5}$ .

Ein Untersuchungsziel des Bestrahlungsexperimentes DFR-350 war die Feststellung der Veränderung der äußeren Geometrie der Brennstäbe, d.h. insbesondere einer Hüllrohraufweitung durch Schwellen im schnellen Neutronenfluß. Mit dem Rechenprogramm SATURN la wurde die Hüllrohraufweitung des Brennstabes G 21, dessen Hüllmaterial der Werkstoff Nr. 1.4988 war, rechnerisch ermittelt. Die Grundlage bildete die von IMF und INTERATOM für diesen Werkstoff vorgeschlagene Schwellformel  $\sqrt{6}$ :

$$\frac{\Delta V}{V} = A D^{n} e^{-\left(\frac{T-T'}{B}\right)^{2}}$$

mit

A	I	Ħ	8,5	
r	ı	=	1,6	
נ	ور	=	490 <sup>°</sup> C	
E	3	=	100	
Ι	)	=	Neutronendosis, in $10^{23}$ n/cm <sup>2</sup> ( E > 0,1 MeV	)
ſ	2	=	mittlere Temperatur der Hüllwand, in <sup>O</sup> C	
Â	<u> </u>	=	relativer Volumenzuwachs, in 🎾	

Das Ergebnis der Rechnungen wird in der beigefügten Tabelle 1 mit dem Ergebnis der Messungen aus der zerstörungsfreien Nachuntersuchung 272 verglichen. Die berechneten Werte liegen für mittlere Hüllwandtemperaturen um  $T = 490^{\circ}C$  innerhalb des Ungenauigkeitsbereiches der gemessenen Werte in der Nähe der oberen Grenze dieses Bereiches. Für mittlere Hüllwandtemperaturen, die stark von der Temperatur  $T = 490^{\circ}C$  abweichen. sind die berechneten Werte kleiner als die gemessenen. Sie liegen außerhalb des Ungenauigkeitsbereiches der gemessenen Werte.

Die Art der Abhängigkeit des relativen Volumenzuwachses △V/V von der mittleren Temperatur des Hüllmaterials nach Gl. (1) hat zur Folge, daß Unsicherheiten in der Kenntnis des Wertes dieser Temperatur sehr unterschiedlich auf die Genauigkeit des berechneten Volumenzuwachses einwirken. In der Nähe der Temperatur T =  $490^{\circ}$ C hat z.B. eine absolute Unsicherheit von  $\Delta$ T =  $10^{\circ}$ C eine Ungenauigkeit des Wertes  $\Delta V/V$  von bis zu 10 % zur Folge. Die gleiche absolute Unsicherheit bewirkt aber z.B. bei  $T = 395^{\circ}C$  eine Ungenauigkeit des Wertes AV/V von etwa 20 %. Dieser Umstand sollte bei der Gegenüberstellung der berechneten und der gemessenen Werte der Hüllrohraufweitung beachtet werden.

Weiter wurde die schon im Herbst 1972 begonnene Nachrechnung der erzeugten bzw. freigesetzten Spaltgasmenge für den Prüfling DFR-350/G 21 fortgesetzt. Da mit der derzeitigen Version von SATURN 1 nur Brennstoffscheiben untersucht werden können, muß für eine einigermaßen genaue Analyse der Brennstab in axiale Zonen unterteilt werden. Für jede dieser Zonen werden dann axial gemittelte Werte für Stableistung und Hüllaußentemperatur verwendet. Beim Prüfling G 21 wurde eine Unterteilung in axiale Zonen von je 58 mm Höhe

(1)

vorgenommen. Die entsprechenden Betriebsdaten stammen aus  $\boxed{7}$ . Unter Verwendung des in  $\boxed{8}$  beschriebenen Freisetzungsmodells wurden für die einzelnen Zonen folgende freigesetzte Spaltgasmengen errechnet:

Zone	freigesetzte Spaltgasmenge (Ncm <sup>3</sup> )
l (oben)	12,6
2	12,9
3	12,7
4	11,7
5 (unten)	9,8
Summe	59,7 Ncm <sup>3</sup>

Ein Vergleich mit dem experimentell ermittelten Wert von 58,22 Ncm<sup>3</sup> zeigt gute Übereinstimmung.

#### Literatur

<u>/</u> 1_/	H. Kämpf, H. Elbel, F. Depisch, Das Rechenprogramm SATURN la für Brennstäbe, KFK 1575 (1972)
[2]	H. Elbel, K. Kummerer, Weiterentwicklung der Schnellbrüter-Brennstäbe zu größerem Durch- messer, Vortrag auf der Reaktortagung 1973 in Karlsruhe
[3]	H. Elbel, H. Fiedler, Anwendung des SATURN 1-Rechenprogramms, KFK 1272/2 (1972)
<u>[</u> 4_7	F. Amon, G. Lill, G. Tischer, W. Uhde et al., Referenzstudie über einen Na-gekühlten Karbid-Hochleistungsbrüter, AEG-E3-1883 (1971)
[5_7	H. Fiedler, H. Elbel, D. Vollath, Ein Beitrag zur Auslegung von Karbidbrennstäben, Vortrag auf der Reaktortagung 1973 in Karlsruhe
[6]	K. Ehrlich, Porenbildung in Hüllmaterialien, Beitrag in KFK 1400 (1971)
[7]	D. Geithoff, K. Kummerer, Auslegung, Bestrahlung und zerstörungsfreie Nachuntersuchung des UO <sub>2</sub> -PuO <sub>2</sub> -Brennstab-Bündels DFR-350, KFK 1377 (1972)
[8_7	H. Fiedler, D. Freund, Spaltgasfreisetzung in SATURN 1, KFK 1272/3 (1972)

Tabelle 1

- i

Vergleich gemessener und gerechneter Hüllrohraufweitung des Brennstabes G 21

d (in mm)	D (in 10 <sup>23</sup> n/cm <sup>2</sup> )	T <sub>Hm</sub> (in °C)	Δ (in	r mm )	∆r/: (1:	r <sub>o</sub> n %)	T <sub>Hm</sub> - T'  (in <sup>o</sup> C)
			gemessen	gerechnet	gemessen	gerechnet	
50	0,264	615	0,006 <u>+</u> 0,002	0,0021	0,20	0,07	125
130	0,350	525	0,011 <u>+</u> 0,004	0,0142	0,35	0,47	35
162	0,365	490	0,015 <u>+</u> 0,003	0,017	0,5	0,57	0
185	0,377	453	0,0135 <u>+</u> 0,004	0,0173	0,45	0,58	37
230	0,377	395	0,010 <u>+</u> 0,002	0,0074	0,33	0,25	95
270	0,366	285	0,007 <u>+</u> 0,004	-	0,22		205
$d = Abstand vom unteren Ende des Brennstabes \Delta r = Zuwachs des Hüllaußenradius$							
D =	Neutronendosis ( $E > 0$	,1 MeV)		ro	= ursprü	nglicher Hülla	ußenradius

T'

 $T_{Hm}$ maximale mittlere Temperatur des Hüllrohres 222

ursprünglicher Hüllaußenradius 222 490°c 

#### 1121 Oxidischer Brennstoff - Laboruntersuchungen

1121.0 Herstellung im Labormaßstab  $^{\prime}$ 

1. Zur Herstellung von UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstofftabletten mit niedriger Stöchiometrie

(Th. Dippel, M. Wittmann, IMF)

#### Einleitung

Die Ergebnisse zahlreicher Bestrahlungsnachuntersuchungen und Verträglichkeitsexperimente erhärten die Tatsache, daß die niedrige Brennstoffstöchiometrie einer der wesentlichen Parameter für das Langzeitverhalten der Brennstäbe ist. Für die Herstellung von Bestrahlungsproben und Stabprüflingen folgt daraus, daß bei Einhaltung aller sonstigen Spezifikationen in entsprechenden Verfahrensschritten das Verhältnis O/Me bei Werten < 2,00 eingestellt werden muß. Da dies insbesondere unter Einhaltung enger Durchmessertoleranzen zu geschehen hat, wurde vorrangig eine Anzahl von Experimenten ausgeführt, die Aufschluß über die Herstellungsmöglichkeiten solcher Brennstofftabletten geben sollten.

#### Bestimmung des O/Me-Verhältnisses

Die Bestimmung des O/Me-Verhältnisses geschah mit Hilfe einer Thermowaage [1], die dem Betrieb in einem Pu-Handschuhkasten angepaßt worden war. Das Probengewicht, das sich bei Konstantglühung bei 1000°C unter einem mit Wasserdampf bei 0°C gesättigtem Helium-6 %-Wasserstoff-Gemisch einstellt, bildet die Basis für die Berechnung des O/Me-Verhältnisses. Die Standardabweichung des Meßverfahrens beträgt zwischen  $\pm$  0,0029 und  $\pm$  0,0069 Einheiten bei O/Me-Verhältnissen um 1,95.

#### Sonstige Arbeitsbedingungen

Als Probenmaterial wurden UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Mischungen verwendet, die wie üblich mechanisch gemischt, granuliert, gepreßt und unter CO<sub>2</sub> entwachst worden waren. Alle Sinterungen und Glühungen wurden im Sinterofen VSL 10/18 der Fa. Degussa ausgeführt. Dieser als Vakuumofen konzipierte Sinterofen ist nicht in idealer Weise für reduzierende Glühungen unter Gasgemischen geeignet, da seine beheizte Zone durch einen Strahlschirmmantel umgeben ist. Der Gasaustausch findet, wie die Ergebnisse der Glühungen zeigen, jedoch in ausreichendem Maß statt. Als Reduktionsgas wurde einheitlich ein Argon-5 %-Wasserstoffgemisch genommen, das den Ofen mit 2 Liter/h durchströmte. Dabei handelte es sich hinsichtlich seiner Reinheit um ein Standardgemisch. Einige typische Analysen zeigt Tabelle 2. Die bei den einzelnen Veruchen gewählten Temperaturen und die Sinter- bzw. Glühzeiten sind in den Tabellen eingetragen.

Tabelle 2 Wasser- und Sauerstoffgehalt von Argon-5 %-Wasserstoffgemisch

Flasche	H2	H <sub>2</sub> O	0 <sub>2</sub>	Ar
Nr.	(Vol%)	(Vpm)	(Vpm)	
142 683	5,15	2,2	0,6	Rest
141 363	4,95	2,4	0,4	Rest
116 527	5,10	3,6	8,4	Rest

#### Ergebnisse

Der Schwerpunkt der Experimente lag auf der Bestimmung des Einflusses der Sinterzeit, des PuO<sub>2</sub>-Anteiles im Brennstoff und der Glühdauer bzw. Glühtemperatur bei bereits gesinterten, in weiteren Verfahrensschritten bearbeiteten Tabletten auf die Stöchiometrie. Da die Experimente teilweise nur mit kleinen Materialmengen (10 bis 75 g) durchgeführt werden konnten, bedarf es insbesondere hinsichtlich der Herstellung größerer Tablettenmengen noch einiger ergänzender Versuche. Die hier dargestellten Ergebnisse zeigen jedoch bereits wesentliche Tendenzen an.

#### - Sinterzeit:

Ein Einfluß der Sinterzeit auf den O/Me-Wert bei Tabletten "erster Hitze" ist nicht ausgeprägt. Diese Tabletten besaßen einen PuO<sub>2</sub>-Anteil von 25 %. Tabelle 3 enthält die Einzelwerte.

Sinterzeit	2 h	2 x 2 h	2 + 2 + 24 h
	1,956	1,958	1,958
	1,962	1,957	1,959
	1,956	1,967	1,954
	-	-	1,954
	-	-	1,948
	<b></b>		1,940
Mittelwert	1,958	1,961	1,952
Sintertempe- ratur		1610 <sup>°</sup> C	

#### Tabelle 3 Tablettenstöchiometrie in Abhängigkeit von der Sinterzeit

- PuO2-Anteil:

Zu dieser Untersuchung wurden Tabletten aus früheren Sinterungen 24 h lang geglüht. Die PuO<sub>2</sub>-Anteile lagen bei 15, 20, 25 und 35 %. Die Messungen ergaben eine klare Abhängigkeit der O/Me-Werte vom PuO<sub>2</sub>-Anteil im Brennstoff. In Tabelle 4 sind die Meßwerte dazu eingetragen.

Tabelle 4: Tablettenstöchiometrie bei verschiedenen Pu02-Gehalten

Pu02-Gehalt	15 %	20 %	25 %	35 <b>%</b>
	1,967	1,954	1,953	_
	· •••	1,951	1,945	1,934
0/Me-Werte	-	1,953	1,940	1,923
	-	1,955	1,934	-
	-	-	1,942	
0/Me- Mittelwert	1,967	1,953 1,943 <sup>+</sup>		1,929
Sintertemperatu	r	1610	°c	

+ Vergleichsmessungen bei Fa. ALKEM: 1,945 und 1,943

Sofern Bestrahlungsexperimente als Parametertests ausgelegt sind, ist das Einhalten sehr enger Toleranzen unbedingt notwendig. Hinsichtlich des Tablettendurchmessers bedeutet dies, daß die Tabletten auf einer spitzenlosen Rundschleifmaschine genau auf den vorgeschriebenen Durchmesser geschliffen werden müssen. Wegen des sich daran anschließenden Trocknungsprozesses oxidieren die Tabletten wieder zu O/Me-Werten von 2,00 auf. Somit wird eine weitere Glühung erforderlich, mit der die Tabletten erneut auf 0/Me-Werte um < 2,00 reduziert werden müssen. Dabei ist jedoch zu beachten, daß diese Glühung bei möglichst niedriger Temperatur ausgeführt wird, damit die Tabletten durch das Nachsintern ihre Abmessungen nur in möglichst geringem Maß verändern. Solange diese Änderungen nicht über einige 0,01 mm hinausgehen, können sie beim Schleifen entsprechend berücksichtigt werden. Durch einige Vorversuche wurde erkannt, daß selbst bei langen Glühzeiten die Temperatur von 1000°C zu keiner Reduktion führt. Es sind vielmehr Temperaturen im Bereich der Sintertemperatur erforderlich.

Einige Tabletten wurden daher nach dem Schleifen und Trocknen (0/Me = 2,00) bei 1250°C, 1440°C und 1620°C zwei Stunden lang unter Argon-Wasserstoff geglüht. Der Tabelle 5 ist zu entnehmen, daß mit steigender Glühtemperatur der 0/Me-Wert von 1,967 auf 1,953 absinkt. Es lassen sich also mit Hilfe der Glühtemperatur unterschiedliche 0/Me-Werte einstellen.

Tabelle 5 0/Me-Werte in Abhängigkeit von der Glühtemperatur

Glühtem-	0/Me-Wert				
(°C)	1	2	3	4	m
1250	1,965	1,969	1,965	1,970	1,967
1440	1,961	1,964	1,962	1,965	1,963
1610	1,949	1,957	1,954	1,953	1,953

- Nachsinterverhalten bei der Reduktionsglühung:

Aufgrund rechnerischer Abschätzung 27 muß die Reduktion des  $U0_2$ -Pu $0_2$ -Brennstoffes mit einer Volumenzunahme einhergehen. Man kann daher eine

Kompensation des Nachsinterns erwarten. Bei der Auswertung der bis dahin vorliegenden Glühversuche ergaben sich zunächst nur einige Hinweise darauf.

In einem weiteren Versuch wurden deshalb Tabletten verwendet, deren Nachsinterrate bei Sintertemperatur nur ca. 0,6 % th.D. betragen konnte  $\boxed{3}$ . Diese Tabletten, geschliffen, getrocknet (0/Me = 2,00) und genau vermessen, wurden bei drei verschiedenen Temperaturen geglüht; danach wiederum vermessen, gewogen und ihr 0/Me-Wert bestimmt (Tabelle 6).

Tabelle 6 Änderung von Gewicht, Höhe, Durchmesser und Dichte beim Glühen geschliffener Tabletten

Glüh- temperatur (°C)	⊿G (mg)	⊿h (μ)	<u></u> ⊿ø (μ)	⊿D (% th.D.)
1250	- 1,36	+ 1,9	+ 1	- 0,21
1440	- 1,69	+ б	+ 1,6	- 0,28
1610	- 3,11	+ 3	- 5,6	- 0,03

Aus den Ergebnissen ergibt sich folgendes:

Bei 1250°C tritt eine merkliche Reduktion (0/Me=1,967) ein, mit ihr geht eine geringe Volumenzunahme einher, die in einer Dichteverringerung resultiert; Nachsintererscheinungen treten hier nicht auf. Bei 1440°C ist die Reduktion stärker (0/Me =1,963)damit ist auch die Volumenzunahme ausgeprägt. Die Zunahme der Tablettenhöhe überschreitet deutlich die Zunahme des Durchmessers. Da Schrumpfungsraten in Preßrichtung (= Tablettenhöhe) regelmäßig kleiner als die in senkrechter Richtung dazu (Tablettendurchmesser) gefunden werden, wirken sich Volumenzunahmen zunächst in der Tablettenhöhe aus. Ein sehr geringfügiges Nachsintern bedingt nur noch eine geringe Zunahme des Durchmessers. Gemeinsam ergeben diese Erscheinungen eine weitere Verringerung der Dichte. Bei 1610°C der Sintertemperatur werden die Tabletten noch stärker reduziert (0/Me =1,953). Die Volumenzunahme wird jedoch jetzt durch das Nachsintern überkompensiert, d.h. die Zunahme der Höhe wird geringer und der Tablettendurchmesser kleiner . Als Ergebnis findet man eine praktisch unveränderte Dichte. Als wichtigstes Ergebnis zeichnet sich aus dieser Tatsache ab, daß auch bei 1610°C der Tablettendurchmesser nur so wenig sich verringert, daß selbst

sehr enge Durchmessertoleranzen eingehalten werden können. Damit scheint ein Verfahren vorgezeichnet, das die Einhaltung enger Durchmessertoleranzen bei gleichzeitiger Einstellung niedriger O/Me-Werte gestattet.

#### - Ofenbeladung:

Um Aufschluß über die Reduktion einer größeren Tablettenmenge zu erhalten, wurden 50 Tabletten (ca. 75 g $UO_2/PuO_2$ -Material) auf ein Blech des Chargiergestells gestellt (Abb. 1) und gesintert. Die paarweise umrandeten Tabletten wurden entnommen und ihr O/Me-Wert bestimmt. Die Ergebnisse zeigt Abb. 1. Sie sind sehr einheitlich; die Standardabweichung beträgt  $\pm$  0,0029 Einheiten. Gegenüber Glühungen mit nur wenigen Tabletten ist eine geringe Tendenz zu erkennen, daß bei größerer Ofenbeladung unter sonst gleichen Bedingungen ein etwas höherer O/Me-Wert gefunden wird. Dem hier gefundenen Mittelwert von 1,967 ist in diesem Zusammenhang der Wert aus der ersten Spalte der Tabelle 2 - 0/Me-Wert 1,958 - zuzuordnen.

#### - Einfluß der Lagerdauer auf die Stöchiometrie:

Die Vermutung, daß Tabletten mit O/Me-Werten um 1,95 bei Lagerung an Raumluft aufoxidieren, hat sich bei diesen Versuchen nicht bestätigt. Zwischen der Entnahme der Tabletten aus der Argon-Wasserstoffatmosphäre des Sinterofens und der Messung des O/Me-Wertes lagen Zeiten von einigen Stunden bis ca. 3 Wochen. Sofern in den Tabellen kleine Meßreihen angegeben sind, sind die Einzelwerte in zeitlicher Reihenfolge ihrer Messung geordnet. Geht man davon aus, daß pro Tag zwei bis drei Messungen ausgeführt wurden, kann man die Lagerzeit der gemessenen Tabletten abschätzen. Die erwähnten längeren Zeiten ergaben sich aus organisatorischen Gründen.

#### Zusammenfassung

An Hand mehrerer Einzelversuche zeigte sich, daß UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Tabletten mit einer Stöchiometrie zwischen 1,93 und 2,00 hergestellt werden können. Die Arbeitsbedingungen hängen im Einzelfall u.a. vom PuO<sub>2</sub>-Gehalt des Brennstoffes ab. Es zeichnet sich eine Möglichkeit ab, niedrige Brennstoffstöchiometrie bei Einhaltung enger Durchmessertoleranzen zu erzielen. Sofern die hier mitgeteilten Ergebnisse auf große Tablettenmengen übertragen werden sollen, sind weitere gezielte Vorversuche notwendig.



Probe-Nr.	0/M <b>e-</b> Wert
1 - 8	1,964
31 - 39	1,968
48 - 49	1,966
30 - 38	1,969
6 - 7	1,962
16 - 24	1,972
41 - 42	1,965
20 - 28	1,970
11 - 12	1,965
26 - 33	1,968
27 - 35	1,967
m <sub>.</sub>	1,9669
S	± 0,0 <b>0</b> 29

# Abb.1

Aufstellung der Tabletten im Sinterofen,

( *zur O/Me-Messung entnommene Tablettenpaare*).

2. Herstellung von Brennstoff und Bestrahlungseinsätzen für die Kriech-

experimente FR 2-73d

(Th. Dippel, J.H. Esteban, H. Nagel, M. Wittmann, IMF)

Zur Fortsetzung der Kriechexperimente FR 2-73d waren weitere Kriechkapseln anzufertigen. Der benötigte Brennstoff wurde im Gegensatz zu früheren Verfahren [4] durch Pressen und Sintern von Brennstoffscheiben und anschließendem Ausbohren der hinsichtlich Dichte und Höhe kontrollierten  $U0_2-15$  %-Pu $0_2$ -Scheiben hergestellt. Diese ringförmigen Brennstoffscheiben zeichnen sich vor allem durch nahezu völliges Fehlen jeglicher Kantenabplatzungen und Ausbrüche aus. Dieses Herstellungsverfahren ist deshalb dem früher benutzten vorzuziehen.

Der Einbau des Brennstoffes in die Kriechkapseln folgte dem bisherigen Verfahren  $\sqrt{5}$ .

3. Bestimmung der Pulveraktivität von UO<sub>2</sub>-Pulvern verschiedener Vorbehandlung (H. Pollanz, IMF)

Im Rahmen der Charakterisierung von Brennstoffpulvern wurden die Pulveraktivitäten von  $UO_2$ -Pulvern verschiedener Vorbehandlung mit Hilfe der Differential-Thermo-Analyse (DTA) gemessen. Die verwendeten  $UO_2$ -Pulver, A, B, C und D, sind in Abb. 2 beschrieben; sie wurden aus unterschiedlich gesinterten Pellets von Pulver D durch Brechen und Mahlen gewonnen. <u>Pulver D</u> war handelsübliches  $UO_2$ -Pulver vom Typ "ceramic grade" der Firma NUKEM mit 70 % der Teilchengröße kleiner als 32 µm und einer spezifischen Oberfläche von 5,8 m<sup>2</sup>/g. <u>Pulver A</u> wurde durch Brechen und Sieben von Pellets erzielt, welche bei 1500°C in Ar/5 %-H<sub>2</sub> 32 Stunden gesintert worden waren. <u>Pulver B</u> wurde durch einstündiges Mahlen des Pulvers A in einer Planetenkugelmühle hergestellt; seine spezifische Oberfläche betrug 0,8 m<sup>2</sup>/g. <u>Pulver C</u> wurde aus gebrochenen Pellets hergestellt, welche bei 1500°C in Ar/5 %-H<sub>2</sub> nur 16 Stunden gesintert worden waren; die Mahldauer war ebenfalls eine Stunde und die spezifische Oberfläche betrug 0,5 m<sup>2</sup>/g.

Alle Pulver wurden in der DTA-Apparatur mit einer Aufheizrate von 10<sup>°</sup>/min in reinem Argon gemessen. Als Referenzprobe wurde ein Al<sub>2</sub>0<sub>3</sub>-Pulver verwendet. Zur Eichung diente ein BaCO<sub>3</sub>-Standard.

Abb. 2 zeigt die beim Aufheizen der Pulver A, B, C und D freigesetzte Energie als Temperaturunterschied in Abhängigkeit von Zeit und Temperatur. Pulver C 112-13

erzielt einen höheren exothermen Temperaturunterschied als die Pulver B und A wegen der kürzeren Glühbehandlung (16 Stunden) der Pellets, aus denen C hergestellt wurde. Die Pulver A und B mit gleichlanger Glühbehandlung (32 Stunden) der Pellets unterschieden sich in den DTA-Kurven nur wenig; B weist wegen der Mahlbehandlung einen etwas größeren Temperaturunterschied auf als A. Pulver D ergibt wegen seines ungeglühten Ausgangszustandes und seiner großen spezifischen Oberflächenenergie den höchsten Temperaturunterschied.

Aus den Ergebnissen kann geschlossen werden, daß die spezifische Oberfläche kein Maß für die freigesetzte Energie (Temperaturunterschied) ist. Pulver C mit einer BET-Oberfläche von 0,5 m<sup>2</sup>/g setzt mehr Energie frei als Pulver B mit 0,8 m<sup>2</sup>/g. Der geringe Temperaturunterschied zwischen dem Pulver A mit seiner sehr geringen BET-Oberfläche (Teilchengröße zwischen 125 und 500 µm) und dem Pulver B spricht ebenfalls gegen einen stärkeren Einfluß der Oberflächenenergie auf den gesamten Energiezustand der Pulver. Vielmehr nimmt die Energie, welche als Flächenbetrag zwischen den einzelnen DTA-Kurven (als meßbarer Anteil der ingesamt bei der Messung freigesetzten Energie) erscheint, mit zunehmender Dauer der Glühbehandlung immer mehr ab. Man darf deshalb annehmen, daß die "Vorgeschichte" des UO2 die Pulveraktivität entscheidend beeinfluß. Bei Pulvern gleicher Vorgeschichte kann die spezifische Oberfläche ein Maß für die Einordnung verschiedener Pulver hinsichtlich ihrer Aktivität sein. Der Energiezustand von UO2-Pulver kann jedoch nicht aus Messungen der spezifischen Oberfläche ermittelt werden. UO2-Pulver unterschiedlicher Herkunft sollten auch durch Messung der integralen Pulveraktivität charakterisiert werden, wofür die DTA einen Relativwert liefert. Es wäre interessant zu prüfen, ob mit Hilfe solcher DTA-Meßwerte das Sinterverhalten verschiedener UO2-Pulver vorausgesagt werden kann.

### Literatur

[1] D. Vollath; Eine verbesserte gravimetrische Methode zur Bestimmung des O/M-Verhältnisses und des Wassergehaltes in oxidischen Kernbrennstoffen (unveröffentlicht)

[2]

- D. Vollath; persönliche Mitteilung
- Th. Dippel, E. Günther; Zum Nachsinterverhalten von UO2-PuO2-Brennstofftabletten, KFK (erscheint demnächst)
- 4 KFK 1271/4
  - 7 KFK 1272/1



 Herstellung von Mischoxid-Spaltprodukt-Proben für out-of-pile
<u>Verträglichkeitsuntersuchungen</u> (Th.Dippel, E.Günther, P.Hofmann, H.Metzger, IMF)

Um das Reaktionsverhalten von simuliertem abgebranntem Mischoxid-Brennstoff gegenüber rostfreien austenitischen Stählen (1.4401, 1.4970, 1.4981, 1.4988) zu ermitteln, wurden Kernbrennstoff-Spaltprodukt-Mischungen unterschiedlicher Spaltproduktzusammensetzung und O/M-Verhältnisse hergestellt. Der simulierte Abbrand betrug einheitlich 10 At.-%. Zum Einsatz kamen hauptsächlich "vollsimulierte Abbrandsysteme", in denen nahezu alle während der Kernspaltung gebildeten Spaltprodukte im Kernbrennstoff in oxidischer oder elementarer Form zugegeben werden (Tab.1). Als gegenüber dem Hüllmaterial reaktive Spaltprodukte werden jedoch nur die Elemente Cs,J,Se und Te betrachtet, weshalb mit dieser Gruppe getrennte Untersuchungen durchgeführt wurden ("teilsimulierte Abbrandsysteme"). Neben den chemischen Wechselwirkungen zwischen den simulierten Abbrandsystemen und den rostfreien Stählen sollte auch die Wirkung von Sauerstoff- und Spaltproduktgettern wie Zr,Ti und Nb untersucht werden.

Die Herstellung der Kernbrennstoff-Spaltprodukt-Mischungen erfolgte durch Zumischen der Spaltprodukte der Tab.7 (ausser Se,Te,Cs,J) zum Mischoxid  $U_{0,75}Pu_{0,25}O_{2,00}$  ähnlich wie beim  $UO_2^{++)}$ . Vor dem Einsatz der simulierten Abbrandsysteme wurde das Pulver zu Pellets verpresst und anschliessend bei  $1500^{\circ}C/15$  h und  $1600^{\circ}C/1$  h unter einer Argon-Wasserstoff-Atmosphäre homogenisiert. Bei diesen Bedingungen wurde kein vollständiges Gleichgewicht erreicht -ausser dem gewünschten Sauerstoffpotential-, was aber für die Verträglichkeitsuntersuchungen auch nicht notwendig ist. Die Kernbrennstoff-Spaltprodukt-Mischung hatte nach der Homogenisierung ein Sauerstoffpotential, das dem eines reinen Mischoxids von 25 Mol.-% PuO<sub>2</sub> mit einem 0/M = 1,95 entsprach. Da Versuche mit unter- und überstöchiometrischen simulierten Abbrandsystemen durchgeführt werden sollten, wurde ein Teil der Proben in einer reinen CO<sub>2</sub>-Atmosphäre bei 900<sup>o</sup>C aufoxidiert; die Glühzeit betrug 24 h. Das O/M-Verhältnis des Mischoxids wurde dabei von

++) P.Hofmann, O.Götzmann KFK 1272/2, S.112-27 bis 28

<sup>+)</sup> Th.Dippel, E.Günther, P.Hofmann, H.Metzger KFK 1272/2, S.112-24 bis 26

1,95 auf 2,03 erhöht. Schliffbildaufnahmen des reinen Mischoxids und des simulierten abgebrannten Brennstoffs sind in Abb.3 und 4 wiedergegeben. Man erkennt sehr deutlich die metallischen und oxidischen Spaltproduktausscheidungen im  $(U,Pu)O_{2\pm x}$ . Beim  $(U,Pu)O_{1.95}$  ist der Anteil der metallischen Spaltprodukte sichtbar grösser (Abb.3) als beim  $(U,Pu)O_{2.03}$ (Abb.4).

Nach der Homogenisierung wurden die Proben gemahlen, die leicht flüchtigen Spaltprodukte Se,Te und Jod (in Form von CsJ) hinzugefügt und das Pulver in die Hüllmaterialnäpfchen gepresst. Cs wurde dem verpressten Pulver in flüssiger Form zugegeben. Die Näpfchen wurden dann mit einem konischen Stöpsel gasdicht verschlossen. Alle Arbeiten wurden in einer Handschuhbox unter reinstem Helium durchgeführt ( $H_20+O_2$ -Gehalt <5 ppm).

Zum Vergleich wurden auch Verträglichkeitsproben mit nicht homogenisierten Kernbrennstoff-Spaltprodukt-Mischungen hergestellt. Die O/M-Verhältnisse der Mischoxide betrugen 1,98 und 2,03.

Die Verträglichkeitsproben wurden in Glühkapseln aus Stahl eingebracht, die dann in Quarzampullen unter Vakuum eingeschweisst wurden<sup>+)</sup>. Die Glühungen werden bei 700 und 800°C in Muffelöfen durchgeführt, die Glühzeit beträgt 1000 h.

Simulierte Spaltprodukte	eingesetzte Form	Metallanteil pro 1 g (U,Pu)O <sub>2</sub>
Ba (Sr)	Ba02	0,0056
Mo	Mo	0,0121
Ru(Rh,Ag)	Ru	0,0133
Pd	Pd	0,0041
Ce(La)	CeO <sub>2</sub>	0,0133
Nd (Pr,Pm,Sm,Eu)	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,0134
Zr	Zr,Zr0 <sub>2</sub>	0,0075
Те	Te	0,0052
Se	Se	0,0001
J(Br)	J	0.0042
Cs(Rb)	Cs	0,0084
od.Cs(Rb)	CsJ+Cs	0,0045 + 0,0039

<u>Tab. 7</u>: Simulierte Spaltprodukte (Simulierter Abbrand 10 At.-%) Angabe der Einwaagen pro 1 g (U,Pu)O<sub>2</sub> für den reinen Elementanteil in g

Elemente mit ähnlichem chemischen Verhalten werden durch das Element repräsentiert, das entsprechend der Spaltproduktausbeute in grösserer Konzentration vorliegt.

<sup>+)</sup> Th.Dippel, E.Günther, P.Hofmann, H.Metzger KFK 1272/2. S.112-24 bis 26



(U<sub>0,75</sub>, Pu<sub>0,25</sub>)0<sub>1,95</sub> homogenisiert bei 1500<sup>°</sup>C/15 h und 1600<sup>°</sup>C/1 h

---- 20 µm

۲



Abb. 3:  $(U_{0,75}, Pu_{0,25})_{1,95}$  + BaO+Mo+Ru+Pd+CeO<sub>2</sub>+Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+ZrO<sub>2</sub> homogenisiert bei 1500<sup>o</sup>C/15 h und 1600<sup>o</sup>C/1 h (simulierter Abbrand 10 At.-%)



(U 0,75,<sup>Pu</sup> 0,25)0<sub>2,03</sub> homogenisiert bei 1500<sup>°</sup>C/15 h und 1600<sup>°</sup>C/1 h

\_\_\_\_ 20µm



Abb. 4:  $(U_{0,75}, Pu_{0,25})_{2,03}^{\circ}$  + BaO+Mo+Ru+Pd+CeO<sub>2</sub>+Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+ZrO<sub>2</sub> homogenisiert bei 1500<sup>o</sup>C/15 h und 1600<sup>o</sup>C/1 h (simulierter Abbrand 10 At.-%)

- 1121.2 Untersuchung der thermodynamischen und chemischen Eigenschaften \*
  - 1. Verträglichkeitsuntersuchungen mit voll- und teilsimulierten Abbrandsystemen (P.Hofmann, O.Götzmann, IMF)

Die Herstellung und Zusammensetzung der UO<sub>2</sub>-Abbrandsysteme wurde im 2.Vierteljahresbericht 1972 (KFK 1272/2) beschrieben, für  $(U,Pu)O_2$  in diesem Bericht (s.o.).

Die ersten Versuchsergebnisse mit den verschiedenen Kernbrennstoff-Spaltprodukt-Mischungen bestätigen die thermodynamischen Abschätzungen, dass für die chemischen Wechselwirkungen mit dem Hüllmaterial hauptsächlich die Spaltprodukte Cs,J und Te verantowrtlich sind. Die Versuche bei Temperaturen zwischen 400 und  $800^{\circ}$ C und Glühzeiten von 1000 h zeigen sowohl beim  $U0_{2\pm x}$  als auch beim  $(U,Pu)0_{2\pm x}$  die gleiche Tendenz, d.h. der Hüllmaterialangriff ist von der Temperatur, dem Sauerstoffpotential, der Spaltprodukt-Zusammensetzung und der Spaltprodukt-Konzentration abhängig (Abb. 5-9). Erste Reaktionen finden bereits bei  $400^{\circ}$ C statt.

Der Unterschied im Reaktionsverhalten des vollsimulierten Abbrandsystems, das alle Spaltprodukte enthält, mit dem Hüllmaterial aus rostfreiem Stahl (1.4988) im Vergleich zum teilsimulierten System, das nur die reaktiven Spaltprodukte Cs,J,Te und Se enthält, ist klein (Abb.8,9). Wurden dem Brennstoff alle Spaltprodukte ausser Cs,J,Te und Se zugefügt, so waren keine nennenswerten Reaktionen mit der Hülle festzustellen (<3  $\mu$ m)(Abb.10). Der Reaktionsumfang entsprach in diesem Fall dem des reinen überstöchiometrischen Kernbrennstoffs UO<sub>2.08</sub> bzw. U<sub>0.7</sub>Pu<sub>0.3</sub>O<sub>2.08</sub>. Durch die reaktiven Spaltprodukte, im wesentlichen Cs, findet ein beschleunigter oxidativer Angriff der Hülle statt. Dieser Angriff ist stark vom Sauerstoffpotential des Brennstoffes abhängig und kann bei genügend kleinen O/M-Verhältnissen des Brennstoffes fast vollständig unterdrückt werden.

Die in Abb. 5-10 simulierten Spaltprodukte (SP) waren: BaO, CeO<sub>2</sub>, Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ZrO<sub>2</sub>, Mo, Ru, Pd, Te, Se, J, Cs.



sim. Abbrand: 20 At.-% Abb. 7 20 µm





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

Als lokale Sauerstoffgetter im Brennstab -zwischen Brennstoff und Brutstoff- kommen hauptsächlich Zr und Ti wegen ihrer hohen Sauerstoffaffinität in Betracht. Es wurden deshalb Oxidationsversuche und Schwellversuche (Volumenzunahme während der Oxidation) mit Zr- und Ti-Pellets durchgeführt. Die Ergebnisse für das Zr wurden bereits früher dargestellt<sup>+)</sup>.

#### a) Ti-Getter

Ti hat gegenüber dem Zr als Sauerstoffgetter den grossen Nachteil, dass die Geschwindigkeit der Oxidation erheblich kleiner ist. Während die Zr-Pellets bereits bei 500°C an Luft innerhalb von Stunden vollständig oxidiert waren, ist das bei den Ti-Pellets selbst nach mehreren Monaten nicht der Fall. Eine vollständige Oxidation des Ti zu TiO<sub>2</sub> (Rutil) erfolgt erst bei Temperaturen oberhalb 700°C. Der Grund für die langsamere Oxidation von Ti-Pellets im Gegensatz zu Zr-Pellets dürfte die festhaftende Oxidschicht sein. Die Diffusion von Sauerstoff durch die Oxidschicht bestimmt dabei die Geschwindigkeit für den Reaktionsablauf.

Die Oxidation von Ti zu TiO<sub>2</sub> (Rutil) bedingt -unter der Voraussetzung eines vollkommen dichten Endproduktes- eine Volumenzunahme von ca.77%. Ein 100% dichtes TiO<sub>2</sub> kann in einem dünnen Hüllrohr aus rostfreiem Stahl (1.4988; 6x0,4mm) jedoch nicht ohne Aufweitung erreicht werden. Für den Einsatz des Sauerstoffgetters in einem Brennstab ist es deshalb wichtig, die maximale TiO<sub>2</sub>-Enddichte zu kennen, bei der sich das Hüllrohr nicht über einen zulässigen Wert von ca.1% aufdehnt. Es wurden deshalb Schwell-Versuche mit Ti-Getterpellets in Hüllrohren durchgeführt, um deren Aufweitung in Abhängigkeit der TiO<sub>2</sub>-Dichte zu ermitteln. Die Ti-Pellets wurden durch Pressen und Sintern unter Hochvakuum bei 800°C/o,5 h hergestellt; die Dichte betrug etwa 49% TD. Die Versuchsanordnung war die gleiche wie bei den Oxidationsversuchen mit Zr-Pellets (KFK 1272/2). Die Hüllmaterial-Getter-Proben wurden zwischen 700 und 900°C an Luft geglüht.

+) P.Hofmann, O.Götzmann KFK 1272/2 Als Ergebnisse der Untersuchungen über die Volumenvergrösserung bei der Oxidation von Ti-Pellets in Hüllrohren kann man festhalten:

- Die maximal zulässige Enddichte des TiO<sub>2</sub> liegt bei ca. 75% TD (entsprechend einer Schmierdichte des eingesetzten Ti-Pellets von 40% TD). Die Hüllrohraufweitung beträgt bei dieser Dichte ≤0,5%. Die maximale Aufweitung bei 100% dichtem TiO<sub>2</sub> beträgt etwa 4%.
- 2.) Die erforderliche Oxidationstemperatur für Ti-Pellets liegt oberhalb 700°C. Bei Temperaturen unterhalb 700°C ist die Geschwindigkeit der Oxidation sehr klein.

Durch die erforderliche hohe Einsatztemperatur der Ti-Pellets als Sauerstoffgetter ( $\geq 700^{\circ}$ C) wird deren Verwendung in einem Brennelement wahrscheinlich in Frage gestellt. Beim Einsatz von Zr-Pellets sind bereits Temperaturen um 500°C ausreichend. Andererseits besitzt das Ti gegenüber dem Zr den Vorteil einer grösseren Enddichte des Oxidationsproduktes, d.h. die Schmierdichte der Ti-Pellets kann grösser gemacht werden (ca. 40% TD gegenüber etwa 30% TD beim Zr). Das hat zur Folge, dass die Brennstablänge für die Unterbringung der erforderlichen Gettermenge beim Ti erheblich kürzer ist als beim Zr (s. Tab. 8).

b) Zr-Getter

Beim Einsatz von Zr als Getter muss der direkte Kontakt zwischen Brennstoff, Hüllmaterial und Zr vermieden werden, um die Bildung von intermetallischen Phasen auszuschliessen, die das Verträglichkeitsverhalten verschlechtern. Zr wurde deshalb in Getterpatronen eingesetzt, wie sie im 2.Vierteljahresbericht 1972 (KFK 1272/2) beschrieben wurden (Zr-Pellets in einseitig geschlossenen Stahlrohren der Abmessungen 5x0,25 mm). Schwellversuche mit diesen Getterpatronen in Hüllrohren aus 1.4988 (6x0,4 mm) ergaben eine ZrO<sub>2</sub>-Enddichte von ca.65% TD bei einer Hüllrohraufweitung <1%. Die grössere ZrO<sub>2</sub>-Dichte von 65% gegenüber 50% TD ohne Getterpatrone gleicht das kleinere verfügbare Volumen pro Brennstablänge aus, so dass die erforderliche Brennstablänge zur Unterbringung der Zr-Gettermenge etwa der ohne Getterpatrone entspricht (s.Tab. 8).

Ausgangs- stöchiome- trie des	Ti-Getter- menge	Getter- länge	Zr-Getter- menge	Getter- länge	Getterlänge f.Getter- patrone
Brennstoffs O/M	(g)	(cm)	(g)	(cm)	(cm)
1,96	0,86	2,3	1,65	4,0	3,9
1,98	1,14	3,0	2,17	5,2	5,1

## Tabelle 8: Erforderliche Zr- und Ti-Gettermenge für einen SNR-300 Brennstab (Berechnungsgrundlagen s. KFK 1272/2)

<sup>3.</sup> Möglichkeiten zur Reduzierung der chemischen Wechselwirkungen von Oxidbrennstoffen und Spaltprodukten mit dem Hüllmaterial durch lokale Getter (P.Hofmann, O.Götzmann, IMF)

Über die prinzipielle Wirkung von Gettermaterialien zur Reduzierung der Sauerstoff- und Spaltproduktpotentiale und deren Anbringung im Brennelement wurde bereits früher berichtet<sup>+)</sup>.

#### Getterfolien zwischen Brennstoff und Hülle

Unterschiedlich starke Nb-Folien (25 und 50 µm), die an die Innenseite der Hülle gelegt wurden, konnten Reaktionen mit überstöchiometrischem Brennstoff (UO<sub>2.08</sub> und (U,Pu)O<sub>2.08</sub>), dem Spaltproduktelemente entsprechend einen Abbrand von 10 und 20 At.-Z zugemischt waren, vollständig verhindern (Abb.11-48). Selbst wenn Brennstoff und Spaltprodukte zwischen Hülle und Folie gelangen, wie es beim Mischoxid teilweise der Fall war (Abb.48), sind nur sehr schwache Reaktionen (<3 µm) mit dem rostfreien Stahl (1.4988) festzustellen. Nb reduziert das Sauerstoffpotential im Brennstab bei allen Temperaturen so stark, dass die durch Spaltprodukte (Cs) beschleunigte Oxidation der Hülle verhindert wird; ausserdem werden die Spaltprodukte Te und Se durch Nb abgebunden (KFK 1272/1). Sehr wahrscheinlich genügteine ca.20 µm starke Nb- Folie auf der Innenseite der Hülle, um die Hüllmaterialreaktionen während eines Abbrandes von etwa 10 At.-Z zu vermeiden.

#### Getterpellets zwischen Brennstoff und Brutstoff

Zr, das als Pulverpressling lokal, d.h. ohne direkten Brennstoffkontakt (KFK 1272/2), in eine Brennstabprobe eingebracht wurde, konnte das Verträglichkeitsverhalten beim Mischoxid deutlich verbessern (Abb.17,19), während beim Uranoxid die Reaktionen mit der Hülle nur geringfügig schwächer sind (vgl. Abb.11,20). Man erhielt bei 700 und 800<sup>°</sup>C die gleichen Ergebnisse.

Ähnlich wie Zr kann man auch metallisches Uran als lokalen Getter verwenden. In den Brennstoff wurde eine metallische Uranscheibe eingebracht, die jedoch im Gegensatz zum Zr direkten Kontakt mit dem Brennstoff hatte.

+) P.Hofmann, O.Götzmann KFK 1272/1, KFK 1272/2 Die Ergebnisse waren mit Uran bei 700 und 800<sup>°</sup>C/1000 h wesentlich besser als mit Zr. Die Hüllangriffe konnten fast vollständig verhindert werden (Abb.11).

Die Versuchsbedingungen, die bei diesen out-of-pile Untersuchungen herrschen, sind jedoch zu ungünstig, um die Wirksamkeit von lokalen Gettern zu untersuchen. Bei den Proben mit einem simulierten bestrahlten Brennstoff kommt gleich zu Beginn der Glühung das ganze Reaktionspotential zur Wirkung. Die Reaktionen der Hülle laufen in Konkurrenz mit dem Gettermaterial ab. Während des Reaktorbetriebes dagegen fallen die reaktiven Spaltprodukte und der Sauerstoff entsprechend der Abbrandgeschwindigkeit an. Das Reaktionspotential dürfte dort durch die Wirkung des Getters immer unter dem für Hüllangriffe notwendigen Potential gehalten werden werden können. Dies gilt zumindest für das Sauerstoffpotential.

Die in Abb.11- 21 simulierten Spaltprodukte (SP) waren: BaO, CeO<sub>2</sub>, Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ZrO<sub>2</sub>, Mo, Ru, Pd, Te, Se, J, Cs.


Abb.13



gleiche Probe wie Oben: geätzt 20 µm -----

Abb.16



Nb-Folie: 50 µm Abb.18



 1.4988+U0
 2.08+SP
 800°C/100

 sim. Abbrand: 10 At.-%
 20 µm

 lokaler U-Getter
 Abb. 11

#### 1121.4 Mikrosondenuntersuchungen\*

Nachbestrahlungsuntersuchungen mit der Mikrosonde am Bestrahlungsexperiment Mol 7A (H. Kleykamp, H.-D. Gottschalg, G. Halm, IMF)

Die Nachuntersuchungen am Bestrahlungsexperiment Mol 7A, das als weitgehende Simulation der Verhältnisse in einem Schnellbrüter-Prototyp im cadmiumgehärteten Neutronenfluß des Reaktors BR2 durchgeführt wurde, konnten mit der abgeschirmten Cameca-Mikrosonde zum Abschluß gebracht werden.

Das Ziel dieser Untersuchungen bestand in der Gewinnung von Kenntnissen über die radiale und axiale U- und Pu-Entmischung sowie über die Zusammensetzung und Verteilung von metallischen und oxidischen Spaltproduktphasen im Brennstab; ferner über Art und Ausmaß des Hüllangriffs insbesondere durch die Spaltprodukte und über die Außenkorrosion mit dem Natrium.

Der Brennstoff in dem Siebenstabbündel enthält ein Mischoxid mit 20%  $PuO_2$  und 79% U-235 im Urananteil, hat eine Ausgangsstöchiometrie O/M von etwa 1,99 und eine Schmierdichte von 80% th.D. Der Tablettendurchmesser beträgt 5,0 mm. Das Hüllmaterial besteht aus drei verschiedenen rostfreien Stählen mit den Werkstoffnummern 1.4988, 1.4961 und AISI 316. Der maximale Abbrand der Außenstäbe liegt bei 5% und die maximale Stableistung bei 630 W/cm, die Werte für den Zentralstab liegen etwa 11% niedriger. Die maximale Hüllmittentemperatur war für alle Stäbe etwa gleich und betrug am oberen Ende der Spaltstoffzone ungefähr 600°C.

#### Uran-Plutonium-Verteilung

In diesem Bestrahlungsexperiment konnte die von einer großen Zahl von Brennstoff- und Bestrahlungsparametern abhängige U-Pu-Entmischung aufgrund der Auslegung nur hinsichtlich des Temperatureinflusses in verschiedenen radialen und axialen Schnitten untersucht werden. In den unbeschädigten Stäben wurde eine nicht radialsymmetrische Pu-Anreicherung am Zentralkanal bis zu etwa 28% PuO<sub>2</sub> und im kälteren Bereich der Säulenkristallzone ein leichtes Pu-Minimum beobachtet, das bis auf 15%  $PuO_2$  absinkt. Die radiale Pu-Entmischung ist im kälteren, unteren Teil des Stabes nicht so stark ausgeprägt und beträgt dort am Zentralkanal etwa 20%  $PuO_2$  bei einem mittleren  $PuO_2$ -Anteil im gesamten Stab von 18% nach 4% Abbrand. Die Erscheinungen beruhen auf einer bevorzugten Verdampfung von U-Oxiden an der Oberfläche des Zentralkanals, auf selektiven Verdampfungs-Kondensationseffekten in Poren und Hohlräumen des Brennstoffs infolge des Temperaturgefälles sowie auf einer Thermodiffusion des  $PuO_2$  und können zu einer starken Erhöhung der Zentralkanaltemperatur besonders im Betrieb mit Natur-Uran anstatt mit U-235 und zu einer Änderung des Doppler-Koeffizienten führen. Über die Entmischungserscheinungen und den Einfluß des Natriums im defekten Stab 4 wurde früher berichtet [1].

## Verhalten der Spaltprodukte

Die während des Abbrands im Brennstab entstandenen Spaltprodukte treten als metallische Legierungen in Form von Ausscheidungen entweder untereinander oder zusammen mit Hüllmaterialkomponenten bis zu 80 um Durchmesser auf, ferner bilden sie oxydische Verbindungen oder lösen sich im Brennstoff. Die Phasen werden jedoch stets in ganz bestimmten Elementkombinationen gebildet. Die am häufigsten beobachtete Ausscheidung besteht aus Mo, Tc, Ru, Rh und Pd und wird im gesamten Brennstoff angetroffen; das Mo/Ru-Verhältnis steigt in diesen Ausscheidungen in der Säulenkristallzone mit zunehmendem Radius an. Mo und Pd können in diesem Bereich fehlen. In der Porositätszone wird zusätzlich Fe als Legierungspartner angetroffen; ferner Pd, das hier eine Reihe weiterer Ausscheidungen mit Sn, Sb und Te sowie mit Mo oder Hüllmaterialkomponenten bildet. Das Auftreten der oxydischen Phasen in bevorzugten Zonen des Brennstoffs ist nicht erkennbar, meistens handelt es sich hier um Bahaltige Molybdate, Zirkonate oder Cerate. Im Spalt entstehen zusätzlich Cs-Verbindungen als Molybdate, Uranate, Chromate oder mit Te wahrscheinlich als Oxidtelluride in schichtförmigen Strukturen bis zu 40 µm Dicke. In einigen Fällen wurde Cs ohne nachweisbares Begleitelement in oxydischer Form in der Nähe der Brennstoffoberfläche beobachtet. Über die im defekten Stab 4 zusätzlich auftretenden Phasen wurde früher berichtet [1].

#### Verträglichkeit mit dem Hüllmaterial

Im Bereich der maximalen Hülltemperatur der Brennstoffzone wird ein Korngrenzenangriff der Außenstäbe bis zu 50 µm beobachtet, der für den Zentralstab nur geringfügig darüber liegt und im Bereich der maximalen Stableistung noch etwa 10 µm beträgt. Der Korngrenzenangriff ist dagegen am oberen Übergang des Brennstoffs zum Brutstoff und in der Brutstoffzone einige mm oberhalb des Übergangs sehr stark ausgeprägt und beträgt im Stab 1 (Stahl 1.4988) bis zu 130 µm, etwas weniger in den Stäben 5 und 6 [2]. Dieser Bereich scheint für einen Hüllangriff, der anscheinend auf einem geringfügig höherem O/M-Verhältnis in der Brutstoffzone beruht, am empfindlichsten zu sein. Die den Angriff verursachenden Spaltprodukte Pd, Cs und Te sowie eine Cr-Anreicherung und eine Fe- und Ni-Verarmung in den Korngrenzen zeigt Abb.22. Während Cs stärker an der Reaktionsfront erkennbar ist, bleibt Te oft zurück und bildet schichtförmige Strukturen im Spalt zusammen mit Ba, Mo und Cr (Abb. 23). Im kälteren Bereich des Stabes herrschen der schichtförmige Hüllangriff sowie Spaltprodukt- und Hüllmaterial-Ausscheidungen im oberflächennahen Bereich des Brennstoffs vor.

### Außenkorrosion

Eine Korrosion des Hüllmaterials mit dem Natrium tritt nur im heißesten Gebiet der Stäbe auf. Es werden bis zu 5 µm starke Korrosionsschichten beobachtet, die aus Cr und Mo, zuweilen zusätzlich auch Fe bestehen. Es handelt sich offensichtlich um Na-Chromite und -Molybdate, wobei das Na beim Reinigen herausgelöst wurde.

Aus den bisherigen Untersuchungen folgt [2], daß im Verhalten der drei verschiedenen Hüllmaterialien unter den hier betrachteten chemischphysikalischen Gesichtspunkten keine wesentlichen Unterschiede festzustellen sind. Die Hüllangriffstiefen des intakten Stabes 5 (Stahl 1.4961) liegen jedoch etwas niedriger als die der anderen Stäbe.

[1] H. Kleykamp, H.-D. Gottschalg, G. Halm, KFK-1272/3 (1972)

[2] H. Kleykamp, Reaktortagung Karlsruhe (1973)



<u>Abb.21</u> Korngrenzenangriff der Hülle durch Pd, Cs und Te bis zu 25  $\mu$ m Tiefe (Stab 9, Stahl 4988, maximale Hüllmittentemperatur 590°C)

112-35



<u>Abb. 23</u> Hüllangriff am Übergang Brennstoff-Brutstoffzone. Die Dicke der Reaktionszone und des Restspaltes beträgt 220 µm (Stab 1, Stahl 4988, maximale Hüllmittentemperatur 595°C)

## Beeinflussung der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes durch Poren-Form und -Orientierung

(H. Hoffmann, B. Schulz, IMF)

Die Wärmeleitfähigkeit poröser Materialien ist von der Wärmeleitfähigkeit der reinen Komponenten, hier also des Gases in den Poren und dem Brennstoff und zum 2-ten von der Konzentration derselben abhängig. Hinzu kommt nach [1,2] eine Abhängigkeit von der Porenform und Porengestalt (stereometrische Einflüsse) und von der Struktur. Deuten wir die Poren als Dispergenten in einer UO<sub>2</sub>-Matrix mit statistischer Verteilung, so läßt sich die Wärmeleitfähigkeit der porösen Keramik wie folgt darstellen (Dispergent in rot.-ellip-

$$\int_{0}^{P} \frac{dP}{1-P} = \int_{M}^{K} \frac{d\lambda}{\lambda (\lambda_{p}-\lambda) \left[ \frac{\cos^{2}\alpha_{x} + \cos^{2}\alpha_{y}}{\lambda + (\lambda_{p}-\lambda) F} + \frac{\cos^{2}\alpha_{z}}{\lambda + (\lambda_{p}-\lambda)(1-2F)} \right]}$$

$$F = \frac{X^2 \cdot Z}{2} \int \frac{dw}{(Z^2 + w) (X^2 + w) \sqrt{Z^2 + w}} = Formfaktor, dessen Lösungen nur das Achsenverhältnis Z/X der ellipsoiden Dispergenten enthält.$$

Kennt man das Verhältnis der Achsen Z/X der Poren und die Orientierung derselben zur Feldrichtung des Wärmeflusses, so kann man nach obiger Gleichung die Wärmeleitfähigkeit errechnen. In den Abb.24 und 25 sind für 2 typische Porenverteilungen und Porenformen die Achsenverhältnisse aufgetragen: Prüflingsquerschnitt L6-1 wurde über 2,1 h bei 645 W/cm bestrahlt und zeigt Linsenporen; Prüflingsquerschnitt 3-29-AG-3 wurde 133 d bei ca. 490 W/cm bestrahlt und zeigt zigarrenförmig verlängerte Blasen. Die Linsenporen werden als Rotationsellipsoide der Hauptachsenverhältnisse 1:2:2 = z:y:x 112-37

und die zigarrenförmigen Blasen als Ellipsoide der Form 2:1:1 = z:y:x interpretiert. Die Achsenverhältnisse Z/X = 0,5 bzw. 2 ergeben Formfaktoren der Größe F = 0,25 bzw. 0,4. Bei Ausrichtung der Z-Achse (= Rotationsachse) || zur Richtung des Wärmeflusses, dies ist bei beiden Porenformen der Fall, wird  $\cos^2 \alpha_z = 1$ ,  $\cos^2 \alpha_x = \cos^2 \alpha_y = 0$ ; bei  $\int Ausrichtung wird <math>\cos^2 \alpha_z = 0$ ,  $\cos^2 \alpha_x = \cos^2 \alpha_y = 1/2$  und bei statistischer Ausrichtung der Rotationsachse zur Feldrichtung wird  $\cos^2 \alpha_x = \cos^2 \alpha_y = \cos^2 \alpha_z = 1/3$ . Berücksichtigt man die Wärmeleitfähigkeit des gasförmigen He in den Linsenporen und der gasförmigen Spaltprodukte (15 % Kr und 85 % Xe) in den zigarrenförmigen Blasen, so wird  $\lambda_{Pore}/\lambda_{\rm M} = 10^{-1}$  und  $\lambda_{\rm Blase}/\lambda_{\rm M} = 10^{-2} \int 3/3$ 

Mit diesen Eingabedaten wurden die in den Abb.26 und 27 dargestellten Wärmeleitfähigkeitswerte berechnet. Wärmeleitfähigkeitswerte für Poren kugeliger Gestalt ergaben Kurven, die mit denen der statistisch verteilten Poren und Blasen jeweils nahezu übereinstimmten und aus diesem Grunde weggelassen wurden. Für den jeweils betrachteten Fall ist die Formabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit vernachlässigbar. Jedoch ist die Formabhängigkeit nicht mehr vernachlässigbar beim Übergang von der He-gefüllten Pore zur Spaltgas-gefüllten Blase. Bei den Nachbestrahlungsuntersuchungen interessiert ein Porositätsbereich von P < 0,2; hierdurch wird eine Gestaltsabhängigkeit merklich eingeengt: für P = 0,1 beträgt sie nur noch 2 - 3 %.

Die Orientierung liefert deutliche Abweichungen der Wärmeleitfähigkeitswerte von denen der statistischen Orientierung: für P = 0,1 betragen diese für Linsenporen 4 - 5 % und für die Blasen 3 - 4 % (s. Balken).

Für den Übergang He-gefüllte  $\parallel$  zur Feldrichtung orientierte Linsenpore zur Spaltgas-gefüllten ebenfalls  $\parallel$  zur Feldrichtung orientierten Blase ergibt sich eine Wärmeleitfähigkeitserhöhung von ca. 6 % für P = 0,1. Dies ist ein Effekt, der, bei der empfindlichen Abhängigkeit des Temperaturprofils im Brennstoff von der Wärmeleitfähigkeit, nicht übersehen werden darf.

#### Literatur

- [1] G. Ondracek, B. Schulz, F. Thümmler; The Conductivity of Cermets, KFK 1282 (1970)
- [2] S. Nazare, G. Ondracek, F. Thümmler; Relations between Stereometric Microstructure and Properties of Cermets and Porous Materials, KFK 1236 (1970)
- [3] H. Kämpf, G. Karsten; A Theoretical Analysis of Fuel Pin Behaviour an Fuel Void Dynamics, KFK 1088 (1969)



# Abb. 24

Radiale Porenverteilung ( $\checkmark$ ) und mittleres Achsenverhältnis der Poren  $\overline{A}$  ( $\rightarrow$ ).  $\Sigma d_1^r$  Summe der Projektionen der Poren in radialer Richtung und  $\Sigma d_1^r$  Summe der Projektionen in tangentialer Richtung (gemessen mit einem Gefügebildanalysator)



## Abb. 25

Radiale Blasenverteilung ( $\leftarrow$ ) und mittleres Achsenverhältnis der Blasen ( $\rightarrow$ ).  $\Sigma d_i^r = Summe der Projektionen$  $der Blasen in radialer Richtung und <math>\Sigma d_i^{\perp} = Summe der Pro$ jektionen in tangentialer Richtung (gemessen mit einemGefügebildanalysator)



Wärmeleitfähigkeit als Funktion der Porosität mit der Orientierung der zigarrenförmigen Blasen zur Richtung des Wärmeflusses als Parameter (F = 0,4;  $\lambda_{\rm P}$  / $\lambda_{\rm M}$  = 0,01)



Wärmeleitfähigkeit als Funktion der Porosität mit der Orientierung der Linsenporen zur Richtung des Wärmeflusses als Parameter (F = 0,4;  $\lambda_p/\lambda_M$ = 0,1)

#### 1122 Bestrahlungsexperimente - Oxid (Parametertests)

#### 1122.1 Schwellproben-Bestrahlungen im FR2 \*

# Bestrahlungskapsel zur Untersuchung des Brennstoffschwellens (H. Häfner, IMF)

Nach der Bestrahlung mehrerer sog. Kriechkapseln, die es erlauben, das Tieftemperaturkriechen von Kernbrennstoffen im Karlsruher Reaktor FR2 kontinuierlich unter Bestrahlung zu messen  $/_1_7$ , wurde im Institut für Material- und Festkörperforschung nun auch eine sog. Brennstoffschwellkapsel entwickelt. Mit einer bestimmten mechanischen Belastung, aber bei verschiedenen Temperaturen, bis zu einem bestimmten Abbrand zu bestrahlen und danach den integralen axialen Schwellbetrag direkt zu messen  $/_2_7$ . Die Kapsel ist für Temperaturen bis 2000 <sup>o</sup>C geeignet. Auf eine kontinuierliche Messung der Längenänderung der Brennstoffsäule wurde bisher verzichtet; sie ist jedoch für ein fortgeschritteneres Stadium vorgesehen.

Tabelle 9: Anforderungen an die sog. FR2-Schwellkapsel

Brennstoff	UO , UN, UC und deren Pu <sup>2</sup> Varianten
Pellet-Durchmesser	3 bis 6,5 mm
Brennstoffsäulenhöhe	40 mm
Stableistung	150 bis 500 W/cm
Leistungsdichte	um 200 W/gr
Brennstoffzentraltemperatur	800 bis 1800 <sup>O</sup> C in Stufen
Genauigkeit	ca. <u>+</u> 50 <sup>o</sup> C
Druckbelastung der Proben	0 bis 5 $kp/mm^2$
Genauigkeit	<u>+</u> 10%
Abbrandziel	50 000 bis 80 000 MWd/tM

#### Beschreibung des Versuchseinsatzes (Abb. 28)

Die Brennstoffsäule von z.B. 4 mm Ø und 40 mm Höhe ist von einer dickwandigen Molybdänhülle umgeben. Diese Mo-Hülle sitzt, über Distanznocken zentriert, in einer inneren Kapsel, durch deren Boden Thermoelemente zur Bestimmung der Probentemperatur hindurchgeführt werden. Die Probenbelastung wird, wie bei der "Kriechkapsel", über einen entsprechenden Gasdruck in der äußeren Kapsel (max. 55 ata) erreicht, der über Druckübertragungsstück und Druckstempel auf die Probe wirkt. Längenänderungen des Brennstoffs werden von einem Faltenbalg aufgenommen und können nach der Bestrahlung über Meßbolzen (Kontrollmaß) in den Heißen Zellen ausgemessen werden. Es handelt sich also um eine einfache Längenmessung mittels entsprechender Mikrometer, die mit einer Genauigkeit von 1/100 mm möglich ist.

Mehrere solcher inneren Probenkapseln sitzen, ebenfalls über Distansnocken zentriert, übereinander in der äußeren Druckkapsel. Über die Breite der Gasspalte zwischen Mo-Hülle und Innenkapsel sowie zwischen Innenkapsel und Außenkapsel können die gewünschten Probentemperaturen eingestellt werden. So ist es möglich, bei gleicher Belastung von z.B. drei übereinanderliegenden Proben jede mit einer anderen Temperatur zu fahren.

Durch das Aufsetzen des bei den Kriechuntersuchungen bewährten induktiven Meßsystems auf das Drückübertragungsstück ist auch eine kontinuierliche Messung des axialen Brennstoffschwellens möglich. Hierbei können Längenänderungen von 1 µm erfaßt werden.

#### Bisherige Erfahrungen

Eine erste Kapsel dieser Art wurde im August 1972 mit drei UN-Proben im FR2 zur Bestrahlung eingesetzt. Die Belastung beträgt 3 kp/mm<sup>2</sup>, entsprechend ca. 31,5 ata Kapselinnendruck. Die Oberflächentemperaturen der drei Brennstoffproben liegen bei 800, 950 und 1050  $^{\circ}$ C.

Die zweite Kapsel läuft mit 3 UO<sub>2</sub>-Proben seit November 1972 bei einer Belastung von 5 kp/mm<sup>2</sup>. Die Oberflächentemperaturen der Brennstoffproben liegen hier zwischen 950 und 1100 °C.

Weitere Kapseln für höhere Temperaturen sind in Vorbereitung.

Gewisse Schwierigkeiten traten bisher bei der Auslegung insofern auf, als wegen der komplizierten Wärmeübertragungsverhältnisse an den Schwellprobeneinsätzen die theoretische Vorherbestimmung der Probentemperaturen sehr unsicher ist. So ist es nicht auf Anhieb gelungen, die gewünschten Probentemperaturen zu erreichen. Die genaue Festlegung der Gasspaltbreiten gelingt erst unter Berücksichtigung der Ergebnisse aus den ersten Bestrahlungsdaten.

Weitere Schwierigkeiten ergaben sich aus dem notwendigen Einsatz von Hochtemperatur-Thermoelementen bei Proben mit Temperaturen über 1100 <sup>O</sup>C. Die käuflichen Wolfram/5% Rhenium - Wolfram/26% Rhenium-Thermoelemente konnten erst nach einer Vielzahl von Verbesserungen hinreichend einsatzfähig gemacht werden.

#### Literatur:

- [1]7 H.E. Häfner, H. Will Instrumentierte Brennstoffkriechkapsel Kerntechnik 12, 454 (1971)
- [2] H.E. Häfner, K. Philipp FR2-Bestrahlungskapsel zur Untersuchung des Brennstoffschwellens KFK-Bericht 1398 (1971)



Abb. 28: Schematische Darstellung einer Druckschwellkapsel

In der Kapselbestrahlungs-Versuchsgruppe FR 2-4a wurden kurze UO<sub>2</sub>-15% PuO<sub>2</sub>-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 theoretische Analyse durchgeführt, der die Annahme einer konstanten Wärmequelldichte 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 W/cm<sup>2.0</sup>C bzw. 1,0 W/cm<sup>2.0</sup>C ausgewählt. Die Brennstoffzentraltemperatur überschritt 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 chemischen 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 (Abb. 29).

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,



Abb. 29: Spaltgasfreisetzung in Abhängigkeit vom Abbrand

112-46

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 quantitative und halbquantitative Schlüsse zu: Es ergibt sich ein systematischer Zusammenhang zwischen Zentralkanalquerschnitt und maximaler Stableistung +) sowie ein typischer Verlauf der Porosität über dem Brennstoffradius (Abb.30). Bei hoher Stableistung 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 (s.Abb.30).

Die Zusammensetzung und die Verteilung der Spaltprodukt-Verbindungen sowie die Uran/Plutonium-Entmischung wurden durch Mikrosondenanalyse untersucht<sup>++)</sup>. 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

+) W.Dienst, KFK 1272/1, S.112-23 bis 26

++) H.Huber, H.Kleykamp, KFK 1324, Februar 1972



Korrigierter radialer Porositätsverlauf nach Bestrahlung in 8 Brennstab-Schliffproben

112-47

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%  $PuO_2$  lag (gegenüber ursprünglich 15%) und für den Brennstoff höherer Sinterdichte niedriger war als für denjenigen niedriger Dichte. Bei  $\alpha$ -autoradiographischen Gefügeuntersuchungen wurden auch Pu-Anreicherungen durch radiale Entmischung am Brennstoffrand und durch axiale Entmischungen im Zentralkanal gefunden<sup>+)</sup>.

Die Beurteilung der chemischen Verträglichkeit <sup>++</sup>) zwischen dem UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstoff mit einem ursprünglichen O/M-Verhältnis von 1.98<sup>±</sup>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<sup>o</sup>C lag. Er erfolgte meistens als Korngrenzenangriff und erreichte eine maximale Eindringtiefe von 110 µm. Eine systematische Abbrandabhängigkeit war nicht erkennbar.

#### Veröffentlichung:

W.Dienst, O.Götzmann, H.Kleykamp, G.Ondracek, B.Schulz, H.Zimmermann Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstäben der Versuchsgruppe FR 2-4a KFK 1727, Januar 1973

+) W.Dienst,
 KFK 1272/2, S.112-63 bis 70

++) O.Götzmann, P.Hofmann, KFK 1272/2, S.112-60 bis 62

#### 1123 Abbrandbestrahlungen im schnellen Fluß

Voruntersuchung der Brennstäbe für das Bestrahlungsexperiment DFR-455 \* (D. Geithoff, IMF)

Bei der Nachuntersuchung bestrahlter Brennstäbe mußte in der Vergangenheit immer wieder die Erfahrung gemacht werden, daß wichtige Stabdaten nur mit ungenügender Genauigkeit aus den Herstellungsprotokollen zu entnehmen waren. Sehr häufig wurden z.B. Meßgrößen nur auf Übereinstimmung mit der Spezifikation geprüft. Für die 42 von der Fa. ALKEM hergestellten Brennstäbe zum Experiment DFR-455<sup>†</sup> wurde deshalb eine eingehende Voruntersuchung durchgeführt, bei der alle prüfbaren Stabdaten nochmals bestimmt wurden. Im einzelnen handelte es sich um folgende Untersuchungen:

- 1. Bestimmung der Stablänge
- 2. Bestimmung der Stabdurchmesser entlang der Stabachse
- 3. Ermittlung der Auftriebsdichte
- 4. Vermessung der Brennstoff- und Brutstoff-Säulenlängen.

Die wesentlichen Gesichtspunkte sowie die Ergebnisse dieser Untersuchungen sollen hier kurz dargestellt werden.

#### 1. Bestimmung der Stablänge

Die Stablänge als "Länge über alles" wurde an allen Stäben bestimmt. Da damit gerechnet werden muß, daß die Endkappen der Brennstäbe bei der Demontage der Bestrahlungseinsätze beschädigt oder durch Ablagerungen verkrustet werden, wurde zusätzlich eine "Länge über die Schultern" vermessen. Hierbei werden die stufenartigen Absätze am oberen und unteren Endstopfen als Meßpunkte gewählt. Ein Vergleich der Voruntersuchungsdaten mit den Spezifikationsdaten ergab eine vollständige Übereinstimmung.

#### 2. Bestimmung der Stabdurchmesser entlang der Stabachse

Um eine möglichst hohe Genauigkeit bei der Ermittlung der Stabdurchmesserveränderungen zu erreichen, ist es notwendig, die gleiche Meßmethode bei der Vor- und Nachvermessung zu verwenden. In den Heißen Zellen ist für die Nachuntersuchung eine Meßbank installiert, bei der der Stabdurchmesser schraubenförmig mit einem Wegaufnehmer vermessen wird (Wendelschrieb). An einem Parallelgerät, das für die Vermessung unbestrahlter Stäbe eingesetzt wird,

<sup>+)</sup>Bei DFR-455 soll die Stöchiometrie des SNR-spezifischen Brennstoffs erstmalig auf 0/M = 1.97 eingestellt werden. Angestrebter Mindestabbrand 80000 MWd/t.

wurden die Durchmesser der 42 Stäbe bestimmt. Da die Hüllrohre schon vor dem Zusammenbau auf Einhaltung der Spezifikation kontrolliert worden waren, mußte noch geprüft werden ob bei der darauffolgenden Handhabung Verformungen verursacht wurden. Neben kleineren Rohr-Ovalitäten, die jedoch alle innerhalb der Spezifikation lagen, wurden keine Veränderungen festgestellt.

#### 3. Ermittlung der Auftriebsdichte

Die Veränderung der mittleren Dichte eines Stabes durch die Bestrahlung liefert eine Aussage über das integrale Stabschwellen. Sie dient zur Ergänzung der aus den Durchmesserbestimmungen gewonnenen Schwelldaten. Da diese Art der Nachuntersuchung neu aufgenommen wurde, mußte zunächst durch Modellrechnungen sichergestellt werden, daß die zu erwartenden Änderungen außerhalb der Fehlerbreite der Meßwerte liegen. In der durchgeführten Arbeitsmethode, in der die mittlere Stabdichte über den Auftrieb in Toluol bestimmt wird, ist eine Genauigkeit von etwa  $\pm 2$  mg erreicht worden. Die Meßwerte für die einzelnen Stäbe lagen zwischen 7,411 g/cm<sup>3</sup> als Maximal- und 7,216 g/cm<sup>3</sup> als Minimalwert.

#### 4. Vermessung der Brennstoff- und Brutstoffsäulenlängen

Bei der Behandlung des Brennstoffschwellens stellt sich stets die Frage nach der Längenveränderung einer Brennstoffsäule durch die Bestrahlung. Damit kommt der genauen Vermessung dieser Größe vor und nach der Bestrahlung eine besondere Bedeutung zu. Im üblichen Ablauf der Herstellung von Brennstäben mit Tablettenbrennstoff werden die Tablettensäulen vor dem Einfüllen gelegt. und in dieser Anordnung wird die Länge gemessen. Gelegte Tablettensäulen können jedoch bei weiterer Handhabung ihre Länge verändern, sei es, daß sie sich durch Aufgleiten an ihren Stirnflächen verkürzen oder durch in die Spalte fallende Abriebkörnchen scheinbar verlängern. In den fertiggestellten Stäben wurde daher die endgültige Säulenlänge mit Hilfe einer Röntgendurchleuchtung bestimmt. Zur Vermeidung von Fehlern, die durch Schrumpfen des Filmmaterials entstehen können, wurde jeweils gleichzeitig eine Kalibrier-Latte aus Endmaßen mit durchleuchtet. Auf diese Weise ließ sich eine Genauigkeit von + 0,2 mm erzielen. Die Auswertung der Meßergebnisse ergab hinsichtlich des Vergleiches mit den Hersteller-Angaben die in Abb. 31 dargestellten Abweichungen. Schließt man zunächst alle Unterschiede > 2 mm aus der Betrachtung aus, so zeigt sich, daß die zuerst in das Hüllrohr hineingeschobene untere Brutstoffsäule im Mittel eine Verkürzung um 0,2 mm erfährt. Das Gleiche

gilt für die anschließend eingefüllte Brennstoffsäule. Bei der zuletzt hineingeschobenen Brutstoffsäule findet sich dagegen eine Verlängerung um 0,4 mm. Dieser Befund läßt sich einleuchtend damit erklären, daß der untere Teil der Gesamttablettensäule beim Hantieren in aufgerichteter Position durch das Säulengewicht zusammengeschoben wird und durch Aufgleiten der Stirnflächen eine Säulenverkürzung stattfindet. Für den oberen Teil der Tablettensäule, hier durch die obere Brutstoffsäule dargestellt, ist die zusammenpressende Kraft offenbar zu klein. Hinzu kommt, daß in der zuletzt eingefüllten Teilsäule die Gefahr am größten ist, Abriebkörnchen zwischen die Tabletten zu bringen, und so eine Verlängerung der Säule plausibel erscheint.

Neben den eben diskutierten Veränderungen wurden an 13 Stäben Differenzen >2 mm zwischen Herstellerangaben und Voruntersuchung gefunden, deren Ursache zur Zeit noch untersucht wird.

112-52



# 1124 Hochleistungsbrennstoffe

#### 1124.2 Laborexperimente zur Brennstabauslegung

#### 1. Gleichgewichte in keramischen Kernbrennstoffen

Reaktionsverhalten der Spaltprodukte in unter- und überstöchiometrischem Urancarbid bei simuliertem hohem Abbrand (H. Holleck, E. Smailos, IMF)

Zur Klärung des Reaktionsverhaltens der wichtigsten festen Spaltprodukte in Urancarbid bei simuliertem hohem Abbrand (10, 20 und 30 At.-%)<sup>+</sup>,<sup>++</sup>,<sup>+++</sup> wurden die Untersuchungen in überstöchiometrischem Urancarbid bei einem simulierten Abbrand von 10 At.-% Abbrand fortgeführt. Die Herstellung der Proben erfolgte wiederum durch Lichtbogenschmelzen unter Argon mit anschließender Homogenisierungsglühung bei 1500 °C. Die Proben wurden röntgenographisch (Guinier-Aufnahmen), metallographisch und mikroanalytisch untersucht. Die Befunde waren ähnlich wie die der überstöchiometrischen Urancarbidproben mit 20 und 30 At.-% Abbrand. Folgende Phasen wurden identifiziert: (U,Zr)C, U<sub>2</sub>C<sub>3</sub>, UMoC<sub>2</sub>, U<sub>2</sub>(Ru,Rh)C<sub>3</sub>, (U,Zr)Pd<sub>3-4</sub> und (La,Ce,Pr,Nd) C<sub>1,5-2,0</sub>. Abb. 32 zeigt das Schliffbild einer bei 1500 °C 230 Stunden im Hochvakuum homogenisierten Schmelzprobe der Zusammensetzung UC + Spaltprodukte (C/U = 1,24) entsprechend 10% Abbrand. Eine Analyse mit Hilfe der Mikrosonde zeigte, daß in UC neben Cr ca 1 Gew.-% Seltene Erden und ca. 0,5 Gew.-% Mo als Carbide gelöst sind.

Als Gitterparameter für diese feste Lösung ergab sich a = 4,953 Å. Eine Berechnung des Gitterparameters, unter Zugrundelegung der analytischen Daten, ergibt mit a = 4,951 Å eine gute Übereinstimmung mit dem gemessenen Wert.

<sup>+</sup> H.Holleck, E. Smailos in KFK-Bericht 1271/4, S. 112-43 ++ H.Holleck, E. Smailos in KFK-Bericht 1272/1, S. 112-40 +++ H.Holleck, E. Smailos in KFK-Bericht 1272/3, S. 112-45



Abb. 32: Schliffbild einer bei 1500<sup>O</sup>C, 230 Stunden im Hochvakuum homogenisierten Schmelzbrobe der Zusammensetzung UC + Spaltprodukte (C/U = 1,24) entsprechend 10 At.-% Abbrand, geätzt. Befund: (U,Zr,Mo,La,Ce,Pr,Nd)C (Matrix) +U<sub>2</sub>(Ru,Rh)C<sub>2</sub> (helle Phase) +UMoC<sub>2</sub> (kleine graue Kristallite) +(La,Ce,Prd,Nd)C<sub>1,5-2,0</sub> (schwarze Einschlüsse)

500 : 1

# 2. Hüllangriffsmöglichkeiten durch Spaltprodukte in karbidischen Brennstäben (O.Götzmann, P.Hofmann, IMF)

Es ist bekannt, dass in oxidischen Brennstäben stärkere Reaktionen zwischen Brennstoff und Hülle stattfinden. Der Grund ist im Auftreten von chemisch reaktiven Spaltprodukten und im Anstieg des Sauerstoffpotentials im Verlauf des Abbrandes zu suchen. Als gefährlich gelten die Spaltprodukte Cäsium, Tellur, Jod und evtl. noch Molybdän. Zur Untersuchung der Reaktionsmöglichkeiten der einzelnen Spaltprodukte mit den Hüllmaterialien wurde im IMF ein umfangreiches Programm durchgeführt<sup>+)</sup>, das das Auftreten von Hüllmaterialreaktionen mit den Spaltprodukten in oxidischen Brennstäben klar aufzeigte (Abb. 34, 35). Es gibt gute Gründe für die Annahme, daß in Karbidbrennstäben die Spaltprodukte für den Hüllangriff nicht die gleich hohe Bedeutung haben wie in Oxidbrennstäben. Cäsium, das man beim oxidischen Brennstoff wohl als das gefährlichste Spaltprodukt bezeichnen kann (Abb.41), kommt sehr wahrscheinlich in Karbidbrennstäben nicht zur Wirkung, da das für Cäsiumreaktionen notwendige Sauerstoffpotential fehlt. Aber auch die anderen reaktiven Spaltprodukte sollten in Karbidstäben weniger gefährlich sein, da sie zum UC eine höhere Affinität besitzen als zu UO2, also leichter vom Karbidbrennstoff eingefangen werden als vom oxidischen Brennstoff.

Um das zu verdeutlichen, wurden ähnlich wie mit oxidischem Brennstoff auch Versuche mit karbidischem Brennstoff durchgeführt, dem Spaltproduktelemente in unterschiedlichen Konzentrationen zugemischt wurden. Die Ergebnisse sind eindeutig. Während mit überstöchiometrischem UO<sub>2</sub> bei einer Spaltproduktelementzumischung, die einem Abbrand von 10 at.-% entspricht, nach 1000 h bei 800°C im Hüllmaterial (Stahl vom Typ 1.4988) Reaktionstiefen um 100 µm beobachtet werden konnten (Abb.35), sind bei Zumischung der gleichen Spaltproduktelemente mit stöchiometrischem und überstöchiometrischem karbidischen Brennstoff bei den gleichen Glühbedingungen keine Reaktionen aufgetreten (Abb.<sup>37</sup>). Auch die Zumischung einzelner Spaltproduktelemente wie Cäsium, Tellur, Selen, Jod und Molybdän zu karbidischem

+) P.Hofmann, O.Götzmann KFK 1272/1 und KFK 1272/2 Brennstoff führte bei Glühungen zusammen mit Stählen und Vanadinlegierungen nicht zu Spaltproduktreaktionen mit den Hüllmaterialien (Abb. 39, 40).Es hat sich vielmehr herausgestellt, dass gerade durch diese Spaltproduktelemente die Aufkohlungserscheinungen in den Stählen und Vanadinlegierungen vermindert werden (Abb. 38, 39, 40).

Mit diesen Ergebnissen ist also die vorher schon gehegte Vermutung bestätigt worden, dass Spaltproduktreaktionen, die in Oxidbrennstäben nach höheren Abbränden beobachtet werden können, in karbidischen Brenstäben nicht zustande kommen. Eine Kohlenstoffpotentialerhöhung im karbidischen Brennstoff während des Abbrandes -ähnlich der Sauerstoffpotentialerhöhung im oxidischen Brennstoff- findet sehr wahrscheinlich nicht statt, da die entstehenden Spaltprodukte im Durchschnitt eine höhere Affinität zum Kohlenstoff haben als die spaltbaren Schwermetallatome. Im Reaktorbetrieb werden deshalb sehr wahrscheinlich keine stärkeren Hüllangriffe zu erwarten sein, als sie out-of-pile durch Reaktionen mit überstöchiometrischem Karbidbrennstoff gefunden werden.

#### Veröffentlichung:

P.Hofmann, O.Götzmann

Untersuchungen zum Reaktionsverhalten von Vanadinlegierungen mit simulierten Spaltprodukten in Gegenwart von UO<sub>2</sub> und UC KFK 1718



 $Sp(UO_2) \triangleq BaO, Mo, Ru, Pd, CeO_2, Nd_2O_3, ZrO_2, Te, Se, J, Cs; Sp(UC) \triangleq Mo_2C, Ba, Ru, Rh, Pd, Ce, Nd, ZrC, Nb, Y, Te, Se, J, Cs$ 

112-57

#### 1124.3 Karbid-Brennstab-Bestrahlungen

Erster Karbid-Stab mit Zentraltemperaturmessung im Betrieb (H. Häfner, IMF)

Mit Kapselversuchseinsatz (KVE) Nr. 108 wurde Anfang November 1972 erstmals eine einwandige NaK-Kapsel mit einem Karbid-Brennstab der Versuchsgruppe (Vg.) 6C im FR2 eingesetzt. Die Stäbe der Vg. 6C haben Argon-Bindung und im Brennstoff-Zentrum ein Wolfram/5% Rhenium - Wolfram/26% Rhenium-Thermoelement zur Messung der Brennstoffzentraltemperatur.

Zuvor waren schon 7 KVE des gleichen Typs mit Stäben der Vg. 6A (Helium-Bindung ohne Zentraltemperaturmessung) im FR2 eingesetzt und bereits Abbrände von max. 3% erreicht worden.

Die für diese Hochleistungs-Bestrahlung im IMF entwickelte "Einwandige NaK-Kapsel" ist bereits in früheren Vierteljahresberichten<sup>+)</sup> kurz vorgestellt und in  $\sqrt{1}$  ausführlich beschrieben worden. Für den Einsatz von Stäben mit Zentraltemperaturmessung war eine Modifikation dieses Kapseltyps erforderlich. Besondere Erschwernisse ergeben sich bei der Montage wegen der notwendigen Lötdurchführung des Hochtemperatur-Thermoelements zusätzlich zu den 6 Hüllrohr-Thermoelementen (Chromel-Alumel) durch den Niob-Endstopfen der NaK-Kapsel. Große Schwierigkeiten brachten vor allem auch die H.T.-Thermoelemente selbst, deren Ausgleichsadern teilweise so spröde sind, daß schon ein leichtes Biegen sofort zum Abreißen führt.

Die Brennstab- und Betriebsdaten des zuletzt eingesetzten Karbidstabes sind folgende:

Stablänge Hüllrohr Brennstoff Bonding Zielabbrand Stableistung Hüllrohroberflächentemperatur gemessene Brennstoffzentraltemperatur 475 mm 4988 10<sup>9</sup>x 0,55 mm Wand UC-PuC (15% Pu) Argon 22500 MWd/tM 1020 W/cm 570 °C 1400 °C Zu Beg Bestra

Zu Beginn der Bestrahlung

+)KFK-Bericht 1270/4, 1271/1 und 1271/3.

Der Meßwert für die Brennstoffzentraltemperatur ist innerhalb von zwei Wochen auf 1300 <sup>O</sup>C abgefallen.

Bei den zuvor im FR2 eingesetzten Karbidstäben wurden Hüllrohroberflächentemperaturen von max. 675 <sup>o</sup>C bei Stableistungen bis zu 1230 W/cm erreicht. Weitere Kapseln für Karbidstäbe mit Gasbindung und Zentraltemperaturmessung und für Karbidstäbe mit Natriumbindung sind in Vorbereitung.

## Literatur:

/\_1\_7 H. Häfner

Sicherheitsbericht für FR2-Kapselversuchseinsätze mit einwandigen NaK-Kapseln zur Bestrahlung von Hochleistungsbrennstäben KFK-Bericht 1143 (1970)

## Veröffentlichung:

(1) H. Häfner

Einwandige NaK-Kapsel zur Bestrahlung von Hochleistungsbrennstäben Atomwirtschaft, Atomtechnik 16 (1972) 638

a service a service of the service o I service of the servic I service of the servic

(a) A set of the set of t set of the se

113 MATERIALUNTERSUCHUNG UND -ENTWICKLUNG

1131 Materialuntersuchungen an technischen Legierungen\*

1131.1 Hüllmaterial

1131.11 Mechanische Eigenschaften

<u>Zeitstand- und Kriechverhalten</u>
 (H. Böhm, L. Schäfer, M. Schirra, IMF)

Für das Bestrahlungsprogramm Mol\_3  $B/3^{+}$ wurden unbestrahlte Blechproben von drei Ti-stabilisierten Stählen als Vergleichsversuche bei 650  $^{\circ}$ C untersucht.

- I = RGT 21 (Röchling) = X12CrNiWTi 1613 W-Nr. 4962
- II = 12R72HV (Sandvik) = X10NiCrMoTiB 1515 W-Nr. 4970
- III = Vaccutherm (Südwestfalen) = X12CrNiWTi 1613 W-Nr. 4962

Von jedem Stahl lagen Proben folgender Vorbehandlung vor:

 $1150^{\circ} 30' + 10\%$  kaltverformt + 800° 23 h

und für 12R72HV zusätzlich noch Proben der Vorbehandlung:

 $1150^{\circ} 30' + 10\%$  kaltverformt + 850° 2 h

Entsprechend den Bestrahlungsbedingungen waren die Proben zuvor 5334 Stunden bei 620 <sup>O</sup>C geglüht worden. In Abb. 1a ist für jede Legierung und jeden Zustand die ermittelte Zeitstandfestigkeitskurve eingezeichnet und in Abb. 1b die sekundäre Kriechgeschwindigkeit  $\dot{\epsilon}$  in Abhängigkeit von der jeweiligen Spannung aufgetragen. Wie schon frühere Untersuchungen ergaben, kommt es bei dem Stahl 12R72HV durch die mechanisch-thermische Vorbehandlung zu extrem starker Spannungsabhängigkeit der Werte für Standzeit und sekundäre Kriechgeschwindigkeit. Dies drückt sich auch in entsprechend hohen n-Werten (nach Norton) aus. Die Zeitstand-Bruchdehnung nimmt bei jedem Stahl mit zunehmender Standzeit ab. Bei kurzen Standzeiten liegen die Werte zwischen 20-30% und fallen bei Standzeiten bis zu 4000 Stunden auf 5-8% ab.

<sup>+)</sup> Kapselbestrahlung zur Hochtemperaturversprödung



Abb. la und lb

113-2
Die metallographischen Untersuchungen zeigen bezüglich des Bruchverhaltens folgendes: Die Legierung RGT 21 bricht transkristallin mit einzelnen interkristallinen Anrissen. Die Legierung 12R72HV, bei 850 °2 h ausgelagert, bricht transkristallin. Die Proben des Zustandes 800° 23 h brechen ebenfalls transkristallin mit einzelnen Anrissen in der Bruchzone. Die Legierung Vaccutherm bricht eindeutig interkristallin.

Im Rahmen der <u>Mol</u> 2-Vergleichsversuche wurde das Zeitstandverhalten der Stähle X10NiCrMoTiB 1515 (W-Nr. 4970, Chg.Nr. 8-29052) und X8CrNiMoNb 1616 (W-Nr. 4981, Chg.Nr. 70015) weiter untersucht. Die folgende Tabelle zeigt die 1000 h-Zeitstandfestigkeit ( $\sigma_{\rm B/1\cdot10^3}$ ) als Tangentialspannung und die dazugehörige Bruchdehnung ( $\delta$ Z).

W-Nr.	Charge	Zustand	<sup>σ</sup> B/1•10 <sup>3[kp/m</sup>	$m^2$ ]und ( $\delta$ %) bei		
	Nr.		600 <sup>о</sup> с	700 °c		
1.4981	70015	LG+KV ≤ 7%		8,4 (22,5%)		
1.4981	70015	LG+≃13% KV		10,1 (1,5%)		
1.4970	8-29052	LG+≈15%KV+800 <sup>0</sup> 2 h	38,2 (1,5%)			

Erwartungsgemäß zeigte der Stahl 1.4981 im kaltverformten Zustand die höhere Festigkeit und eine weitaus geringere Duktilität gegenüber dem nahezu lösungsgeglühten Zustand. <u>Rohrprüfung und Brennstabprüfung</u><sup>1</sup>
 (0. Jacobi, R. Schwerwinsky, IMF)

Bisher konnten im IMF/III Hüllrohre nur mittels Ultraschall auf Fehlstellen untersucht werden. Durch die Beschaffung eines Wirbelstromgerätes konnte nun die Prüfung der Rohre auf Materialfehler entschieden verbessert werden. Eine speziell für diesen Zweck entwickelte Meßbrückenschaltung am Eingang des Wirbelstromverstärkers gestattet den Abgleich der Meßsonden bis in den Verstörkungsbereich von 80 d B. Ein zusätzlicher Verstärker, dessen Frequenzgang einstellbar ist, erlaubt in Verbindung mit einem Schwellwertgeber eine Auswertung der Wirbelstromfehlerimpulse wie bei der Ultraschallfehlerprüfung. Die Abb. 2 zeigt die Wirbelstromfehleranzeigen von einem Testrohr mit künstlichen Fehlstellen. Dabei zeigt die Kurve (1) den Verlauf der Ausgangsspannung am Wirbelstromgerät, während die Kurve (2) die Ausgangsspannung hinter dem nachgeschalteten Schwellwertgeber mit Verstärker wiedergibt. Es ergeben sich so ähnliche Aufzeichnungen der Testfehler wie bei der Ultraschallprüfung.

1)Letzter Bericht in KFK 1272/2



## 1131.12 Bestrahlungsversuche

# 1. Zeitstand- und Kriechverhalten (K.D. Cloß, IMF)

Die im Rahmen der in-pile Kriechexperimente vom Typ Mol 5 B durchgeführten Untersuchungen am Werkstoff Nr. 1.4970 (10% KV + 800  $^{\circ}$ C/23 h) sind jetzt abgeschlossen. Es wurden zwei Versuche bei 550  $^{\circ}$ C und Spannungen von 28 und 25 kp/mm<sup>2</sup> gefahren. Die dabei erreichte maximale Neutronendosis (E >0,1 MeV) betrug 1,9  $\cdot$  10<sup>21</sup> n/cm<sup>2</sup>. Die bei einer Spannung von 28 kp/mm<sup>2</sup> gemessenen Kriechkurven sind in Abb. 3 wiedergegeben. Die Meßpunkte der bestrahlten Probe lassen sich nicht ohne weiteres durch einen kontinuierlichen Kurvenzug beschreiben, jedoch können die aufgetretenen Schwankungen bei der Dehnungsanzeige in den meisten Fällen äußeren Einflüssen wie Reaktorabschaltungen und Regelstabverstellungen zugeordnet werden. Einen qualitativ ähnlichen Verlauf zeigen auch die Kriechkurven bei einer Spannung von 25 kp/mm<sup>2</sup>.



Abb. 3

#### 113-7

Um bessere Vergleiche im Kriechverhalten zwischen bestrahlten und unbestrahlten Proben ziehen zu können, wurden in Abb. 4 die zu bestimmten Zeiten er-



reichten Kriechgeschwindigkeiten einander gegenübergestellt. Man erkennt, daß bei beiden Spannungen die während der Bestrahlung gemessene Kriechgeschwindigkeit etwa um den Faktor 2 bis 3 höher liegt als die der unbestrahlten Probe. Unterschiede in der Kriechgeschwindigkeit um den Faktor 2 treten bei Kriechuntersuchungen trotz gleicher Versuchsbedingungen häufig auf. Darüberhinaus zeigt eine Abschätzung der Temperaturabhängigkeit der Kriechgeschwindigkeit, daß

## Abb. 4

eine um den Faktor 2 bis 3 höhere Kriechrate bereits durch eine Temperaturabweichung von ca. 7 <sup>o</sup>C hervorgerufen werden kann. Da die Meßstellen der Thermoelemente aus konstruktiven Gründen nicht direkt an der Probe befestigt waren, ist nicht auszuschließen, daß eine radiale Verschiebung der Thermoelemente um etwa 4 mm bereits zu der Abweichung von 7 <sup>o</sup>C geführt hat. Ferner führt eine um 1 kp/mm<sup>2</sup> höhere Prüflingsbelastung bei einem Spannungsexponenten von 10 bereits zu einer Erhöhung der Kriechgeschwindigkeit um den Faktor 1,5. Diese Überlegungen legen den Schluß nahe, daß die hier gemessenen leichten Abweichungen in der Kriechgeschwindigkeit zwischen bestrahlten und unbestrahlten Proben kaum auf einen Einfluß der Neutronenbestrahlung zurückzuführen sind. Die geringen Unterschiede dürften vielmehr dadurch zustandekommen, daß die genauen Versuchsbedingungen bei in-pile Experimenten nur sehr schwer einzuhalten sind.

## 2. Metallphysikalische Grundlagenuntersuchungen

(K. Ehrlich, IMF)

Die Nachuntersuchungen an bestrahlten Hüllwerkstoffen aus den verschiedenen Pinbestrahlungen wurden fortgesetzt. Ein vorläufiger Vergleich der aus elektro-

ø

113-8



nenmikroskopischen Untersuchungen gewonnenen Schwelldaten des Stahls 1.4988 ist in Abb. 5 für 2 Stäbe aus den Bestrahlungsexperimenten DFR 304 und DFR 350 angegeben. Die Verschiebung des Schwellmaximums im DFR 350-Experiment zu höheren Temperaturen hin und die beobachtete Verbreiterung der Schwellkurve kann möglicherweise auf Diskrepanzen in den errechneten Hüllmittentemperaturen, oder auf die verschiedenen

Reaktorpositionen zurückgeführt werden. Die erreichten Neutronendosen sind in etwa miteinander vergleichbar. Eine genaue Analyse hierzu wird durchgeführt. Auch in diesem Experiment (DFR 350) ist bei der höchsten Bestrahlungstemperatur die gemessene Hüllaufweitung nicht oder nur zu einem kleinen Teil durch das Hüllmaterialschwellen zu erklären.

Die Untersuchungen am Rapsodie-Materialbestrahlungsexperiment gehen programmgemäß weiter, die Probenvorbereitung für die Materialbestrahlung im PFR wurde begonnen.

3. Simulation der Strahlenschäden

Abb. 5

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

Wegen großer Schwierigkeiten mit dem ersten Prototyp der Na-Kapsel zur Simulation des in-pile-Kriechens am Zyklotron war eine teilweise Neukonstruktion erforderlich geworden. Dabei wurden einige zusätzliche Verbesserungen vorgenommen, um eine höhere Betriebssicherheit und bessere Meßgenauigkeit zu gewährleisten. Der verbesserte Prototyp wird voraussichtlich Mitte des nächsten Quartals in die Fertigung gehen.

Die Planungen für die Versuchsreihe VEC II sind abgeschlossen worden. Als Ziele dieser Bestrahlung sind anzusehen: Studium der Dosisabhängigkeit der Porenbildung in stabilisierten Stählen bei einer singularen Temperatur, Vergleich der Wirksamkeit von Ni<sup>6+</sup> und C<sup>2+</sup> Ionen bezüglich ihrer theoretisch vorherberechneten Defekterzeugungsraten sowie deren chemischer Einfluß auf die Porenbildung und schließlich Einfluß intermittierender Helium- und Ni<sup>6+</sup>-Implantation im Gegensatz zu den bisherigen Experimenten, in denen Helium nur vorimplantiert wurde.

# 1132 Versprödung von Vanadinlegierungen durch Sauerstoffaufnahme <sup>G</sup> (0.Götzmann, P.Hofmann, IMF)<sup>1)</sup>

Aus theoretischen Abschätzungen war bekannt, dass ein Mischoxid-Brennstoff während des Abbrandes genügend Sauerstoff zur Verfügung stellt, um Hüllen aus Vanadinlegierungen bis zu Sauerstoffgehalten von 2-3 Gew.-% aufzuoxidieren. Diese hohe Sauerstoffkonzentration verursacht bei Raumtemperatur eine totale Versprödung der Vanadinlegierungen. Es bestand nun die Frage, bis zu welchen Konzentrationen die Vanadinlegierungen in einer sauerstoffabgebenden Umgebung ähnlich wie im Brennelement bei Betriebstemperaturen aufoxidiert werden, und wieweit solche Konzentrationen die Duktilität, sowohl bei Raumtemperatur wie auch bei höheren Temperaturen, vermindern. Zur Klärung dieser Fragen wurden Zerreissproben aus Vanadinmaterialien (V, VTi3Sil, VTi2Cr15, VZr2Cr3) in Pulvermischungen aus Cr/Cr $_2O_3$  bzw. V/VO bei 700 und 800°C geglüht. Die Sauerstoffpotentiale in diesen Pulvermischungen entsprechen einem hohen (Cr/Cr $_2O_3^{\pm 0}/M$ = 1,99) und einem niederen (V/VO $\pm 0/M$  = 1,91) möglichen Sauerstoffpotential in Oxidbrennstäben.

Nach Glühungen über 1000 h in Cr/Cr<sub>2</sub>0<sub>3</sub> waren alle Zerreissproben stark oxidiert. Eine schwarze Oxidschicht war auf den Oberflächen der Proben sichtbar. Die Sauerstoffgehalte erreichten bis zu 9 Gew.-%. Die Proben waren total versprödet. Es konnten keine Zugversuche durchgeführt werden, da die Proben allein durch die Handhabung auseinanderbrachen. Die Glühung in V/VO führte nicht zur Bildung von oxidischen Reaktionsprodukten an den Proben. Eine totale Versprödung trat jedoch auch hier ein. Die Proben sind ebenfalls allein durch Handhabung zerbrochen, so dass keine Messungen durchgeführt werden konnten. Die Sauerstoffkonzentrationen in diesen Proben erreichten etwa 2 Gew.-% nach 1000 h bei 700°C.

1) Erster Bericht

114 KORROSIONSVERSUCHE UND KÜHLMITTELANALYSEN

1141 Natriumkühlung\*

# 1141.1 Korrosion austenitischer Stähle (H.U. Borgstedt, A. Marin, Helga Schneider, IMF; G. Drechsler, G. Frees, IRB)

Hüllrohrproben aus einem 315 h - Nullversuch im <u>Hochtemperaturnatriumkreis-</u> <u>lauf</u> wurden nachuntersucht. Im Rasterelektronenmikroskop zeigte sich, daß bereits nach so kurzem Einsatz bei 700 <sup>O</sup>C die für Natriumkorrosion typischen Veränderungen der Oberfläche ausgebildet waren (Abb. 1). Die Hüllrohrwerkstoffe 1.4970, 1.4981 und 1.4988 wiesen dabei durchaus Unterschiede auf. Beim Werkstoff 1.4970 war der Abtrag entlang Korngrenzen am tiefsten, und alle Ausscheidungen auf der Oberfläche waren verschwunden. Die Veränderungen in der Oberflächenzusammensetzung wurden mit dem Röntgenspektro-



<u>Abb. 1</u>: Oberflächenveränderungen durch Natriumeinwirkung (315 h bei 700 <sup>o</sup>C und 5 m/s) an einem Hüllrohr aus 1.4970, a) vor dem Einsatz; b) korrodiert

#### 114-1

meter nachgewiesen. Aus den Verschiebungen der Linienintensitäten errechneten sich die in der Tab. 1 angegebenen Konzentrationsänderungen.

Tabelle 1:Ergebnisse der röntgenspektrometrischen Analysen der Ober-flächenzonen vor Hüllrohrproben

Werkstoff	Element	Konzentration in Gew%			
		vor dem Versuch	nach 315 h im Na	-	
1.4970	Cr	15	8,4		
	Ni	15	11,7	. • •	
	Fe	66,5	75,9		
1.4981	Cr	16,6	11,0		
	Ni	16,8	15,7		
	Fe	62,6	69,3		
1.4988	Cr	16	9,1		
	Ni	13	11,3		
	Fe	66,5	75,9		

Der Werkstoff Nr. 1.4988 hatte noch keinen Stickstoffverlust erlitten; im Gegenteil, die randnahe Zone des Hüllrohrs (rund 0,05 mm) enthielt einen höheren Stickstoffanteil:

> Hüllrohr 0,084 % N Randschicht 0,115 % N

Dagegen wurde bereits nach so geringer Expositionsdauer am Werkstoff 1.4970 ein Verlust an B festgestellt:

Hüllrohr	25	ppm	B
Randschicht	7	ppm	B
(0,05  mm)		5.	

Die Nachuntersuchungen an den Hüllrohren werden fortgeführt.

Es wurde die an Blechen erprobte Arbeitweise zur spektralanalytischen Bestimmung des Konzentrationsverlaufes von Cr und Ni in Korrosions- bzw. Diffusionszonen auch auf die Bestimmung des Verlaufes der Mn-Konzentration ausgedehnt. Andererseits wurden auch Versuche an korrodierten Hüllrohren mit dieser Arbeitsweise durchgeführt, den Konzentrationsverlauf von Cr, Ni und Mn in den Außenzonen zu bestimmen. Zu diesem Zweck wurden die Rohre an einer Stelle aufgeschnitten und dann vorsichtig plattgewalzt. Aus dem so entstandenen Blechstreifen wurden kreisrunde Plättchen ausgestanzt. Da diese Plättchen wohl größer sind als der Brennfleck der Glimmentladungslampe, jedoch nicht als solche eingesetzt werden können, da zur Abdichtung gegen die Atmosphäre ein Mindestdurchmesser von 25 mm erforderlich ist, wurden die Plättchen sehr sorgfältig in kreisrunde Kupferblöcke eingepaßt. Auf diese Weise konnte die Abdichtung am Kupfer erfolgen, während für den Abtrag der Durchmesser des ausgestanzten Plättchens ausreichte (Abb. 2).

Maßstab 2:1



## АЪЪ. 2

Mit dieser Arbeitsweise wurden die im <u>Versuch Seibersdorf</u> 1.4 eingesetzten Hüllrohrmaterialien 1.4970, 1.4988 und 1.4981 im Ausgangszustand und im korrodierten Zustand untersucht und z.B. beim Material 1.4988 Ch.Nr. 25116 folgende Gehalte an Cr, Ni und Mn in den Außenzonen gefunden:

Ausgangsmaterial:

μm	<u> </u>	<u>% Ni</u>	% Mn
1	17,3/17,8	13,2/13,5	1,1/1,1
3	17,1/17,7	13,2/13,5	1,1/1,1
5	16,8/16,2	13,4/13,5	1,1/1,06
7	16,5/16,2	13,5/13,5	1,16/1,05
99	16,4/16,1	13,5/13,5	1,11/1,01

Probe M 4:

μm	% Cr	<u>% Ni</u>	Z Mn
0,3-0,6	10,65	9,65	0,56
0,9-1,2	13,8	9,5	0,76
1,5-1,8	14,8	10,0	0,83
2,1-2,4	15,0	10,3	0,81
2,7-3,0	15,9	10,45	0,85
3,3-3,6	16,4	10,75	0,86
3,9-4,2	15,65	11,75	0,86
4,5-4,8	16,4	11,9	0,88
5,1-5,4	17,15	12,75	0,88
5,7-6,0	16,5	13,6	0,87
6,5-6,8			0,94
7,6-7,9			0,95
8,6-8,9			0,96
9,7-10,0			0,98
10,7-11,0	·		0,97
11,8-12,1			1,0

# 1141.3 <u>Reinheit und Reinheitskontrolle des Na</u> (1)

(Helga Schneider, H.U. Borgstedt, IMF; G. Drechsler, G. Frees, IRB)

In den Reinigungskreis des Hochtemperaturnatriumkreislaufs wurde die elektrochemische Sauerstoffsonde TPE-1/349 (Bauart United Nuclear Corp.) eingebaut und in Betrieb genommen. Nach mehreren Tagen Reinigungsbetrieb bei 172 °C Kaltfallentemperatur zeigte die Sonde bei 350  $\pm$  5 °C 1,154  $\pm$  0,002 Volt an, entsprechend einer Sauerstoffkonzentration von 3,2  $\pm$  0,3 ppm nach der Theorie, in guter Übereinstimmung mit der Löslichkeitskurve von Eichelberger (USAEC-Report AI-AEC-12685, 1965).

Zur Abschätzung der Kohlenstoffaktivität im Natrium des Hochtemperaturkreislaufs wurde eine zweite Serie von Eisenfolien im Testteil exponiert. Nach dem Abbeizen von Massetransportprodukten wurden die Folien analysiert. Die Entkohlung der Eisenfolie entsprach, Einstellung des Gleichgewichts vorausgesetzt, einer Kohlenstoffaktivität im Natrium von 0,12. In Konzentration umgerechnet, ergibt das einen Wert von 5  $\pm$  2 ppm Kohlenstoff im Natrium. Diese Konzentration liegt höher als der Sättigungswert in den kalten Kreislaufteilen, so daß mit einer ungleichmäßigen Verteilung des Kohlenstoffs im Natrium zu rechnen ist.

Es ist nicht geklärt, ob die Massetransportablagerungen auf den Eisenfolien die Messungen beeinflußt haben könnten.

# 1142 Dampf- und Gaskühlung G

# 1142.1 Korrosionsverhalten in Dampf, Laborversuche<sup>1)</sup> (S. Leistikow, IMF)

Nachdem in Heißdampf-Korrosionsversuchen in verschiedenen Versuchseinrichtungen der korrosionshemmende Einfluß einer dem Versuch vorhergehenden mechanischen Verformung an kaltgewalzten Blechen einiger austenitischer CrNi-Stähle nachgewiesen worden war (2,3), wurden verformende technische Oberflächenvorbehandlungen für Rohrmaterial und ihr Einfluß auf die Korrosionsbeständigkeit der Legierung Incoloy 800 im Korrosionsversuch erprobt. Dazu wurden die Oberflächen von Rohrabschnitten (12,5 x 1,25 x 40 mm) durch Anwendung von sechs technischen Verfahren (Walzen, Sandstrahlen, Beschuß mit Nadelpistole, Schmirgeln, Schleifen und Drehen) verformt. Sodann wurde die Oberflächenstruktur und als Maß der erzielten Kaltverformung die Vickershärte (HV, 50 g) bei 2,5 - 3,0  $\mu$ m Eindringtiefe gemessen. Im Heißdampf-Laborkreislauf und -Autoklaven wurde die Korrosionsbeständigkeit während 500 resp. 1000 Stunden bei 620 resp. 600 <sup>o</sup>C untersucht. Die Ergebnisse (Abb. 3) zeigten

- die Durchführbarkeit der angewandten technischen Verfahren zur gleichmäßigen, kaltverformenden Oberflächenbearbeitung von Rohrmaterial,
- die erzielten, verfahrensspezifischen Oberflächenhärten des Rohrmaterials, die entsprechenden Verformungsgraden (%) zugeordnet werden können,
- in Übereinstimmung mit den Versuchen an kaltgewalzten Blechen den korrosionshemmenden Effekt einer der korrosiven Beanspruchung durch oxidierende Gase vorausgehenden mechanischen Verformung,
- die im Korrosionsversuch umgekehrt proportional zum Härteanstieg abnehmende Menge korrodierten Metalles des Rohrmaterials, wobei im günstigsten Falle nach Überdrehen der Rohrproben eine Verminderung von etwa 300 auf 15 mg/dm<sup>2</sup> festgestellt werden konnte.

Weitere Untersuchungen werden gegenwärtig im HKW-Hochdruck-Kreislauf unter Wärmeübergang und in isothermer Anordnung durchgeführt.

1) Letzler Bericht in KFK 1272/2

#### 114-5

114-6



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

3

Die Versuche an elektrisch indirekt beheizten Incoloy-800 Probestäben in drei verschiedenen Gefügezuständen wurden fortgesetzt. Im 20% kaltverformten Gefügezustand liegen nunmehr 11 Stäbe nach Versuchszeiten bis 2130 Betriebsstunden vor, so daß für diese Version ein vorläufiger Abschluss erreicht ist. - Ein durch Sandstrahlen oberflächlich stark kaltverformter Stab wurde nach 1125 Betriebsstunden zur Nachuntersuchung ausgebaut.

Obwohl die Nachuntersuchungen durch Gravimetrie, ß-Rückstreutechnik, Metallographie und chemische Entzunderung noch im Gange sind, läßt sich hinsichtlich der kaltverformten Probestäbe bereits folgendes feststellen: Die innerhalb des Versuchszeitraums bis zu 2000 h aufgetretenen mittleren Metallverluste von etwa 200-300 mg/dm<sup>2</sup> = 2,5 - 3,5 µm sind von vergleichbarer Größe mit den von der General Electric Company an Incoloy 800 Stäben unter Wärmeübergang in Heißdampf von 70 at, 50 - 65 m/sec, 55 W/cm<sup>2</sup> gemessenen korrodierten Metallmengen 600 - 700 °C/2000 Std./ 270 mg/dm<sup>2</sup>. Die im Versuch entstandenen Oxidschichten sind ebenmäßig aufgewachsen, haftfest und in ihrem Aufbau zweischichtig. Oxidverluste an das Heißdampf-System sind bislang nicht erkennbar.

Drei Probestäbe des spannungsarm geglühten Zustandes erreichten etwa 900 Betriebsstunden. Einer davon wurde zur Nachuntersuchung ausgebaut. In den zwei isothermen Teststrecken wurden die eingesetzten Proben weitere 1000 h exponiert, so daß sie nunmehr eine gesamte Betriebszeit von etwa 3000 h akkumuliert haben.

# 1142.3 <u>Gas-Korrosion</u><sup>1)</sup> (S. Leistikow, IMF)

Es wurde mit vergleichenden Hochtemperatur-Korrosionsversuchen an den drei austenitischen CrNi-Stählen Werkstoff Nr. 1.4970, 1.4981 und 1.4988 in Edelgasen bekannter Konzentration an gasförmigen Verunreinigungen begonnen.

Um vorab die Abhängigkeit der Korrosionsgeschwindigkeit vom Angebot des Oxidationsmittels im Laborversuch zu prüfen, wurden Vorversuche an 8 Blechproben des Werkstoffs Nr. 1.4970 (12R72HV-Sandvik) bei 700 <sup>o</sup>C während 70 Stunden in Argon mit 5 und 50 ppm oxidativen Verunreinigungen (Summe  $0_2$ +H<sub>2</sub>O) bei 1 at und 0,03, 0,17 und 0,35 m/sec ausgeführt. Diese Versuche ergaben – ohne erkennbare Abhängigkeit von Konzentration und Strömungsgeschwindigkeit des Oxidationsmittels – Gewichtsänderungen der Proben von 5-8 mg/dm<sup>2</sup>, entsprechend 13-20 mg/dm<sup>2</sup> korrodierten Metalls.

In einem Langzeitversuch an vier Blechproben des gleichen Werkstoffs bei 700 °C während 1000 Stunden in Argon mit etwa 5 ppm Summe oxidativer Verunreinigungen wurden Gewichtsänderungen von 10-15 mg/dm<sup>2</sup>, entsprechend 25-38 mg/dm<sup>2</sup> korrodierten Metalls, gemessen.

Dabei verminderte sich die Sauerstoffaufnahme der Proben in dem zweiten 500 Stunden-Lauf auf etwa 0,5 mg/dm<sup>2</sup>, entsprechend 1,28 mg/dm<sup>2</sup> korrodierten Metalls, die also keine lineare Zeitfunktion, sondern ein starkes Abklingen der Reaktionsgeschwindigkeit erkennen läßt. In allen folgenden Versuchen werden die Verunreinigungskonzentrationen schrittweise auf das technische Niveau (1-10 vpm bei 100 ata) angehoben werden.

<sup>1)</sup> Erster Bericht

# Veröffentlichungen

- ( 1 ) H.U. Borgstedt, G. Frees, G. Drechsler: "Zur Natriumreinigung mit der Heißfalle", Atomwirtschaft <u>17</u> (1972) 506-507
- (2) S. Leistikow, E. Pott:

"Der Einfluß der Kaltverformung auf die Korrosionsbeständigkeit austenitischer CrNi-Stähle im überhitzten Wasserdampf.

2. Statische Autoklavenuntersuchungen der Legierung Incoloy 800 in verschiedenen Korngrößen" KFK-1681 (Dezember 1972)

 (3) S. Leistikow, W. Scheibe: "Heißdampf-Korrosionsuntersuchungen an geschweißten Blechen der Legierung Incoloy 800" Werkstoffe und Korrosion (im Druck)

## 115 ARBEITEN ZUM BRENNSTOFFZYKLUS

## 1151. Naßchemische Extraktionsverfahren\*

Elektrolytische Pu-U-Trennung in der MILLI <sup>1)</sup> (H. Schmieder, H. Goldacker, H. Hausberger, IHCh)

Das im Labormaßstab in der LABEX (Laborextraktionsanlage) im Gegenstrom erarbeitete Verfahren zur elektrolytischen Pu-U-Trennung (1) wurde in der Laboranlage MILLI getestet. Dazu wurde im 3. Extraktionszyklus der erste Extraktor zur Extraktion von Pu-U verwendet, in den zwischengeschalteten Mischabsetzer Milli-Emma (Elektrolytischer Mehrstufenmischabsetzer) das Pu aus der organischen Lösung durch elektrolytische Reduktion zu Pu (III) in die wässrige Phase gebracht und das in der organischen Phase verbleibende U im letzten Mischabsetzer des 3. Milli-Zyklus rückextrahiert. Der elektrolytische Mischabsetzer war für den Durchsatz der Milli von Ikg Brennstoff pro Tag ausgelegt. In Abb. 1 ist in oberen Teil der Querschnitt einer Kammer des Mischabsetzers dargestellt. Der Mischabsetzer ist aus Titan gefertigt. Das Titangehäuse ist kathodisch geschaltet. Die Anode aus Platin hängt in der keramisch isolierten Anodenzelle. Die Versenkung der Anodenzelle verhindert durch den wässrigen Verschluss eine Ansammlung von organischer Phase im Anodenraum. Dieser Glockenverschluß hat gegenüber Diaphragmen bedeutende Vorteile. In der Milli-Emma befinden sich 16 derartige Kammern mit Elektroden. Die Reduktion fand je nach

Versuch in verschiedenen Kammern statt.

Abb. 1





F-∏itanium Containment ───>org.Phase G=Anode --->aq.Phase H=Isolator

Schematic Drawing of an Electrolytic Mixer-Settler in Pilot Plant Scale

B=ag.Phase

C=org.Phase

D=Interface

1) Erster Bericht

Nr. 2 P g	20% TI Pu g/1	BP/A1ka U g/1	an HNO M 3	1BFo 1BXa	<u>1BSo</u> 1BXa	Pu mg/1	U g/1	0 Trenn- faktor SFpu	U g/1	Pu g/1	Trenn- faktor SF <sub>u</sub>	Ieff /A_7	Ausbeute für Pu I <sub>theor</sub> ./I <sub>eff</sub> .
1 3	3.1	58.0	0.15	6.4	1.28	0.9-2	44.0	2700-1270	0.3	18.2	1140	1.8	0.14
2 2	2.5	52.1	0.17	6.1	1.22	0.8-1.5	43.5	2000-1100	<0.13	11.5	>2500	1.75	0.12
3 5	5.0	49.1	0.17	5	1	1-6	41.2	3500-600	<0.13	21.0	>2000	2.0	0.21
4 4	4.6	48.0	0.17	5	1	0.8-6	41.8	4600-600	<0.17	22.2	>1500	2.1	0.18 V

# Tab. 1: Pu-U-Trennung im 16-stufigen Titan Misch-Absetzer (Milli-Emma)

TBP: Tributylphosphat

1BF<sub>o</sub>: In den Misch-Absetzern dosierte org. Lösung

1BX<sub>a</sub>: Zur Pu-Rückextraktion verwendete wässrige Lösung

 $1BS_0:20\%$  TBP zur Uran-Extraktion aus der Pu-führenden  $1BX_a$ -Lösung

Die Versuche wurden mit den zu erwartenden Pu-Konzentrationen bei der gemeinsamen Aufarbeitung von Core und Blanket durchgeführt. Als Extraktionsmittel diente eine 20% TBP Lösung in Alkan. In Versuch Nr. 1. und 2 (Tab. 1) wurde ca. 5% Pu, in Versuch 3 und 4 ca. 10% Pu bezogen auf Uran verwendet. Für das Plutonium wurden Trennfaktoren bis zu 5000 im Uranprodukt erreicht. Für das Uran wurden Trennfaktoren >2500 im Plutoniumprodukt erhalten. Diese Werte liegen in der Größenordnung bzw. sind sogar besser als die mit chemischen Reduktionsmitteln bisher erreichten Trennungen.

Gegenüber den üblichen Verfahren hat die elektrolytische Pu-U-Trennung besonders für Brennstoffe mit hohem Pu-Gehalt folgende Vorteile:

- 1. Vermeidung der Zugabe zusätzlicher und korrosiver Ionen.
- 2. Keine Rezirkulierung von Uran. Bei 10% Pu ist bei Reduktion mit Uran (IV) 50% des Urans als U(IV) zurückzuführen.
- 3. Erhaltung der U-Isotopenzusammensetzung
- 4. Eine gute Steuerung der Reduktion über den elektrischen Strom und dadurch erhöhte Betriebssicherheit.
- 5. Besonders kompakte Apparate beim Ablauf der Elektrolyse im Extraktionsapparat.
- 6. Minimales Volumen der Prozeß- und Warte-Lösungen.

Untersuchung des Verhaltens von Bi und Pb bei der Extraktion mit TBP (W. Ochsenfeld, IHCh)

Blei-Wismut - Legierungen werden als mögliche Kühlmittel für den Transport hochabgebrannter Brennelemente in Betracht gezogen. Es war zu klären, inwieweit PB und BI aus salpetersauren Lösungen mit TBP extraktiert werden. Falls diese Elemente extrahierbar wären, stellte sich die Frage nach deren Rückextraktion aus den organischen Lösungen.

Mit 30% TBP/Alkan wurden aus 2M  $HNO_3$  und 50 g Metall/l enthaltenden Lösungen für Blei Verteilungskoeffizienten von  $<2\times10^{-3}$ , für Wismut von 0,27 bestimmt. Deshalb wurde nur das Verhalten des Wismuts näher untersucht. Die Verteilungskoeffizienten des Bi aus 2M  $HNO_3$  Lösungen mit 30% TBP/Alkan gibt Tabelle 2 wieder. Mit Zersetzungsprodukten des TBP, 300 mg/l Di- und Monobutylphosphat, enthaltendem Extraktionsmittel bestimmte Verteilungskoeffizienten sind in Tab. 3 zusammengefaßt.

Die Extraktion geschah jeweils aus 2M HNO<sub>3</sub> Lösungen. Die organische Phase wurde dann mehrmals im Volumenverhältniss 1:1 mit 0,01 M HNO<sub>3</sub> rückextrahiert und die Verteilungskoeffizienten der einzelnen Stufen bestimmt.

[ab.	2:	Bi-	Verte:	ilung:	skoefi	fizier	iten	mit	30%	TBP/	'Alka	r
the second s						and the second sec						

	1	
	a.	ь.
Extraktion	0.28	0.20
1. Rückextraktion	0.25	0.19
2. Rückextraktion	0.36	0.26

a. 5g Bi/1, 2M HNO, in der wässrigen Ausgangslösung

b. 5g Bi/1, 100 g U/1, 2M HNO, in der wässrigen Ausgangslösung

Tab. 3: Bi-Verteilungskoeffizienten mit 30% TBP + 300 mg (HDBP + H<sub>2</sub>MBP)/1

	а.	b.
Extraktion	1.84	0.19
1.Rückextraktion	8.2	0.12
2.Rückextraktion	>160	

a. 5g Bi/1, <sup>2M</sup> HNO<sub>3</sub> in der wässrigen Ausgangslösung
b. 5g Bi/1, 100 g U/1, <sup>2M</sup> HNO<sub>3</sub> in der wässrigen Ausgangslösung

Die Extrahierbarkeit des Bi wird durch HDBP<sup>1</sup> und H<sub>2</sub>MBP<sup>2</sup> beinahe um das 10fache erhöht, und die Rückextraktion wird sehr schlecht. Uran in großem Überschuß, wie das bei der Gegenstromextraktion zu erwarten ist, (Tab. 3, Serie b) verdrängt offensichtlich das Bi aus den Komplexen. Die Bi-Verteilungskoeffizienten liegen wieder bei den Werten mit reinem 30% TBP der Tab. 2 Serie b.

- 1) Dibutylphosphat
- 2) Monobuty1phosphat

## Veröffentlichungen:

- H. Schmieder, F. Baumgärtner, H. Goldacker, H. Hausberger Reaktortagung Bonn, 30.3.-2.4.1971, Tagungsbericht S. 706
- H. Schmieder, E.Kuhn
   Reaktortagung Hamburg, 11.4.-14.4.1972, Tagungsbericht S. 260
- 1157 <u>Versuche zur Wärmeabfuhr von einem SNR-Brennelement während seines</u> <u>Transportes</u><sup>\*1)</sup> (B. Räpple, M. Prüßmann, RBT)

Das Vorhaben beinhaltet Versuche zum Studium der Temperaturverteilung in einer Transportbüchse für bestrahlte SNR-Brennelemente und der mit dieser Anordnung abführbaren Nachwärmeleistung.

Die hierfür zu erstellende Versuchseinrichtung verwendet eine BEVUS-Element-Attrappe, die in einer Büchse von 4 m Länge und 200 mm li. Weite bei organischen bzw. 150 mm li. Weite bei metallischen Kühlmitteln angeordnet wird. Versuchsparameter sind die Schräglage der Büchse, die Leistung und die äußeren Wärmeabfuhrbedingungen.

Seit der Auftragserteilung wurde die Versuchseinrichtung geplant und gefertigt. Die Abnahmeprüfungen an den Bauteilen wurden bereits abgeschlossen, die Montage vor Ort ist beendet. Nach Anschluß der elektrischen Verbindungen an Heizelementen und Thermoelementen kann die Aufnahme des Versuchsbetriebes im Februar 1973 erfolgen.

Während der Planungs- und Fertigungszeit wurden an vereinfachten Modellen Vorversuche durchgeführt:

1. Versuche mit einem einzelnen, in ein 2,5 m langes Rohr NW 80 eingebauten BEVUS-Heizstab.

Die Versuche dienten vor allem dem Ziel, zu einer günstigen Anordnung und Verteilung der Meßstellen beim endgültigen Versuchsmodell zu kommen. Das Ergebnis bestätigte die Annahme, daß es für die Messung der Kühlmitteltemperaturen unbedeutend ist, ob sich die Meßstellen - stationärer Zustand vorausgesetzt - direkt im Medium oder in einem dünnwandigen Leerrohr befinden, das ins Medium hineinragt. Die endgültige Experimentiereinrichtung wurde daraufhin mit mehreren Leerrohren (Meßrohren) innerhalb des Heizbündels und außerhalb des Sechskantrohres bestückt. Dadurch waren lediglich bei wenigen ortsfest zu verlegenden Thermoelementen (TE) die aufwendigen Durchführungen erforderlich. Die übrigen TE wurden als TE-Bäume in die Meßrohre eingeschoben, sind also lageveränderlich, wodurch auch ihre Anzahl erheblich reduziert werden konnte.

2. Versuche mit 5 Heizstäben und 4 Meßrohren in einem 2,5 m langen Rohr NW 80 und einem Zwischenmantel NW 40. Die Versuche ließen Rückschlüsse zu auf das zu erwartende Strömungsverhalten und damit der Temperaturverteilung im Versuchssystem bei den verschiedenen Kühlmedien, Schräglagen und Leistungsstufen. Die Temperaturmessung wurde bereits mit TE-Bäumen durchgeführt.

Der Vergleich zwischen Öl und Wachs als Kühlmittel ergab ein Verhältnis der maximalen Wärmeabfuhr von 2,6 kW zu 3,9 kW, das sich durch die unterschiedliche zulässige Filmtemperatur - 320 °C bei Öl, 350 °C bei Wachs - und eine (versuchsbedingt) etwa 15% größere Oberfläche beim Wachs einstellte. Dies entsprach einer spez. Heizleistung am Heizstab von 5,5 W/cm (Öl) bzw. 8 W/cm (Wachs), sowie einer spez. Belastung am Außenmantel von 0,37 W/cm<sup>2</sup> bei Öl und ~ 0,5 W/cm<sup>2</sup> bei Wachs.

Entsprechend kann mit der äußeren Oberfläche der endgültigen Versuchsbüchse von 27 000 cm<sup>2</sup> eine maximale Wärmeabfuhr von ~ 10 kW bei Öl und ~ 13,5 kW bei Wachs erwartet werden. Dabei ist mit einem ähnlichen  $\Delta t$  zwischen Heizstab und Mantelfläche wie bei den Vorversuchen zu rechnen.

Im Bereich zwischen der Schmelztemperatur von Wachs = 145 °C und der zulässigen Filmtemperatur von Öl = 320 °C verhalten sich beide Kühlmittel praktisch gleich, wie dies aus den Stoffwerten zu erwarten war. Stopfenbildung bei Wachs trat auch bei kleinsten Leistungen nur unterhalb der Heizzone ein, und zwar bei Leistungen <1050 Watt. Die Temperatur-Verteilung war in diesen Fällen vergleichbar mit den Ergebnissen der Ölversuche mit abgesenktem Ölspiegel, d.h. mit unterbrochener Zirkulation. In Schräglagen von  $15^{\circ}$  bis  $75^{\circ}$  waren die abführbaren Wärmemengen und die übrigen Daten jeweils praktisch gleich. Auf eine Unterteilung dieses Bereichs kann künftig verzichtet werden. Für das Versuchsprogramm werden daher  $0^{\circ}$ ,  $5^{\circ}$ ,  $15^{\circ}$ ,  $75^{\circ}$  und  $90^{\circ}$  zur Waagrechten als ausreichend angesehen.

Die Leistungsstufen werden mit 3, 6, 9 kW usw. gefahren werden bis zum zulässigen Maximum, das durch die Stoffwerte gekennzeichnet ist.

Abb.2 zeigt im Schema die Anordnung der Thermoelemente bei einem der Vorversuche.

Die ersten Experimente mit der Attrappe werden ebenfalls noch mit organischen Kühlmitteln durchgeführt werden. Der Schwerpunkt soll jedoch auf der Flüssigmetallkühlung liegen.



## 121 PHYSIKALISCHE EXPERIMENTE

## 1211 Experimentelle Reaktor- und Neutronenphysik

1211.1 Meßmethoden für Nulleistungsreaktoren

Spaltspurdetektoren F 1)

(E. Korthaus, R. Papp, IASR; B. Goel, INR)

Bei den bisher durchgeführten Messungen mit der automatischen Spurenzählanordnung war festgestellt worden, daß die auftretenden Zählverluste in verschiedenen Bereichen der Detektorfolien unterschiedliche Werte annehmen. Dies führt bei Feinstrukturmessungen zu Fehlern bis zu 10% in den örtlichen Spaltratenverteilungen. Eine genauere Analyse dieser Messungen ergab, daß diese unterschiedlichen Zählverluste auf Schwankungen in der mittleren Spurengröße zurückzuführen sind, welche bis zu 10% betrugen. Derartige Schwankungen beim Ätzprozeß lassen sich offenbar nicht vermeiden, so daß, wie ursprünglich angenommen, eine Korrektur dieser Effekte mit in das Auswerteverfahren eingebaut werden muß. Die Wirksamkeit einer solchen Korrektur zeigt die Abb. 1. Die Korrekturfaktoren wurden näherungsweise durch unterschiedliche Diskriminatoreinstellung am Zählgerät gewonnen, womit eine Variation der Spurengröße simuliert wurde. Gegenwärtig ist eine größere Ätzserie in Arbeit, die ausführliche Informationen über den Einfluß unterschiedlicher Spurengrößen in Abhängigkeit von der Spurendichte erbringen soll.

1211.4 Messung ortsabhängiger Neutronenspektren in der SUAK-Anordnung UHNaFe nach der Flugzeit-Methode und mit Protonen-Rückstoß-Zählrohren F1)

(F. Kappler, H. Werle, INR)

Die Anordnung UHNaFe besteht aus aneinandergrenzenden Schichten von Natururan, Polyäthylen, Natrium und Eisen und dient der Untersuchung von Neutronenspektren in der Grenzschicht Natrium-Eisen. Die Neutronenspektren wurden im Energiebereich 100 eV bis etwa 200 keV durch Flugzeit-Messungen mit einem Li<sup>6</sup>-Glas-Szintillations-Zähler und zwischen etwa 100 keV und 4.5 MeV auch mit zwei zylindrischen Protonenrückstoß-Zählrohren bestimmt.

1) Letzler Bericht in KFK 1272/2



SNEAK - 9A/0

In Abb. 2 ist der Aufbau der Anordnung schematisch dargestellt. Die Anordnung wurde mit 14 MeV Neutronen angeregt. Bei den Flugzeitmessungen wurde die gepulste Neutronen-Blitzröhre [1, 7] (Pulsbreite 0,5 µsec, Wiederholungsfrequenz 133 Hz) eingesetzt, und bei den Protonenrückstoßmessungen wurde der Cockroft-Walton-Beschleuniger [1, 2] im kontinuierlichen Betrieb verwendet. Das Target der Neutronengeneratoren befand sich jeweils auf der Achse der Anordnung unmittelbar vor der Natururanschicht. Gemessen wurde das Ausflußspektrum in Richtung des Extraktionskanals für sechs in Abb. 2 angedeutete Positionen.

Als Neutronendetektor wurde bei den Flugzeit-Messungen ein Li<sup>6</sup>-Glas-Szintillator (NE 905, 4 3/8"Øxl") benutzt. Die Flugstrecke betrug etwa 52,2 m. Der Detektor war in einer Abschirmung aus Borcarbid und Lithiumcarbonat-Paraffin-Quadern untergebracht.

Der Untergrund wurde bestimmt durch Transmissionsmessungen mit Filtern aus Materialien mit großen Resonanz-Wirkungsquerschnitten (Al, Co, Mn), die für Neutronen mit Resonanzenergie undurchlässig sind. Die ermittelten Untergrundpunkte konnten durch ein Polynom 4. Grades näherungsweise dargestellt werden. Die gemessenen Flugzeit-Verteilungen wurden mit dem Programm TOF  $\sqrt[2]{4}$ ausgewertet.

Die Proportional-Zählrohre waren in einer Borparaffin-Abschirmung in einem Abstand von etwa 3 m von der Anordnung untergebracht. Die gemessenen Extraktionsspektren müssen bezüglich zweier Beiträge korrigiert werden: 1) Untergrund raumgestreuter Neutronen und 2) Beitrag von Neutronen mit Energien oberhalb des Meßbereiches zum Signal im Meßbereich. Der Untergrund von raumgestreuten Neutronen ist klein (\* 3%) und wurde dadurch bestimmt, daß in den Extraktionskanal ein 30 cm langer Polyäthylen-Stopfen eingesetzt wurde. Der zu korrigierende Beitrag hochenergetischer Neutronen ist wesentlich größer (30-50%). Für das große Zählrohr (Methanfüllung), das den Energiebereich zwischen 1 - 4.5 keV mißt, besteht er zu 95% aus 14 MeV-Target-Neutronen. Er wurde daher für dieses Zählrohr experimentell durch Messung des Spektrums des nackten Targets bestimmt. Für das kleinere Zählrohr (Wasserstoff-Füllung) wurde er aus berechneten Multigruppen-Spektren bestimmt. Das Auswerteverfahren ist in  $\sqrt{3}$  7 näher beschrieben. Die mit den beiden Zählrohren bestimmten Spektren konnten nicht absolut aufeinander bezogen werden, weil sich die Intensität des kollimierten Neutronenstrahls quer zur Achse stark ändert und die Zählrohrdurchmesser verschieden waren. Das Spektrum des CH,-Zählers (Ø=10 cm) wurde daher über den integralen Fluß zwischen 0.92 - 1.15 MeV an das des H<sub>2</sub>-Zählers ( $\emptyset$ = 5 cm) mit demselben Faktor für alle Positionen angepaßt. Die gesamte Meßzeit für alle sechs Positionen betrug etwa 25 Stunden.

121-3

In Abb. 2 sind die gemessenen Spektren dargestellt. Die dargestellten Gruppenflüsse wurden erhalten durch Kondensation der Meßergebnisse in Energiegruppen mit einer Lethargiebreite  $\Delta u = 0,11$ . Die aus den beiden Meßverfahren gewonnenen Teilspektren wurden im Energiebereich 200 - 300 keV zueinander normiert, und die Gesamtspektren der einzelnen Positionen können auf einen einheitlichen Fremdquellfluß bezogen werden. Daraus läßt sich die Schwächung des Flusses mit zunehmendem Abstand von der Fremdquelle bestimmen. In Abb. 2 wurden die Spektren jedoch aus Gründen der Übersichtlichkeit gegeneinander versetzt gezeichnet. Die Spektren zeigen eine den Wirkungsquerschnitten entsprechende Struktur. Die Natrium-Resonanz bei etwa 3 keV wird in Eisen überlagert von der Mangan-Resonanz bei 2,37 keV. Eine quantitative Interpretation dieser Meßergebnisse mittels ein- und zweidimensionaler S<sub>n</sub>-Rechnungen wird zur Zeit ausgearbeitet.

## Literatur:

- / 1\_7 W. Eyrich, A. Schmidt Two Compact, High Intensity Pulsed Neutron Sources KFK 304 (1965)
- [-2\_7] D. Rusch Eine gepulste 14 MeV Neutronenquelle mit Klystron-Strahlgruppierung KFK 1271/2 oder EUR 4721 d (Sept. 1971)
- [4\_7 M.P. Ferranti, F. Kappler INR-Arbeitsbericht Nr. 422/71, Prog.-Beschr.-Nr. 259/71



121-5

#### 1213 SNEAK

# Geometrischer Aufbau und Meßprogramm von SNEAK-9A\*

(M. Pinter, IASR)

#### 1. Einleitung

Mit den Anordnungen SNEAK-9A werden die Experimente für den SNR fortgesetzt. Wie bereits in /1/ berichtet wurde, ist SNEAK-9A ein reines Urancore, bestehend aus zwei Zonen mit verschiedener <sup>235</sup>U-Anreicherung, in dem die Kontroll- und Sicherheitsstäbe des SNR nachgebildet sind. Ziele der Anordnung sind:

- Vergleich von experimentellem und berechnetem k
- Messung der Abschaltreaktivität der SNR-Kontrollund Sicherheitsstäbe
- Messung der Leistungsverteilung bei verschiedenen
   Stellungen der SNR-Kontrollstäbe

Zur Lösung dieser Fragen schien es zweckmäßig, SNEAK-9A in drei Schritten aufzubauen, - 9A-0, 9A-1, 9A-2 - die im folgenden beschrieben werden.

## 2. SNEAK-9A-O

SNEAK-9A-0 ist ein Zweizonen-Urancore <u>ohne</u> Simulation der SNR-Kontroll- und Sicherheitsstäbe. Der Querschnitt des kritischen Cores ist in Abb. 3 zu sehen. Hauptziel dieser Anordnung war, an einem einfachen Core die Genauigkeit der k<sub>eff</sub>-Berechnung zu überprüfen. Alle Berechnungen wurden mit den 26-Gruppen-Querschnittssätzen KFKINR und MOXTOT durchgeführt.



Abb. 3

Basisrechnung war eine 2-dimensionale Diffusionsrechnung in r-z-Geometrie mit dem Programm DIXY. Anschließend wurden Korrekturen für die Zylindrisierung und Heterogenität der Zelle sowie Transport- und REMO-Korrekturen durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

	KFKINR	MOXTOT
26-Gruppen r-z DIXY	0.9974	1.0106
Zylindrisierung	-0.0029	-0.0031
Heterogenität	+0.0060	+0.0067
Transport	+0.0038	+0.0038
REMO		+0.0016
<sup>k</sup> eff, korr.	1.0043	1.0196

Tabelle 1 Ergebnisse der k<sub>eff</sub>-Rechnungen für SNEAK-9A-0

Außerdem wurden in SNEAK-9A-O noch Bucklingsmessungen und Materialwertmessungen durchgeführt.

#### 3. SNEAK-9A-1

In einem weiteren Beladungsschritt wurden an den Positionen der SNR-Kontroll- und Sicherheitsstäbe (je 4 SNEAK-Elemente) Elemente eingesetzt, die im oberen axialen Blanket  $B_4C$  als Absorber, im Corebereich und im unteren axialen Blanket Natrium enthalten. Dieser Zustand entspricht etwa den ausgefahrenen Stäben im SNR.

Von der realisierten kritischen Anordnung ist der Querschnitt in Abb. 4 wiedergegeben. Der Absorberteil der SNR-Kontroll-



Abb. 4

121-9

stäbe besteht aus einer Mischung von Al-Röhrchen, die mit  $B_4C$  gefüllt sind, und Vollaluminiumstäben /1/. Dieses Konzept wurde gewählt, um den Reaktivitätswert der Stäbe schnell ändern zu können, indem man ein mit  $B_4C$  gefülltes Röhrchen durch Vollaluminium ersetzt oder umgekehrt. Die Abschaltreaktivität aller 9 SNR-Kontrollstäbe im voll eingefahrenen Zustand sollte etwa 6.8% Ak betragen. Daraus ergab sich eine Zusammensetzung von 12 mit  $B_4C$  gefüllten Röhrchen und 4 Vollaluminiumstäben, die jeweils an den Ecken der SNEAK-Elemente angeordnet wurden.

Das Meßprogramm von SNEAK-9A-1 besteht im wesentlichen aus zwei Punkten:

- Messung der Unterkritikalität der neun halbeingefahrenen SNR-Kontrollstäbe, um die Vorhersage ihres Reaktivitätswertes zu überprüfen.
- Messung der Charakteristik der inneren drei Kontrollstäbe.

#### 4. SNEAK-9A-2

Mit SNEAK-9A-2 wird nun ein möglicher Betriebszustand des SNR nachgebildet. Ausgehend von SNEAK-9A-1 werden die Absorberteile der drei inneren und sechs äußeren SNR-Kontrollstäbe 40 cm ins Core hineinverlängert, um Einfahrtiefe zu simulieren. Anschließend wird durch Zuladen von Randelementen das Core wieder kritisch gemacht. Der Querschnitt dieser Anordnung wird in Abb.5 gezeigt.

Durch Variation der Eintauchtiefe der SNR-Kontrollstäbe – herausziehen der drei inneren Stäbe und weiter einfahren der äußeren Stäbe und umgekehrt – werden noch zwei weitere mögliche Betriebszustände des SNR simuliert. Alle diese drei Anordnungen haben jedoch dieselbe Coregröße.



Mit diesen drei Anordnungen werden folgende Ziele verfolgt:

- Vergleich von berechnetem und experimentellem k<sub>eff</sub> für ein Core mit teilweise eingefahrenen Kontrollstäben.
- Messung der Leistungsverteilung in beiden Corezonen unter besonderer Berücksichtigung der Punkte maximaler Leistung. Diese Messungen werden sowohl mit Spaltkammern als auch mit Aktivierung von Folien und SNEAK-Plättchen durchgeführt.
- Unterkritische Messungen. Gemessen werden die Charakteristiken der SNR-Kontrollstäbe sowie die Abschaltreaktivität der drei SNR-Sicherheitsstäbe.

#### Referenzen

/1/ G. Jourdan

Experimente für den SNR in der SNEAK PSB-2. Vierteljahresbericht 1971, KFK-1271/2, 1213.6
### Systematische Fehler und Korrekturmöglichkeiten bei inverskinetischen Kontrollstabeichungen (H. Walze, IASR)<sup>G</sup>

Es wurden die bei inverskinetischen Reaktorkontrollstabeichungen am häufigsten auftretenden systematischen Fehler zusammengestellt und entsprechende Korrekturmöglichkeiten angegeben. Als quantitative Beispiele dienten Kontrollstabmessungen, die an der SNEAK durchgeführt wurden.

Die Einflüsse des Meßzeitintervalls, der Meßtechnik, der zusätzlichen Neutronenquelle, der reaktorkinetischen Parameter und des verzögerten Gammaflusses machen sich entweder nur sehr geringfügig bemerkbar oder lassen sich relativ einfach eliminieren. Das galt bisher nicht für die betragsmäßig großen Meßfehler infolge örtlicher Oberwellen in der Neutronenflußverteilung. Diese Art systematischer Fehler stellte die Vorteile der kontinuierlichen Stabeichungen bezüglich der mehr konventionellen Periodenmessungen infrage, da bisher nur Korrekturmethoden zur Verfügung standen, die ausschließlich bei der Messung sprungförmiger Reaktivitätsänderungen zum Erfolg führten. Daher wurde eine iterative Methode neu entwickelt, die auch auf relativ langsame, d.h. nichtsprungförmige Reaktivitätsänderungen anwendbar ist, wie sie bei inverskinetischen Kontrollstabeichungen auftreten. Die Methode lieferte bei SNEAK befriedigende Ergebnisse.

#### Veröffentlichung:

H. Walze

Systematische Fehler und Korrekturmöglichkeiten bei inverskinetischen Kontrollstabeichungen KFK-1701 (Nov. 1972)

# 1215 <u>Wirkungsquerschnittsmessungen</u> F G

#### 1215.1 Van-de-Graaff-Beschleuniger

Im Berichtszeitraum konnte der Beschleuniger 988 h für Experimente genutzt werden, wobei der Anteil der Experimente für das PSB 62% betrug.

#### 1. Resonanzen mittelschwerer Kerne

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

Die Auswertung der Einfangquerschnitte von  ${}^{54,57}$ Fe,  ${}^{50,52,53}$ Cr und  ${}^{62,64}$ Ni wurde mit der Analyse von Resonanzen mit  $\ell > 0$  fortgesetzt. Zur näheren Untersuchung der s-Wellen-Resonanzen wurden Korrelationsrechnungen zwischen der totalen Strahlungsbreite  $\Gamma_{\gamma}$  und den zugehörigen Neutronenbreiten  $\Gamma_{n}$  durchgeführt. Die gefundenen positiven Korrelationen erlauben Rückschlüsse auf den Mechanismus der Einfangreaktion.

Technische Schwierigkeiten beim Umbau des 800 1 Flüssigszintillatortanks werden seinen Einsatz für weitere Experimente voraussichtlich bis Mitte Februar 1973 verzögern.

2. Messung von  $\overline{v}$  für <sup>239</sup>Pu und <sup>235</sup>U (R.-E. Bandl, F. Käppeler, IAK)

Die Messung des Energieverlaufs von  $\overline{v}$  für  $^{235}$ U dauerte wegen Ausfällen am Beschleuniger länger als vorgesehen, erste Ergebnisse liegen aber bereits vor. Diese vorläufigen Werte deuten auf Strukturen von  $\overline{v}$  im Bereich zwischen 400 und 600 keV hin. Eine zuverlässige Aussage hierüber kann jedoch erst nach einer endgültigen Auswertung der Messung gemacht werden, die noch im 1. Quartal 1973 vorliegen wird.

#### 3. Spaltquerschnittsmessungen

(F. Käppeler, R.R. Spencer, D. Roller, IAK)

Nach Abschluß der Massenanalyse der Meßproben liegen die endgültigen Ergebnisse des Spaltquerschnitts von <sup>235</sup>U vor (siehe Tab. 2). Im Energiebereich zwischen 500 und 1200 keV wurden 7 Absolut- und 12 Relativwerte bestimmt. Die Unsicherheit der Absolutwerte liegt bei 2,6 - 3,4%. Für die Relativwerte sind nur die für die Unsicherheit im Energieverlauf von  $\sigma_{\rm f}$ typischen Fehler angegeben. Abb. 6 zeigt die neu bestimmten Werte von  $\sigma_{\rm f}$  zusammen mit den bis Mitte 72 veröffentlichten Werten anderer Autoren. Diese Situation hat sich inzwischen insofern verbessert, als verschiedene weitere Messungen verfügbar sind, die durchweg die höheren Spaltquerschnittswerte bestätigen. Dazu gehört auch eine neue Messung von Poenitz, welche die alten, sehr niedrigen Werte ersetzt.

#### Veröffentlichungen zu 1215:

(1) F. Käppeler

Absolute Neutron Flux Determination in the Energy Region Between 0.4 and 2 MeV IAEA Panel on Neutron Standard Reference Data, 20.-24.11., Wien 1972

(2) F. Käppeler

A Measurement of the Neutron Fission Cross Section of  $^{235}\textsc{U}$  Between 0.5 and 1.2 MeV

IAEA Panel on Neutron Standard Reference Data, 20.-24.11., Wien 1972

NORMALIZED RELATIVE VALUES					
Neutron energy	Fission cross section	Overall uncertainty			
(keV)	(barns)	(%)			
$513 \pm 32$	1,210	0,9			
$580 \pm 20$	1,193	1,8			
$678 \pm 21$	1,208	1,2			
$767 \pm 20$	1,165	0,9			
$795 \pm 20$	1,178	1,2			
$872 \pm 20$	1,012	2,1			
$920 \pm 22$	1,141	1,5			
$930 \pm 20$	1,172	1,9			
$945 \pm 24$	1,206	1,1			
$966 \pm 21$	1,213	1,2			
1013 <u>+</u> 20	1,293	1,9			
1060 <u>+</u> 22	1,227	1,2			
ABSOLUTE VALUES					
$546 \pm 22$	1,207	3,4			
$662 \pm 23$	1,215	2,6			
$758 \pm 23$	1,164	2,6			
$908 \pm 22$	1,193	2,9			
$1057 \pm 26$	1,248	3,0			
$1125 \pm 25$	1,256	3,4			
$1175 \pm 25$	1,221	3,4			

TABLE 2 Numerical values of the <sup>235</sup>U fission cross section

L

□ Allen und Ferguson 1957 ♦ Diven 1957 O Gorlov et. al. 1960 NORMALIZED RELATIVE VALUES + Smirenkin et. al. 1962 THIS WORK  $\triangle$  White 1965 ABSOLUTE VALUES ⊗ Poenitz 1968 🕀 Poenitz 1971 REF. (15) **▽** Szabo et. al. 1971 1,3  $\diamond$ Î  $\diamond$ FISSION CROSS SECTION (barns) 1,2 図 0 1,1 8 8 Ð Ð 0  $\otimes$ Ο 1,0 8 700 900 1000 1100 1200 500 600 800 NEUTRON ENERGY (keV) --

Abb. 6: Fission cross section values from this work and from existing measurements.

#### 1216 SEFOR

#### 1) \* Übertragbarkeit der SEFOR-Dopplerergebnisse auf den SNR

(W.J. Oosterkamp, D. Wintzer, IASR)

Die Differenz zwischen berechneten und aus Experimenten abgeleiteten Dopplerkonstanten für Core I und Core II in SEFOR beträgt 5-10% (sowohl nach Auswertung von GE in Sunnyvale als auch nach GfK-Auswertung; vergleiche Tabelle 3). Daraus kann man schließen, daß es keine gravierenden (im Sinne von 30% oder mehr) Fehler in den nuklearen und nichtnuklearen Stoffdaten und in den Berechnungsmethoden für Dopplerkoeffizienten gibt.

		GE		GfK	
I	A	Exp <b>er</b> .	Rechnung	Exper.	Rechnung
Core I	Stat. Exp. Trans. Exp.	0081 0081	0085	0075 0079	0084
Core II	Stat. Exp. Trans. Exp.	0060 0060	0063	0059 0056	0063

Tabelle 3Dopplerkonstanten T dk/dT für isotherme Temperatur-änderungen in SEFOR

Es kann jedoch nicht daraus geschlossen werden, daß sich etwa der Dopplerenergiekoeffizient des SNR mit einer Unsicherheit von nur 5-10% voraussagen läßt. Es ist möglich, daß sich Teilfehler bei Rechnungen für SEFOR stärker kompensieren als für den SNR.

Die folgenden Unsicherheitsschätzungen sollen zeigen, in welchem Maße man damit rechnen muß. Die Schätzungen konzentrieren sich auf drei Teilfragen:

- Mit welcher Genauigkeit lassen sich Doppler-Leistungs- und Energiekoeffizienten aus den experimentellen Rohdaten bestimmen?
- Mit welcher Schärfe lassen sich daraus Dopplerkonstanten ableiten, die mit nuklearen Rechnungen vergleichbar sind?
- Mit welchen zusätzlichen Unsicherheiten muß man bei der Extrapolation auf SNR-Verhältnisse rechnen?

Unsicherheiten bei der Ermittlung der Doppler-Leistungs- und Energiekoeffizienten für SEFOR

Der temperaturabhängige Leistungskoeffizient  $C_D = d\rho/dP$  läßt sich am genauesten aus den statischen Messungen der Reflektorstellung als Funktion der Leistung bestimmen. Die wichtigsten Fehlerquellen sind mit den durch sie verursachten relativen Unsicherheiten (etwa "lo"-Vertrauensgrenzen) für  $C_D$  in Tabelle 4 zusammengestellt.

#### Tabelle 4

Unsicherheiten bei der Bestimmung des Doppler-Leistungskoeffizienten

Fehlerquelle	∆c <sup>D</sup> ∖c <sup>D</sup>
Absolute Leistungsbestimmung aus Wärme- bilanzdaten	<u>+</u> 4%
Reaktivitätseffekte durch thermische Ausdehnung	<u>+</u> 3%
Eichunsicherheiten bei Reaktivitätsmessungen	<u>+</u> 3%
begrenzte Reproduzierbarkeit (auch durch Um- strukturierung des Brennstoffs)	<u>+</u> 3%
Na-Temperaturkorrekturen der Reaktivität	<u>+</u> 2%
Gesamt	<u>+</u> 7%

In ähnlicher Größe liegen die Unsicherheiten bei der Bestimmung der Doppler-Energiekoeffizienten  $\gamma_D = d\rho/dE$  aus den Rohdaten der Transientenexperimente (vergleiche Tabelle 5).

# Tabelle 5Unsicherheiten bei der Bestimmung des Doppler-Energiekoeffizienten

Fehlerquelle	۵۲ <sub>D</sub> /۲ <sub>D</sub>
Absolute Leistungsbestimmung aus Wärme- bilanzdaten	<u>+</u> 4%
Signalrauschen und Nichtlinearität der Verstärker	<u>+</u> 3%
Reaktivitätseffekte durch thermische Ausdehnung	<u>+</u> 5%
Abklingzeit für verzögerte Neutronen	<u>+</u> 4%
Gesamt	<u>+</u> 8%

Der größte Einzelbeitrag stammt hier von der thermischen Ausdehnung. Die transiente Temperaturverteilung im Strukturmaterial und im Na ist schwierig zu berechnen.

# Unsicherheiten bei der Ermittlung von "experimentellen" SEFOR-Dopplerkonstanten

Für einen Test des nuklearen Teils der Dopplerrechnungen eignet sich die Dopplerkonstante  $A_D = T dk/dT$  für eine fiktive isotherme Aufheizung des Brennstoffs. Von der Seite des Experiments her ist dabei die Umrechnung ortsabhängiger in isotherme Temperaturverhältnisse und die Umrechnung von Leistungs- bzw. Energiezufuhren in Temperaturerhöhungen des Brennstoffs erforderlich. Beides ist mit Unsicherheiten verbunden. Außerdem gehen Unsicherheiten im effektiven Anteil  $\beta_{eff}$  der verzögerten Neutronen in einen Vergleich der experimentellen (in \$-Einheiten gemessenen) und (absolut in  $\Delta k/k$ ) berechneten Reaktivitätswirkungen ein. Geschätzte Unsicherheiten, die die Schärfe eines Vergleichs zwischen Rechnung und Experiment begrenzen, sind in Tabelle 6 aufgeführt.

<u>Tabelle 6</u> Unsicherheiten bei der Ermittlung von  $A_D$  aus  $C_D$  und  $\gamma_D$ 

	ΔA <sub>D</sub> /A <sub>D</sub>		
Fehlerquelle	Ermittl. aus C <sub>D</sub>	Ermittl. aus Y <sub>D</sub>	
Thermische Leitfähigkeit des Brennstoffs	<u>+</u> 10%	± 2%	
Globale Temperaturwichtung	<u>+</u> 4%	± 4%	
Wärmewiderstand im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle	<u>+</u> 4%	<u>+</u> 2%	
Spezifische Wärme des Brennstoffs		<u>+</u> 8%	
β <sub>eff</sub>	<u>+</u> 5%	<u>+</u> 5%	
C <sub>D</sub> bzw. Y <sub>D</sub>	<u>+</u> 7%	<u>+</u> 8%	
Gesamt	<u>+</u> 14%	<u>+</u> 13%	

Die möglichen Fehler bei der Bestimmung von  $A_D$  aus  $C_D$  und  $\gamma_D$  sind teilweise korreliert. Berücksichtigt man das, so ergibt sich für die kombinierte Bestimmung von  $A_D$  eine Unsicherheit von 11% aus den angegebenen Daten.

Sowohl die von GE als auch die von GfK berechneten Werte von  $A_D$  weichen also von den experimentell ermittelten Daten nur inner-

halb der "experimentellen" Unsicherheiten voneinander ab (vergleiche Tabelle 3). Allerdings haben vergleichende Rechnungen gezeigt, daß man bei nuklearen Dopplerrechnungen von der Seite der Kerndaten einen Spielraum von etwa 15 oder 20% und von der Seite der Rechenmethoden einen Spielraum von etwa 10% hat.

# Unsicherheiten bei der Extrapolation von Doppler-Leistungs- und Energiekoeffizienten auf den SNR

Tabelle 7 zeigt, daß die zusätzlichen Extrapolationsfehler zwar ins Gewicht fallen, trotzdem aber zu einer befriedigenden Voraussagegenauigkeit für den SNR führen. Bei den Fehlerschätzungen wurde davon ausgegangen, daß:

- a) direkte Dopplerrechnungen mit den gleichen nuklearen Daten
   (26 Gruppen KFKINR-Satz) und den gleichen nuklearen Berechnungsmethoden, einschließlich der Korrekturen und
- b) mit den gleichen Daten für spezifische Wärme, Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs u.s.w. durchgeführt werden, wie sie bei der SEFOR-Analyse verwendet wurden.
- c) Außerdem wird davon ausgegangen, daß das für SEFOR ermittelte Verhältnis zwischen Experiment und Rechnung (für γ<sub>D</sub> ist das nach Tabelle 3 etwa ein Faktor 1.1) auf die berechneten SNR-Werte übertragen wird.

Auf diese Weise wird aus der Korrelation einer Reihe möglicher Fehler (etwa bei  $\beta_{eff}$  und spezifischer Wärme) für SEFOR und SNR Nutzen gezogen.

Fehlerquelle	∆۲ <sub>D</sub> ∕۲ <sub>D</sub>
Experimentelle Unsicherheit für Yr	
in SEFOR	<u>+</u> 8%
Unterschiedliches Corespektrum	<u>+</u> 6%
Übertragung auf höhere Betriebstemperatur	
im SNR (Temperaturgang von T dk/dT)	<u>+</u> 5%
Spezifische Wärme des Brennstoffs	<u>+</u> 2%
Möglicher Unterschied in β eff	<u>+</u> 2%
Berechnung des Bezugs-Temperaturniveaus	<u>+</u> 2%
Unterschiedliche Ortsabhängigkeit der	-
Temperaturänderungen bei Energiezufuhr	<u>+</u> 3%
Zusätzliche Unsicherheiten bei Na-Void-	
Situationen	<u>+</u> 5%
Gesamt	<u>+</u> 14%

<u>Tabelle 7</u> Unsicherheiten bei der Extrapolation von  $\gamma_{D}$  auf den SNR

Ohne auf Einzelheiten einzugehen, sei erwähnt, daß die SEFOR-Experimente es erlauben, auch Leistungskoeffizienten für den SNR mit etwa 15% Genauigkeit (bei hohem Abbrand etwas ungenauer) vorauszusagen. Leistungskoeffizienten sind jedoch für die Sicherheitsauslegung weniger wichtig als Energiekoeffizienten.

Zur Beurteilung des Wertes der SEFOR-Experimente für die Voraussagegenauigkeit von  $C_D$  und  $\gamma_D$  für den SNR sei darauf hingewiesen, daß man ohne die SEFOR-Experimente mit Unsicherheiten in der Gegend von 25% für diese Größen rechnen müßte.

#### Veröffentlichung zu 1216:

L. Caldarola, D. Freeman, P. Greebler, G. Kussmaul, F. Mitzel, L. Noble, G. Pflasterer, W.J. Oosterkamp, D. Wintzer

SEFOR Experimental Results and Application to LMFBR's.

.

Proc. of the Internat. Conf. on Engineering of Fast Reactors for Safe and Reliable Operation, Karlsruhe, Oct. 1972

4

#### 122 REAKTORTHEORIE

#### 1221 Kerndaten

#### Übertragung des KFKINR-Satzes von der GROUCA auf die GRUBA-Daten

(J. Braun, H. Huschke, E. Kiefhaber, H. Rogalski, D. Woll, INR)

Der KFKINR-Gruppenkonstantensatz wurde vom GROUCO- auf das GRUBA-Format transformiert. Die GRUBA-Datei soll zusammen mit den zugehörigen Programmen zur Berechnung makroskopischer Gruppenkonstanten (z.B. GRUCAL) in dem neuen Programmsystem KAPROS benutzt werden, während die GROUCA-Datei innerhalb von KAPROS von untergeordneter oder vorübergehender Bedeutung sein wird. Die Daten wurden nahezu ausschließlich von einem dazu erstellten Programm transformiert und als Eingabe für das GRUBA-Verwaltungsprogramm GRUMA bereitgestellt. Nur in Ausnahmefällen wurden GRUBA-Daten in Kartenform bereitgestellt.

Bei der Transformation durch das Programm wurden gleichzeitig eine Konsistenz-Prüfung der Daten und im Zusammenhang hiermit geringfügige Korrekturen vorgenommen. Hauptsächlich betraf dies die Einhaltung der Neutronenbilanz bei den Streumatrizen. Die Verbesserungen waren in keinem Fall gravierend. Die dadurch verursachten Kritikalitätsänderungen waren stets kleiner als  $3 \times 10^{-4} = 0.03\% \frac{\Delta k}{k}$  und damit sicherlich vernachlässigbar. Untersucht wurden dabei in nulldimensionalen Diffusionsrechnungen etwa 40 Reaktoren.

Außerdem wurde festgestellt, daß die Änderungen bei der Berechnung der makroskopischen Querschnitte  $\Sigma_{\rm rem}$  und  $\Sigma_{\rm tr}$  bei der Benutzung der GRUBA-Daten und der zugehörigen Verarbeitungsprogramme ebenfalls in allen Fällen nur geringfügige Kritikalitätsänderungen bewirken (höchstens etwa 3 x 10<sup>-4</sup>), verglichen mit den entsprechenden NUSIS-Resultaten, die unter Benutzung der GROUCO-Daten berechnet wurden.

In nächster Zeit sollen unter Benutzung der bestehenden Programme weitere Gruppenkonstantensätze (z.B. der MOXTOT-Satz) vom GROUCQ- auf das GRUBA-Format transformiert werden.

#### 1222 Rechenverfahren

 <u>KADI, ein FORTRAN-Programm zur Lösung der stationären Vielgruppen-Neutronen-</u> <u>Diffusionsgleichungen in drei Raumdimensionen</u> <sup>F</sup> (G. Jacobs, INR)

#### Kurzbeschreibung der Rechenmethode

Die 3-dimensionalen, simultanen Vielgruppen-Diffusionsgleichungen für Abwärtsstreuung werden transformiert mittels einer konventionellen Boxintegrationstechnik in ein System von simultanen, linearen Siebenpunkt-Differenzgleichungen. Das entstehende, algebraische Eigenwertproblem wird gelöst durch innere Iteration der Gruppenflüsse, eingebettet in äußere Iterationen der Spaltquelle. Die äußere Iteration besteht aus der gewöhnlichen Potenzmethode, die inneren Iterationen werden ausgeführt von einer dreistufigen Variante der bekannten impliziten Iterationsmethode mit wechselnden Richtungen (Alternating Direction Implicit Iteration method = ADI).

#### Die verwendete ADI-Iteration

Resultieren die Matrizen U, V und W von der diskreten Darstellung der Diffusionstherme in x-, y- bzw. z-Richtung und des Removalterms, und ist q die Quelle, so wird für jede Gruppe auf das lineare System

(2.1) 
$$(U + V + W) \phi = q$$

das folgende dreistufige ADI-Iterationsschema angewendet:

(2.2)	$(c^{(p+1)} + U) \phi^{(p+1/3)} =$	$(c^{(p+1)} + U - r(U+V+W)) \phi^{(p)} + rq$
(2.3)	$(c^{(p+1)} + V)\phi^{(p+2/3)} =$	$c^{(p+1)}\phi^{(p+1/3)}+V\phi^{(p)}$
(2.4)	$(c^{(p+1)} + W)\phi^{(p+1)} =$	$c^{(p+1)}\phi^{(p+2/3)}+W\phi^{(p)}$

mit dem laufenden Iterationsindex p = a, 1...., $p_o$  und dem Startfluß  $\phi^{(o)}$ . Obwohl die Matrizen U, V und W im allgemeinen nicht vertauschbar sind, werden als Iterationsparameter  $p_o$ , r und c<sup>(p+1)</sup> mit gutem Erfolg gewisse Modellproblem-Iterationsparameter genommen <u>/</u>1, 2, 3<u>/</u>. Ihre Berechnung setzt die Bestimmung von Eigenwertschranken der Matrizen U, V und W voraus. Sie werden durch eine inverse Potenzmethode iterativ gewonnen <u>/</u>4\_7. (2.2), (2.3) und (2.4) werden blockweise direkt gelöst mit dem Verfahren der Vorwärtselimination und Rückwärtssubstitution von Gauss unter Mithilfe einer Permutation von U, V und W in direkte Summen von tridiagonalen Matrizen.

#### Status der Programmentwicklung

Folgende Möglichkeiten des Programms sind getestet:

- (3.1) (x, y, z) Geometrie
- (3.2) Randbedingung :  $\alpha \phi + \beta D \frac{\partial \phi}{\partial n} = 0$  $\alpha, \beta \ge 0$ ,  $\alpha + \beta \ge 0$

(3.3) Lösung der energieunabhängigen Gleichung(stationäre Wärmeleitung)

- (3.4) Lösung der inhomogenen Gleichung (Fremdquelle)
- (3.5) Kopplung an das 3 dimensionale Auswertungsprogramm AUDI 3
- (3.6) Modellproblem Iterationsparameter entweder nach Hadjidimos oder Guittet
- (3.7) Querschnittsübergabe von NUSYS
- (3.8) Variable Dimensionierung (keine programmbedingte Beschränkung der Gitterpunkteanzahl usw.)
- (3.9) Overlaystruktur

Neben Testbeispielen wurde ein dreidimensionales Benchmarkproblem / 5\_/ erfolgreich durchgerechnet.

#### Ausblick

Neben numerischen Vergleichen mit anderen vergleichbaren Programmen kommen folgende Vervollständigungen in Betracht:

- (4.1) (r,  $\Theta$ , z) und Sechseck Geometrie
- (4.2) Lösung des adjungierten Problems
- (4.3) Beschleunigte äußere Iteration
- (4.4) Einbringung in KAPRØS

#### Literatur:

- (1) Jim Douglas, jr.
   Alternating Direction Methods for Three Space Variables, Num.Math. 4, 41-63 (62)
- Jack Guittet
   Une Nouvelle Méthode de Directions Alternées à q Variables
   J. Math., Analsis Appl., 17, 199-213 (67)
- (3) Apostolos Hadjidimos
   On a generalised alternating direction implicit method for solving Laplace's equation
   Comp. J., 10, 324-328 (69/69)
- (4) Richard S. VargaMatrix Iterative Analyses, 1962
- (5) B. Micheelsen

3 D Benchmark Problem Danish Atomic Energy Commission, 1972 2. Einfluß des Feuchtigkeitsgehalts von Graphit auf die Auswertung von Experimenten im ZPR- und ZEBRA-Anordnungen G (E. Kiefhaber, INR)

In / 1\_7 wird erwähnt, daß die Berücksichtigung des Feuchtigkeitsgehalts von Graphit für die Anordnung ZEBRA-6A zu einer Erhöhung des gerechneten k<sub>eff</sub>-Wertes um 0.0034 führt. Dabei wird Bezug genommen auf: Fast Integral Assembly Newsletter No. 16, Sept. 1970, UKAEA. Aus Abschätzungen ergibt sich, daß eine solche Kritikalitätserhöhung hervorgerufen wird, wenn für den zusätzlich berücksichtigten Wasserstoff ein Atomkonzentrationsverhältnis zu Kohlenstoff H:C von etwa 0.0005 bis 0.01 angenommen wird.

In / 1 / wird angegeben, daß in den schwedischen FRo-Anordnungen der Wasserstoffgehalt um eine Größenordnung geringer war als in der ZEBRA-Anordnung und damit vernachlässigt werden kann. Gleichzeitig wird darauf hingewiesen, daß er - allerdings ohne Begründung - in den ZPR-III-Anordnungen ebenfalls vernachlässigt wird.

In dem vorliegenden Beitrag wird zunächst der Einfluß der Wasserstoffkonzentration auf die berechneten Ergebnisse für einige  $ZPR-k_{\infty}$ -Experimente untersucht. Dabei werden die in <u>/</u>2\_7 beschriebenen Experimente ZPR IX-24, ZPR IX-24A, ZPR III-55 und ZPR III-55A betrachtet (Tab. 1).

Von den hier angegebenen Resultaten ist der α-Wert von Pu-239 in der Anordnung ZPR III-55 A mit einer vermutlich großen systematischen Unsicherheit behaftet wegen des großen Beitrags, den die höheren Pu-Isotope in diesem Fall liefern.

Das experimentelle Vorgehen zur Messung des integralen Spaltratenverhältnisses von Pu-239 zu U235 läßt sich in dem Rechnungen kaum nachvollziehen. Deshalb wird diese Größe in den vorliegenden Untersuchungen nicht berücksichtigt.

Die Ergebnisse wurden mit dem KFKINR-Satz durch nulldimensionale Diffusionsrechnungen für homogene Mischungen ermittelt, da hier nur der Einfluß der Wasserstoffkonzentration untersucht werden sollte. Für einen angemessenen Vergleich mit den experimentellen Resultaten wären jedoch Rechnungen für die heterogene Zellanordnung erforderlich.

			H : C-Verhältnis				
		EXP	0	0,001	0,002	0,005	0,01
zpr -	keff	1, 000	0, 997	0,999	1, 000	1,005	1,011
IX -	F <sup>8</sup> /F <sup>5</sup>	0,0185 <u>+</u> 0,0004	0,0174	0,0173	0,0173	0,0171	<b>0, 0</b> 168
24	c <sup>8</sup> /F <sup>5</sup>	0,1317 <u>+</u> 0,002	0,132	o,131	0,131	o,129	0,126
	α <sup>5</sup>	0, 340 <u>+</u> 0, 03	319 رە	0, 321	322ره	327رہ	0,334
ZPR -	keff	1, 000	987رہ	<b>9</b> 988	ہ99رہ	0,994	000ر 1
IX -	F <sup>8</sup> /F <sup>9</sup>	0,0196 <b>±0</b> ,006	0202 دە	0201 رە	2010ر0	0,0199	0,0196
24 <b>A</b>	c <sup>8</sup> /F <sup>9</sup>	0,143 <u>+</u> 0,004	o, 151	0, 150	149 رە	0, 147	0, 144
	a <sup>9</sup>	0, <sup>4</sup> 2 <u>+</u> 0,05	386ره	389ر ہ	o, 392	o <b>,</b> 401	0,414
ZPR -	keff	1, 000	0,995	o, 996	998 رہ	1,001	1, 006
III-	F <sup>8</sup> /F <sup>9</sup>	0,0197 <u>+</u> 0,0005	0,0209	0, 0208	0,0207	0, 0206	0, 0203
55	c <sup>8</sup> /F <sup>9</sup>	0, 1409 <u>+</u> 0, 002	0, 150	0,150	149 رە	0,147	0, 144
	a <sup>9</sup>	o, 426+0, 03	0, 358	361 رە	o, 364	0,373	0,387
ZPR -	keff	1,000	0,999	1,000	1,001	1,004	1,008
III -	F <sup>8</sup> /F <sup>9</sup>	0, 0201 <u>+</u> 0, 0005	0, 0205	0,0205	4020 رە	0,0203	0, 0200
55A	c <sup>8</sup> /F <sup>9</sup>	0,142 <u>+</u> 0,002	0,152	151 دە	0,151	0, 149	0, 146
<u></u>	a <sup>9</sup>	0, 490 <u>+</u> 0, 03	o, 363	367ر ہ	0,370	0,379	0, 392
				<u></u>	+		

 $F^{8} \stackrel{\circ}{=} _{\text{Spaltrate}} \text{ pro Atom U238}$   $F^{5} \triangleq \text{Spaltrate} \text{ pro Atom U-235}$   $F^{9} \triangleq \text{Spaltrate} \text{ pro Atom Pu-239}$  $R^{8}$ 

Tab. 1

 $C^{8^{-}}$  Einfangrate pro Atom U-238  $\alpha^{5} = C^{5}/F^{5}$  $\alpha^{9} = C^{9}/F^{9}$  Betrachtet man die Unterschiede der berechneten Werte zwischen den Fällen H : C = 0 und H : C = 0,01, so stellt man fest, daß für das Spaltratenverhältnis von U-238 zu U-235 bzw. Pu-239 der Unterschied etwa gleich groß ist wie die experimentelle Unsicherheit; das gleiche gilt für die  $\alpha$ -Werte in ZPR III-55 und ZPR III-55A. Für die  $\alpha$ -Werte in ZPR IX-24 und ZPR IX-24A beträgt der entsprechende Unterschied nur etwa die Hälfte der experimentellen Unsicherheit. Am bedeutendsten ist der Unterschied bei der Einfangrate in U-238. Das Verhältnis der Einfangrate in U-238 zur Spaltrate<sup>W</sup>U-235 ändert sich um nahezu 5% beim Übergang von H : C = 0 zu H : C = 0,01. Dies ist das 2-3-fache der experimentellen Unsicherheit. Daraus ergibt sich, daß bereits ab einem H : C-Verhältnis von etwa 0,003 der Feuchtigkeitsgehalt des Graphits für die Nachrechnung der Experimente bedeutsam wird, da dann der durch die Berücksichtigung des Wasserstoffs hervorgerufene Effekt auf die berechnete Einfangrate in U-238 etwa gleich groß ist wie die experimentelle Unsicherheit bei der Bestimmung dieser Größe.

Da der integrale  $\alpha$ -Wert im Experiment aus einer Reaktionsraten-Bilanz in der k<sub> $\infty$ </sub>-Zelle bestimmt wird, ist der experimentelle Wert von C<sup>8</sup>/F<sup>5</sup> von ausschlaggebender Bedeutung bei der Bestimmung des gemessenen  $\alpha$ -Wertes. Wenn zwischen berechnetem und gemessenem Resultat für C<sup>8</sup>/F<sup>5</sup> eine deutliche Diskrepanz besteht, ist zu erwarten, daß auch die berechneten und gemessenen Resultate für  $\alpha$  sich erheblich unterscheiden werden. Der Feuchtigkeitsgehalt des Graphits wird demnach für die genaue Auswertung der k<sub> $\infty$ </sub>-Experimente im Hinblick auf die  $\alpha$ -Werte der Haupt-Spaltstoffisotope bedeutsam, wenn ein H : C-Verhältnis von 0,003 erreicht oder überschritten wird. Zusätzlich zu den  $k_{\infty}$ -Experimenten wurde noch für zwei ZEBRA-Anordnungen der Einfluß des H : C-Verhältnisses auf einige Größen in nulldimensionalen Diffusionsrechnungen untersucht (Tab. 2). Das gruppenunabhängige Buckling für die homogene Mischung wurde mit dem KFKINR-Satz so bestimmt, daß  $k_{eff}$ für H : C = O sich exakt zu 1 ergab. Die Erhöhung der Kritikalität mit steigendem H : C-Verhältnis kann nur ungefähr aus den vorliegenden Ergebnissen abgeschätzt werden, da das Buckling nicht verändert wurde. Genauere Werte müßten mit Hilfe 1- oder 2-dimensionaler Rechnungen ermittelt werden.

Von den zentralen Reaktionsratenverhältnissen ist der Anstieg des  $\alpha$ -Wertes von Pu-239 in ZEBRA-6A am bemerkenswertesten: verglichen mit dem Referenzwert bei H : C = O steigt er etwa linear mit dem H : C-Verhältnis und liegt bei H : C = 0,01 um etwa 10% über dem Referenzwert.

Auch der Anstieg in der Einfangrate von B-10 ist nicht vollständig vernachlässigbar: verglichen mit dem entsprechenden Referenz-Wert von  $C(B-10)/F^5$  bei H : C = O liegt der Wert bei H : C = 0,01 um etwa 6% höher; etwa gleich große Änderungen sind in der Neutronen-Lebensdauer zu erwarten.

Dies ist ein Hinweis darauf, daß der Feuchtigkeitsgehalt des Graphits auch für die Bestimmung der Neutronenlebensdauer bedeutsam werden kann. Ein merklicher Wasserstoffgehalt muß jedoch nicht notwendig an das Vorhandensein von Graphit gekoppelt sein; die Anwesenheit von Materialien mit leicht hygroskopischen Eigenschaften oder das Auftreten einer gewissen Restfeuchte aus dem Fabrikationsprozess (von der Herstellung der Materialien für die Plättchen bis zum Aufbringen der gasdichten Umhüllung) könnten ebenfalls dazu führen, daß der Wasserstoffgehalt größer ist als erwartet und daher bei einer genaueren Spezifikation der Materialzusammensetzung angegeben werden müßte.

Möglicherweise trägt die eventuell unzulässige Vernachlässigung der Wasserstoffkonzentration in der Materialzusammensetzung bei der Berechnung von schnellen Nullenergie-Experimentier-Reaktoren zu den folgenden häufig beobachteten Diskrepanzen zwischen Theorie und Experiment bei:

- A) Unterschätzung der Neutronenlebensdauer 1/3
- B) Unterschätzung des Doppler-Koeffizienten <u>[4]</u>
- C) Unterschätzung des Anteils niederenergetischer Neutronen im Neutronenspektrum (siehe z.B. <u>/</u>5\_/)

		H : C-Verhältnis			
		0	0,002	0,005	0,01
ZEBRA - 2	keff	1,0000	1,0023	1,0057	1, 0112
	F8/F5	0,03101	0,03085	0,03062	0, 03024
	F9/F5	0,9891	0,9874	0,9853	0, 9827
	F0/F5	0,2492	0,2475	0,2449	0, 2408
	F3/F5	1,6206	1,6172	1,6124	1, 6053
	F4/F5	0,2206	0,2189	0,2163	0, 2123
	F6/F5	0,07122	0,07081	0,07020	0, 06923
	C8/F5	0,1334	0,1329	0,1320	0, 1307
zebra – 6a	keff	1,0000	1,0015	1,0038	1,0075
	F8/F5	0,03826	0,03793	0,03746	0,03671
	F9/F5	0,9553	0,9509	0,9444	0,9344
	F0/F5	0,2637	0,2612	0,2575	0,2515
	C(B10)/F5	1,3365	1,3521	1,3751	1,4129
	α <sup>9</sup>	0,2434	0,2482	0,2552	0,2662

Tab. 2

#### Diskussion der Ergebnisse

Die vorliegenden Ergebnisse zeigen, daß der Feuchtigkeitsgehalt des Graphits bedeutsam wird, wenn, wie in der ZEBRA-Anordnung, ein Wasserstoff-zu Kohlenstoff-Atomverhältnis von 0,005 bis 0,01 erreicht wird. Bleibt dieses H : C-Verhältnis sicher unter 0,001, so kann die Wasserstoffkonzentration in den hier untersuchten Anordnungen vernachlässigt werden, jedenfalls für die hier untersuchten Größen wie k<sub>eff</sub> und Reaktionsratenverhältnisse. Für den im allgemeinen nicht interessierenden Spektrumsverlauf im eV-Bereich ist allerdings die Wasserstoffkonzentration auch dann noch bedeutsam, wenn das H : C-Verhältnis unter 0,001 liegt. Merkliche Einflüsse auf den B-10-Wert, die Neutronenlebensdauer und den Dopplerkoeffizienten sind allerdings dabei nicht zu erwarten. Steigt das H : C-Verhältnis über 0,003, so sind allerdings bereits merkliche Einflüsse zu erwarten.

Bei der Ausgabe von Spezifikationen für die Berechnung von schnellen Nullenergie-Experimentier-Reaktoren sollten auch geringe Wasserstoffkonzentrationen berücksichtigt werden, da die Vernachlässigung des Wasserstoffgehalts zu den häufig festgestellten Diskrepanzen zwischen Theorie und Experiment bezüglich

- Neutronenlebensdauer und B-10-Wert

- Dopplerkoeffizient

- Anteil von niederenergetischen Neutronen im Neutronenspektrum beitragen kann.

#### Literatur:

- /\_1\_7 H. Häggblom: AE-439, 1971
- /2 / C.E. Till et al.: ANL-7610, p. 176, 1970
- [3\_7] P. Greebler et al.: ANL-7320, p. 66, 1966
- [4] C.E. Till et al.: Proc. Intern. Conf. of the BNES on the Physics of Fast Reactor Operation and Design, London, 24-26 June, 1969, p.40
- [5] C.A. Preskitt et al.: National Topical Meeting on New Developments in Reactor Physics and Shielding, Sept. 12-15, 1972, Kiameska-Lake, N.Y. CONF-720901, p. 943

## 1225 <u>Abschirmungsrechnungen</u><sup>1)G</sup> (G. Bönisch, IRE)

In Zusammenarbeit mit dem INR wurden die 1971 begonnenen Arbeiten zur Bereitstellung des zweidimensionalen Removal-Diffusions-Codes ATTØW abgeschlossen. Damit steht ein Programmsystem für Neutronenabschirmungsrechnungen in (r,z)- und (x,y)-Geometrie zur Verfügung.

Das System wurde in den beiden letzten Quartalen vor allem hinsichtlich der Berechnung und Bereitstellung von makroskopischen Wirkungsquerschnitten erweitert. Dafür erfolgte eine Teilintegration des Programmsystems NUSYS. Für Benutzer, denen NUSYS nicht zur Verfügung steht, wurden außerdem aus dem Kerndatensatz KFKINR eine Datenbibliothek erstellt sowie ein Datensatz für Removal-Wirkungsquerschnitte, der auf Werten aus dem SABINE-Abschirmprogramm basiert. Die Funktionsfähigkeit des Programmsystems ATTØW wurde an mehreren Beispielen getestet. So wurden z.B. Vergleichsrechnungen mit dem zweidimensionalen Transportcode DØT durchgeführt. Unter Berücksichtigung der verschiedenen Kerndatenbasen sind die mit dem ATTØW-Code erzielten Ergebnisse zufriedenstellend ausgefallen.

1) Vom IRE bisher nicht berichtet.

122-11

#### 123-1

#### 123 SICHERHEIT SCHNELLER REAKTOREN

#### 1231 Theoretische Untersuchungen zur Reaktordynamik

### Untersuchungen und Programmentwicklungen zu Disassembly-Vorgängen in natriumgekühlten schnellen Reaktoren<sup>\*1)</sup>

(P. Schmuck, A. Arnecke, R. Fröhlich, G. Jacobs, INR)

Das vom ANL übernommene Programm VENUS / 1 / gestattet die Untersuchung von Disassembly-Ereignissen schneller natriumgekühlter Reaktoren. Um die Anforderungen des SNR-Lizensierungsverfahrens zu erfüllen, wurden die folgenden Erweiterungen an VENUS vorgenommen:

 Einbau der Brennstoff-Natrium-Reaktion (BNR) als Option. Der Wärmeübergang wird durch das Cho-Wright'sche Parameter-Modell beschrieben. Folgende
 Effekte werden berücksichtigt: Dampfdruck und thermische Ausdehnung des Natriums; Temperaturabhängigkeit der Kompressibilität des Natriums; Brennstoff-"Chilling" Effekt für die Dopplerrückwirkung.

2) Simulation axialer Bewegung (teilweise intakte Kühlkanäle) durch Unterdrückung radialer Bewegungen für den Fall, daß die radialen Druckgradienten unterhalb gewisser Schwellenwerte liegen.

3) Berücksichtigung von teilweise geschmolzenem Brennstoff in der Eingabe; Berechnung und Ausgabe der Masse und Energie des geschmolzenen Brennstoffs.

4) Gebietsweise Ausgabe der Beiträge des Materialverschiebungs-Rückwirkungseffekts auf die Reaktivität, und zwar getrennt in radiale und axiale Anteile.

5) Einbau von graphischer Ausgabe für das verzerrte Maschennetz sowie für eine Reihe zeitabhängiger Größen.

Die neuen Möglichkeiten sollen nun im folgenden an einem Implosionsvorgang demonstriert werden. Der untersuchte Reaktor ist ein SNR-300, die Modelldaten stammen aus einer Arbeit von Heusener, Keßler und Lauber  $/2_7$ . Einen Längsschnitt mit den verwendeten Zonen zeigt Abb. 1. Es handelt sich um einen postulierten Reaktivitätsunfall mit einer Einleitungsrampe von 5 \$/s. Die Predisassembly-Rechnungen wurden mit dem SAS2A-Code durchgeführt  $/3_7$ . Unter der Annahme, daß sich 50% des Brennstoffs bei einer BNR in den zentralen Kanälen mit dem vorhandenen Natrium vermischt, kommt man zu einer Einleitungsrampe von 18 \$/sfür die Disassembly-Phase  $/4_7$ .

1) Erster Bericht Um Implosionseffekte zu studieren, wurden die Kanäle 1 und 2 (die radial ersten bzw. zweiten Maschen) in der Region 3 total von Natrium entleert. Für die so definierten Anfangsbedingungen wurden Disassembly-Rechnungen durchgeführt, und zwar mit Berücksichtigung der Brennstoff-Natrium-Reaktion (BNR). Von der Simulation axialer Bewegungen wurde in diesem Falle kein Gebrauch gemacht.

In Abb. 2 und 3 sind die verzerrten Maschennetze am Ende der Disassembly-Vorgänge dargestellt. Man sieht deutlich, daß es sich um zwei völlig verschiedene Bewegungsformen handelt. Dies geht auch klar aus Abb. 4 und 5 hervor, in denen die Rückwirkungseffekte der Materialverschiebungen auf die Reaktivität für die Region 3 zu sehen sind.

Beim Fall ohne BNR wandert Material zuerst radial einwärts, beginnt aber ab einem gewissen Zeitpunkt sich nach außen zu verschieben. Dies kommt daher, daß der Brennstoff in den Kanälen 1 und 2 genügend Zeit hat, sich zu erhitzen und einen genügend starken Gegendruck aufzubauen. Ganz anders ist das Verhalten bei Berücksichtigung der BNR. Als BNR-Parameter wurden genommen:

> Partikelradius:  $300 \ \mu$ Mixing-time Konstante: 0,003 s Versagenstemperatur (Brennstoff):  $3100^{\circ}$ K

In den äußeren, mit Natrium gefüllten Kanälen bauen sich hier durch die BNR sie beginnt bei etwa 7 ms - in kurzer Zeit außerordentlich hohe Drücke auf; in den inneren Kanälen wird kein genügend hoher Gegendruck aufgebaut, da in den Maschen kein Natrium für eine BNR zur Verfügung steht.

In Abb. 6 ist die Leistung für beide Fälle dargestellt. Man sieht, daß starke Änderungen der Reaktivität durch die Materialverschiebung sich etwas verzögert gegenüber dem jeweiligen Leistungsmaximum ergeben. Dies ist durch die Massenträgheit des Materials bedingt.

Das Abschalten des Reaktors geschieht beim Fall ohne BNR dadurch, daß Material von der Coremitte nach außen wandert. Beim BNR-Fall wird der Reaktor unterkritisch, obwohl Material in die Coremitte einwandert, d.h. aber, es finden in anderen Bereichen (vor allem in den Bereichen 6, 8, 11, 12, 14, 15, 17, siehe Abb. 1) Materialverschiebungen nach außen statt, welche die Coremitte-Wanderung kompensieren.

123-2

Die radial bevorzugte Bewegung für den Fall ohne BNR hängt mit der starken radialen Abnahme der Leistungsverteilung zwischen 2. und 3. Kanal zusammen. Die Leistungsverteilung bestimmt primär den Druckaufbau in den einzelnen Zellen. Im BNR-Fall ist die radiale Bewegung dadurch zu erklären, daß in der radial an die Region 3 anschließenden Region 6 eine BNR stattfindet, nicht aber in den axial benachbarten Regionen 2 und 4. Die Maschinenstruktur der Kanäle 2 und 3 in der Region 3 ist vom numerischen Standpunkt nicht sehr günstig, da die axiale Ausdehnung der Maschen nur etwa 1/3 der radialen Ausdehnung beträgt. Ob sich durch diese Größenverhältnisse nicht auch eine bevorzugte Bewegung in radialer Richtung ergibt, müßte durch Rechnungen mit verschiedenen Größenverhältnissen der Maschen überprüft werden.

In Tabelle I sind einige für die beschriebenen Disassembly-Vorgänge charakteristische Größen zusammengestellt.

Disassembly-Untersuchungen wurden auch für Anfangsbedingungen durchgeführt, bei denen die zentralen Maschenzellen nicht von Natrium entleert waren. Sowohl der Fall ohne als auch der Fall mit BNR laufen um etwa 1 ms schneller ab, die gesamte freigesetzte thermische Energie ist dementsprechend geringer.

Größe	ohne BNR	mit BNR
Dauer der		
Disassembly-Phase /ms/	16,072	11,310
Freigesetzte Energie /MWs7	2580	2020
Energie des geschmolzenen Brennstoffs /MWs/	1.310	807
Masse des geschmolzenen Brennstoffs <u>/kg</u> 7	3049	2413
max. Temperatur <u>/<sup>°</sup>K</u> 7	4441	3992
max. Geschwindigkeit /m/s7		
radial	3,66	23,2
axial	8,68	9,05

Tab. 1 Einige charakteristische Größen am Ende der Disassembly-Phase

#### Literatur

- / 1\_7 W.T. Sha, T.H. Hughes VENUS: A two-dimensional Coupled Neutronics-Hydrodynamics Computerprogram for Fast Reactor Power Excursions ANL 7701 (1970)
- [2]7 G. Heusener, G. Keßler, H. Lauber Analyse charakteristischer schwerer hypothetischer Störfälle für den SNR-300 (1972)

<u>/</u>3\_7 siehe <u>/</u>2\_7, Seite 96

/\_4\_7 siehe /\_2\_7, Seite 143

<u>Abb. 1</u>: Längsschnitt des verwendeten Reaktorkernes und seiner Zonen (durchnumeriert). Die Zahlen seitlich links und unten bezeichnen die geometrischen Abmessungen in cm.









123-6



123-7



(FCI INCLUDED)

ED)



123-9

### 2. <u>Theoretische Beschreibung des Brennstabslumping</u>\* 1) (G. Angerer, INR)

Ziel dieser Arbeiten ist die Beschreibung der Brennstabmaterialbewegung nach dem Verlust des Brennstabzusammenhalts (Slumping) bei einem durch einen Kühlmittelpumpenausfall eingeleiteten Reaktorstörfall. Es kann dabei davon ausgegangen werden, daß zum Zeitpunkt des Beginns der Slumpingphase der Bereich des Cores von Natrium entleert ist.

Ein auf einem einfachen physikalischen Modell / 1 7 aufbauender Rechencode wurde im letzten Vierteljahr 1972 termingerecht fertiggestellt und getestet. Die Einbringung dieses Moduls in das Programmsystem CAPRI wird gegenwärtig vollzogen.

Im Ausgangszustand der Brennstabslumpingphase wird in dem Modell von einer axialen Dreiteilung des Corebereiches eines beliebigen Brennstabverbandes ausgegangen. Dabei wird die mittlere Zone (O3) von homogen verteiltem, flüssigem Brennstabmaterial konstituiert. Die untere Zone (O1) wird durch Brennstabstümpfe mit gegenüber der ursprünglichen unveränderter Geometrie gebildet. Die obere Zone (O4) besteht aus festem Brennstabmaterial.



1) Erster Bericht Nach Beginn der Slumpingphase werden als Folge der Gravitation zwei Bewegungsabläufe stattfinden:

Der gebremste freie Fall der Zone O4 und des oberen Blankets nach unten und die instationäre Strömung des flüssigen, viskosen Materials der Zone O3 in den freien Raum zwischen den Brennstabstümpfen der Zone O1. Im Rahmen des vorliegenden Modells konnten die Bewegungsgleichungen der beiden Bewegungsabläufe analytisch gelöst werden:

$$Z_{5}(t) = h_{3} - \eta_{5}(t)$$

$$Z_{2}(t) = h_{1} - \eta_{2}(t)$$

$$\eta_{5}(t_{0}) = \eta_{2}(t_{0}) = 0$$
(1)

1)

$$n_{5}(t) = \frac{g}{\xi} \cdot \sqrt{t-t} - t_{0} - \frac{1}{\xi} (1 - e^{-\xi(t-t_{0})}) - 7$$
(2)

g...Gravitationsbeschleunigung ξ...Reibungskoeffizient

$$n_{2}(t) = \frac{g}{v} R^{2} \sqrt{-\frac{t-t_{o}}{8}} - 4 \frac{R^{2}}{v} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1-e^{-v(\frac{x_{n}}{R})^{2}}(t-t_{o})}{x_{n}} \sqrt{-7}$$
(3)

v.... kinematische Zähigkeit

R...Radius des dem freien Raum zwischen den Brennstabstümpfen der Zone 01 äquivalenten Rohrradiuses

x<sub>n</sub>..n<sub>te</sub> Nullstelle der Besselfunktion 1. Ordnung

Die Kenntnis der analytischen Lösungen hat die Vorteile, daß man mit sehr kurzen Rechenzeiten auskommt sowie die Einflüsse der determinierenden Parameter auf den Bewegungsvorgang gut übersehen und darstellen kann.

Die eigentlichen Ausgabedaten des Slumping-Moduls sind die axial veränderlichen Volumenanteile der verschiedenen Brennstabmaterialien zu beliebigen Zeitpunkten.

Der Volumenanteil des Materials m in Zone 3 zur Zeit t ist gegeben durch:  $\omega_{3}^{(m)}(t) = \Omega_{3}^{(m)} + \frac{1}{h_{2}^{-h_{1}}} \int_{-1}^{-1} f^{(m)} \Omega_{4}^{(m)} \eta_{5}(t) - \frac{1}{h_{2}^{-h_{1}}} \int_{-1}^{-1} f^{(m)} \Omega_{5}^{(m)} \eta_{5}(t) - \frac{1}{h_{2}^{-h_{1}$ 

Dabei ist

$$< c_{3}^{(m)} > = \frac{\sqrt[t]{\frac{dn_{2}^{(t')}}{dt'}} c_{3}^{(m)} (t') dt'}{\sqrt[t]{\frac{dn_{2}^{(t')}}{dt'}} dt'} ,$$

$$(4a)$$

$$t_{0}^{(4a)}$$

$$c_{3}^{(m)}(t) = \frac{\omega_{3}^{(m)}(t)}{\omega_{3}^{(1)}(t) - \omega_{3}^{(2)}(t)}$$
(4b)

$$f^{(m)} = \frac{\rho^{(m)} \text{ fest}}{\rho^{(m)} \text{ flüssig}} \ge 1$$
 (4c)

und

$$\Omega_{\alpha}^{(m)}$$
 ..... Volumenanteile des Materials m in Zone oa  
Zur Zeit t<sub>o</sub>(Slumpingbeginn)  
 $\alpha = 1,3,4$   
 $\Omega^{(s)}$ ...... Volumenanteil des Strukturmaterials  
 $\rho^{(m)}$ ...... Dichte des Materials m

123-12
Der Volumenanteil des Materials m in Zone 2 zur Zeit t beträgt:

$$\omega_2^{(m)}(t) = \Omega_1^{(m)} + (1 - \Omega_1^{(1)} - \Omega_1^{(2)} - \Omega^{(s)}) \cdot \langle c_3^{(m)} \rangle$$
(5)

In den übrigen Zonen sind die Volumenanteile für  $t > t_0$  gleich jenen zur Zeit  $t_0$ .

Ergebnisse über den quantitativen Einfluß des Brennstabslumpings und der diesen Vorgang determinierenden Parameter auf die Reaktordynamik liegen zur Zeit noch nicht vor. Es wird darüber nach Abschluß der Einbringungsarbeiten des Slumping-Moduls in das Programmsystem CAPRI und nach Anlaufen der Rechnungen mit diesem System zu einem späteren Zeitpunkt berichtet werden.

#### Literatur:

/1\_/ ANL-7872, p. 82 (Okt. 1971)

### 1232 <u>Spannungs- und Verformungsanalysen von Reaktorbauteilen</u> <sup>F</sup> (R. Liebe, H. Zehlein, IRE)

Die Arbeiten zur Verformungsanalyse von Brennelementen (BE) bei Kriechen und Schwellen des Materials wurden abgeschlossen (1).

Im Rahmen des Vorhabens "Verformung der Corestruktur durch interne Drucktransienten" (F+E Vorhab. 1232.4) wurde das Teilvorhaben "Experimente und einfache Theorie zur Verformung eines Brennelements durch statische und dynamische Außenbelastung" begonnen, das aus folgenden Abschnitten besteht:

- Planung und Durchführung von Versuchen an einem vereinfacht gelagerten Einzelbrennelement, das von außen statisch und dynamisch belastet wird.
- Entwicklung eines einfachen theoretischen Modells zur Berechnung der elastoplastischen Brennelementverformung.
- Vergleich von Theorie und Experiment (einschl. der Ergebnisse der Sprengversuche an Coremodellen, vgl. 1235).

Als Ziel des Vorhabens sollen bestimmt werden:

- Verformungscharakteristik eines BE im statischen und dynamischen Fall.
- Energieaufnahme des Systems Kasten-Stab-Abstandshalter.
- Einfluß von Amplitude und Impuls des Druckpulses auf die Verformung; Zeitmaßstäbe der Bewegung.

Es wurden Vorversuche zum statischen und dynamischen Materialverhalten (Streckgrenze, Verfestigung) spezifiziert, die im IMF und möglicherweise in Ispra durchgeführt werden können. Außerdem sind die Versuche am Einzelbrennelement (IRE) spezifiziert und die Hauptparameter aufgrund einfacher elastisch-plastischer Rechnungen abgeschätzt worden.

Die Arbeiten zur Entwicklung von theoretischen Modellen der Verformung der Corestruktur wurden fortgesetzt. Für dieses Vorhaben wurden Ziele, Durchführung und zeitliche Aufteilung weiter präzisiert und folgende Meilensteine definiert:

- a) Simulation der Verformung des Kastenquerschnitts (BE)
- b) Simulation der Verformung eines Einzelkastens
- c) Simulation der Verformung eines mehrreihigen BE-Verbands

d) Eignungsuntersuchung von Integrationsalgorithmen.

Dabei werden Trägheitseffekte und Kühlmitteleinflüsse (hydromechanische Kopplung) berücksichtigt.

Bei der Tätigkeit a) wurde mit der Programmierung begonnen. Für b) wurden verschiedene Modellalternativen untersucht.

Eine Eignungsuntersuchung existierender Finite-Element-Codes zur Verwendung im vorliegenden Vorhaben wurde abgeschlossen. Die Vergleichsstudie würdigt folgende 21 Codes: STRESS/STRUDL-II, ASKA/DYNAN/NONLIN, DAISY, NASTRAN, SESAM-69, ELAS, ESEM, COSA, ASTRA, BERSAFE, STRIP, BEOS, SNASOR/DYNASOR, EASE, COPATS, FAN, SABOR 5-DRASTIC, AXICRP, ASAAS, SOREAD, MAGIC. Eine Einführung in die Theorie strukturdynamischer Lösungsverfahren und in die Behandlung nichtlinearer Probleme ist Bestandteil des Berichts, der die populärsten Mehrzwecksysteme (STRUDL-II, ASKA, NASTRAN) im direkten Vergleich ausführlich erläutert. Diese Studie liefert folgendes Ergebnis: Keiner der z.Zt. existierenden Codes besitzt die Fähigkeit zur Berechnung dynamischer, nichtlinearer elastoplastischer großer Deformationen, wie sie bei Reaktorunfällen auftreten. Die Hinzufügung geeigneter Techniken durch "Außenstehende" ist weder wirtschaftlich noch erfolgversprechend. Empfohlen wird Im Zusammenhang mit der Planung und Konstruktion der 60<sup>0</sup>-Bündel-Teststrecke in Petten (F+E-Vorhaben 1233.3) sind Spannungs- und Verformungsrechnungen zur Hochtemperatur-Wechselfestigkeit eines Kastens mit Dreieck<del>s</del>querschnitt durchgeführt worden.

### Veröffentlichung:

(1) R. Liebe

Berechnung des mechanischen Verhaltens von Brennelementkästen bei Kriechen und Schwellen des Materials KFK 1724 (Dez. 1972)

### 1233 Untersuchungen von Kühlungsstörungen

1233.2 Experimentelle Untersuchungen zum Na-Sieden

Siedeverzug von Natrium\*

(R. Riethmüller, IRE)

Die Durchführung von Natrium-Siedeversuchen, deren Ziel die Vertiefung und Erweiterung der bisherigen Kenntnisse über die Siedekeimbildung bei Flüssigmetallen ist, erforderte die Erstellung einer speziellen Versuchsapparatur. Ein Fließbild der inzwischen fertiggestellten Anlage zeigt Abb. 8.

1) Erster Bericht



## Abb. 8 Fließbild des Na-Druckentlastungs-Kreislaufs

- 1 Na-Pumpe (EMP)
- 2 Testbehälter
- 3 Kaltfalle
- 4 Vorrats- und Ausgleichsbehälter
- 5 Zyklon
- 6 Druckmeßeinheit
- 7 Durchflußmesser
- 8 Dampfabscheider
- 9 Einfüllstutzen
- 10 Öl-Thermostate
- 11 Manometer
- 12 Vakuum– und Schutzgassystem
- 13 Inertgasspülung

Die Durchführung folgender Versuche ist geplant:

1.) Na-Sieden im Testbehälter wird durch Druckabsenkung mittels der gesteuerten EMP-Spannung eingeleitet. Wählbare Parameter sind die Siedetemperatur T<sub>B</sub> und die Druckabsenkungsgeschwindigkeit p / bar/sec\_7.
p ist über die Dampfdruckkurve in eine Überhitzungsgeschwindigkeit Δ T<sub>ü</sub> / grad/sec\_7 umrechenbar. Die Abhängigkeit zwischen Δ T<sub>ü</sub> (p) und dem Siedeverzug Δ T<sub>s</sub> wird ermittelt.

- 2.) Durch schnelle Reduzierung der Pumpenspannung und damit des Systemdruckes wird eine definierte und vorher wählbare Überhitzung eingestellt. Es ist zu erwarten, daß bei geeigneter Wahl der Überhitzung Sieden nicht sofort, sondern erst nach einiger Zeit (Wartezeit) einsetzt. Derartige Versuche ermöglichen Aussagen über Keimbelegungsdichten bei verschiedenen Systemzuständen.
- 3.) Nieder- oder hochfrequente Druckpulsationen im Na werden durch periodische Auslenkung des im Testbehälter eingeschweißten Faltenbalges, bzw. durch Verwendung einer Ultraschall-Einheit aufgeprägt. Der mögliche Einfluß von in größeren Kreislaufsystemen vorhandenen Druckpulsationen auf den Siedeverzug soll damit untersucht werden.

#### 1233.4 Untersuchungen zum Sieden in großen Bündeln

Brennelementverhalten unter Siedeverzug (BEVUS)
 (M. Cramer, IRE)

Die Versuche mit der zweiten Teststrecke wurden im wesentlichen abgeschlossen. Es wurden 2 Versuche mit Druckentlastung und 13 Siedeversuche bei konstantem Druck durchgeführt. Bei den am Ende der Versuchsserie durchgeführten Versuchen mit Inertgaseinspeisung traten durch geänderte Wärmeübergangsbedingungen im Heizelement lokale Überhitzungen auf, die einige Heizerausfälle zur Folge hatten. Dies beeinträchtigte jedoch nicht die nachfolgenden Versuche.

Die Instrumentierung und Meßdatenerfassung arbeiteten während der Versuche einwandfrei. Mit der Auswertung der umfangreichen Meßdaten wird nach Abschluß des Versuchsprogramms (Ende Januar 1973) begonnen.

### 2. Untersuchungen zum lokalen Sieden in großen Bündeln und SNR-Bündelausschnitten <sup>★ 1</sup>)

(F. Huber, K. Mattes, IRE)

Die bisher zum lokalen Sieden geplanten und durchgeführten Versuche (1233.2, 1233.3) sollen durch bestätigende Experimente an großen Bündeln ergänzt werden. Unter Verwendung bereits vorhandener Komponenten der NABEA und aus dem

<sup>1)</sup> Bisher nicht berichtet

BEVUS-Experiment wird hierzu ein Kreislauf (Kompakter-Natrium-Siedekreislauf, KNS) erstellt. Der Kreislauf besitzt eine mechanische Umwälzpumpe mit einer Förderleistung von 80 m<sup>3</sup>/h und ist ausgelegt für eine maximale Teststreckeneintrittstemperatur von 700 <sup>O</sup>C. Die maximal mögliche Länge der Teststrecke ist auf den SNR abgestimmt und beträgt 3500 mm. Aus Sicherheitsgründen wird der gesamte Kreislauf in einen Schutzbehälter eingebaut.

Die Planungs- und Ausschreibungsunterlagen für den Apparatebau, die Stromversorgung und die Instrumentierung wurden erstellt und die Ausschreibung vorgenommen. Die Vergabe der entsprechenden Aufträge ist für Januar 1973 vorgesehen.

Zur Unterbringung der Warte und der Stromversorgung erhält die Technikumshalle einen zweigeschossigen Anbau. Die Rohbauarbeiten hierfür sind bereits abgeschlossen.

Zur Durchführung der Versuche werden Heizstäbe hoher Leistungsdichte (bis 250 W/cm<sup>2</sup>) und Betriebstemperaturen (bis 1050 °C) benötigt. Diesen Anforderungen entsprechende Heizstäbe gehören nicht zum Lieferprogramm einschlägiger Firmen. Deshalb wurde eine eigene Heizstabentwicklung unter Einbeziehung der Industrie notwendig. Im wesentlichen wird diese Heizstabentwicklung vom IRB getragen (s. 1263.5). In einer ersten Entwicklungsstufe ist zunächst vorgesehen, Heizstäbe mit einer max. Leistungsdichte von 170 W/cm<sup>2</sup> für eine Betriebstemperatur von 950 °C zu fertigen. Ein diesen Daten entsprechender vom IRB hergestellter Heizstab wurde im Natriumsiedekreislauf (NSK) des IRE getestet.

Er wurde ohne Ausfall bei den genannten Bedingungen ca. 2 h betrieben. Zusätzlich sind zehn Leistungsrampen mit plötzlicher Abschaltung bei Maximalbedingungen gefahren worden. Erst nach ca. 6-minutigem Sieden bei 950 °C ist der Heizstab ausgefallen (wahrscheinliche Ursache: Dry-out). Parallel zur Heizstabentwicklung wurde ein Konzept zur Konstruktion des Bündelanschlußkopfes erarbeitet und ein Verfahren zum Einschweißen der Heizer in die Teststrecke entwickelt.

#### 1234 Störfallverhalten von Brennstäben

Experimentelle Untersuchungen zum Brennstabversagen (EPBF)-Programm \* 1) (A. Alexas, W. Lindner, W. Schikarski, IASR/RPU)

Das EPBF-Programm hat im experimentellen Sektor das Stadium der Vorversuche verlassen und ist in die Phase der auswertbaren Einzelexperimente eingetreten. Aus den zahlreichen visuellen Beobachtungen, die verknüpft mit der Aufnahme Hochgeschwindigkeitsfilm verbunden waren, sei folgender repräsentativer Fall beschrieben: Ausgehend vom stationären Fall mit Formiergasatmosphäre ohne Zwangskühlung und bei p = 2 atü lagen folgende Anfangsbedingungen vor:

$$q_{e1} = 40 \text{ W/cm} \cong q_{n1} = 43 \text{ W/cm}$$
  
 $T_{BA} \approx 1400^{\circ}\text{C}$   
 $T_{a} \approx 1600^{\circ}\text{C}$ 

Durch Umschalten auf die nächste Stufe der automatischen Heizanlage wurde dann die Stableistung auf  $q_{el} = 400 \text{ W/cm} \triangleq q_{nl} \approx 2000 \text{ W/cm}$  erhöht.

Es konnten folgende Effekte beobachtet werden:

- 1) Das Hüllmaterial fängt schnell an zu schmelzen ( $\Delta t < 4$  sec). Das Abschmelzen geht ebenso rasch vor sich.
- Mit der Endphase des Canningschmelzens fällt der Anfang von UO<sub>2</sub>-Emissionen an mehreren Stellen des Stabes zusammen. Dabei kommt das UO<sub>2</sub> strahlenartig aus dem Stabinneren. Die Geschwindigkeit des herausgeschossenen Materials konnte auf ca. 3 - 6 m/sec abgeschätzt werden.
- 3) Nachuntersuchungen zeigten, daß auch nichtgeschmolzene UO<sub>2</sub>-Teilchen von bis zu 1,5 mm Durchmesser von der Schmelze mitgenommen wurden, wobei ihr Austritt unabhängig vom Ort (d.h. nicht unbedingt an den pellet-Kontaktstellen) stattfand. Der Zentralkanal war weder konzentrisch noch symmetrisch.

Eine weitere metallurgische Auswertung der Pellets ist in Arbeit. Abb. 9 zeigt den Teil eines Hochgeschwindigkeitsfilms, auf dem eine charakteristische Phase des UO<sub>2</sub>-Austritts aus dem Stab festgehalten wurde. Bildgeschwindigkeit = 400 B/sec.

<sup>1)</sup> Letzter Bericht in KFK 1272/2



<u>Abb. 9</u>: Typisches Herausblasen von geschmolzenem UO<sub>2</sub> aus dem Inneren eines EPBF-Versuchsbrennstabes nach dem Einbau einer Leistungsexkursion (von q<sub>e1</sub> = 40 W/cm auf q<sub>e1</sub> = 400 W/cm, ∆t ∿ msec-Bereich)

# 1235 <u>Simulation von Brennstoff-Natrium-Reaktionen in einem Brennelement</u> <u>und deren Auswirkungen auf die Corestruktur</u> (H. Will, IRE)

Das erste Modell des SNR-Cores einschließlich der nach dem aktuellen Stand der SNR-Auslegung modifizierten Instrumentierungsplatte wurde fertiggestellt und nach Foulness, England transportiert (Abb. 10 und 11). Die Aktivitäten des IRE lagen hauptsächlich auf der Applikation der Meßwertaufnehmer (DMS, Beschleunigungsaufnehmer, Druckaufnehmer) sowie der Abnahme der fertigen Einrichtung. Außerdem wurde mit den verantwortlichen Herren der UKAEA/AWRE die Versuchsdurchführung abgesprochen. Das dynamische Verhalten der Druckaufnehmer wurde in einer speziellen Versuchsapparatur getestet und für gut befunden. Nach Abschluß der für Dezember 1972 und Januar 1973 vorgesehenen "overstrong wrapper tests" und den "top end simulation tests" soll noch im Frühjahr der eigentliche Sprengversuch durchgeführt werden.

Ein zweites Coremodell, das in seinen Materialeigenschaften einen bestrahlten, d.h. bereits versprödeten Kern simuliert, wurde in Auftrag gegeben.



Abb. 10 Stützzylinder mit Instrumentierungsplatte



Abb. 11 Zentralelement mit "Brutzone" und "Mischstrecke"

#### 123-22

### 1236 Untersuchungen zur "Brennstoff-Natrium-Reaktion"\*

### 1236.1 <u>Theoretische Prüfung der Gültigkeit von Modellannahmen</u> (H. Jacobs, K. Thurnay, INR)

Mit dem Code BRENDY I wurde ergänzend zu früheren Parameteruntersuchungen<sup>1)</sup> der Unterschied zwischen der exakten Hydrodynamik und den Näherungen für die dynamische Antwort des Systems (akustische Näherung, Trägheitsnäherung) untersucht.

Man wusste bereits, daß die Trägheitsnäherung die Drücke in der Flüssigkeitsphase stark überschätzt. In einem Testfall war das Ergebnis der Näherungsrechnung mehr als dreimal so hoch wie das exakte Ergebnis. Nun zeigen die neuen Untersuchungen, daß die akustische Näherung im Gegensatz dazu den Spitzendruck unterschätzt (um etwa 40% in demselben Testfall). Eine Veröffentlichung zu diesem Thema ist in Vorbereitung.

Daneben wurde mit der Verbesserung des Codes BRENDY und der Erweiterung des Gültigkeitsbereiches der verwendeten Natrium-Daten begonnen.

### 1236.2 <u>Experimentelle Untersuchungen zu "Brennstoff-Natrium-Reaktionen"</u> (H. Beutel, IRE)

Die an der Großversuchsanlage in Ispra aufgetretenen technischen Schwierigkeiten beim Erschmelzen größerer Mengen UO<sub>2</sub> konnten durch Modifikationen der Anlage und durch Verwendung von Argon-Schutzgas anstelle von Vakuum im Schmelzofen beseitigt werden. Vorversuche mit Wasser sind abgeschlossen, und Natrium-Experimente stehen unmittelbar bevor.

Das ursprüngliche Versuchsprogramm wurde um spezielle Experimente erweitert, bei denen die Bedingungen bei einer Brennstoff-Natrium-Reaktion in einem einzelnen Brennelement auf konservative Weise simuliert werden sollen (vgl. KFK 1272/2). Die Planung dieses Programms und die Entwicklung einer geeigneten Versuchsapparatur erfolgen überwiegend im IRE; durchgeführt werden die Versuche an der Großanlage in Ispra in Zusammenarbeit mit dem dortigen Department of Engineering. Es wurde ein Konstruktionsentwurf der Apparatur einschließlich der notwendigen Hilfseinrichtungen fertiggestellt. Im Unterschied zu dem

1)<sub>KFK-Bericht</sub> 1272/3

ursprünglichen Konzept sieht dieser Entwurf eine Druckeinspeisung von Natrium aus einem separaten Behälter in das Reaktionsrohr vor, um eine vollständigere Füllung des Rohres oberhalb der UO<sub>2</sub>-Schmelze und damit eine effektivere dynamische Verdämmung zu erreichen. Die Konstruktion einer Modellapparatur für Vorversuche mit Wasser ist abgeschlossen. Teile des Modells können bei der endgültigen Versuchseinrichtung wiederverwendet werden.

# 1237 <u>Natriumbrandversuche</u><sup>1) F</sup>

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

Die im 4. Quartal durchgeführten Brandversuche dienten im wesentlichen der Ermittlung der Brandrate beim Einsatz der Auffangwanne mit spezieller Abdeckung. Es wurden 3 Versuche mit der 1  $m^2$ -Wanne und ein Versuch mit einer Wanne von 4 m<sup>2</sup> Grundfläche durchgeführt. Der Versuch mit der großen Wanne sollte Aufschluß geben, ob die Ergebnisse der kleinen Wanne auf größere Flächen extrapolierbar sind. Diese Wanne war durch Zwischenwände in 4 Kammern mit je 1 m<sup>2</sup> unterteilt. Erst wenn das Natrium in einer Kammer eine bestimmte Höhe erreicht hatte, konnte es durch Öffnungen in den Zwischenwänden in die Nachbarkammer übertreten. Bei den Versuchen mit der kleinen Wanne wurden jeweils 60 1 Natrium von 600 °C eingesetzt. Die Bestimmung der Brandrate erfolgte aus der Abkühlkurve des Natriums, dem Wärmeverlust der Wanne und der Wärmekapazität. Für die Abkühlphase wurde eine Brandrate von 1-2 kg/m<sup>2</sup>h ermittelt. Da aus dieser Brandrate keine Aussage über die Brandrate während des Einfüllens gemacht werden konnte, sollte bei dem Versuch mit der großen Wanne diese direkt aus der freigesetzten Wärme ermittelt werden. Hierzu wurde die Temperaturdifferenz zwischen der Zu- und Abluft und die Luftmenge gemessen. Aus der Wärmebilanz konnte damit der zeitliche Verlauf der Brandrate ermittelt werden. Zusätzlich wurde noch die Gewichtsänderung der Wanne während des Versuches aufgezeichnet.

<sup>1)</sup> Letzter Bericht in KFK 1272/2

Bei dem Versuch wurden 200 1 Natrium von 600 <sup>o</sup>C in 4 min in die Wanne eingefüllt. Vor dem Einfüllen war die am Boden isolierte Wanne auf 400 <sup>o</sup>C vorgeheizt. Die Austrittsöffnung für das Natrium befand sich ca. 2 m über der Wanne und war mit einer Einrichtung zur Zerteilung des Natriumstrahles versehen. Beim Auftreffen des Strahles auf die Abdeckung der Wanne kam es infolge des Zersprühens zu einer starken Reaktion und Aerosolentwicklung.

Aus der Wärmebilanz wurde für die Einfüllphase eine Brandrate von ca. 230 kg/h ermittelt. Der Grund für diese hohe Brandrate ist das starke Zersprühen des Natriums während dem Einfüllen.

Die während der Abkühlphase ermittelte Brandrate, d.h. die Reaktion unter der Abdeckung, entsprach den Ergebnissen der kleinen Wanne.

Ein weiterer Versuch mit der großen Wanne ist für das erste Quartal 1973 vorgesehen.

Über die bisher durchgeführten Versuche wurde ein Film in deutscher und englischer Sprache erstellt. Er behandelt die wichtigsten Vorgänge und das Verhalten bei verschiedenen Arten von Natriumbränden. Eine erweiterte Neufassung dieses Filmes wird z.Zt. vorbereitet.

#### Veröffentlichungen:

- F. Huber, P. Menzenhauer, W. Peppler, W. Till Untersuchung des Brandverhaltens von flüssigem Natrium KFK-Nachrichten 3/72
- (2) F. Huber, P. Menzenhauer, W. Peppler, W. Till Untersuchung des Brandverhaltens von flüssigem Natrium (Film) International Conference on Engineering of Fast Reactors for Safe and Reliable Operation

#### 1238 Sicherheitstechnische Verfolgung der SNR-Entwurfsstudien

### 1238.2 Zuverlässigkeitsuntersuchungen an Anlagensystemen schneller Reaktoren \* (G. Weber, IASR)

Die Zusammenarbeit mit der im LEM an der Entwicklung des Multi-Input-Schutz-Systems (MISS) arbeitenden Gruppe ergab neben der Vorbereitung der Konzeptauswahl für den SNR 300 auch längerfristige Fragestellungen. Es ist dabei von Interesse, insbesondere die Verfügbarkeit des Schutzsystems näher zu untersuchen. Von dieser Kenngröße hat eine Beurteilung des MISS (wie bei jedem Schutzsystem) auszugehen. Dabei sind zur Zeit drei Rechenprogramme in Bearbeitung:

- a) Ein Rechenprogramm, welches die Auswertung eines beliebigen k/n-Systems bezüglich Verfügbarkeit erlaubt.
- b) Das im KFK-Bericht 1272/3 genannte Programmsystem "Kinetic Fault Tree Analysis" wurde weiter verbessert.
- c) Einige Methoden, welche zur Beschreibung eines sequentiellen Systems führen, werden nun ebenfalls programmiert.

1238.3 Modellversuche zum Notkühlsystem SNR 300 1)\*

(D. Kirsch, K. Kleefeldt, W. Kramer, R. Meyder, IRE; H. Hain, RBT)

In einer Durchführbarkeitsstudie wurde vom IRE untersucht, ob die von der Firma Interatom durchgeführten analytischen Berechnungen der tankinternen Notkühlung im SNR 300 durch geeignete Modellversuche mit Wasser bestätigt werden können. Obwohl wegen der Verschiedenheit der dimensionslosen Kennzahlen eine unmittelbare Übertragbarkeit der Versuche nicht gegeben ist, wird aus folgenden Gründen die Durchführung der Modellversuche empfohlen:

<sup>1)</sup> Bisher nicht berichtet

- Es kann damit demonstriert werden, daß eine Kühlung durch freie Konvektion bei einer derart komplizierten Strömungsführung grundsätzlich möglich ist;
- Es sind gute Argumente für den Schluß gegeben, daß das Rechenprogramm die Notkühlung im SNR 300 richtig berechnet, wenn die Versuchsergebnisse hinreichend gut übereinstimmen mit denen einer Vorausberechnung der Versuche mit dem Rechenprogramm.

Die Spezifikation der Modellversuche und der Versuchseinrichtung wurde in Absprache mit RBT und der Firma Interatom erstellt.

Der in den Hauptabmessungen maßstabgetreu zum Reaktortank SNR 300 mit einer Verkleinerung 1:3 ausgeführte 120<sup>0</sup>-Ausschnitt-Modellbehälter konnte von RBT termingemäß fertiggestellt werden, ebenso planmäßig konnten die notwendigen Komponentenbestellungen und Lieferungen abgewickelt werden. Die Regelung für die entsprechend dem Nachwärmeverhalten des Reaktors gestufte Heizleistung des Modellcores wurde entworfen und erstellt. Für die Meßwert-Erfassung und Verarbeitung wurde in Verbindung mit dem Erfassungssystem CALAS der DVZ ein System konzipiert, entwickelt und teilerprobt, das eine direkte Auswertung der Versuchsergebnisse mit einem Rechenprogramm ermöglicht. In ausgedehnten Vorversuchen wurde ein Verfahren zur Sichtbarmachung der Strömungsvorgänge des Naturumlaufes im Wassermodell und fotografischen Registrierung ausgewählt, ferner wurden Druckverlustmessungen und thermi-

sche Messungen am Brennelementbündel des Modells durchgeführt.

Mit dem Beginn der Versuche ist termingerecht Mitte März 1973 zu rechnen.

# 1239 <u>Untersuchungen zur Kühlung von Coreschmelzen</u><sup>1)</sup>★ (G. Grötzbach, R. Meyder, IRE)

Der Schwerpunkt der Arbeiten zur Kühlung von Coreschmelzen im IRE hat sich von der Untersuchung des Verhaltens der Brennstoffschmelze in einem externen Corecatcher zur Untersuchung des Rückhaltevermögens von Coreschmelze an verschiedenen Stellen innerhalb des Reaktortanks verschoben. Hierzu wurde in letzter Zeit insbesondere die Frage behandelt, wie groß voraussichtlich das Rückhaltevermögen des Cores nach einem hypothetischen Unfall ist.

Bei jedem der zur Zeit diskutierten hypothetischen Störfälle wird ein großer Teil des flüssigen Brennstoffes durch Brennstoff-Natrium-Reaktion (BNR) zu feinkörnigem Granulat umgesetzt. Teile dieses Brennstoffgranulats können durch die Druckpulsation der BNR oder durch die Natriumströmung aus den Brennelementen heraustransportiert werden und sich im Tank, z.B. im Ringlager oder im Gasblasenabscheider, oder im Primärkreislauf ablagern. Ein Teil des Granulates kann jedoch auch in den Brennelementen zurückbleiben. Die Explosionsversuche in England haben gezeigt, daß durch die Druckwelle der BNR das untere axiale Blanket und das Spaltgasplenum aus der Halterung im Brennelement herausgerissen und in den Brennelementfuß gepreßt werden. Die Stäbe werden dabei so stark verformt, daß kaum noch freie Strömungsquerschnitte übrigbleiben und der Durchsatz durch das Brennelement auf einen sehr niedrigen Wert absinkt, so daß sich Granulat auf dem deformierten Blanket und Spaltgasplenum absetzen kann. Gekühlt wird diese Brennstoff-Granulat-Schüttung durch den niedrigen Natrium-Restdurchsatz durch das Brennelement und durch Wärmeleitung radial durch die Schüttung zur Brennelementkastenwand, und von dort an das umgebende Natrium.

Zur Zeit wird zur Beschreibung dieser Vorgänge mit einer quasistationären Näherung ein einfaches stationäres Modell angewendet, das das Temperaturfeld des Natriums in der Brennstoffschüttung in Abhängigkeit von der Höhe und dem sich einstellenden Restdurchsatz berechnet. In dem Modell werden die oben genannten Effekte der Reduktion des Durchsatzes durch das deformierte Blanket und durch die Schüttung selbst, der Antrieb durch Naturkonvektion und Notkühleinrichtungen und die radiale Wärmeabgabe durch die Kastenwand berücksichtigt. Das Modell ermöglicht die Abschätzung der Brennstoffmenge, die

1)Letzter Bericht in KFK 1272/2

unter bestimmten Bedingungen mindestens im Brennelement kühlbar ist, da Kühlung durch Natriumverdampfung zunächst nicht berücksichtigt wird. Wegen der relativ großen Unsicherheiten der im Modell verwendeten Annahmen wird zur Zeit eine Parameterstudie bezüglich des Einflusses folgender Größen durchgeführt:

- a) Der Wärmequelldichte der Schüttung, da man nur sehr ungenau abschätzen kann, zu welchem Zeitpunkt sich die Schüttung in voller Höhe abgesetzt haben wird.
- b) Der Eintrittstemperatur in die Schüttung; diese wird bestimmt durch die freigesetzte Energie während der Exkursion und die Abfuhr dieser Energie durch die Primär- und Notkühlkreisläufe.
- c) Der Porosität und des Durchmesserspektrums des Brennstoffgranulates; diese beeinflussen sehr stark den Druckverlust in der Schüttung.
- d) Des Druckabfalls im deformierten Blanket, da über dessen Zustand nach einem hypothetischen Unfall nur sehr unsichere Angaben zu machen sind.
- e) Der am deformierten Kern anstehenden Druckdifferenzen aufgrund der im Kreislauf und Reaktortank herrschenden Strömungsverhältnisse.

### 124 ENTWICKLUNG DER INSTRUMENTIERUNG UND SIGNALVERARBEITUNG ZUR KERNÜBERWACHUNG

#### 1241 Nachweis von Durchflußstörungen am Brennelement

### 1241.2 <u>Durchflußmesser-Erprobung im BR2</u>1)★ (K.D. Heckert, IMF)

Im Rahmen der Entwicklungsarbeiten für die in-core Instrumentierung des SNR sollen die von Interatom entwickelten Na-Durchflußmesser einem Langzeit-Bestrahlungstest - Projektbezeichnung Mol 3G - im BR2 ausgesetzt werden. Diese Durchflußmesser sind zur Überwachung des Na-Durchsatzes oberhalb jedes Brennelementes des SNR vorgesehen.

Für dieses Experiment ist eine Bestrahlungszeit von ca. 1 Jahr, entsprechend einem maximalen schnellen integrierten Neutronenfluß >0,1 MeV von etwa  $1\cdot 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup> vorgesehen. Die Bestrahlung wird in einem 5-schaligen Brennelement vom Typ SVn mit einem nutzbaren Durchmesser im Core-Bereich von 34 mm durchgeführt.

Die Bestrahlungstemperaturen für die Durchflußmesser liegen im Bereich von 450 bis 700  $^{\circ}$ C und werden mit 4 Thermoelementen im Innern und jeweils 8 Thermoelementen am Mantel der Durchflußmesser gemessen. Die Aufheizung erfolgt durch Absorption von  $\gamma$ -Strahlung. Durch die Änderung der Wärmeleitfähigkeit eines von Hand einstellbaren Helium/Neon-Gemisches im Gasspalt zwischen der Na-Kapsel und dem äußeren Kapselrohr wird die Temperatur geregelt.

In dem Bestrahlungseinsatz sind zwei Durchflußmesser angeordnet. Dieser besteht im wesentlichen aus der inneren instrumentierten Na-Kapsel mit den Durchflußmessern, dem äußeren Kapselrohr und dem Einsatzkopf. Am Einsatzkopf sind die Gasanschlüsse – Gasaustritt, Gaseintritt und Gasversorgung für die Kopfkammer – sowie zwei Durchführungen für die Meßkabel montiert. Die Gasanschlüsse sind mit zylindrischen Sintermetallfiltern (40 µm Porenweite) ausgerüstet. Einsatzkopf und Einsatzunterteil sind gasdicht voneinander getrennt.

1) Erster Bericht

Der Bestrahlungseinsatz sowie die Durchflußmesser sind in der Fertigung. Als Bestrahlungsbeginn ist Mitte 1973 vorgesehen.

### 1241.3 Vorversuche zur Kühlmitteldurchsatzmessung in Natrium mit der Temperaturauschanalyse 1) \* (zusammengestellt von K.H. Raes, TU Hannover)

Vom Institut für Kerntechnik der TU Hannover wird das Strömungsgeschwindigkeitsmeßverfahren aufgrund der Kreuzkorrelation von Temperaturfluktuationen erprobt. Die Meßgenauigkeit ist stark abhängig vom Übertragungsverhalten der Meßfühler.

In der Anlaufphase des Wärmeübergangsprüfstandes im IRB konnten erste Untersuchungen über den Einfluß der Thermoelementbauart auf die Genauigkeit der Strömungsgeschwindigkeitsmessung durchgeführt werden. Bei diesen Messungen in Natrium wurde in einer Teststrecke eine Wärmequelle (Heizleiter) eingebaut. Stromabwärts von dieser w rden mit zwei Sätzen von Thermoelementen (TE) Laufzeitmessungen durchgeführt.

Die Teststrecke besteht aus einem Rohr NW 50 x 3.5 mit 14 in ein Trapezgewinde eingelöteten Heizleitern (Abb. 1, siehe auch 1263.2 in KFK-Bericht 1272/3).

Die TE's ragen in 4 um 90° versetzten, axial fluchtenden Ebenen I÷IV 10 mm in die beheizte Natrium-Strömung. Ihre Abstände entsprechen den in der Abb. 1 angegebenen.

Die Temperaturrauschspektren (Spektrale Leistungsdichte S.L.D.) in den Abb. 2 und 3 zeigen, daß bei Messungen mit isolierten Thermoelementen das Erfassen höher frequenter Signalanteile nur mit dünnen, sehr empfindlichen TE's (Ti 0.25) möglich ist (Abb. 2). Da die Signale im Bereich der TE-Grenzfrequenzen aufgrund der geringen Strömungsgeschwindigkeit schon stark an Leistung verlieren, sollten für genauere Untersuchungen noch einmal Messungen mit vollem Na-Durchsatz durchgeführt werden.

Ein Vergleich mit den robusten Thermoelementen, Bauart Huetz (3 mm  $\emptyset$ , Abb. 3), zeigt, daß diese im vorliegenden Fall in ihrem Übertragungsverhalten mindestens bis zu den Grenzfrequenzen der kleinsten isolierten Thermoelemente (0,25 mm  $\emptyset$ ) reichen.[Die Meßkurve für die isolierten Thermoelemente Ti 0.25 (0,25 mm  $\emptyset$ ) in Abb. 3 hat sich aus einer anderen Versuchsreihe als diejenige in Abb. 2 ergeben (unterschiedliche Strömungsgeschwindigkeit des Natriums und etwas unterschiedliche Meßpositionen der TEs)]. Obendrein ist zu sehen,



Abb.1

Geschwindigkeitsmessung durch Temperaturrauschanalyse, JRB 1972 - Teststrecke und Thermoelementverteilung -



daß sie als Hochpaß arbeiten, daß für die Signalverarbeitung also keine Kompensierung des Gleichspannungsanteils erforderlich ist. Erwiesenermaßen steigt die statistische Genauigkeit der Kreuzkorrelationsfunktion mit der Bandbreite; von diesem Gesichtspunkt aus ist also eine möglichst hohe Grenzfrequenz der Thermoelemente anzustreben. Ein weiterer wichtiger Gesichtspunkt ist die absolute Veränderung der Transportzeit  $\tau$  und der Geschwindigkeit v =  $\Delta x/\tau$  mit der oberen Grenzfrequenz der ausgewerteten Signale. Um diesen Effekt besser kennenzulernen, wird die Transportzeit  $\tau$ nach Schmalbandfilterung der Signale über der Filtermittenfrequenz f aufgetragen (Abb. 4).

Hier zeigt sich, daß man, um richtig messen zu können, möglichst nur hochfrequente Signalanteile zur Auswertung heranzieht, evtl. also auch noch Hochpässe in die Signalwege einbaut. Damit die dann erfaßten Signale noch korreliert sind, müssen die Thermoelementabstände entsprechend gering gewählt werden.

Schwierigkeiten machen vor allem bei den Thermoelementen, Bauart Huetz, die Störungen durch das Netz und die Begleitheizung. Diesen muß bei zukünftigen Messungen durch geeignete Dimensionierung der Thermoelemente (möglichst großes Signal) und beste Abschirmung der Leitungen Rechnung getragen werden.

### 1242 <u>Hüllenüberwachung an Brennelementen</u>\*F (S. Jacobi, G. Schmitz, LEM)

#### Experimente am HSD-Loop

Die Versuche mit dem Monitor für verzögerte Neutronen<sup>+)</sup> am Hüllenschadendampfkreislauf des FR 2 wurden fortgeführt. Der in der FR 2-Betriebsphase A(72) eingesetzte Natururanprüfling N56 mit einer Schadensfläche von 1 mm<sup>2</sup> wurde in der Phase B(72) im Kreislauf belassen. Gemessen wurde der Zerklüftungsfaktor k, der nach  $/ 1_{7}$  der gemessenen Neutronenaktivitätskonzentration zugeordnet werden kann und wie folgt definiert ist:

Testfläche bei Einbeziehung der Oberflächenvergrößerung durch Rauhigkeit

Größe des Testlecks in der Hülle

<sup>+)</sup> KFK-Bericht 1272/1, S.124-8

Es wurde der folgende zeitliche Verlauf von k beobachtet:

Zu Beginn der Betriebsphase B(72) stellte sich der gleiche Wert für k ein wie am Ende der Betriebsphase A72, nämlich k = 140. Im Verlauf einer Woche stieg dieser Wert kontinuierlich auf den Maximalwert von k = 235. In den verbleibenden drei Wochen fiel er dann auf den Wert von k = 90 ab.

In der Abschaltphase C'(72) des FR2 wurde der Brennstab N56 gegen den Brennstab N77 ausgetauscht. Der Brennstab N77 hatte ebenfalls Natururan als Spaltstoff, jedoch eine Schadensfläche von 10 mm<sup>2</sup>, ausgebildet als 10 mm langer Schlitz der Breite von 1 mm.

Nach Erreichen der vollen Reaktorleistung von 44 MW zu Beginn der Betriebsphase C(72) wurde ein Wert von k = 50 gemessen. In der Zeit vom 10.5.1972 bis zum 24.5.1972 wurden die Dampfparameter wie Druck, Temperatur und Durchsatz in Abständen von je 12 Stunden innerhalb der zulässigen Grenzen variiert. Hierbei ergaben sich Werte für k zwischen k = 35 und k = 140. Eine genaue Analyse dieser Ergebnisse wird noch durchgeführt. Nach Abschluß dieser Parameterversuche wurde für k ein Wert von k = 115 gemessen. In den verbleibenden zwei Wochen ging er auf den Wert von k = 60 zurück.

In der Abschaltphase D'(72) wurde der Brennstab N77 gegen den Brennstab N58 ausgetauscht. Der Brennstab N58 hatte Natururan als Spaltstoff und eine Schadensfläche von 90 mm<sup>2</sup>, ausgebildet als 9 Nuten 10 x 1 mm<sup>2</sup>, wobei je drei Nuten übereinander gesetzt und je drei Nuten um 120<sup>°</sup> versetzt waren.

Während der gesamten Betriebsphase D(72) wurden die Dampfparameter variiert. Der Zerklüftungsfaktor k schwankte zwischen den Werten k = 14 und k = 37. Für gleiche Dampfparameter ging der Faktor k während dieser Betriebsphase um etwa 20% zurück.

In der Abschaltphase E'(72) wurde der Brennstab N58 gegen den Brennstab N75 ausgetauscht. Der Brennstab N75 hatte die gleichen Spezifikationen wie Brennstab N58, nämlich Natururan als Spaltstoff und eine Schadensfläche von 90 mm<sup>2</sup>. Dieser Brennstab blieb über die Betriebsphasen E, F und G(72) im Hüllenschadendampfkreislauf eingebaut. Während dieser drei Phasen wurden die Dampfparameter konstant gehalten. Wegen Ausfall der Meßstelle konnte zu Beginn der Phase E der Zerklüftungsfaktor k nicht gemessen werden. Gegen Mitte der Phase E wurde der Faktor k zu k = 62 gemessen. Bis zum Ende dieser Phase stieg er auf den Wert von k = 73.

124-7

Sofort nach der Abschaltphase F'(72) wurde k zu k = 200 gemessen. Im Laufe von drei Wochen ging dieser Wert auf k = 180 zurück, um bis zum Ende der Betriebsphase F(72) wieder auf den Wert von k = 200 anzusteigen.

Ein weiterer Sprung von k wurde nach der Abschaltphase G'(72) gemessen, und zwar auf den Wert von k = 290. Dies war gleichzeitig das Maximum dieses Prüflings, da ab dort k kontinuierlich über die Betriebsphase G(72) auf den Wert von k = 240 absank.

Eine Übersicht über die bisher gemessenen minimalen und maximalen Zerklüftungsfaktoren zeigt die Tabelle 1.

Prüfling	<b>Reaktor-</b> phase	Brennstab- schaden [mm²]	k <sub>MIN</sub>	k <sub>MAX</sub>
U35	K(71)	1 1	85	1000
N56	A(72)	1	140	670
N56	B(72)		90	240
N77	C(72)	10	35	140
N58	D(72)	90	14	37
N75	E(72)	90	62	73
N75	F(72)	90	180	200
N75	G(72)	90	240	290

Tabelle 1: Minimale und maximale Zerklüftungsfaktoren k am Projekt FR2/P55

. .

#### Experimente an der KNK

Die zusätzliche Abschirmung des in der KNK installierten Monitors für verzögerte Neutronen erbrachte eine Absenkung der Impulsrate, die durch Coreneutronen verursacht wird, um den Faktor 2. Bei 100% der Reaktornennleistung entsprechen die derzeitigen Impulsraten umgerechnet einer Neutronenaktivitätskonzentration von 88 n/sec  $g_{Na}$  bzw. mit einem Zerklüftungsfaktor von k = 10 einer freien Brennstoffoberfläche von 40 cm<sup>2</sup>. Bei einem Signal zu Störungsverhältnis von 1:10 ist damit ein Leck der Größe von 4 cm<sup>2</sup> mit Sicherheit zu erkennen und im Schadensverlauf zu beobachten.

Es ist vorgesehen, auf der Reaktorposition 82 der KNK mit Hilfe eines Experimentierstopfens eine freie Brennstofftestfläche der Größe von 9 cm<sup>2</sup> einzusetzen. Die Vorbereitungen hierzu sind noch nicht abgeschlossen.

### Literatur:

[1\_7] S. Jacobi, G. Schmitz Hüllenüberwachung an natriumgekühlten Reaktoren durch Nachweis verzögerter Neutronen GfK-Externer Bericht 22/71-1

### 1244 Akustische Meßverfahren in Natrium

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

# 1. Ultraschall-Meßtechnik\_in\_Natrium

Der für die Ultraschall-BE-Positionierungseinrichtung dienende mechanische Teil wurde instrumentiert. Eine Dichte-Messung vor dem Natriumeinsatz steht kurz bevor. Die für die Natriumtests bei der Industrie in Auftrag gegebenen Ultraschallköpfe waren bis Ende 1972 noch nicht verfügbar, so daß das erste Natriumexperiment mit der Prototypeinheit erst für Anfang 1973 erwartet wird.

# 2. <u>Akustische Meßtechnik in Natrium-Systemen</u>

Mit der Auswertung der Bandaufzeichnungen vom akustischen Untergrund im KNK-Reaktor, sowie der schalltechnisch erfaßten Siede- und Systemgeräusche bei den BEVUS-Experimenten (vgl. 1233.4) wurde begonnen.

Die bereits vorliegenden Ergebnisse stehen in guter Übereinstimmung mit der Aussage der in BEVUS eingesetzten Druckaufnehmer. Die Analyse des über einen Quarz-Druckgradienten-Sensor aufgenommenen Schallspektrums liefert während des Siedevorgangs spektrale Anteile bis 5 kHz. Das Leistungs-Spektrum eines am äußeren Containment der BEVUS-Anlage angebrachten Kondensator-Mikrophons weist aufgrund der großen Entkopplung des Schallempfängers zum Siedezentrum eine Verteilung bis etwa 1 kHz auf. Neben den typischen Siedefrequenzen fallen besonders die Eigenresonanzen des Containments und der tragenden Teile der Versuchseinrichtung auf.

Die Arbeiten im Rahmen der Siedegenerator-Entwicklung und der hiermit verbundenen Angebotseinholung wurden weitergeführt.

#### 1246 Untersuchungen zur Signalverarbeitung für das Reaktorschutzsystem

# 1246.3 <u>Störfallanalyse und Anforderungen an das Reaktorschutzsystem</u>★1) (K. Gast, IRE)

Ziel dieses Vorhabens ist es, aufgrund störfallanalytischer Untersuchungen und unter Berücksichtigung der Entwicklung spezieller Überwachungsinstrumente Kriterien für eine rechtzeitige und zuverlässige Abschaltung des Reaktors im Falle lokaler Störungen im Kern festzulegen. Im Berichtszeitraum wurden die bisherigen Ergebnisse der Untersuchungen zum Problem der Brennelement-Schadenspropagation (vgl. 1233 bis 1236) im Hinblick auf die Möglichkeiten und die Notwendigkeit einer rechtzeitigen Unterbrechung des Schadensablaufs durch instrumentelle Sicherheitsmaßnahmen analysiert und gewichtet. Es wurden vorläufige Anforderungen an die Coreüberwachung des SNR 300 formuliert und vorläufige Abschaltkriterien aufgestellt.

1) Bisher nicht berichtet.

Diesen Kriterien liegt die konservative Annahme zugrunde, daß die Untersuchungen zu den mechanischen Auswirkungen einer Brennstoff-Natrium-Reaktion auf die Corestruktur (vgl. 1235 und 1236) allein keinen zweifelsfreien Sicherheitsnachweis zum Propagationsstörfall liefern und daß deshalb die Kernüberwachungsinstrumentierung eine tragende Rolle bei diesem Nachweis spielt. Kriterien für eine automatische Schnellabschaltung über das zweite Sicherheitssystem wurden zunächst nur für die individuelle Brennelementinstrumentierung (Thermoelemente und Durchflußmesser) aufgestellt. Die Anforderungen an das Schutzsystem wurden mit dem Hersteller diskutiert, insbesondere im Hinblick auf die durch Instrumentierungsausfall zu erwartende Verschlechterung der Reaktorverfügbarkeit. Eine wichtige Schlußfolgerung dieser Untersuchungen ist, daß der Entwicklung ausfallsicherer Meßfühler und vor allem integral wirksamer Methoden zur Detektion lokaler Störungen (Siededetektion, Nachweis verzögerter Neutronen) besondere Bedeutung zukommt.

#### 125 AUSWIRKUNGEN VON REAKTORSTÖRFÄLLEN AUF DIE UMWELT; AKTIVITÄTSFREISETZUNG

### 1254 <u>Kontamination von Kühlkreisläufen<sup>1)</sup></u> (H. Stamm, IRCh)

1. Kontamination von Natriumkreisläufen\*

Die Kühlmittelanalysen aus dem in-pile-Loop "MOL-7A" wurden abgeschlossen. Aktivierungsanalytisch konnte gezeigt werden, daß das Verhältnis der im Natrium vorliegenden Cäsiumisotope (Cs-137, Cs-135, Cs-134 und Cs-133) erwartungsgemäß in allen Kühlmittelresten aus diesem Kreislauf gleich war. (1).

An den Einzelteilen des zerlegten Kreislaufs wurde gammaspektrometrisch die Verteilung der Radionuklide Cs-137, Cs-134, Sb-125 und Mn-54 untersucht. Ihre Ablagerung nahm mit abnehmender Temperatur im Loop zu. An Rohrkrümmern und an Schweißnähten waren deutliche Aktivitätsmaxima meßbar, ebenso in allen untersuchten Rohren des Na/CO,-Wärmetauschers kurz hinter dem Na-Eintritt. Eine Behandlung der Edelstahlrohre (AISI 316ss) mit verdünnten Säuren (HNO, oder HC1) löste Mn-54 vollständig ab, während Anteile der Aktivitäten von Cs-137, Cs-134 und Sb-125 zurückblieben. Daraus wurde geschlossen, daß Mangan nur an der Stahloberfläche adsorbiert war. Cäsium und Antimon hingegen etwas in das Gefüge des Grundmetalls eingedrungen sein müssen. Wiederholtes Elektropolieren im Wechsel mit y-spektrometrischen Messungen ergab für Antimon eine Eindringtiefe von etwa 1 µ, Cäsium war 1,5 bis 2 µ eindiffundiert. Bei Vergleichen mit von anderen Autoren berichteten Eindringtiefen muß berücksichtigt werden, daß MOL-7A nur 22 Tage mit Brennelement-Schaden betrieben worden war und die Messungen an Rohren vorgenommen wurden, die während des Betriebs relativ kalt (<400 °C) gewesen waren.

Aktivierungsanalytisch wurden metallische Spurenverunreinigungen in Proben metallischen Natriums bestimmt. Dazu wurden mehr als 70 Natriumstücke (100 bis 300 mg) verschiedener Herkunft (Degussa, Fluka, ICI, Merck, Riedel de Haen) und unterschiedlichen Reinheitsgrades in Quarzampullen eingeschweißt und im FR2 bestrahlt. Der Schwerpunkt der aktivierungsanalytischen Arbeiten lag jedoch bei der Bestimmung metallischer Verunreinigungen in Natriumproben,

1)Letzter Bericht in KFK-1271/4

die aus dem Primärkreislauf der KNK entnommen worden waren. Die Entnahme erfolgte zu einer Zeit, als das Kühlmittelnatrium durch den KNK-Einfahrbetrieb noch nicht (oder nur geringfügig) radioaktiv geworden war. Fe, Cr, Co, Sb, Zn, Ag und Hg wurden quantitativ bestimmt und aus den Mittelwerten von 9 Einzelbestimmungen die Aktivitäten der daraus entstehenden Radionuklide nach 100 bzw. nach 200 Tagen KNK-Vollastbetrieb erreichnet. Nach Abklingen des Na-24 wird Zn-65 die Dosisleistung von KNK-Primärnatrium bestimmen, bei einem Vollastbetrieb von mehr als einem Jahr gewinnen SB-124 und Co-60 an Bedeutung (2). Aus dem Spektrum in Abb. 1 ist die Dominanz der  $\gamma$ -Strahlung des Zn-65 nach 60 d Bestrahlungsdauer deutlich zu erkennen, der gleichfalls hohe Peak des Cr-51 bei 320 keV hat wegen seiner niedrigen Dosisleistungskonstante kaum einen Einfluß auf die Strahlenbelastung einer Wartungsmannschaft am Primärsystem.

Die spezifische Aktivität des Na-22 wird in der KNK-I nach weniger als einem Monat Vollastbetrieb ihren Sättigungswert von etwa 50 nCi/g Na erreicht haben. KNK-Primärnatrium, das am 24.6.72 entnommen wurde, hatte durch einen vorangegangenen Probebetrieb bis max. 8% Leistung bereits eine Aktivität von 3 nCi Na-22/g Na und 0.9 nCi Ag-110m/g Na.

### 2. Kontamination von Dampfkreisläufen G

Der Experimentierbetrieb des Heißdampf-Versuchskreislaufs im FR2 (DK-Loop) begann in der letzten FR2-Betriebsphase 1971. In dieser Phase war ein Experimentierbrennstab mit auf 35% angereichertem U-235 (UO<sub>2</sub>) im Reaktoreinsatz eingesetzt, die Anbohrung des Hüllrohres (Brennstoffzone) hatte einen Durchmesser von 1,1 mm. Dabei wurde der gesamte Kreislauf so stark mit kurzlebigen Spaltprodukten kontaminiert, daß aus Sicherheitsgründen in den folgenden Betriebsphasen nur Experimentierbrennstäbe mit  $U_{nat}O_2$  eingesetzt wurden. In den beiden Phasen A72 und B72 war ein Stab mit einem 1 mm<sup>2</sup>-Leck eingesetzt. Auf den Proben in den Kontaminationskammern konnten nur aktivierte Korrosionsprodukte (vor allem Sb-122 und Sb-124) gemessen werden. Auch eine Vergrößerung des "Sollschadens" um den Faktor 10 (Phase C72) führte nur zu sehr geringen Aktivitäten deponierter Spaltprodukte auf den Kontaminationsproben. Erst mit 90 mm<sup>2</sup> freier Brennstoffoberfläche (ab Phase D72) konnten alle interessierenden Spaltprodukte auf den ausgebauten Blechen gut gemessen werden. In den Betriebsphasen E73 und F72, in denen der Kreislauf im Hinblick



Abb.l Gammaspektrum von KNK-Natrium Bestrahlungsdauer 60 Tage (FR2) Messung 14 Tage nach Bestrahlungsende

auf die Korrosionsuntersuchungen des IMF (ebenso wie in den Phasen A72 und B72) mit konstanten Dampfbedingungen betrieben wurde, waren in den drei IRCh-Probenkammern insgesamt 65 Edelstahlcoupons W.Nr.1.4541 mit elektropolierten Oberflächen eingesetzt. Die Tabelle 1 enthält zum Vergleich die Aktivitäten in nCi/cm<sup>2</sup>, die auf je einem Coupon aus den drei Kammern gemessen wurden nach Rückrechnung auf die Abschaltzeit des FR2. Man erkennt deutlich das unterschiedliche Abscheidungsverhalten bei den drei verschiedenen Kühlmittelzuständen. Das Maximum der Deposition von Mo-99/Tc-99m liegt deutlich im Hochdruck-Heißdampf. In Bestätigung der Ergebnisse aus der EVESR-Turbine (Heißdampfversuchsreaktor der GE, Vallecitos/Calif., 1964 bis 1967) lag das Maximum der Jod-Abscheidung an einer Stelle, an der Heißdampf in Sattdampf überzugehen beginnt, in Kammer 4. Dominante Aktivität auf den Proben im Kondensat (Kammer 3) war das Mutter-Tochter-Paar Te-132/J-132. Die Menge der gut meßbaren Korrosionsprodukte (Cr-51 und Sb-124) nahm auf dem Weg vom Reaktoreinsatz zur Kondensatreinigungsanlage ab. Co-60, Fe-59 und Mn-54 waren auf den Blechen aus der Dampfphase nur schlecht oder gar nicht meßbar.

Insgesamt waren im Berichtszeitraum 249 Proben im Hochdruck-Heißdampf (Kammer 2), 48 im Niederdruckdampf (Kammer 4) und 32 im Kondensat (Kammer 3) eingesetzt.

#### Veröffentlichungen zu 1254:

 H.H. Stamm
 Determination of Cs-135 in sodium from an in-pile loop by activation analysis
 J.Radioanalyt.Chem., im Druck

 H.H. Stamm, H. Clauss, K. Nolte Aktivierungsanalytische Bestimmung von metallischen Verunreinigungen in KNK-Primärnatrium Z.analyt.Chem., im Druck

### Tabelle 1

Deponierte Aktivitäten (nCi/cm<sup>2</sup>) auf elektropolierten Edelstahlblechen W.Nr.1.4541

		Hochdruck- heißdampf	Überhitzter Dampf Niederdruck	Kondensat
Nuklid	Halbwerts- zeit	Kammer 2 (4C)	Kammer 4 (9X)	Kammer 3 (1Z)
Mo-99/Tc-99m	66,7 h	840	610	4.0
Te-132/J-132	78 h	89	433	89
<b>J-</b> 131	8,05 d	14	1600	3.6
J-133	20,8 h		880	
Ba-140/La-140	12,8 d	73	3.0	•••
<b>Ce-</b> 141	32,5 d	63	•••	0.75
Te-129m	34,1 d	•••	20	5•9
Ru-103	39,5 d	91	27	5.2
Zr-95	65,5 d	10,3	0.48	0.52
<b>Cs-</b> 137	30,0 a	0.29	•••	0.52
Cr-51	27.8 d	46	4.2	1.5
Mn-54	303 d	0.21	0.18	0.17
Fe-59	45 d	•••	0.75	1.1
Co-60	5,26 a	3.0	1.3	2.0
<b>S</b> b <b>-</b> 124	60,3 d	212	33	1.7
			1	

126 NATRIUM-TECHNOLOGIE-VERSUCHE

1262 Untersuchung von Reaktorbauteilen

1262.3 Versuche zur Werkstoffpaarung

1262.31 Verschweißversuche

(F. Huber, K. Mattes, IRE)

Im Berichtszeitraum sind zwei der drei vorgesehenen Versuche der Phase III/A durchgeführt worden. Hierbei wurden nur gedrehte Proben aus den Werkstoffen Stellit 6, Colmonoy 4, Inconel 718 und 1.4981 eingesetzt. Um den Einfluß der Sauerstoffkonzentration des Natriums herauszufinden, wurde bei jedem Versuch eine der zwei Probensäulen zur Getterung des Sauerstoffs in mit Zirkonspänen gefüllte Maschendrahtkissen gepackt.

Die Versuche wurden unter den folgenden Bedingungen durchgeführt:

Vers. Nr.	Spültemp.	Spülzeit	Anpreßtemp. _ <sup>o</sup> c_7	Anpreßs zeit /h/	Anpreß- kraft ∠kp 7	Kontakt- fläche Zmm 27	Bemerkun- gen
III/A 1.1	700	24	700	72	1100	300	mit Zirkon- späne
III/A 1.2	700	24	700	72	1100	300	ohne Zirkon- späne
III/A 2.1	550 <sup>1</sup> ) 700 <sup>2</sup> )	9,52) 14,5	550	72	1100	300	mit Zirkon- späne
III/A 2.2	550	24	550	72	1100	300	ohne Zirkon- späne

<u>Tab. 1</u>

- 1) Mit Umwälz- und Reinigungsbetrieb
- 2) In stagnierendem Natrium

Die erzielten Ergebnisse sind in der nachfolgenden Tabelle zusammengefaßt:

Vers. Nr.	Haftkraft [kp]				
	ST 6 / ST 6	Col. 4/Col. 4	Inc. 718/Inc. 718	1.4981/1.4981	
III/A 1.1	550	580	500	1390	
III/A 1.2	940	730	310	1890	
III/A 2.1	_		<b>_</b>	300 <sup>1)</sup>	
III/A 2.2	-		-	150 <sup>2)</sup>	

Tab. 2

1) Von 9 Paarungen 1 Paarung nicht verschweißt

2) Von 9 Paarungen 4 Paarungen nicht verschweißt

Wie aus der Tabelle ersichtlich, verschweißten bei 700 <sup>o</sup>C alle eingesetzten Proben, während bei 550 <sup>o</sup>C nur der austenitische Werkstoff 1.4981 verschweißte. Bei 700 <sup>o</sup>C konnte kein eindeutiger Einfluß der geringeren Sauerstoffkonzentration infolge des Zirkongetters auf das Verschweißverhalten festgestellt werden; demgegenüber zeigt sich bei 550 <sup>o</sup>C an den Ergebnissen der Paarung 1.4981/1.4981 die klare Tendenz, daß eine geringe Sauerstoffkonzentration die Verschweißneigung verstärkt.

Die Fertigung der für die Versuchsphase III/B vorgesehenen Vorrichtungen wurde abgeschlossen. Diese Versuchsphase unterscheidet sich von den vorangegangenen dadurch, daß Werkstoffpaarungen auch unter Natrium bei hohen Temperaturen auseinandergerissen werden können. Mit den entsprechenden Versuchen soll im 1. Quartal 1973 begonnen werden.

### 1262.32 <u>Verschleißuntersuchungen in Natrium</u> **\*** (E. Wild, K.J. Mack, IRE)

Die Arbeiten zur Ermittlung geeigneter Werkstoffpaarungen für die Distanzpflaster an den Brennelementkasten des SNR 300 wurden weitergeführt. Entsprechend den bekannten, diesem Problem zugrundeliegenden Randbedingungen interessiert hierbei primär die Reibungszahl.

Es wurden 11 Werkstoffpaarungen in je 2 Versuchen jeweils "gleich gegen gleich" untersucht. Hierzu waren 2 Teststrecken für kontinuierlich rotierende Bewegung mit Meßeinrichtungen (Aufnehmer, Induktionszelle, Trägerfrequenzmeßbrücke, Linienschreiber) zur Aufzeichnung der Reibungszahl über die gesamte Versuchsdauer ausgerüstet. Die höchstmögliche Belastung betrug 17,5 kp absolut.

Als Versuchsparameter wurden konstant gehalten:

Belastung	0,8	kp/mm <sup>2</sup>
Gleitgeschwindigkeit	13,5	cm/min
Temperatur des Na	600	°C( <u>+</u> 10°C)
0 <sub>2</sub> -Gehalt im Na	<10	ppm
Gleitweg	2 · 10 <sup>4</sup>	cm

Die Ergebnisse sind in Abb. 1 und in Tab. 3 wiedergegeben. Für die Werkstoffe Inconel 718, TZM und 1.4981 wurden ähnliche Werte ermittelt wie bei früheren Untersuchungen bei einer Belastung von nur 0,12 kp/mm<sup>2</sup>.

Bei Stellit 6 H, Inconel 750 und Hastelloy C liegen die zuletzt ermittelten Reibungszahlen höher als bei den früheren Standardversuchen, was auf einen Einfluß der Belastung hindeutet. Für alle übrigen Paarungen liegen Vergleichswerte nicht vor.

Gegen Ende der beschriebenen Versuchsläufe ergaben sich Störungen in den Teststrecken bzw. im Natrium-Versorgungs- und Reinigungskreis. Die Kaltfalle erreichte einen Sättigungsgrad, bei dem die geforderte Reinheit des Na ( $O_2$  <10 ppm) nicht mehr erreicht werden konnte. Sie wurde daher ausgebaut und mit einer neuen Filterpackung ausgestattet. Beträchtliche Mängel ergaben sich auch an relativ gering belasteten Axial-Kugellagern in den Teststrecken, deren Schalen aus dem austenitischen Stahl 4571 gefertigt waren. Die Fertigung neuer Lager mit stellitisierten Gleitrillen und Hartmetallkugeln wird bis Mitte Januar 1973 abgeschlossen sein, sodaß gegen Ende Januar der Versuchsbetrieb fortgesetzt werden kann.

Eine Teststrecke für translatorisch oszillierende oder intermittierende Bewegung wurde fertiggestellt. Ihr Belastungssystem und Bewegungsmechanismus wurden in ersten Probeläufen untersucht. Das Ergebnis war zufriedenstellend. Die Herstellung von Korrosionsproben, beschichtet mit Stellit 6 und Colmonoy 4 sind im wesentlichen abgeschlossen. Ihre Fertigbearbeitung (Oberflächen geläppt oder poliert) stellt an die Hauptwerkstatt bzw. andere Fertigungsbetriebe zu hohe Anforderungen und wird daher vom IMF übernommen.

Werkstoff	Reibungsbeiwert		
Stellit 6 H	0,7 / 1,25 / 0,9 / 1,3		
Inconel 718	0,5 - 0,68 / 0,55 - 0,76		
Inconel 750	0,65 - 0,8 / 0,73 - 0,9		
Hastelloy C	0,6 - 0,9 / 0,3 - 0,55		
Celsit V	0,9 - 1,12 / 0,9 - 1,2		
TZM	0,75 - 0,8 / 0,7 - 0,78		
Nimonic 90	0,6 - 0,65 / 0,68 - 0,62		
Ferro TiC U	0,4 - 0,45 / 0,38 - 0,45		
34 FP	0,45 - 0,5 / 0,47 - 0,63		
1.4961	0,95 - 1,5 / 0,95 - 1,25		
Hartmetall (WC-Ni)	0,3 - 0,32 / 0,28 - 0,33		
Ergebnisse aus Reibversuchen mit Paarungen aus gleichen Werkstoffen	<u>Tab. 3</u>		
Versuchsparameter:	2		
Belastung 0,8	kp/mm <sup>2</sup>		
Gleitgeschwindigkeit 13,5	cm/min		
Na-Temperatur 600	°C		


#### 1263 Untersuchungen zur thermo- und hydrodynamischen Kernauslegung

1263.2 Untersuchungen im exzentrischen Ringraum \*

Na-Wärmeübergangs-Prüfstand

(G. Hennrich, IRB)

Bei der Inbetriebnahme des Wärmeübergangsprüfstandes wurde festgestellt, daß die zur Förderung des Natriums eingebaute EM-Pumpe nicht die gewünschte Förderleistung erbrachte. Trotzdem konnten die von der Technischen Universität Hannover (vgl. 1241.3) geplanten Versuchsreihen durchgeführt werden. Die Pumpe wurde ausgebaut und zur Reparatur an den Hersteller geschickt.

### 1263.3 Lokale Wärmeübergangsmessungen an Bündelgeometrien\*

(M. Kolodziej, R. Möller, H. Tschöke, IRB)

### Wandtemperaturmessung, Eichverfahren

Es wurde untersucht, mit welchen Fehlern bei der Bestimmung der örtlichen Hüllrohroberflächentemperatur zu rechnen ist. Die Genauigkeit der rechnerischen Meßwertkorrektur erweist sich mit ca. <u>+</u> 25% als unzureichend. Zur Erreichung einer genaueren Meßwertkorrektur wurde deshalb nach einem geeigneten Eichverfahren gesucht. Drei Eichverfahren wurden kritisch betrachtet und auf ihre grundsätzlichen Fehlerquellen hin untersucht:

- Die bei Wasser- und Gaskühlung übliche <u>Extrapolationsmethode</u> ist nur für konstante Stoffwerte (Wärmeleitfähigkeitswerte) streng gültig. Die Berechnung eines Modellfalles (Techn. Daten: Eichung im konzentrischen Ringraum mit D = 12,6 mm Ø, Stab-Ø = 9 mm, spezifische Leistung q" = 50 W/cm<sup>2</sup>) ergibt einen Fehler in der Staboberflächentemperatur von ca. <u>+</u> 12% (bezogen auf den Temperaturabfall im Kühlmittel).
- Die <u>Vergleichsstabmethode</u> erfordert die Einstellung exakt gleicher Kühlbedingungen, was versuchstechnisch Schwierigkeiten macht. Die Modellrechnung führt zu einem Fehler von ca. + 9%.
- Ein entwickeltes drittes Verfahren, die sogenannte <u>Doppelwandmethode</u>, liefert die besten Ergebnisse. Eine im Bereich der Wandtemperaturmeßstellen des Heizstabes aufgelötete Cu-Hülse enthält in der Meßebene senkrecht zur Stabachse ein Eich-Thermoelement. (Abb. 2). Die in einem konzentrischen Eich-Kühlkanal gemessenen Temperaturdifferenzen zwischen Eich-Thermoelement und den Wandthermoelementen werden bei unterschiedlichem Temperaturniveau



# Abb.2 Doppelwandmethode



126-8

Abb.3 Eichkurve für Vergleichsstab-und Doppelwandmethode

und verschiedenen Leistungen ohne den Temperaturabfall in der Cu-Hülse auf die Wärmestromdichte bezogen als Eichkurven in Abhängigkeit von der mittleren Temperatur T<sub>m</sub> dargestellt (Abb. 3). Als einzige Fehlerquelle für die Wandtemperatur T<sub>W</sub> ergibt sich die Differenzmessung zwischen den Thermoelementen in der Meßebene. Für den Modellfall beträgt der Fehler ca.  $\pm$  3%.

Der Wandstab des SNR 300-Brennelementes ist derjenige mit der größten azimutalen Temperaturvariation. Die Verhältnisse an diesem Stab sind besonders kritisch, da die thermodynamischen Berechnungen der Unterkanal-Mittentemperaturen bereits eine azimutale Variation der Kühlmitteltemperatur von ca. 35 °C ergeben haben<sup>+)</sup>. Bei einer aus Festigkeitsgründen zulässigen Variation von etwa 40 °C ist also ein sehr kleiner Sicherheitsabstand zu erwarten.

Der verbleibende maximale Fehler bei der Bestimmung der örtlichen Oberflächentemperatur beträgt bei Verwendung der zuvor beschriebenen Doppelwandmethode für dieses Beispiel weniger als 1 <sup>o</sup>C. Nach (1) ergeben sich weitere Fehler durch Fertigungsungenauigkeiten des Heizstabes von etwa 1 <sup>o</sup>C, die jedoch zum größten Teil durch die Eichung eliminiert werden. Weiterhin verbleibt ein maximaler Fehler von etwa 5% der azimutalen Temperaturvariation bei der Übertragung der Meßergebnisse an BN-Heizstäben auf Brennstäbe, was für das Beispiel des kritischen Wandstabes 2 <sup>o</sup>C bedeutet.

Diese untersuchten Fehlermöglichkeiten zusammen verursachen insgesamt einen Fehler von weniger als 4 <sup>O</sup>C bei der Untersuchung des kritischen Wandstabes eines SNR-300-Brennelementes.

Es kann somit festgestellt werden, daß die Anforderungen an einen instrumentierten Bornitrid-Heizstab zufriedenstellenderfüllt werden.

+) KFK-Bericht 1272/1, S. 126-5

126-10

### Geometrie der Stromleiter in Heizstäben

Zur Untersuchung der axialen und azimutalen Gleichmäßigkeit der Stromleiter in Heizstäben wurden Längs- und Querschliffe von BN- und MgO-Heizstäben mit 6 und 10 mm Ø angefertigt.

Daraus geht hervor, daß sich die harten MgO-Körner bei starker Stabreduktion in die Metallwand drücken und eine axiale Welligkeit des Heizleiters verursachen.

Bei einer Reduktion des Stabdurchmessers von weniger als 20% liegen die Querschnittsänderungen um ein Prozent. Mit BN gefüllte Heizstäbe weisen gegenüber MgO-Heizstäben ein besseres Verhalten auf.

### Veröffentlichung:

(1) S. Malang, R. Möller, K. Rust, H. Tschöke Fehlermöglichkeiten bei der thermischen Simulation von Brennstäben durch Heizstäbe und bei der Bestimmung lokaler Oberflächentemperaturen. Vortrag auf der Fachtagung der Fachgruppen Reaktorphysik und Thermo-Fluiddynamik, Jülich 23.-25. Januar 1973

### 1263.4 <u>Untersuchungen zur Kühlmittelquervermischung in Na-gekühlten</u> Brennelementen<sup>¥</sup>

(E. Baumgärtner, HH. Frey, H. Hoffmann, IRB)

Zur Stützung thermo- und fluiddynamischer Auslegungsrechnungen der Brennelemente des SNR-300 wurden in Schieflastexperimenten drei Probleme untersucht:

1. Die Größe des Mischungsbeiwertes in einem Brennelementmodell mit gitterförmigem Abstandshalter – als über die gesamte Länge gemittelter Wert. Die Versuche wurden in einem 61-Stabbündel mit 1:1 Geometrie in turbulenter Na-Strömung nach der Beheizungsmethode durchgeführt. Der Reynoldsbereich betrug  $10^4 \le \text{Re} \le 10^5$ , die beheizte Stablänge rund 1000 mm, die gesamte Bündellänge 1500 mm.

- 2. Die durch Beheizung eines Stabes ermittelten Mischungsbeiwerte(nach 1.) wurden zur Berechnung der Kühlmittel-Mittentemperaturen in den Unterkanälen des Bündelquerschnittes nach / 1\_7 benutzt, wobei eine Leistungsabgabe von nur zwei Stäben im zentralen und peripheralen Bündelbereich (Zentralund Wandstab) angenommen wurde. Hierdurch sollten extreme Leistungsgradienten über das Bündel simuliert werden.
- 3. Die rechnerisch ermittelten Kühlmittel-Mittentemperaturen wurden sodann experimentell durch Beheizung von Zentral- und Wandstäben im 61-Stabbündel überprüft. Hierbei wurden die für die Rechnung angenommenen Leistungsund Betriebsdaten realisiert. Ein typisches Ergebnis dieser Untersuchung ist in Abb. 4 für Re = 60 500 wiedergegeben. Aufgetragen ist die Kühlmittel-Mittentemperatur über den Unterkanalposition in Richtung n des in der Abbildung gezeigten Bündelquerschnittes. Als Parameter sind die durch Quervermischung und Wärmeleitung bewirkten Temperaturausgleichs-Prozesse dargestellt. Wie zu ersehen ist, stimmen die rechnerisch und experimentell ermittelten Temperaturen sowohl im zentralen als auch im peripheralen Bündelbereich bei Berücksichtigung eines Mischungsbeiwertes von  $\mu = 1 - 1.5\%/cm$  gut überein.

### 1263.5 Entwicklung und Erprobung von elektrischen Heizstäben\*

#### Erprobung von Heizstäben

(V. Casal, E. Graf, W. Hartmann, G. Hennrich, IRB)

Es wurde mit der Erprobung von BN-Heizstäben in Natrium bei maximalen Kühlmitteltemperaturen von 950 °C und Leistungsdichten bis zu 170 W/cm<sup>2</sup> begonnen. Die Versuche zeigten, daß die Heizer für diesen Temperatur- und Leistungsbereich geeignet sind. Die Ausfälle waren auf vermeidbare Nebeneffekte zurückzuführen.





(1/10): mit Berücksichtigung von Wärmeleitung und Quervermischung (10 %/cm)

Abb.4 Natrium - Temperaturprofile  $\Delta \vartheta = t_{aus} - t_{ein}$  im Austrittsquerschnitt eines 61-Stabbündels bei Beheizung von Wand- und Zentralstab. Vergleich Experiment - Theorie (NV 7)

### Auswirkung des konstruktiven Aufbaues indirekt elektrisch beheizter Stäbe auf die Verteilung des Wärmestromes an der Oberfläche des Stabes (S. Malang, H.M. Politzky, K. Rust, IRB)

Heizstäbe mit Stromleitern in Form von Bandwendeln wurden eingesetzt, um höhere elektrische Widerstände zu erzielen als bei Heizstäben mit rohrförmigen Stromleitern. Der Abstand zwischen den einzelnen Windungen sichert die einwandfreie elektr. Isolation der einzelnen Windungen.

Die Auswirkung dieser Spalte zwischen den Windungen auf die Wärmeflußverteilung und auf das Temperaturfeld an der Oberfläche der Heizstäbe wurde rechnerisch bestimmt.

Zur Vereinfachung des Rechenmodelles - dargestellt in Abb. 5 - wurde ein Spalt parallel zur Achse des Stabes angenommen, obwohl dieser Spalt bei einem gewickelten Stromleiter wendelförmig verläuft. Da die Störung der Wärmestrom- und Temperaturverteilung, welche dieser Spalt verursacht, hauptsächlich von der Spaltbreite und nur in geringerem Maße von der Spaltrichtung abhängt, hat eine derartige Simplifizierung des Modells kaum einen Einfluß auf die Rechenergebnisse.

Die Bestimmung der Temperaturfelder für einen repräsentativen 180°-Ausschnitt des Heizstabes erfolgte auf numerischem Wege nach der Netzwerkmethode unter Verwendung des Rechenprogrammes RELAX.

In Abb. 6 ist die azimutale Variation der Wärmestromdichte an der Oberfläche eines mit einem gewendelten Stromleiter versehenen Heizstabes aufgetragen, der zentrisch in einem Natrium durchströmten Kanal angeordnet ist. In dem Ringspalt wurde konstante Kühlmittelgeschwindigkeit (Kolbenströmung) vorausgesetzt. Um den Einfluß der Stableistung zu eliminieren, wurde die örtliche Wärmestromdichte mit der mittleren Wärmestromdichte normiert.

Die beiden wiedergegebenen Fälle - Spaltbreite 0,2 und 0,5 mm - lassen sich bei Heizstäben mit Bandwendeln leicht herstellen.

Aus Abb. 6 ist zu ersehen, daß bei einer Spaltbreite von 0,5 mm der Wärmestrom lokal bis zu 13% unter dem mittleren Wärmestrom liegt. Bei einer Spaltbreite von 0,2 mm beträgt die maximale örtliche Abweichung ca. 5%. Während der azimutale Verlauf des Wärmestromes hauptsächlich durch den inneren Aufbau des Heizstabes bestimmt wird, hängt die örtliche Temperatur an der Staboberfläche fast ausschließlich von der Geometrie des von Flüssigmetall durchströmten Kanals ab. Aus diesem Grund wird auf eine Darstellung der Temperaturverteilung an der Staboberfläche verzichtet.



Abb. 5 Heizstab mit wendelförmigem Stromleiter, dessen Windungen in axialer Richtung einen Abstand voneinander haben, der hier durch einen achsparallelen Spalt symbolisiert ist.



Abb.6 Azimutaler Verlauf der normierten Wärmestromdichte an der Staboberfläche eines natriumgekühlten Heizstabes im konzentrischen Ringraum

### 1264 <u>Hydraulische Untersuchungen am SNR-300-Absorber</u> (K. Marten, IRB)

Mit den Druckverlustmessungen am Absorberstabbündel wurde begonnen. Das Bündel besteht aus 19 Stäben, die sich in hexagonaler Anordnung in einem runden Führungsrohr befinden. Zwecks gleichmäßigen Massendurchsatzes über den Bündelquerschnitt sind am Führungsrohr 12 Füllstäbe angebracht. Zur gegenseitigen Abstützung der Stäbe im Bündel sind 6 integrale Wendelrippen pro Stab vorhanden.

Die Druckverlustbeiwerte wurden als Funktion der Reynoldszahl ermittelt. Bei der Auswertung der Ergebnisse ergaben sich zwei Probleme:

- Durch fehlerhafte Maßfestlegung des Füllstockquerschnittes bei der Bündelkonstruktion (Fa. Interatom) ist das Spiel der Stäbe im Bündel um etwa 0,6 mm größer als vorgesehen. Daraus ergibt sich gegenüber den Nennabmessungen eine um 6,6% größere freie Strömungsfläche. Dies wurde auch durch Auslitern nachgewiesen.
- Es ist unwahrscheinlich, daß die Füllstäbe im Bündel auf eine Länge von 1600 mm satt auf der Führungsrohr-Innenwand aufliegen. Dies kann erst nach Abschluß des Gesamtprogrammes überprüft werden. Unter der Annahme, daß 100, 50 oder 0% der Stäbe am Führungsrohr satt aufliegen, ergeben sich unterschiedliche Ergebnisse bei der Auswertung, was in Abb. 7 durch die Kurve a (100%), b (50%) und c (0%) dargestellt ist. Die Kurve b stimmt dabei recht gut mit den am 19-Stabbündel mit Spiraldrahtabstandshalter gleicher Steigungshöhe ermittelten Daten nach Rehme überein (e).

### Literatur:

/17 W. Baumann

MISTRAL-II, Thermohydraulischer Mischströmungsalgorithmus für Stabbündel KFK 1605







### 128 ENTWURFSSTUDIEN ZU GAS- UND DAMPFGEKÜHLTEN BRUTREAKTOREN G

### 1281 Studien zu gasgekühlten schnellen Brutreaktoren<sup>1)</sup>

### Auslegung der Heliumturbine für einen 1000 MWe gasgekühlten schnellen Brutreaktor mit geschlossenem Gasturbinenkreislauf

(C. Savatteri, INR)

#### Einleitung

Fortschritte auf dem Gebiete der Reaktortechnologie ermöglichen bei gasgekühlten schnellen Brutreaktoren Kühlmittelaustrittstemperaturen des Reaktors von mehr als 700 <sup>o</sup>C. Diese hohen Kühlmitteltemperaturen können durch direkten Anschluß einer Gasturbine vollständig ausgenutzt werden. Die unmittelbare Verbindung der Gasturbine mit dem Reaktor wird ermöglicht, wenn das verwendete Kühlmittel inert und praktisch nicht aktivierbar ist. Helium erfüllt diese Bedingung. Es hat außerdem sehr gute thermische Eigenschaften sowie eine sehr hohe Schallgeschwindigkeit (~1000 m/sec bei 20 <sup>o</sup>C), die die Voraussetzung für eine intensive Reaktorkühlung sind. Helium dient gleichzeitig als Arbeitsmittel der Gasturbine und läßt keine Kontamination der einzelnen Anlagekomponenten befürchten, was natürlich für die Betriebssicherheit der Anlage wichtig ist. Benutzt man Helium als Arbeitsmittel, dann sind die Druckverluste im Kreislauf sehr gering, was sich günstig auf den Kreislaufwirkungsgrad auswirkt. Deshalb ist Helium sehr gut für den direkten Anschluß der Turbine an den Reaktor geeignet.

Die unmittelbare Koppelung des Reaktors mit der Gasturbine führt zu einem einfachen Kreislauf und bietet damit besonders bei einer vollintegrierten Bauweise, bei der die Komponenten der Heliumturbine zusammen mit dem Reaktor in einem Spannbetonbehälter untergebracht sind, eine Anlage, die sehr kompakt und sicher ist (Abb. 1).

Im Rahmen der Berechnung des 1000 MWe Heliumgekühlten Schnellen Brutreaktors wird in diesem Bericht die Vorauslegung der Heliumturbine beschrieben. Aufgabe dieser Arbeit ist es, den Einfluß unterschiedlicher Parameter wie Nabenverhältnis, Laufradabströmwinkel, Leitradzuströmwinkel auf die Baugröße der Turbine, wie die Stufenzahl, der Nabendurchmesser, die Schaufelhöhe und die Fliehkraftspannung zu untersuchen, um einen Überblick für die Vorauslegung zu erhalten.

<sup>1)</sup>Letzer Bericht in KFK-Bericht 1272/1

### Gang der Auslegungsrechnung

Aus der Kreislaufrechnung, die in /1/ durchgeführt worden ist, wurden die Eingangsdaten, wie Massendurchsatz sowie die Zustandsgrößen am Ein- und Austritt der Turbine, die in Tabelle 1 zusammengefaßt sind, gewonnen. Mit Hilfe dieser Daten wird die Turbine ausgelegt.

Da die Berechnung der Strömung durch eine Turbomaschine im allgemeinen Fall ein dreidimensionales Problem darstellt, sind zur Beschreibung eines Masseteilchens drei Koordinaten notwendig, axial, radial und in Umfangrichtung. Die Veränderlichkeit der Strömung mit der Umfangsrichtung und mit dem Radius wird nicht berücksichtigt. Berechnet wird die Strömung nach dem sogenannten Mittenschnittverfahren, wobei die Strömung im Mittenschnitt der Beschaufelung als repräsentativ für die gesamte Strömung über die Schaufelhöhe angesehen wird. Dieses Rechenverfahren eignet sich gut für die Vorauslegung einer Maschine und ist auch mit hinreichender Genauigkeit anwendbar auf eine Gasturbine, weil die Schaufelhöhe klein ist im Verhältnis zum mittleren Durchmesser der Beschaufelung.

#### Helium Arbeitsmittel °c 706 Temperatur am Turbineneintritt Kg/cm<sup>2</sup> 96.1 Druck am Turbineneintritt Kg/sec 1589.2 Durchsatz 3 Entspannungsverhältnis U/min 3000 Drehzahl °C 388.7 Temperatur am Turbinenaustritt % 91 Turbinenwirkungsgrad % 99.7 Mechanischer Wirkungsgrad m<sup>3</sup>/sec 710 Volumendrucksatz am Turbinenaustritt

### Tabelle 1: Ausgangsdaten für die Auslegung der Turbine





Schnitt B-B

1	REAKTOR		
2	TURBOSATZ		
3	WÄRMEAUSTAUSCHER		
4	VORKÜHLER		
5	ZWISCHENKÜHLER		
6	GENERATOR		

ANWURFMOTOR
8,9 NOTKÜHLSYSTEM
11 RESERVEGASSPEICHER
10 BE-LAGER
12 BE-WECHSELMASCHINE
13,14 MONTAGEÖFFNUNG

Abb. 1

1000MWe-Kraftwerk

Die erste Entscheidung bei der Auslegung einer Turbomaschine betrifft die Wahl des Beschaufelungstyps. Da die Kosten der Beschaufelung einen großen Teil der Gesamtkosten einer Gasturbine ausmachen, muß bei der Auslegung besonders auf eine wirtschaftliche Fertigungsmöglichkeit der Schaufeln geachtet werden. Aus diesem Grund wird die Bauart mit konstantem Innendurchmesser für alle Stufen gewählt, wobei die Schaufeln nach dem Drallsatz

$$C_n \cdot r = Konst.$$

verwunden sind.

Das bedeutet, daß in allen Stufen auf gleichen Radien gleiche Geschwindigkeitsdreiecke auftreten; das heißt, daß man alle Schaufeln der Turbine durch einfaches Kürzen der längsten Schaufel herstellen kann. Es ist also jeweils nur eine Lauf- und eine Leitschaufel zu entwerfen.

Bei Gasturbinen läßt sich dieser günstige Fall immer erreichen, da die Volumenänderung des Gases zwischen Ein- und Austritt relativ gering ist. Die homogenen Schaufeln reduzieren wesentlich die Gesamtkosten der Turbine. Im Mittenschnitt der letzten Stufe wird ein Reaktionsgrad von w = 50 % vorgesehen. Da der Volumenstrom am Turbinenaustritt ziemlich hoch liegt (etwa 710 m<sup>3</sup>/sec), ist es notwendig, eine zweiflutige Turbine, die für eine Lebensdauer von 10<sup>5</sup> Stunden ausgelegt wird, vorzusehen. Unveränderliche Größen für die Rechnung sind die Stoffwerte des Arbeitsgases (Gaskonstante R und Isentropenexponent K), die Werte für Druck und Temperatur am Turbineneintritt und -austritt, das Gesamtgefälle der Turbine und die Drehzahl.

Variiert werden das Nabenverhältnis am Austritt der Turbine  $v_A = d_i/d_{aA}$ mit dem konstanten Nabendurchmesser  $d_i$  und dem Außendurchmesser  $d_{aA}$ am Turbinenaustritt sowie der Laufradabströmwinkel  $\beta_2$  und der Leitradzuströmwinkel  $\alpha_0$ . Die Grenzwerte für das Nabenverhältnis betragen

 $v_{\rm A} = 0.5 \text{ und } v_{\rm A} = 0.9.$ 

Die untere Grenze folgt aus zwei Gründen: es gibt, unter  $v_A = 0.5$ , die Gefahr der Bildung von Nabentotwasser, des weiteren steigt mit abnehmendem Nabenverhältnis die Schaufelhöhe, und die Fliehkraftspannung im Schaufelfluß ist nicht mehr zulässig. Die obere Grenze  $v_A$  wird im Hinblick auf nicht zu hohe Spalt- und Randverluste festgelegt, weil die Schaufelhöhe zu klein wird.

Die Grenze für den Laufradabströmwinkel wurde zu  $\beta_2 = 24^{\circ}$  und  $\beta_2 = 32^{\circ}$  gewählt. Die Begründung liegt darin, daß bei einem Reaktionsgrad von 50 %  $\beta_2 = \alpha_1$  ist und der Leitradabströmwinkel  $\alpha_1$  den Umfangswirkungsgrad beeinflußt. Dieser erreicht sein Maximum, wenn U/C<sub>1</sub> = cos  $\alpha_1$  erfüllt ist. Dabei liegt U/C<sub>1</sub> im Bereich von 0.85 bis 0.92, was den oben angegebenen Werten für  $\beta_2$  entspricht.

Die Wahl des Winkels  $\alpha_0$  ist ein Kompromiß zwischen Stufenzahl und Austrittsverlust. Oft wird  $\alpha_0$  kleiner als 90° gewählt, um das Stufengefälle zu vergrößern und damit die Stufenzahl zu vermindern. Andererseits steigt mit fallendem  $\alpha_0$  der Austrittsverlust an. Als Austrittsverlust wird die kinetische Energie  $c_{2u}^2/2$  bezeichnet. Die Umfangskomponente der absoluten Geschwindigkeit am Austritt aus der letzten Stufe ist definiert:

$$c_{2u} = c_z / tg \alpha_c$$

Das bedeutet: bei konstantem  $c_z$  wird  $c_{2u}$  um so größer, je kleiner  $a_o$  ist, und damit entsprechend die Austrittsverluste.

Als untere Grenze wird in die Rechnung  $\alpha_0 = 70^{\circ}$  eingesetzt. Um die Zahl der Auslegungen auf technisch sinnvolle Lösungen zu beschränken, werden die folgenden weiteren Grenzwerte festgelegt: die maximale Schaufelhöhe am Turbineneintritt zu  $h_E = 40$  mm, die maximale Umfangsgeschwindigkeit am Turbinenaustritt zu  $U_{aA} = 450$  m/sec, die höchste Stufenzahl zu  $Z_{max} = 20$  und die größte auftretende Fliehkraftspannung im Schaufelfluß der ersten Stufe zu  $\sigma_E = 25$  kg/mm<sup>2</sup>. Als Werkstoff für die Schaufeln ist G.94 der Englischen Firma Jessop-Saville vorgesehen. Die Ergebnisse der Berechnungen sind in der Abb. 2 dargestellt. Dort sind die Flichkraftspannung  $\sigma_E$  am Eintritt der Turbine, die Stufenzahl Z, der Nabendurchmesser d<sub>i</sub>, die Schaufelhöhe h<sub>E</sub> am Eintritt sowie die Umfangsgeschwindigkeit U<sub>aA</sub> am Austritt als Funktion des Nabenverhältnisses v<sub>A</sub> am Austritt dargestellt.

In diesem Auslegungsdiagramm ist  $\beta_2 = 28^{\circ}$  konst., der Winkel  $\alpha_0$  ist Parameter. Bei Verkleinerung des Winkels  $\alpha_0$  wächst die Axialgeschwindigkeit  $C_2$ , und damit werden die Innendurchmesser und die Schaufelhöhe etwas kleiner. Die Zugspannung nimmt auch ab, aber der innere Wirkungsgrad sinkt etwas wegen der erhöhten Austrittsverluste. Andererseits nimmt die Stufenzahl ab, weil die Umfangskomponenten der Absolutgeschwindigkeit und somit das Stufengefälle vergrößert werden. Kleinere Stufenzahl bedeutet auch geringe Kosten, kürzere Baulänge der Turbine. Deshalb wird  $\alpha_0 = 70^{\circ}$  gewählt.

Um das Auslegungsverhältnis v<sub>A</sub> festzulegen, muß man berücksichtigen, daß einerseits zur Erreichung eines guten Wirkungsgrades Schaufeln relativer Länge notwendig sind und andererseits Rückströmungen an der Nabe vermieden werden sollen. Weiterhin ist darauf zu achten, daß die Fliehkraftspannungen in den Schaufelfüßen nicht zu groß werden, und daß die Baulänge und damit das Gewicht und somit die Kosten der Turbine bzw. des Turbosatzes wesentlich von der Stufenzahl beeinflußt werden.

Als Kompromiß der genannten Forderungen wird ein Nabenverhältnis von  $v_A = 0.65$  gewählt. Damit liegt der Auslegungspunkt fest. Die wichtigsten Daten sind in Tab. 2 aufgeführt.



Leistung	MW	1320.
Durchsatz	kg/sec	794.6
Entspannungsverhältnis	- -	3
Drehzahl	U/min	3000
Stufenzahl	-	15
Innendurchmesser d <sub>i</sub>	mm	1350.8
dußendurchmesser aE	mm	1747.7
daA	mm	2078.2
Nabenverhältnis v <sub>E</sub>	-	0.773
Nabenverhältnis v <sub>A</sub>	-	0.65
Laufradaustrittswinkel B <sub>2</sub>	ο	28
Leitradzuströmwinkel a <sub>o</sub>	0	70
Leitradaustrittswinkel a <sub>1</sub>	ο	27.04
Schaufelhöhe, Eintritt h <sub>E</sub>	mm	198.45
Schaufelhöhe, Austritt h <sub>A</sub>	mm	363.69
Zugspannung im Schaufelfluß σ <sub>E</sub>	kg/mm <sup>2</sup>	10.9
Zugspannung im Schaufelfluß σ <sub>A</sub>	kg/mm <sup>2</sup>	18.87
Umfangsgeschwindigkeit U	m/sec	212.2
Umfangsgeschwindigkeit U <sub>aE</sub>	m/sec	274.5
Umfangsgeschwindigkeit U <sub>aA</sub>	m/sec	326.4
Axialgeschwindigkeit C <sub>Z</sub>	m/sec	177.5
Machzahl, Austritt, Mittenschnitt	-	0.25

Tabelle 2: <u>Hauptdaten der Turbine der 1000 MWe-Anlage (2-flutig)</u>

Eintrittsdruck

kg/cm<sup>2</sup>

96.1

### Schlußfolgerung

Nach den Ergebnissen dieser ersten vorläufigen Auslegungsrechnung kann man feststellen, daß sich die Heliumturbine sehr klein bauen läßt, wenn man bedenkt, daß die 1000 Mwe Turbine nur 30 Stufen hat mit einer maximalen Schaufelhöhe von 0.37 m und einem Nabendurchmesser von 1.35 m. Ein Vergleich der Helium- und Dampfturbine wurde in /6/ durchgeführt. Beachtlich ist der Unterschied gegenüber der Dampfturbine besonders bei der Stufenzahl (Dampfturbine 90) und in der Schaufelhöhe (Dampfturbine 1m) bei gleicher Leistung. Man sieht in /6/, daß die Dampfturbine etwa 50 % länger ist.

Ein weiterer Vorteil der Heliumturbine ist, daß die Gefahr von Korrosion und Wassereinbruch in dem Kreislauf vermieden wird.

Ferner besitzt die Heliumturbine ein Entwicklungspotential, das eine Steigerung der Temperatur des Heliums am Turbineneintritt erlaubt. Natürlich sind die hohen Temperaturen am Turbineneintritt von großem Vorteil in einem geschlossenen Gasturbinenkreislauf, weil sie einen hohen Gewinn im Anlagewirkungsgrad bringen /1/, aber man muß auch die Probleme in Kauf nehmen, die mit hohen Temperaturen zusammenhängen, wie z.B. Schaufelkühlung und Festigkeit des Turbinenrotors.

### Literatur

- /1/ Savatteri, C.: Geschlossener Gasturbinenkreislauf für einen 1000 MWe gasgekühlten schnellen Brutreaktor - KFK 1409 - Mai 1971
- /2/ Frutschi, H.U.: Gasturbinen für He-gekühlte Kernreaktoren -Technica Nr. 10 (1969) S. 931 - 935
- /3/ Holliday, J.B., and Hurst, J.W.: The Application of Gas-Turbines to Reactor Systems - Rolls - Royce Ltd -
- /4/ Bammert, K. und Twardzick, W.: Kernkraftwerke mit Heliumturbinen für große Leistungen - Atomkernenergie - 9/10 (1967)

- /5/ Traupel, W.: Thermische Turbomaschinen Erster Band (1966), Springer-Verlag, Berlin
- /6/ Bammert, K.: Dampf und Heliumturbinen für Kernkraftwerke mit Hochtemperaturreaktoren - Energie und Technik - 1968 - Heft 1

### Veröffentlichungen im Berichtszeitraum;

- M. Dalle Donne, K. Wirtz
   European GCFR Program Plans
   Trans. ANS Vol. 15 Suppl. 2 and KFK 1663, EUR 4845e
- (2) M. Bober, S. Dorner, G. Schumacher Experiments on the Kinetics of Oxygen Transport from Oxide Fuel to the Clad Related to GCFR Fuel Pins KFK 1756
- (3) L. Barleon, M. Dalle Donne, S. Dorner
   Temperature and Heat Flux Distribution in the Molten Core Mass of a
   GCFR after an Hypothetical Melt-Down Accident
   KFK 1755, EUR 4852e

## 1285 <u>Studien zu dampfgekühlten schnellen Reaktoren</u>

(Zusammengestellt von F. Erbacher, IRB und G. Lill, AEG)

Der Schwerpunkt der Untersuchungen zur Sicherheit eines dampfgekühlten Schnellen Brüters lag bei den hypothetischen Störfällen. Zur quantitativen Untersuchung der hypothetischen Störfallabläufe beim Kühlmittelverlust infolge Rohrbruches oder bei gleichzeitigem Ausfall aller Kühlmittelgebläse mit zusätzlichem Versagen der Abschaltsysteme wurde parallel zu weiteren abschätzenden Rechnungen die Erstellung eines umfangreichen Rechencodes weitergeführt, wobei besonders die Nachbildung der Kreislaufkomponenten verbessert werden konnte. Die Programmierungsarbeiten sind weitgehend abgeschlossen; das Programm wird z.Zt. erprobt.

Zur Beschreibung der Phase der Nebelkühlung im Notkühlfall wurde ein Rechenmodell erarbeitet. Es enthält ein vereinfachtes Brennstoffmodell und berücksichtigt den Einfluss durch die Wärmekapazitäten der Gefäßwandungen und Einbauten.

Bei der Untersuchung des Lenzunfalles haben sich detailliertere nukleare Rechnungen als notwendig erwiesen. Dabei konnte die notwendige Abschaltreaktivität bestätigt werden. Für die radiale Leistungsverteilung ergaben sich gewisse Abweichungen von den bisherigen Zweizonen-Rechnungen.

Die Bearbeitung der Reaktivitätsunfälle durch Austrieb eines Regelelementes bzw. Abschaltelementes bei Bruch von Gestänge und Blende wurde weitgehend abgeschlossen. Dieser Störfall führt zu maximalen Reaktivitätsrampen von 12 bzw. 52 s/s. Während der Austrieb des wirksamsten Regelstabes auch bei Versagen der Schnellabschaltung infolge Dopplerrückwirkung zu keinen kritischen Auswirkungen führt, wird die Reaktorleistung bei Austrieb eines Abschaltelementes bei Versagen der restlichen Elemente des Abschaltsystems innerhalb von 0,18 s bis zu einem Maximalwert von 1,5 x 10<sup>6</sup> MW<sub>th</sub> ansteigen und zur Zerstörung des Kerns führen. Ob bei funktionstüchtigem Abschaltsystem die Abschaltrampe ausreicht, den Kern abzuschalten, werden die noch laufenden Untersuchungen zu diesem Punkt beantworten.

Die Anordnung der Einbauten im Reaktordruckgefäß wurde aufgrund der bisherigen Erkenntnisse überarbeitet. Neben konstruktiven Änderungen am Löffelverdampfer zur Erzielung eines günstigeren Regelverhaltens wurden Maßnahmen zur Verbesserung der Dampfführung vorgesehen. Besonderer Wert wurde auf eine bessere Beherrschung des Kernschmelzproblems gelegt. Insbesondere wurde berücksichtigt, daß niedergeschmolzener Brennstoff nach Auffassung der Genehmigungsbehörde nicht in allen Fällen von internen Strukturen im Druckgefäß aufgehalten werden kann, sondern daß ein spezieller Core-Catcher vorgesehen werden muß.

Für die Beschreibung der An- und Abfahrvorgänge wurde ein Rechenprogramm erstellt, und umfangreiche Parameterrechnungen zum Lenzen und Fluten wurden durchgeführt. Der Schaltplan für die nuklearen Hilfs- und Nebenanlagen wurde überarbeitet, so daß nunmehr in Analogie zum SWR-Containment-Konzept alle während des Betriebes druck- und aktivitätsführenden Anlagenteile innerhalb des Containments angeordnet sind.

Die Arbeiten zur thermohydraulischen Auslegung des Reaktors wurden abgeschlossen. Die mit dem Programmsystem COBRA-THEDYBER ermittelten thermohydraulischen Werte sowie die aus NUSYS-Rechnungen ermittelte axiale und radiale Leistungsverteilung dienten als Eingangswerte für eine detaillierte Heißstellenanalyse mittels der Programme THESYS und THEDRA. Die Ergebnisse der statistischen Heißstellenanalyse liegen vor und werden z.Zt. ausgewertet.

#### 129 ENTWURFSSTUDIEN ZU NATRIUMGEKÜHLTEN BRUTREAKTOREN

# <u>Na/Na-Zwischenwärmetauscher</u><sup>1) F</sup>

(H. Schnauder, IRE)

Im Rahmen der Entwurfsautomatisierung wurde das Programmsystem SINEX (Sodium Intermediate Heat Exchanger) fertiggestellt (1, 2, 3). Der Code gestattet die Auslegung von Na/Na-Wärmetauschern für stationäre Betriebsbedingungen. Es können Rohrplatten-Wärmetauscher mit geraden oder gewendelten Rohrbündeln berechnet werden, wobei gerade Bündel mit Umlenkblechen versehen sein dürfen. Der Code kombiniert die wärmetechnische Berechnung des Rohrbündels mit den mechanischen Auslegungsrechnungen der maßgebenden Bauteile.

Das Programmsystem ist besonders für Parameter- und Optimalisierungsuntersuchungen geeignet, da alle Resultate in Diagrammform in vielfältiger Kombination, einschließlich einer maßstäblichen Schemazeichnung, ausgegeben werden können. Die Flexibilität des aus Moduln aufgebauten Systems erlaubt einen relativ einfachen Übergang zu anderen Kühlmitteln, Bauformen und Berechnungsgrundlagen.

### Veröffentlichungen:

- H. Schnauder
   Rechnergestützter Entwurf von Wärmetauschern
   KFK-Nachrichten, Jg. 4, 2/72
- H. Schnauder
   SINEX Ein Programmsystem zur thermodynamischen und festigkeitsmäßigen
   Auslegung von natriumbeheizten Zwischenwärmetauschern
   KFK 1686, Dez. 1972
- (3) H. Schnauder Integrated Design and Optimization of Sodium/Sodium Heat Exchangers with Computer Assistance KFK 1628, Okt. 1972

<sup>1)</sup> Bisher nicht berichtet

a series de la construcción de la c A construcción de la construcción de A construcción de la construcción de

and the second secon

 $(1,1)^{(n+1)} = (1,1)^{(n+1)} = (1,1)^{(n+1)$ 

and the second second second

(a) A set of the set of t set of the se

a she a she a she a she

eren subscription en de la calance presentation eren calance a la calance a calance da calendar de la calendar La presentation de la calendaria.