

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

September 1973

Projekt Schneller Brüter

KFK 1273/2 EUR 4970 d

2. Vierteljahresbericht 1973



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H.

KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1273/2 EUR 4970 d

Projekt Schneller Brüter

2. Vierteljahresbericht 1973

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

Zusammenfassung

Der Bericht beschreibt Arbeiten des 2. Vierteljahres 1973, 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:

Der Brennstabmodell-Code SATURN 1a ist im Berichtszeitraum u.a. zur Analyse eines Stabes des Bestrahlungsversuches DFR-350 benutzt worden. Ein erstes Ergebnis läßt vermuten, daß die gemessene Durchmesservergrößerung über weite Bereiche des Brennstabes durch Schwellen des Hüllmaterials verursacht worden ist. Ferner wurden Meßergebnisse von Mol 7A und FR2-He-Loop-Vg. 2 Stäben mit SATURN-Berechnungen verglichen. SATURN 1a, das sich auf die Behandlung einer einzelnen Brennstabscheibe beschränkt, wird z.Zt. zu dem Programm SATURN 2 erweitert.

Auf dem Gebiet der Mischoxid-Herstellung stehen Berichte über Analysen- und Kontrollverfahren im Vordergrund.

Entmischung des Brennstoffes sowie die chemische und mechanische Wechselwirkung Hülle-Brennstoff werden weiterhin intensiv untersucht, wobei zunehmend Bestrahlungsergebnisse verwertet werden.

Weitere Bestrahlungsversuche mit karbidischem Brennstoff im DFR und FR2 sind in Vorbereitung. An karbidischen Brennstoffen wurde out-of-pile u.a. das Reaktionsverhalten der Spaltprodukte bei simuliertem hohem Abbrand abschließend untersucht.

Materialuntersuchung und -entwicklung:

Die Auswertung von Bestrahlungsversuchen der Mol 3-Serien konzentrierte sich auf den Stahl W.Nr. 1.4970. Es ergab sich u.a. ein starker Einfluß des Werkstoffzustandes auf die Duktilität dieses Stahls nach Neutronenbestrahlung. In Vergleichsversuchen waren unbestrahlte Blechproben untersucht worden. Eine Rückstandsanalyse des Stahls 1.4970 zeigte, daß sein kompliziertes Auslagerungsverhalten durch eine Vielzahl von Ausscheidungen verursacht wird.

Mit Hilfe von Versuchen im Ionenstrahl des Variable Energy Cyclotron (Harwell) wurde die Temperaturabhängigkeit der Porenbildung verschiedener Hüllwerkstoffe verglichen. Ein günstiger Einfluß der Kaltverformung zeigte sich bei Vergleich zweier Materialzustände von W.Nr. 4988.

Arbeiten zum Brennstoffzyklus:

Der Bericht enthält eine Jahresübersicht der Arbeiten zur Kernbrennstoffanalyse. Diese erstreckten sich u.a. auf die FR2-Kapselversuchsgruppen 4a und 4b. Bei der Vg. 4a hat die besonders hohe Stableistung (U-Pu-Entmischung!) zu teilweise extremen Unterschieden zwischen den kalorimetrischen und radiochemisch bzw. massenspektrometrisch gefundenen Abbrandmeßergebnissen geführt.

Ein weiterer Beitrag behandelt Verfahren zur colorimetrischen Spurenbestimmung von Uran in Pu-haltigen Lösungen.

Physik:

U.a. wegen der Verfügbarkeit eines Flugzeitspektrometers wurde das Neutronenspektrum der Anordnung SNEAK-7A an der Schnellen Unterkritischen Anordnung SUAK (nach Aufbau einer entsprechenden Anordnung) gemessen.

In SNEAK selbst sind die Messungen an den Anordnungen SNEAK 9A abgeschlossen. Hauptziel war eine Nachbildung des SNR hinsichtlich seiner Kontrollstäbe (Nachrechnung der Kritikalität, Messung der Leistungsverteilung und Reaktivitätswerte).

Die reaktortheoretischen Arbeiten konzentrierten sich auf eine Verhesserung des 1-dimensionalen Multigruppen-Diffusionsprogramms im System NUSYS und des Flußsyntheseprogramms KASY und auf den Abschluß der Entwicklung eines 3-dimensionalen Multigruppen-Diffusionsprogrammes.

Sicherheit:

Theoretische Untersuchungen behandeln verschiedene Moduln für ein Programmsystem zur Beschreibung hypothetischer Störfälle sowie für die Berechnung der mechanischen Beanspruchung eines Reaktorkernes. Eine Studie befaßt sich im einzelnen mit Mechanismen des Brennstabversagens unter Transientenbedingungen. Sicherheitsversuche haben Aufschluß gegeben u.a. über die Strömungs- und Temperaturverteilung hinter lokalen Störungen in einem Brennelement und über mögliche Formen des lokalen und des integralen Siedens von Natrium.

Technologie:

Es wird u.a. über Zwischenergebnisse von Reibungs-, Verschleiß- und Verschweißversuchen, die unter Natrium durchgeführt wurden, berichtet. Weitere Informationen betreffen theoretische und experimentelle Untersuchungen zum Wärmeübergang im Natrium. Die Entwicklung elektrischer Heizstäbe mit kleinen Fertigungstoleranzen ist so weit fortgeschritten, daß die Fertigung von Heizstäben für Siedeversuche in einem 7-Stab-Bündel beginnen konnte.

In drei Ringspalten wurden an einem Luftversuchsstand die Positionen von Nullschubspannung und Maximalgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Reynoldszahl und dem Durchmesserverhältnis gemessen. Entgegen bisherigen Ansätzen zeigte sich eine deutliche Verschiedenheit dieser beiden Positionen voneinander.

In einem Bericht über mögliche Materialien für den Core-Catcher eines gasgekühlten Brutreaktors wurde vor allem das System Brennstoffschmelze-Graphit untersucht.

Dieser Bericht wurde zusammengestellt von R. Hüper

Summary

This report covers the work performed in the 2nd quarter of 1973 at Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe, or on its behalf within the framework of the Fast Breeder Project (PSB).

Here are some of the most important results achieved in various sectors of the project:

Fuel Pin Development:

The SATURN 1a fuel pin model code has been used in the period under review, among other purposes, for the analysis of a pin subjected to the in-pile experiment DFR-350. The first tentative result seems to indicate that the expansion of the diameter measured over large areas of the fuel pin was caused by swelling of the cladding material. In addition, results measured with pins in Mol 7A and the FR2 He-Loop, test group 2, were compared with SATURN calculations. SATURN 1a, which is limited to the treatment of one single fuel pin disk, is presently being expanded into the SATURN 2 program.

Reports on methods of analysis and control cover most of the field of mixed oxide production.

Intensive studies of demixing of the fuel and the chemical and mechanical interaction between the cladding and the fuel are continued, increasing use being made of the results of in-pile experiments.

Additional in-pile experiments with carbide fuel in DFR and FR2 are being prepared. Under out-of-pile conditions, carbide fuels were subjected, among other tests, to studies of the reaction behavior of the fission products at high simulated burnups.

Materials Studies and Materials Development:

The evaluation of in-pile experiments of the Mol 3 series was concentrated on the steel No. 1.4970. Some of the phenomena shown were a pronounced influence of the condition of the material upon the ductility of that steel after exposure to neutrons. In intercomparison tests unirradiated sheet metal specimens had been investigated. A residue analysis of the 1.4970 type steel showed that its complicated hardening behavior is caused by a multitude of precipitates. The temperature dependence of the void formation of various cladding materials was compared by experiments in the ion beam of the Harwell Variable Energy Cyclotron. In the comparison between two material conditions of material No. 4988 a favorable influence of cold working was found.

Work on the Fuel Cycle:

The report includes a year's survey of the activities pursued with respect to the nuclear fuel analysis. They covered FR2 capsule test groups 4a and 4b, inter alia. In the 4a test group the exceptionally high pin power (U-Pu demixing) resulted in some extreme differences between the calorimetric and the radiochemical or mass spectrometry results of burnup measurements. Another contribution deals with methods of the colorimetric determination of traces of uranium in plutonium bearing solutions.

Physics:

The neutron spectrum of the SNEAK 7A assembly was measured on the Fast Subcritical Facility called SUAK (after an assembly had been erected for this purpose), one reason being the availability of a time-of-flight spectrometer.

In SNEAK proper the measurements of the SNEAK 9A assembly have been finished. The main purpose of these studies was a simulation of the SNR core with respect to its control rods (follow-up calculation of criticality, measurement of power distribution and reactivity data).

Work in the field of reactor theory was concentrated upon an improvement of the one-dimensional multigroup diffusion program in the NUSYS system and of the flux synthesis program called KASY and on the conclusion of the development of a three-dimensional multigroup diffusion program.

Safety:

Theoretical studies deal with several moduli for a program system describing hypothetical incidents and for the calculation of the mechanical stress acting upon a reactor core. One study deals with the details of the mechanisms of fuel pin failure under transient conditions. Safety experiments provided some information on the flow and temperature distributions downstream of local blockages in a fuel element and on possible types of local and integral boiling of sodium.

Technology:

This section contains, among other subjects, intermediate results of friction, wear and self-welding tests carried out under sodium. Other information refers to theoretical and experimental studies on the heat transfer in sodium. The development of electric heater rods with small fabrication tolerances has advanced far enough for fabrication of heater rods being started for boiling tests on a seven-rod bundle.

The positions of zero shear stress and maximum flow velocity as a function of the Reynolds number and the P/D ratio were measured in three annuli in an air test rig. Contrary to all the previous approaches this showed a clear difference between the two positions.

A report about potential materials for the core catcher of a gas cooled breeder reactor investigated, above all, the molten fuel-graphite system.

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
- 127. Thermo- und hydrodynamische Versuche mit gasförmigen Medien
- 128. Entwurfsstudien zu gas- und dampfgekühlten 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 der betr. frühere PSB-Vierteljaresbericht zitiert. Fehlendes Zitat bedeutet stets, daß der letzte Beitrag im unmittelbar vorhergehenden PSB-Vierteljahresbericht erschienen ist.

⁺⁾Teilprojekte mit den zugehörigen PSB-Kennzahlen. Die Seiten sind innerhalb jedes Teilprojektes durchnumeriert.

Zum Druck eingereicht im August 1973

and the second second

a second a second a second a second a second a second a second a second a second a second a second a second a s Second a seco

112 BRENNSTABENTWICKLUNG

1120 Brennstab-Modelltheorie ** 1)

Vergleich der Brennstab-Rechenprogramme LIFE-II (ANL) und SATURN-1a (GFK) (H. Kämpf, IMF)

Der während eines Aufenthaltes in der Materials Science Division des ANL begonnene qualitative und quantitative Vergleich des U.S.-Standard-Brennstab-Codes LIFE-II mit dem entsprechenden GfK-Code SATURN-1a wurde abgeschlossen.

Der qualitative Vergleich erstreckte sich auch auf die übrigen fortgeschrittenen US-Codes FMODEL, CYGRO-F und BEHAVE-2. Sämtliche verglichenen Programme behandeln das mechanische und thermische Brennstabverhalten unter Bestrahlung. Sie gehen von quasistationären Betriebsbedingungen aus. Es wird Axialsymmetrie vorausgesetzt. Die Probleme der Hüllmechanik werden von der Mehrzahl der Programme in befriedigender Weise berücksichtigt, soweit es sich um Kriechen, thermische Ausdehnung und Schwellen handelt. Fortgeschrittene Schwellprogramme sind allerdings nur im Falle von LIFE integriert worden. Die Korrosion wird noch nirgends befriedigend behandelt, auch die Behandlung der Plastizität bereitet teilweise Schwierigkeiten. Die Probleme der Brennstoffmechanik sind allgemein noch nicht hinreichend gelöst. Auf sie wurde bei dem Vergleich besonders ausführlich eingegangen.

Für den quantitativen Vergleich von LIFE-II und SATURN-1a war es erforderlich, einmal dieselben Materialbeziehungen zu verwenden, zum anderen geeignete Spezialisierungen vorzunehmen derart, daß die Thermo-Mechanik als harter Kern der gegenwärtigen Brennstab-Codes echt verglichen werden kann. Die bei einer Reihe von ausgewählten Rechnungen aufgetretenen Unterschiede und Inkonsistenzen wurden geklärt. Sie liegen, wie gezeigt wurde, in dem nicht gerechtfertigten numerischen Verfahren des Mechanik-Formalismus bei LIFE-II begründet. Zur Behebung der Schwierigkeiten der Brennstoff-Mechanik wurde der Formalismus der quasistationären Mechanik als geeignet erkannt und im Detail abgeleitet.

1)Zuletzt berichtet in KFK 1272/4

2. Analyse des Bestrahlungsversuches DFR-350 mit Hilfe des Rechenprogrammes

SATURN-la (H. Elbel, IMF)

Einleitung

Der Bestrahlungsversuch DFR-350 / 1 / bildet einen wesentlichen Teil innerhalb der Brennstabentwicklung für den schnellen natriumgekühlten Brutreaktor. Er umfaßte die Bestrahlung eines 77-Stab-Bündels mit UO₂-(20 %)PuO₂-Brennstoff und Hüllmaterial aus den Edelstählen 1.4988 und 1.4961. An einem Stab dieses Bündels wurde mit Hilfe des Rechenprogramms SATURN-la / 2, 3 / eine Analyse des Betriebsverhaltens durchgeführt.

Stabspezifikation und Betriebsbedingungen

Die Wahl fiel auf den Stab G21, der sich im Innern des Bündels befand. An dieser Position waren die Schwankungen der Kühlmitteltemperatur über den Umfang des Hüllrohres verhältnismäßig gering. Die für diesen Stab charakteristischen Daten sind, soweit sie in die Rechnungen Eingang gefunden haben, in Tabelle 1 zusammengestellt. Sie entsprechen den Werten, die nach der Fertigung bei Prüfungen an Tabletten und Brennstäben gefunden wurden. Die wichtigsten Daten der Betriebsbedingungen faßt Tabelle 2 zusammen.

Die axiale Verteilung der Stableistung wurde durch den Ansatz

 $X = X_0 \cdot \cos(0,0414 x),$

mit x = vertikaler Abstand von der Ebene des höchsten Neutronenflusses (cm)

x_o =

Maximum der Stableistung an der Stelle des höchsten Neutronenflusses (W/cm)

beschrieben, der eine bestmögliche Anpassung an den in /1/ angegebenen Axialverlauf der Stableistung bringt. Dieser Ansatz diente als Ausgangspunkt für die Berechnung der Hüllrohroberflächentemperatur nach dem ebenfalls in /1/ angegebenen Verfahren. In Abb. 2 ist der axiale Verlauf dieser Temperatur zu Beginn der Bestrahlung (BOL) dargestellt. Der Verlauf der entsprechenden Hüllrohrmittentemperatur liegt um etwa 20 °C darüber (vergl. Tab. 3 und 4). Der Bestrahlungsablauf weist vier Betriebsperioden auf, die durch mehrere Zwischenabschaltungen und Leistungsreduktionen unterbrochen wurden. Bei den Rechnungen wurden diese Unterbrechungen vernachlässigt. In den vier Betriebsperioden wurden jeweils konstante Betriebsbedingungen angenommen. Vom Beginn der Bestrahlung bis zu deren Ende ging die Stableistung um fast 8 % zurück. Diese Leistungsabnahme und die damit verbundene Abnahme der Aufheizspanne des Kühlmittels und der Oberflächentemperatur des Hüllrohres wurde bei der Durchführung der Rechnungen berücksichtigt (vgl. Tab. 3 und ⁴).

Ergebnisse

Aus der Bestrahlungsnachuntersuchung liegen im wesentlichen folgende Ergebnisse über den Zustand des Stabes G21 nach Beendigung der Bestrahlung vor: Vermessung des Stabdurchmessers, Brennstoffstruktur mit Größe des Zentralkanals zu drei radialen und einem axialen Schnitt und Poren- und Rißverteilung zu drei radialen Schnitten. Die Lage dieser radialen Schnitte, mit P3, P9 und P12 bezeichnet, ist in der Abb. 1 angegeben. Der axiale Schnitt befindet sich an dem oberen Ende der Brennstoffsäule oberhalb P12. In dieser Abbildung sind daneben die Querschnitte aufgeführt, bezeichnet mit S1 bis S6, zu denen Rechnungen durchgeführt wurden.

Diese Rechnungen erbrachten als erstes Ergebnis, daß bis auf das heiße untere Ende des Stabes mit keiner ins Gewicht fallenden Belastung des Hüllrohres aufgrund der mechanischen Wechselwirkung des Brennstoffes mit der Hülle oder des sich aufbauenden Spaltgasdruckes zu rechnen ist. Es kann deshalb angenommen werden, daß die gemessene Durchmesservergrößerung über weite Bereiche des Brennstabes durch Schwellen des Hüllmaterials im schnellen Neutronenfluß verursacht worden ist. In Abb. 2 wird diese Durchmesservergrößerung mit der durch SATURN-la unter Verwendung der IMF-INTERATOM-Schwellformel / 4 / berechneten verglichen. Die Abweichung, die in der Lage des Maximums besteht, kann sowohl in einer ungenauen Kenntnis der Hüllrohrtemperaturen als auch in einer noch ungenügenden Kenntnis der Temperaturabhängigkeit der Schwellformel ihre Ursache haben. Wollte man eine Anpassung dieser Formel an das experimentelle Ergebnis vornehmen, so müßte der das Maximum bestimmende Temperaturparameter zu etwa 450 °C gewählt werden. Das Schwellen des Hüllrohres hat zur Folge, daß dem schwellenden Brennstoff ein sich mit zunehmendem Abbrand vergrößerndes Volumen zur Verfügung steht. Das führt zu einer Verminderung bzw. zu einem völligen Wegfallen der mechanischen Wechselwirkung des Brennstoffes mit dem Hüllrohr. In der Nähe des Schwellmaximums der Hülle ist sogar mit einer Rückbildung des Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle zu rechnen. Die mit SATURN-la durchgeführte thermische und Strukturanalyse des Brennstoffes brachte folgende Ergebnisse:

Die zu Beginn der Bestrahlung (BOL) herrschenden Zentraltemperaturen nehmen infolge der Ausbildung des Zentralkanals mit zunehmendem Abbrand ab. Die Brennstoffoberflächentemperaturen erhöhen sich dagegen mit zunehmendem Abbrand infolge der Verschlechterung des Wärmedurchgangs durch die Kontaktzone bzw. den Spalt zwischen Brennstoff und Hülle (s. Tab. 3 und 4). Die dadurch bewirkte Veränderung des Temperaturprofils im Brennstoff hat auf die Ausbildung der nach Beendigung der Bestrahlung (BOL) festgestellten Brennstoffstruktur großen Einfluß.

Die Abb. 3 zeigt einen Vergleich der experimentell und der rechnerisch ermittelten Werte der Zentralkanalradien in Abhängigkeit von der axialen Position im Stab. Aufgrund der im Rechenprogramm verwirklichten Modellvorstellungen sollten die theoretischen Werte größer als die im Experiment gefundenen sein. Weitere Ergebnisse zur Brennstoffstruktur nach Beendigung der Bestrahlung sind in den Abb. 4 und 5 für den Querschnitt Pl2 bzw. S5, in dessen Nähe das Maximum der Stableistung lag, dargestellt. Die experimentellen Werte in der Abb. 4 erfassen neben der Herstellungsporosität auch tangentiale Risse und Spaltgasblasen, während die theoretisch ermittelten Werte nur die Verteilung der Herstellungsporosität wiedergeben. Die beiden Kurvenzüge stimmen deshalb in ihren Absolutwerten nicht überein, wohl aber in ihrer Tendenz, d.h. in der Aussage über die Strukturgrenzen, soweit sie aus dieser Darstellung abgeleitet werden können. In der Abb. 5 wird die berechnete Verteilung der radialen Risse mit der experimentell bestimmten verglichen. Bei dem betrachteten Querschnitt wurde experimentell wie theoretisch nach dem Ende der Bestrahlung kein Spalt festgestellt. Da der berechnete Hüllrohrinnenradius kleiner ist als der tatsächlich gemessene, wie aus Abb. 2 hervorgeht, liegt deshalb der berechnete Kurvenzug unterhalb des experimentell bestimmten. Durch eine Anpassung der in SATURN-la verwendeten Hüllschwellformel an die gemessenen Hüllaufweitungen wird der Unterschied verringert.

Tabelle 1 Charakteristische Daten des DFR-350-Brennstabes G 2 1

Hülle:	
Material	1.4988
Außendurchmesser	6,00 mm
Innendurchmesser	5,24 mm
Brennstoff:	
Material	UO2 mit 20% PuO2
Stöchiometrie	1,99
Durchmesser	5,05 mm
Dichte	89 🐐 th.D.
Spalt zwischen Brennstoff und Hülle	190 µm diametral

Tabelle 2 Betriebsbedingungen des DFR-350-Brennstabes G 21

Kühlmitteleintrittstemperatur	230 °C
Kühlmittelaustrittstemperatur bei Bestrahlungs-	570 °c
beginn	
Oberflächentemperatur der Hülle	
lokales Maximum bei Bestrahlungsbeginn	590 °C
Lineare Stableistung	
lokales Maximum bei Bestrahlungsbeginn	450 W/cm
Totaler Neutronenfluß	
lokales Maximum	2,5·10 ¹⁵ n/cm ² s
Schnelle Neutronendosis	
lokales Maximum	3,8·10 ²² n/cm ²
Abbrand, lokales Maximum	52 600 MWd/tMe
Vollasttage	203 d

Schnitt	e/mm	X/mm	$\overline{\mathbf{x}}/\mathbf{W} \ \mathrm{cm}^{-1}$	Tz/°C	T _B /°C	T _{H1} /°C	T _{Ho} /°c
Sl	50	-170	339	2396	1050	588	554
S 2	90	-130	3 85	2498	1017	594	514
S 3	130	- 90	416	2536	977	517	472
S 4	185	- 35	441	2543	916	456	407
S 5	230	+ 10	447	2526	869	398	347
S 6	270	+ 50	438	2490	841	352	300

Ergebnisse der thermischen Analyse zu Beginn der Bestrahlung Tabelle 3

Tabelle 4 Ergebnisse der thermischen Analyse am Ende der Bestrahlung

Schnitt	ℓ/mm	X/mm	$\overline{X}/W \text{ cm}^{-1}$	T _Z /°C	T _B ∕°C	T _{H1} /°c	T _{Ho} /°C
S 1	50	-170	325	2000	1137	569	536
S 2	.90	-130	367	2006	1056	537	498
S 3	130	- 90	396	2154	1133	502	459
S 4	185	- 35	418	2183	1123	443	397
S 5	230	+ 10	422	2148	1065	389	341
S 6	270	+ 50	414	2115	1011	345	296

Abstand vom unteren Ende des Brennstabes

Abstand von der Ebene maximalen Flusses

X	-
$\overline{\mathbf{x}}, \overline{\mathbf{T}}_{\mathrm{H1}}, \overline{\mathbf{T}}_{\mathrm{H0}}$	22
T _Z , T _B	in

Stableistung, Hüllrohrinnen- und Hüllrohroberflächentemperatur (Mittelwerte in der vierten Betriebsperiode)⁺⁾

Zentraltemperatur und Oberflächentemperatur des Brennstoffes zu Beginn der vierten Betriebsperiode⁺⁾

+)

Ł

in Tab. 3 = erste Betriebsperiode













3. Stabversion SATURN-2

(H. Fiedler, KWU)

Mit dem Rechenprogramm SATURN-la(27) kann das Verhalten von Schnellbrüterbrennstäben unter normalen Betriebsbedingungen untersucht werden; es beschränkt sich dabei jedoch auf die Behandlung einer Brennstabscheibe. Als nächsten Schritt im Rahmen der Weiterentwicklung von SATURN-la wurde eine Stabversion des Programms, genannt SATURN-2, entwickelt. Mit ihr kann das Verhalten eines ganzen Brennstabes unter normalen Betriebsbedingungen untersucht werden.

SATURN-2 basiert auf einer programmtechnisch modifizierten Version von SATURN-la, die mit einem Speicherprogramm für die axialen Brennstabzonen und einem Unterprogramm für Spaltgaserzeugung und -freisetzung gekoppelt wurde. Ein Brennstab, bestehend aus unterem Blanket, Brennstoffsäule und oberem Blanket kann in maximal 20 axiale Zonen unterteilt werden, wobei die Anzahl der Zonen in den einzelnen Bereichen (Brennstoff, Brutstoff) frei gewählt werden kann. Eingabewerte sind die Maximalwerte der Betriebsdaten (Stableistung, Kühlmitteltemperatur, Kühlmitteldruck, Neutronenfluß) sowie Koeffizienten für Funktionen, mit deren Hilfe im Programm die entsprechenden Daten für die einzelnen axialen Zonen errechnet werden. Der Rechenablauf für eine einzelne axiale Zone erfolgt genauso wie in SATURN-la. Ist das Ende des Rechenzeitintervalls erreicht, werden die ermittelten Daten einer Zone in einem axialen Speicherprogramm gespeichert. Dann wird auf die nächst folgende axiale Zone geschaltet, und die im vorigen Zeitintervall für diese Zone abgespeicherten Daten werden als Ausgangswerte verwendet. Dieser Rechenvorgang wiederholt sich so oft, bis die oberste axiale Zone untersucht wurde. Bevor nun wieder ein neues Zeitintervall bestimmt wird und auf die erste (unterste) axiale Zone zurückgeschaltet wird, werden die im abgelaufenen Zeitintervall aus den einzelnen Zonen freigesetzten Spaltgasmengen addiert und daraus der im Stab herrschende Gasdruck errechnet, der wiederum während des folgenden Zeitintervalles für alle Zonen konstant gehalten wird.

Die hier beschriebene Version von SATURN-2 befindet sich derzeit in der Testphase; außerdem ist noch der Einbau zusätzlicher Effekte, wie z.B. O/M-Umverteilung und mechanische Kopplung der axialen Zonen,vorgesehen.

^{1/} D. Geithoff, K. Kummerer; KFK 1377 (1972)

^{2/} H. Kämpf, H. Elbel, F. Depisch; KFK 1575 (1972)

[/] H. Elbel; unveröffentlicht

K. Ehrlich; Beitrag Nr. XXVIII in KFK 1400 (1971)

1121 Oxidischer Brennstoff - Laboruntersuchungen

1121.0 Herstellung im Labormaßstab#

 Versuche zur Herstellung unterstöchiometrischer UO₂/PuO₂-Tabletten mit axialer Bohrung im Rahmen der Versuchsgruppe Mol-8D

(H. Wedemeyer, E. Günther, H. Nagel, M. Wittmann, IMF)

Zur Messung der Zentraltemperatur beim Abbrand eines SNR-spezifischen Brennstoffs (MOL-8D) werden unterstöchiometrische UO₂/PuO₂-Tabletten mit axialer Bohrung benötigt. In der bisherigen Ausführung wurden die entwachsten Presslinge mit einem Spiralbohrer axial ausgebohrt und anschließend gesintert und geschliffen / 1_7. Die chemische Analyse der gesinterten Tabletten ergab zunächst einen Kohlenstoffgehalt von 1200 - 2250 ppm und einen Chlorgehalt von 325 - 350 ppm. Durch Glühen im Vakuum von etwa 10⁻⁵ Torr wurden nach 24 Std./660 °C ein Kohlenstoffgehalt von 200 - 250 ppm und ein Chlorgehalt von 110 ppm gemessen. Erst nach einer weiteren Glühung im Vakuum von etwa 10⁻⁵ Torr bei 800 °C wurden nach 70 Std. Werte von 50 - 100 ppm Kohlenstoff und <20 ppm Chlor gefunden.

Es kann angenommen werden, daß nach dem Schleifen der Tabletten beim Reinigen im Ultraschallbad Tetrachlorkohlenstoff in die beim Bohren entstandenen Risse eingedrungen war und sich bei einem normalen Trockenvorgang von 15 Std./130 °C im evakuierten Trockenschrank nicht mehr entfernen ließ. Es sollte daher an einer Reihe von Versuchstabletten festgestellt werden, ob das Ausbohren der Tabletten nach dem Sintern und Schleifen mit einem Hohlbohrer zu besseren Ergebnissen führt, wobei neben der chemischen Analyse auch die Rißbildung im metallographischen Schliff beobachtet werden sollte.

Zur Versuchsdurchführung wurden UO₂/PuO₂-Tabletten mit 20% PuO₂ hergestellt, die, in drei Chargen aufgeteilt, 1. als entwachste

Preßlinge mit einem Spiralbohrer axial ausgebohrt und danach gesintert und geschliffen, 2. als geschliffene Sinterlinge mit einem diamant-besetzten Hohlbohrer ausgebohrt und 3. zum Vergleich nur gesintert und geschliffen worden sind. Nach dem Bohren sind die Tabletten jeweils im Ultraschallbad unter reinem Wasser und nach dem Schleifen unter reinem Tetrachlorkohlenstoff gesäubert worden. Von den drei Tabletten-Chargen sind Kohlenstoff- und Halogen-Analysen nach dem Entwachsen und nach der Fertigstellung als gebohrte und geschliffene Sinterlinge angefertigt worden. Das Ergebnis der chemischen Analyse ist in der nachfolgenden Tabelle zusammengestellt.

Charge	Preßlinge entwachst	Sinterlinge geschliffen		
CH 1 (Tabletten als Preßlinge ausgebohrt, als Sinter- linge geschliffen)		C = 780 ppm F = <1 ppm Cl = 51 ppm		
CH 2 (Tabletten als Sinter- linge geschliffen, danach ausgebohrt	C = 35 ppm F = 42 ppm Cl = ~60 ppm	C = 150 ppm F = 4 1 ppm C1 = 425 ppm		
CH 3 (Tabletten zum Vergleich nur geschliffen)		C = 26 ppm F = 4 1 ppm C1 = 425 ppm		

Tabelle 5 Werte der chemischen Analyse

Hiernach steigt der Kohlenstoffgehalt von ursprünglich < 30 ppm (Tabelle: CH 3) nach dem Ausbohren (Hohlbohrer) und Reinigen auf 150 ppm (Tabelle: CH 2) an; wird das Ausbohren vor dem Sintern (Spiralbohrer) vorgenommen, so steigt der Kohlenstoffgehalt nach dem Schleifen und Reinigen auf etwa 800 ppm (Tabelle: CH 1) an. Auch der Chlorgehalt ist mit 50 ppm (Tabelle: CH 1) deutlich erhöht. Tetrachlorkohlenstoff dringt demnach tief in die durch das Ausbohren entstandene, zerklüftete Tabletten-Oberfläche ein und läßt sich hieraus nur schwer wieder entfernen; dies ist insbesondere dann der Fall, wenn die Tabletten als Preßlinge mit einem Spiralbohrer ausgebohrt werden (Tabelle: CH 1).

Im metallographischen Schliff (Abb. 6 und 7) werden die Unterschiede beider Bohrungsarten deutlich. In der Abbildung 6 (entsprechend Tabelle: CH 1) treten neben der zerklüfteten Oberfläche der ausgebohrten Wandung charakteristische Risse und Sprünge, die konzentrisch um das Bohrloch verlaufen, hervor. Diese Risse enden in zahlreichen, sehr feinen Verästelungen, in die bei der Reinigung nach dem Schleifen Tetrachlorkohlenstoff eindringen und durch Verdampfen im evakuierten Trockenschrank kaum mehr entfernt werden kann. Dieses erklärt den hohen Kohlenstoff- und Chlorgehalt der fertigen Tabletten. In der Abbildung 7 (entsprechend Tabelle: CH 2) fehlt die charakteristische Rißstruktur, auch scheint die Oberfläche der ausgebohrten Wandung weniger zerklüftet zu sein. Der verbleibende Restgehalt von etwa 150 ppm Kohlenstoff, der nicht auf Verunreinigungen von Tetrachlorkohlenstoff zurückgeführt werden kann und wahrscheinlich durch Abrieb des diamant-besetzten Hohlbohrers entstanden ist. läßt sich durch eine Verlängerung der Trockenzeit auf 24 Std./ 130 °C auf Werte von unter loo ppm Kohlenstoff erniedrigen. Nach Fertigstellung der Tabletten (1. Sinterung) wird durch eine wiederholte Sinterung im Ar/H2=Strom (1. Reduktions= glühung) die Stöchiometrie der Tabletten auf einen Wert von O/Me = 1,967 - 0,003 eingestellt, Im Nachsinterversuch (2. Reduktionsglühung) erniedrigt sich dieser Wert bei sonst gleichen Sinterbedingungen (1600 $^{\circ}C/2$ Std.) auf O/Me = 1,961 [±] 0,002. Bei jeder Nachsinterung steigt der Tabletten-Durchmesser leicht an, was zu einer Erniedrigung der Dichte führt:

1. Nachsinterung (= 1. Red.-Glühung) : $\Delta \emptyset = 12 \stackrel{+}{=} \frac{4}{4} \mu m$ 2. Nachsinterung (= 2. Red.-Glühung) : $\Delta \emptyset = 9 \stackrel{+}{=} \frac{4}{4} \mu m$ 3. Nachsinterung (= 3. Red.-Glühung) : $\Delta \emptyset = 6 \stackrel{+}{=} 3 \mu m$

Bohrung



geätzt

800 x



Bohrung



geätzt

800 x



Die Dichteänderung beträgt dabei etwa =0,8 %TD pro Nachsinterung, gemessen an den nicht ausgebohrten Vergleichstabletten (entsprechend Tabelle: CH 3) mit einer ursprünglichen Sinterdichte von 91 %TD.

Ausgehend von diesen Ergebnissen ist mit der Herstellung des Tabletten-Brennstoffs für die Versuchsgruppe MOL-8D begonnen worden.

Literatur

[1] Th.Dippel, et al.: KFK-1272/2 (1972) 112-9

2. Entwicklung einer Vorrichtung zur Herstellung eines Schutzgases mit

definiertem H₂/H₂O-Verhältnis (H. Pollanz, IMF)

Zur Durchführung von Sinterversuchen an UO_2 -PuO₂-Brennstoff in einer Schutzgasatmosphäre mit definiertem H₂/H₂O-Verhältnis wurde eine Vorrichtung entwickelt, die es gestattet, den Feuchtigkeitsgehalt des Gases bei Taupunkten im negativen Temperaturbereich, vorwiegend um -65 °C (entsprechend 5 Vol.-ppm H₂O) definiert und reproduzierbar einzustellen⁺⁾. Damit ist es möglich, im Oxidbrennstoff nach Belieben auch höhere O:Me-Verhältnisse herzustellen als die, welche mit trockenem Reinst-Schutzgas erzeugt werden können. Erreicht man z.B. beim Sintern von UO_2 -30 %-PuO₂ mit trockenem Ar-5 %-H₂-Schutzgas (reinst) ein O:Me-Verhältnis von 1,93, so muß zur Einstellung von O:Me = 1,97 das Schutzgas mit einer vorgegebenen Feuchtigkeitsmenge beladen werden.

Abb. & zeigt das Schaltschema der Vorrichtung. Das trockene Schutzgas (Meßgas) gelangt von der Vorratsflasche über die Niederdruckregelung und den Durchflußmesser in die eigentliche Befeuchtungszelle, in der es eine Eisschicht bei der eingestellten Taupunktstemperatur überströmt. Das Gas reichert sich dabei mit einer Feuchtigkeitsmenge an, die dem Gleichgewicht am Taupunkt entspricht. Der Feuchtigkeitsanteil wird nach Verlassen der Befeuchtungszelle über eine Analysenzelle gemessen. Als Hilfseinrichtungen werden im Betrieb ein zum Aufbringen der Eisschicht im Eypaß geschalteten Gaswäscher, ein Isolationsgefäß und ein Behälter für das Kühlmittel (flüssiger Stickstoff) sowie ein Vorratsgefäß mit elektronisch gestreuerter Nachfüllvorrichtung sowie einige Thermoelement-Meßfühler mit einem Mehrfach-Schreiber benötigt.

Die Taupunktstemperatur wird über das Niveau des flüssigen Stickstoffs und die Höhenverstellung der Befeuchtungszelle im axialen Temperaturgefälle eingestellt. Weil die zu bewältigenden Wärmemengen äußerst gering sind, beträgt der Verbrauch an flüssigem Stickstoff 10 bis 15 Liter in 12 Stunden. Tab. 6 gibt die Betriebsdaten der labormäßigen Ausführung an.

+) Patent angemeldet



Tabelle 6 Betriebsdaten der Befeuchtungszelle

Arbeitsbereich:	-35 °C bis -65 °C (Taupunkttemperatur) 200 vpm bis 5 vpm H ₂ 0 im Meßgas
Gasdurchsatz:	10 Liter/h bis 100 Liter/h bezogen auf den Normalzustand
Gaszusammensetzung:	Helium-5 %-Wassers toff (auch mit He-(reinst), Ar-(reinst) und Ar/5 %- H ₂ erprobt)
Dauer der Beladung:	ca. 1 h bei 50 Liter/h Durchfluß
Einstelldauer:	ca. 1 h (im stationären Zustand)
Schwankungsbreite:	± 5 % des Feuchtigkeitswertes
Standzeit:	min. 12 h (beladungs- und durchflußabhängig)

Die tatsächlichen H₂O-Gehalte sind in Abhängigkeit von der Taupunktstemperatur in Abb. 9 dargestellt (2. Kurve von oben). Sie gelten für die bei 100 N1/h Gasdurchfluß geeichte H_O-Analysenzelle. Vergleicht man diese Kurve mit der Taupunktskurve (1. Kurve von oben), so erkennt man einen Parallelverlauf beider Kurven, der durch einen systematischen Fehler in der Messung der Taupunktstemperatur erklärt werden kann. Wegen der aus konstruktiven Gründen notwendigen Anbringung des Thermoelementes an der Außenwand der Meßzelle (Kühlfalle) anstelle in derem Innern wurde hier ein abweichender Temperaturwert gemessen. Die bei 75, 50 und 20 Nl/h Gasdurchfluß durch die Analysenzelle ermittelten "scheinbaren Feuchtigkeitswerte" (3., 4. und 5. Kurve von oben) sind nur aufgrund der Durchflußabhängigkeit des angezeigten Feuchtigkeitswertes an der Analysenzelle parallel verschoben. Die Zahl der Meßpunkte beweist, daß die Feuchtigkeit des reduzierenden Schutzgases - und damit auch sein H_2/H_2 O-Verhältnis im interessierenden Taupunktsbereich mit dieser Vorrichtung reproduzierbar eingestellt werden kann.

Bei Sinterversuchen am Hochtemperatur-Dilatometer wurden mit dieser Apparatur umfangreiche Erfahrungen gesammelt. Die Vorrichtung wird bei der Herstellung des Tablettenbrennstoffes für die Versuchsgruppe Mol-16 eingesetzt.



1121.1 Technologische Eigenschaften von Mischoxid

Entwicklung von verbesserten Methoden zur Produktionskontrolle

1. α-Autoradiografie (E. Kaiser, D. Vollath, IMF)¹⁾

Das Problem bei der a-Autoradiografie ist, eine originalgetreue Wiedergabe der Plutoniumverteilung einer Probe auf einem Film zu erhalten. Darüber hinaus sollte das Verfahren möglichst einfach in der Anwendung sein. Dies bedeutet weitgehende Vermeidung von Dunkelkammerschritten, kurze Belichtungszeiten (genauer Bestrahlungszeiten) sowie Freiheit von persönlichen Parametern bei der Verarbeitung. Diese Forderungen sind nur schwer in einem Verfahren zu vereinigen. Einen guten Kompromiß stellt jedoch das im folgenden beschriebene Verfahren dar:

Die Autoradiografie wird mit einem KODAK-Spezialfilm 106-01-A gemacht. Dieser Film wird bei 55 °C zwei Minuten durch Kochen in Natronlauge entwickelt. Es hat sich gezeigt, daß es günstiger ist, die Entwicklungszeit auf 2 Minuten zu begrenzen und nicht die von Kodak angegebenen 3.5 Minuten zu entwickeln. Dies hat zwar eine Verlängerung der Belichtungszeit von 25 sec auf 60 sec zur Følge, bringt aber eine wesentlich bessere Abgrenzung der einzelnen Plutoniumteilchen gegeneinander. Erklärt wird diese bessere Auflösung durch eine schwächere Entwicklung der g-Teilchenspuren, bei denen die a-Teilchen schräg auf den Film auftrafen. Die Abb. 10 zeigt eine 16-fache Vergrößerung einer solchen g-Autoradiografie auf extrahartes Hochglanzpapier. In Abb. 11 wurde die gleiche α -Autoradiografie zuerst auf den Film AGFA-Contour kopiert und dann auf hartes Hochglanzpapier vergrößert. Die Abb.12 zeigt schließlich noch einmal das gleiche Bild, bei dem jedoch ein Zwischennegativ auf dem AGFA-Spezialfilm O81P gemacht wurde. Betrachtet man diese drei Bilder, so erkennt man, daß eine Direktvergrößerung selbst auf extrahartem Fotopapier noch keine befriedigenden Ergebnisse bringt, da der Kontrast zu schwach ist. Besser sind die Vergrößerungen, die über ein Zwischennegativ hergestellt wurden. Hier hat der Film AGFA-Contour jedoch den Nachteil, daß er keine hinreichend steile Gradation hat. Das ist bei der Herstellung des Zwischennegativs von Nachteil, da hierdurch persönliche Einflußfaktoren ins Spiel kommen können. Man erkennt dies sehr gut beim Vergleich mit der Abb. 12, die einen wesentlich größeren Detailreichtum besitzt.

1) Erster Bericht

Die Leistungsfähigkeit des KODAK-Spezialfilms 106-01-A bei verkürzter Entwicklungszeit sei noch einmal an den AbbJ3 und 14 gezeigt. Dabei handelt es sich um 280-fache Vergrößerungen der α -Autoradiografien von einer normal hergestellten Probe (AbbJ3) und einer Probe, die bei 1600 ^OC drei Tage einer Kriechverformung unterworfen war (AbbJ4). Man erkennt deutlich, daß während der Kriechverformung der Anteil des Mischkristalles in der Probe angestiegen ist.

Der Vorteil dieses KODAK- Filmmaterials für α -Autoradiografien ist klar, wenn man nur die Belichtungszeiten von 1,5 Stunden des üblichen Filmes bei Verwendung einer Sn-Folie betrachtet.



<u>Abb. 10</u> α-Autoradiografie einer Sinterprobe auf KODAK 106-01-A direkt vergrößert auf extrahartem Hochglanzpapier (16 x) (plutoniumreiche Bezirke weiß)





<u>Abb. 11</u>

a-Autoradiografie einer Sinterprobe auf KODAK 106-01-A über 2wischennegativ auf AGFA-Contour (16x) (plutoniumreiche Bezirke schwarz)



Abb. 12

α-Autoradiografie einer Sinterprobe auf KODAK 106-01-A über Zwischennegativ auf AGFA 081P (16x) (plutoniumreiche Bezirke schwarz)


<u>Abb.13</u> α-Autoradiografie einer Sinterprobe auf KODAK 106-01-A (280x) (plutoniumreiche Bezirke schwarz)



Abb.14 α-Autoradiografie einer Sinterprobe nach Kriechverformung auf KODAK 106-01-A (280x) (plutoniumreiche Bezirke schwarz)

2. Entwicklung eines zerstörungsfreien Meßverfahrens zur Bestimmung des Sauerstoff/Metall-(O/Me)-Verhältnisses (A. Orians, D. Vollath, IMF)!)

Verschärfte Spezifikationen bezüglich des O/Me-Verhältnisses für Schnellbrüter-Brennstoff sowie neue Bestrahlungsversuche, bei denen das O/Me-Verhältnis als Parameter eingeht, machen es notwendig, das O/Me-Verhältnis an möglichst vielen Proben schnell und genau zu bestimmen. Diese Forderungen können von dem üblichen gravimetrischen Meßverfahren nicht erfüllt werden. Es wird daher ein neues Meßverfahren entwickelt, das auf der elektronischen Messung chemischer Potentialdifferenzen beruht. Bei Vorliegen eines chemischen Potentialunterschiedes ΔG zwischen zwei Oxiden kann man mit diesen beiden Oxiden eine galvanische Kette aufbauen, deren Spannung E

$$\mathbf{E} = (\mathbf{4} \mathbf{F})^{-1} \mathbf{\Delta} \mathbf{G}$$

ist. In dieser Formel ist F die Faraday-Konstante. Bei der experimentellen Realisierung verwendet man zwischen diesen Oxiden einen Festelektrolyten. Die tatsächliche Anordnung zeigt die Abb.15. Zur Messung der Spannung muß ein Verstärker mit extrem hohem Eingangswiderstand verwendet werden, um einen möglichst geringen Stromfluß im Meßsystem zu haben. Fließt im System über den Elektrolyten Strom, so kann das Meßergebnis wegen des hohen Widerstandes des Elektrolyten und infolge des Potentialausgleiches infolge eines Sauerstofftransportes durch den Elektrolyten stark verfälscht werden.

In der beschriebenen Anlage wird der Verstärker der Firma Knick, Berlin, verwendet. Dieser Verstärker hat einen Eingangswiderstand von etwa 10¹³ Ohm. Um Fehlereinstreuungen über Kabel zu vermeiden, wurde der Verstärker direkt an die Meßapparatur angeflanscht.

Mit dem in Abb. 15 gezeigten Meßsystem konnten bei einer Temperatur von 900 ^oC die Literaturwerte der freien Bildungsenthalpien von NiO, VO und TiO reproduziert werden. Als Referenzoxid wurde FeO gewählt. Der Arbeitsbereich der Meßzelle erstreckt sich daher mindestens von UO_{2,01} bis zum Pu₂₀. Eine weitere ernste Fehlerquelle für diese Messungen sind Thermospannungen, die infolge von Temperaturgradienten im Meßsystem auftreten. Das Meßsystem wurde in eine Umgebung gebracht, die thermisch so gut ausgeglichen ist, daß im Gleichgewichtszustand die Temperaturdifferenzen kleiner als 0,2 ^oC sind. Selbst bei extremen Temperaturschwankungen

1) Letzter Bericht in KFK 1272/4

treten keine größeren Temperaturdifferenzen als \pm 0,5 °C auf. Die Abb. 16 zeigt den Verlauf der Temperaturdifferenz im Meßsystem bei viermaligem Durchfahren des Temperaturbereiches von 924 bis 934 °C im 2,5 Minuten-Zyklus. Das entspricht einer Temperaturänderungsgeschwindigkeit von etwa 4 °/min. Der "eckige" Kurvenverlauf in Abb.16 kommt durch das begrenzte Auflösungsvermögen von 0,1 ° der digitalen Meßdatenerfassung zustande.



<u>Abb. 15</u> Meßsystem zur elektronischen Messung des Sauerstoffpotentials von (U,Pu)0₂ zur Bestimmung des O/Me-Verhältnisses



1121.2 Untersuchung der thermodynamischen und chemischen Eigenschaften *

1. <u>Kinetik des Hüllangriffs durch teil- und vollsimulierte Abbrand-</u> systeme (P.Hofmann, O.Götzmann, IMF)

Die in den früheren Vierteljahresberichten (KFK 1272/4 und 1273/1) beschriebenen chemischen Wechselwirkungen von simulierten Abbrandsystemen mit dem austenitischen Stahl 1.4988 wurden kinetisch ausgewertet.

Der simulierte Abbrand betrug 10 und 20 At.-%, das O/M-Verhältnis des Brennstoffs 2.01 und 2.08. Die Versuchstemperaturen variierten zwischen 400 und 1000° C, die Glühzeiten zwischen 50 und 2000 h. Bei allen Proben einer Versuchsserie wurde die Brennstoff- und Spaltproduktkonzentration pro Hüllmaterialoberfläche konstant gehalten. Bei den teilsimulierten Abbrandsystemen wurden dem Brennstoff nur die reaktiven Spaltprodukte Cs, J, Te und Se zugefügt. Die vollsimulierten Abbrandsysteme enthielten nahezu alle während der Kernspaltung entstehenden Spaltprodukte. Bei diesen Untersuchungen sollte herausgefunden werden – neben der Geschwindigkeit des Hüllangriffs -, ob es eine Grenztemperatur und -zeit gibt, oberhalb deren der Reaktionsumfang allein durch das Spaltproduktangebot bestimmt wird. Ausserdem sollte der Einfluss des Hüllmaterialdurchmessers (6 und 8 mm Ø) auf den Reaktionsumfang untersucht werden.

Teilsimulierte Abbrandsysteme:

Die Ergebnisse der kinetischen Untersuchungen zeigen eine starke Abhängigkeit des Exponenten n des Zeitgesetzes $x = K \cdot t^n$ (x ist die Reaktionstiefe) von der Temperatur und Glühzeit. Bei Temperaturen unterhalb 700°C und Glühzeiten kleiner 1000 h gilt für den Hüllangriff ein parabolisches Zeitgesetz (n = 0,5). Zwischen 700 und 800°C ändert sich der Exponent n stark zu kleineren Werten und beträgt zwischen 800 und 1000°C etwa 0,2. Bei Glühzeiten oberhalb 1000 h ist auch bei Temperaturen unterhalb 700°C eine Abweichung vom \sqrt{t} – Gesetz festzustellen. Ab 900°C und Glühzeiten grösser 1000 h strebt n gegen Null, d.h. eine Erhöhung der Temperatur bzw. der Glühzeit hat keine Vergrösserung des Reaktionsumfangs zur Folge (z.T. war sogar eine Abnahme festzustellen; Abb. 19. Unter diesen Versuchsbedingungen hat das System den Gleichgewichtszustand erreicht, und das Reaktionsprodukt ist stabil, d.h. es finden keine Phasenänderungen statt. Für die chemischen Wechselwirkungen des teilsimulierten Abbrandsystems mit dem Stahl 1.4988 erhält man die in Abb.ds angegebenen Eindringkoeffizienten (x^2/t) für eine Glühzeit von t = 1000 h. Der Reaktionsumfang ist sowohl vom O/M-Verhältnis des Brennstoffs (Abb.ds) als auch vom Hüllmaterial-Innendurchmesser abhängig. Mit zunehmendem Durchmesser steigt das Angebot an reaktiven Elementen je Einheit der Hülloberfläche linear an und damit auch der Reaktionsumfang, da dieser von der Menge der aggresiven Spaltprodukte abhängt (Diffusionsmodell der momentanen Quelle).

Vollsimulierte Abbrandsysteme:

Der Reaktionsumfang des vollsimulierten oxidischen Abbrandsystems mit dem Stahl 1.4988 ist geringer als bei den teilsimulierten Abbrandsystemen (vgl. Abb.18 und 19). Die Spaltprodukt-Eindringtiefe hängt vom simulierten Abbrand ab. Sie nimmt mit steigender Spaltproduktkonzentration zu (Abb.19). Für die Ermittlung des Eindringkoeffizienten (x^2/t) wurde für den Temperaturbereich 500 - 700°C ein parabolisches Zeitgesetz zugrunde gelegt. Man erhält die in Abb.19 wiedergegebenen Ergebnisse.

Dass bei den vollsimulierten Abbrandsystemen bei gleichem angegebenen O/M-Verhältnis und Hülldurchmesser der Reaktionsumfang geringer ist als bei den teilsimulierten Systemen, hat seinen Grund offenbar in den unterschiedlichen Sauerstoffpotentialen der Systeme. Da die vollsimulierten Systeme vor dem Einsatz bei 1500 - 1700[°]C homogenisiert wurden, hat sich das Sauerstoffpotential erniedrigt, d.h. es entspricht nicht mehr einem O/M-Verhältnis von 2.08. Die Spaltproduktzusammensetzung sollte nicht die Ursache für das unterschiedliche Reaktionsverhalten sein, da für den Hüllangriff nur die Spaltprodukte Cs, Te, J und Se verantwortlich sind. Die Konzentrationen dieser Elemente waren aber in beiden Systemen gleich.

Die Aktivierungsenergien sind - bei vergleichbaren Versuchsbedingungen für die teil- und vollsimulierten Abbrandsysteme etwa gleich gross. Das deutet darauf hin, dass der Hüllangriff in beiden Systemen durch ähnliche chemische Wechselwirkungen verursacht wird.







Abb.18: Reaktionen des teilsimulierten Abbrandsystems mit dem austenitischen Stahl 1.4988 in Abhängigkeit vom O/M-Verhältnis des Brennstoffs



Abb.19: Reaktionen des vollsimulierten Abbrandsystems mit dem austenitischen Stahl 1.4988 in Abhängigkeit des Abbrandes

112-33

112-34

2. Herstellung von korrodierten Hüllrohrproben (P.Hofmann, O.Götzmann, IMF)

Bestrahlungsnachuntersuchungen an Brennelementen und out-of-pile-Untersuchungen mit simulierten Spaltprodukten haben ergeben, dass umfangreiche chemische Wechselwirkungen zwischen dem abgebrannten Oxidbrennstoff und dem Hüllmaterial stattfinden können. Als besonders gefährlich haben sich bei diesen Untersuchungen die Spaltprodukte Cs, J und Te in Gegenwart von überstöchiometrischem Brennstoff erwiesen. Die Reaktionen verlaufen bevorzugt entlang den Korngrenzen der Hülle und zerstören den Hüllmaterialverband bis in grosse Tiefen.

Interessant ist nun, zu erfahren, wie stark die Festigkeitseigenschaften des Hüllmaterials durch die Korngrenzenreaktionen der Spaltprodukte beeinträchtigt werden. Es sollen deshalb an vorkorrodierten Hüllrohrproben mit unterschiedlich starken Reaktionszonen (70, 140, 210 µm) Zeitstandversuche bei verschiedenen Innendrucken durchgeführt werden (Zeitstandtemperatur: 700[°]C).

Als Hüllmaterialien kommen die austenitischen Stähle 1.4401 1.4970, 1.4981 und 1.4988 im Anlieferungszustand zum Einsatz. Die Proben sind ca. 50 mm lange Rohre der Abmessungen 6,0x0,38 mm. Als Korrosionsmedium dient Cs_2C0_3 .

Das Cs_2CO_3 (0,25 g/1 cm²) wurde in einseitig verschweisste Hüllrohre aus den untersuchten Stählen eingefüllt. Die offene Seite der Proben wurde nach dem Einbringen des Cs_2CO_3 gasdicht verschlossen. Die Probenpräparation wurde in Handschuhboxen unter hochreinem Schutzgas durchgeführt. Vor dem Glühen wurden die Proben unter Vakuum in Quarzampullen eingeschweisst.

Die Reaktionszonen waren nach dem Glühen relativ gleichmässig entlang der Proben und am Umfang. Bei sehr grossen Reaktionszonen entstanden im Hüllmaterial tangentiale Risse, z.T. lösten sich auch ganze Ringsegmente vom Hüllrohr (Abb.20-22). Die Ursache für dieses Verhalten ist nicht bekannt. Evtl. sind dafür entstehende gasförmige Reaktionsprodukte verantwortlich zu machen. Die tangentiale Rissbildung ist nicht Cs_2CO_3 oder Hüllmaterial - spezifisch. Auch mit anderen Cs-Verbindungen

1) Entspricht dem amerikanischen Stahl AISI 316

(CsOH, Cs $_2$ O) bzw. anderen Hüllmaterialien entstanden ähnliche Reaktions-zonen.

Um die gewünschten Reaktionszonen von 70, 140 und 210 µm Tiefe zu erhalten, wurde in Vorversuchen die optimale Reaktionstemperatur und -zeit für die verschiedenen Stähle ermittelt. Die maximale Auslagerungstemperatur sollte kleiner als die vorgesehene Zeitstandtemperatur von 700°C sein. Bei diesen Vorversuchen verhielten sich die Stähle 1.4401, 1.4981 und 1.4988 nahezu gleich, während der Stahl 1.4970 wesentlich schwächer durch das Cs_2CO_3 angegriffen wurde (Abb 26). Um beim Stahl 1.4970 die gleichen Reaktionszonen zu erhalten wie bei den anderen Stählen, waren deshalb erheblich längere Glühzeiten bzw. höhere Temperaturen erforderlich. Für dieses Verhalten ist sicherlich auch die deutlich kleinere Korngrösse des Stahles 1.4970 verantwortlich (Abb. 23-25). Es muss aber noch andere, unbekannte Faktoren geben, die das unterschiedliche Reaktionsverhalten der Stähle gegenüber dem Cs₂CO₃ beeinflussen. Der Stahl 1.4988 hat eine kleinere Korngrösse als der Stahl 1.4401, trotzdem ist die Reaktionszone beim 1.4988 deutlich grösser als beim 1.4401 (vgl. Abb.23 und 24). Welchen Einfluss die Ausscheidungen in den Korngrenzen haben, konnte noch nicht geklärt werden.

Die Ergebnisse der kinetischen Auswertung dieser Vorversuche ist für 650° C in Abb.₂₆ wiedergegeben. In bestimmten Temperaturbereichen (vom Stahltyp abhängig) verläuft der Hüllangriff durch das Cs₂CO₃ nach einem parabolischen Zeitgesetz, d.h. Diffusionsvorgänge sind für den Reaktionsablauf geschwindigkeitsbestimmend. Man kann daher die maximalen Cs-Eindringtiefen in einer Arrhenius-Auftragung darstellen und erhält für den Stahl 1.4988 folgende Beziehung für den Eindringkoeffizienten (x²/t):

$$x^{2}/t = 1,6 \cdot 10^{-6} \cdot \exp(-\frac{19660 \text{ cal}}{\text{R} \cdot \text{T}}); 650-800^{\circ}\text{C}.$$

Bei allen Stählen war festzustellen, dass der Hüllangriff durch das Cs₂CO₃ stark vom Vorbehandlungszustand abhängt. Der Reaktionsumfang ist offenbar von folgenden Parametern abhängig: Auslagerungstemperatur, Kaltverformung, Korngrösse, Korngrenzenbreite, Ausscheidungen in den Korngrenzen, Schmelzcharge. Die Übertragung der kinetischen Ergebnisse auf einen Stahl des gleichen Typs, aber anderer thermischer und mechanischer Vorbehandlung, ist daher nur bedingt möglich. Mit einer korrodierten Hüllrohrprobe (1.4970) wurde schon ein Zeitstandversuch durchgeführt (Innendruck 470 atü; Tangentialspannung $\sigma_t = 32,4 \text{ kp/mm}^2$; Standzeit $t_B = 4 \text{ h}$). Die Reaktionszone betrug ca. 100 µm. Die ermittelte Standzeit entsprach der eines Hüllrohres, dessen Wandstärke um ca. 80 µm reduziert ist. Eine Vergrösserung der Reaktionszone während eines Zeitstandversuches konnte nicht festgestellt werden.





Chemische Wechselwirkungen von Cs₂CO₃ mit dem Stahl 1.44ol (Type 316 SS); Bildung von tangentialen Rissen im Hüllrohr.



А**bb.22** 1.4988+Сs₂СО₃

100 µm ┝━━━ 700⁰C/500 h



Abb. 25 1.4970+Cs₂CO₃ 20 µm ⊢___ 650⁰C/234 h



Abb.26: Reaktionsumfang der chemischen Wechselwirkungen von Cs₂CO₃ mit verschiedenen äustenitischen Stählen bei 650⁰C

(Zur Vorkorrosion von Hüllrohrproben für spätere Zeitstandversuche unter Innendruck)

1121.4 Mikrosondenuntersuchungen

Nachuntersuchungen an (U,Pu)02-Brennstäben der Versuchsgruppe 4a der FR2-Kapselbestrahlungen

(H. Kleykamp, H.-D. Gottschalg, G. Halm, H. Späte, IMF)

Die Versuchsgruppe 4a der FR2-Kapselbestrahlungen mit dem Brennstoff U_{0,85}^{Pu}0,15^O1,98 und dem Hüllmaterial-Stahl 1.4988 stellte die erste Erprobung des Grundkonzepts für den SNR-Brennstab im thermischen Neutronenfluß dar. Die Nachuntersuchungen der KVE 33 bis 37 dieser Versuchsgruppe, die bereits früher durchgeführt wurden, können dabei als die ersten systematischen Untersuchungen mit der abgeschirmten Cameca-Mikrosonde an einem Bestrahlungsexperiment mit Pu-haltigem Brennstoff angesehen werden⁺⁾. Diese Nachbestrahlungsuntersuchungen wurden an den KVE 38 bis 41 fortgesetzt, die sich durch einen höheren Abbrand bis zu 85 MWd/kg Metall auszeichnen. Die maximale Hüllaußentemperatur von 512 ^OC und maximale Stableistung von 644 W/cm sind mit den Werten früher untersuchter KVE vergleichbar. Die Schwerpunkte dieser Untersuchungen betreffen die außergewöhnliche U-Pu-Entmischung des Brennstoffs, die Bildung der spaltprodukthaltigen Phasen im Spalt und den Hüllangriff.

Im Gegensatz zu den bisherigen Ergebnissen der FR2-, BR2- und DFR-Bestrahlungen mit einer gewöhnlichen Pu-Anreicherung des Brennstoffs am Zentralkanal werden in diesen KVE starke Brennstoffumlagerungen beobachtet, die durch den ungleichmäßigen Stableistungs- und Temperaturverlauf sowie durch unkontrollierte Leistungsspitzen erklärt werden können⁺⁺⁾. Durch eine kurzzeitige lokale Überhitzung ist der zentrale Bereich einiger Prüflinge aufgeschmolzen. Die Schmelze ist den Zentralkanal heruntergelaufen und hat dessen engeren mittleren Teil in den Prüflingen mit einem UO₂-reichen Mischkristall gefüllt (Probe 2 des Prüflings 4A/18 des KVE 41, Abb. 27); der PuO₂reiche Mischkristall ist später erstartt und hat sich in den oberen und unteren Bereichen des Prüflings abgelagert (Probe 4, Abb. 28). Die Entmischung

+) H. Huber, H. Kleykamp, KFK 1271/2 (1971) 112-11; KFK 1271/4 (1971) 112-16 ++) W. Dienst, KFK 1272/2 (1972) 112-63

kann auch durch Sublimation und Kondensation in einem sehr großen axialen Temperaturgradienten stattgefunden haben. Der Vergleich der a-Autoradiographie mit dem Pu-Profil der Probe 2, das mit der Mikrosonde gewonnen wurde, führt zu einer befriedigenden Übereinstimmung. Darüber hinaus ergibt sich aus der Mikrosondenanalyse eine mittlere Pu-Konzentration von 11 bis 13 % PuO, und ein Maximum von 15 % PuO, am Zentralkanal der ursprünglichen Brennstoffzone, während der später mit einer UO2-reichen Schmelze gefüllte Zentralkanal und Spalt zwischen Brennstoff und Hülle etwa 2 bis 3 % PuO, enthalten, eine Konzentration, die in der a-Autoradiographie nicht nachgewiesen wurde. Während der Anstieg der Pu-Konzentration in der a-Autoradiographie unstetig zu sein scheint, zeigen die Ergebnisse der Mikrosonde eine kontinuierliche Pu-Zunahme. Das U- und Pu-Profil sind komplementär zueinander. Die Summe beträgt etwa 97 % (U,Pu)0,. Der Rest besteht aus Oxiden des Zirkons und der Metalle der Seltenen Erden, die im Mischoxid gelöst sind. Der untere Teil desselben Prüflings besitzt einen breiten Zentralkanal mit einem Durchmesser von 0,38 des Brennstoffdurchmessers. Während die a-Autoradiographie eine konstante Pu-Konzentration in der Säulenkristallzone und ein Minimum am Übergang zur Kornwachstumszone vortäuscht, ergibt sich aus der Mikrosondenanalyse ein monotoner Anstieg der Pu-Konzentration von 9 auf 48 % PuO, in Richtung des Zentrums. An der Brennstoffoberfläche wird in Übereinstimmung mit der a-Autoradiographie ein schwaches Maximum von 14 % PuO, beobachtet.

Am oberen Ende der Prüflinge werden parallel zur Hüllwand mehrere Brennstoffzonen besonders hoher Dichte beobachtet, die nach der α-Autoradiographie Pu-frei zu sein scheinen, nach der Mikrosondenanalyse aber 3 bis 4 % PuO₂ enthalten (Probe 1 des Prüflings 4A/20 des KVE 38, Abb.29). Auch hier sind die U-reichen Zonen durch Entmischung beim Erstarrungsvorgang oder durch Sublimation von gasförmigen U-Oxiden in den Bereichen entstanden, in denen Umfangsrisse oder besonders porenreiche Stellen gewesen sein können. Die Pu-Konzentration am Zentralkanal und in dem im Gefügebild dunklen Zonen der Abb.29 abeträgt 12 bis 17 % PuO₂.

Zwischen dem Brennstoff und der Hülle existiert ein bis zu 250 µm breiter Spalt, der brennstofffrei und mit verschiedenen, nahezu schichtförmigen oxidischen Phasen ausgefüllt ist (Abb.29b), die - von der Hülle beginnend - aus Cs-Molybdat und -Manganat, Cs-Ba-Molybdat, Fe-Ni-Cr-Oxid und Hüllmaterial-Pertechnetat bestehen. Technetium liegt in den Prüflingen mit dem höheren Abbrand von 9 % in Hüllnähe in oxydischer Form vor, die in Prüflingen mit einem Abbrand bis zu 6 % nicht beobachtet wurde. Wie früher berechnet wurde⁺, steigt bei hohem Abbrand das Sauerstoffpotential nach vollständiger Oxydation des Molybdäns weiter an, was eine Oxydation des Technetiums zur Folge hat. Ein ausgeprägter Korngrenzenangriff der Hülle wurde nicht beobachtet. Dafür liegen die Hülltemperaturen zu niedrig. Im BR2-Bestrahlungsexperiment Mol 7A wurde gezeigt, daß ein dominierender Korngrenzenangriff erst oberhalb 500°C auftritt. An den Stellen erhöhter Cs-Akkumulation zwischen Brennstoff und Hülle tritt jedoch eine Schwächung des Hüllmaterials um Werte bis zu 100 µm auf. An diesen Stellen können ausgeheilte Tablettenstöße bestanden haben, die einen bevorzugten Cs-Transport zur Hülle ermöglichten.

Hohe und niedrige Pu-Konzentrationen können in einer a-Autoradiographie mit nur einer Belichtungszeit nicht gleichzeitig dargestellt werden. Die Helligkeit des Bildes als Maß für die Pu-Konzentration wird durch die Anwesenheit des a-strahlenden Am-243 überlagert, das durch (n,γ) -Reaktion des Pu-242 mit anschließendem ß-Zerfall zum Am-243 entsteht. Americium konnte aber in den Proben mit 8 % Abbrand mit der Mikrosonde nicht nachgewiesen werden.

+ H. Holleck, H. Kleykamp, KFK 1181 (1970)





Abb. 17 Vergleich zwischen dem Gefüge, der α-Autoradiographie und dem mit der Mikrosonde bestimmten Pu-Profil der Probe KVE 41-4A/18-2; Pu-Konzentration im äußeren Bereich 11 bis 15 % PuO₂, im inneren Bereich 2 bis 3 % PuO₂.



Abb. 28 Vergleich zwischen dem Gefüge, der α-Autoradiographie und dem mit der Mikrosonde bestimmten Pu-Profil der Probe KVE 41-4A/18-4; Pu-Konzentration im äußeren Bereich etwa 9 % PuO₂, die am Zentralkanal bis zu 48 % PuO₂ ansteigt.



Abb. 19a Vergleich zwischen dem Gefüge, der a-Autoradiographie und dem mit der Mikrosonde bestimmten Pu-Profil der Probe KVE 38-4A/2c-1.



200 X

Abb. 29b Schichtförmige, 250 um dicke oxydische Spaltproduktphasen im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle, Detail aus Abb. 29a, KVE 38-4A/20-1.

112-47

Die Berechnung von Temperaturprofilen von Brennstäben erfordert die Kenntnis der Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit ($\lambda = f(T)$) des Brennstoffs. Die im Labor erhaltenen Messwerte werden naturgemäss an Proben gewonnen, die, bedingt durch den Herstellungsprozess, Restporositäten aufweisen. Hinzu kommt, dass der im Reaktor eingesetzte Brennstoff höhere Porositäten (P \sim 0,15) besitzt und diese während der Bestrahlung eine Umverteilung erfahren [1,2], die sich als Funktion des Brennstoffradius darstellen lässt. Bei der Berücksichtigung dieses Phänomens in der Berechnung von radialen Temperaturprofilen kann nun davon ausgegangen werden, dass sich der Porositäts- und Temperatureinfluss auf die Wärmeleitfähigkeit in Form eines multiplikativen Ansatzes beschreiben lässt:

$$\lambda_{p} = f_{1}(P) \cdot f_{2}(T)$$

Für Restsinterporositäten lässt sich die Porositätsabhängigkeit mit hinreichender Genauigkeit angeben [3], ohne dass eine quantitative Gefügeanalyse vorgenommen werden muss. Für sphärische Poren in statistischer Verteilung lautet sie

$$f_1(P) = (1 - P)^{3/2}$$

Mit dieser Gleichung wurden die Messwerte der Wärmeleitfähigkeit von stöchiometrischem UO₂, (U_{0.8}, Pu_{0,2})O₂ und (U_{0.85}, Pu_{0.15})O₂ zunächst auf 100%Dichte korrigiert. Diese Werte wurden dann einer analytischen Funktion angepasst.

<u>vo</u>,

Zugrundegelegt wurden die Mittelwerte des Round Robin Programms [4], wie sie in [5] wiedergegeben sind. Sie gelten für 98% dichtes Material und sind in Tab.⁷ (Spalte 2) aufgeführt. Diese Messwerte können unter folgenden Voraussetzungen physikalisch interpretiert werden [5]. Die mittlere freie Weglänge der Phononen kann einen kleinsten Wert nicht unterschreiten. Der Wiederanstieg der Wärmeleitfähigkeit des Urandioxids ab ca. 2300 K wird durch den Anstieg der spezifischen Wärme verursacht. Hieraus resultieren z w e i verschiedene Funktionen für den analytischen Zusammenhang zwischen Wärmeleitfähigkeit und Temperatur im Bereich 873<T<2973 K. Die Berücksichtigung der radialen Porenverteilung im bestrahlten Brennstab bei der Berechnung des Temperatur-

1) Letzter Bericht in KFK 1272/4

von stöd	chiometrischem UO	2	
	and a start of a start of the s		
T	$\lambda_{gem.}[5]$ $\rho=0,98\rho_{th}$	$\lambda_{korr.}$	$^{\lambda}$ ber. $^{\rho=\rho}$ th
873	0,0405	0,0417	0,0421,
973	0,0375	0,0386	0,0383
1073	0,0350	0,0361	0,03536
1173	0,0325	0,0335	0,03276
1273	0,0300	0,0309	0,0305
1373	0,0282	0,0291	0,02875
1473	0,0264	0,0272	0,0272
1573	0,0250	0,0258	0,02596
1673	0,0240	0,0247	0,02497
1773	0,0234	0,0241	0,02422
1873	0,0227	0,0234	0,0237
1973	0,0220	0,0227	0,02348
2073	0,0222	0,0229	0,02355
2173	0,0226	0,0233	0,0238
2273	0,0234	0,0241	0,02442
2373	0,0247	0,0254	0,0254
2473	0,0265	0,0273	0,02674
2573	0,0286	0,0295	0,02842
2673	0,0304	0,0313	0,0305
2773	0,0325	0,0335	0,03312

Gemessene, korrigierte und berechnete Wärmeleitfähigkeit Tab. 7:

profiles macht die Anpassung der gemessenen Wärmeleitfähigkeitsdaten durch e i n e geschlossene Funktion notwendig. Hierzu wurden sie auf 100% Dichte korrigiert (Spalte 3, Tab.7) und mit der Funktion :

.....

$$\lambda = \frac{1}{3.68_3 + 0.0225_3 T} - 0.0007 + 1.143 \cdot 10^{-4} (\frac{T}{1000})^{-5}$$
(λ) = Wcm⁻¹ K⁻¹
(T) = K angenähert.
Die berechneten Werte sind zum Vergleich in Spalte 4 ebenfalls wieder-
gegeben.

(U,Pu)0,

Zunächst ist zu bemerken, dass das Mischoxid als Mischkristall oder als zweiphasiges Produkt vorliegen kann. Aufgrund bisher vorliegender Daten scheint der Herstellungsprozess keinen Einfluss auf die Wärmeleitfähigkeit zu haben [6]. Weiter konnte nachgewiesen werden, dass die Stöchiometrie einen bedeutenden Einfluss auf die Wärmeleitfähigkeit [5,7] hat. Nicht gesichert ist dagegen der Einfluss des Pu-Gehaltes im für Schnellbrüterbrennstoffe interessierenden Bereich zwischen 15 und 20 Gew.-% PuO2. Während in [6, 9] nur eine geringe Abnahme der Wärmeleitfähigkeit mit dem Pu-Gehalt festgestellt wird, ist in [5] ein deutliches Maximum der Wärmeleitfähigkeit beobachtet worden, das mit steigender Temperatur verschwindet. Für die Wärmeleitfähigkeit von Mischoxid mit 15 und 20 Gew. -% Pu0, wurden daher im folgenden nur diejenigen Messwerte herangezogen, die nach Angabe der Autoren an stöchiometrischem Material mit 15 und 20 Gew.-% PuO2 gemessen wurden.

$(U_{0.8}, Pu_{0.2})_{0}^{0}$

Die vorliegenden Daten [5,7,10] unterscheiden sich z.T. erheblich. In Tab.**8** sind die Messwerte mit den dazugehörigen Dichten aufgeführt. Die auf 100%Dichte korrigierten Werte ergeben den Mittelwert $\overline{\lambda}$, der durch die Funktion

$$\overline{\lambda} = \frac{1}{4.71 + 0.0220_5 \text{ T}} - 0.0006 + 3.22 \times 10^{-4} \left(\frac{\text{T}}{1000}\right)^4$$
(λ) = Wcm⁻¹ K⁻¹
(T) = K

angenähert wurde .

$\frac{(U_{0.85}, Pu_{0.15})0}{0.15-2}$

Hier liegen nur wenige Messungen bis 1673 K [5] vor. Tab. **9** enthält die Messdaten mit der Korrektur auf 100% Dichte. Bildet man das Verhältnis der Wärmeleitfähigkeiten von $(U_{0.85}, Pu_{0.15})_0^2$ und U_2^0 , so erhält man bis zur Temperatur 1673 K einen nicht zu stark variierenden Koeffizienten von 1.13. Eine Extrapolation der Wärmeleitfähigkeit zu höheren Temperaturen analog zum Verfahren bei $(U_{0.8}, Pu_{0.2})_2^0$ [8] ist hier mangels notwendiger anderer Daten, (z.B. spezifische Wärme) z.Zt. noch nicht möglich.

T	λ [5] ρ =0.95 ρ _{th}	$\lambda_{korr.}$ $\rho=1.00\rho_{th}$	λ [6] ρ=0.944 ^ρ th	$\lambda_{korr.}$	λ [7] ρ=0.98 _ρ th	$\lambda_{korr.}$ $\rho=1.00\rho_{th}$	$\overline{\lambda}$	$^{\lambda}$ ber.
773	0.0441	0,0476	0,0465	0,0499	0,0429	0,0442	0,0472	0,0455
1023	0,0349	0,0376	0,0347	0,0379	0,0336	0,0346	0,0358	0,0363
1273	0,0291	0,0314	0,0272	0,0297	0,0275	0,0284	0,0298	0,0307
1523	0,0253	0,0273	0,0261	0,0284	0,0233	0,0240	0,0266	0,0272
1773	0,0231	0,0249	0,0253	0,0276			0,0262 ₅	0,0254
2023	0,0222	0,0240	0,0256	0,0279			0,0259 ₅	0,0251
2273+	0,0223	0,0241	0,0249	0,0272			0,0256 ₅	0,0262
2473	0,0256	0,0276					0,0276	0,0283
2673	0,0283	0,0306					0,0306	0,0315
2873	0,0332	0,0358					0,0358	0,0360

<u>Tab. 3</u>: Gemessene, korrigierte und berechnete Wärmeleitfähigkeiten von stöchiometrischem $({}^{U}_{0.8}, {}^{Pu}_{0.2}){}^{0}_{2}$

+ extrapoliert [5]

112-50

<u>Tab. 9</u> :	Gemessene und korrigierte Wärmeleitfähigkeiten v	von
	stöchiometrischem (U 0.85, Pu 0.15)02	

Т (К)	λ ρ=0.95ρ .	$\lambda_{\text{korr.}}$
	th	th
873	0,0450	0,0485
1073	0,0370	0,0400
1273	0,0310	0,0335
10/3	0,0255	0,0275

Deshalb wird vorgeschlagen, für die Wärmeleitfähigkeit von (U_{0,85},Pu_{0,15})0₂ den Phononenanteil der Wärmeleitfähigkeit von UO₂ mit dem Faktor 1.13 zu versehen und den Hochtemperaturanteil mit dem des UO₂ gleichzusetzen. Dann ergibt sich

$$\lambda = \frac{1.13}{3.68_3 + 0.0225_3 \text{ T}} - 0.007 + 1.143 \times 10^{-4} \left(\frac{\text{T}}{1000}\right)^5$$

In Abb.**30** sind die Funktionen für UO₂ und $(U_{0.8}, Pu_{0.2})_{02}^{0}$ mit den auf 100% korrigierten Messwerten wiedergegeben. Es zeigt sich, dass der Hochtemperaturanteil der Kurven für UO₂ und $(U_{0.8}, Pu_{0.2})$ zusammenläuft, weshalb die vorgeschlagene Funktion für $(U_{0.85}, Pu_{0.15})_{02}^{0}$ nicht zu weit von der Realität entfernt sein sollte.





Mischoxide mit höherem Plutoniumgehalt

Da in letzter Zeit Mischoxide mit höherem Plutoniumgehalt in stärkerem Masse in Betracht gezogen werden, sind auch die bekannten Daten über diese Oxide zusammengestellt und mit dem angegebenen Porositätsansatz auf 100% Dichte korrigiert worden.

112-53

$$(U_{-0.75}, Pu_{-0.25})0_{-2}$$

Die gemessenen Werte wurden in [10]mit der Funktion

$$\lambda = \frac{1}{3.13 + 0.0260 \cdot T} \text{ für } \rho = 0.97 \rho_{\text{th}}$$

im Temperaturbereich 473<T<1473 K wiedergegeben. Die Porositätskorrektur liefert

$$\lambda = \frac{1}{2.99 + 0.0248 \cdot T} \text{ für } \rho = 1.00 \rho_{\text{th}} \text{ mit } [\lambda] = \text{Wcm}^{-1} \text{K}^{-1}.$$

 $(\underline{U}_{0.7}, \underline{Pu}_{0.3})\underline{0}_2$

In [10] wird die Funktion für den Temperaturbereich 473
-T<1473 K und die Dichte $\rho = 0,97 \rho_{th}$ angegeben. Sie lautet:

$$\lambda = \frac{1}{5.3 + 0.0253 \cdot T}$$

Gemessen wurde an Material mit einer Dichte von $\rho = 0,92 \rho_{th}$. Die Messwerte wurden mit der Gleichung:

$$\lambda_{A} = \lambda_{B} \cdot (1 + 0.5 \frac{\rho_{A} - \rho_{B}}{\rho_{B}}) / (1 - \frac{\rho_{A} - \rho_{B}}{\rho_{B}})$$

auf $\rho = 0.97 \rho_{th}$ korrigiert.

Daher wurde zunächst mit der in [10] angegebenen Gleichung (s.o.) die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit für das Material im Ausgangszustand zurückgerechnet und dann mit dem Ansatz:

$$\lambda_{\rm p} = \lambda_{\rm o} \left(1 - P\right)^{3/2}$$

auf 100% dichtes Material korrigiert.

Es ergibt sich

 $\lambda = \frac{1}{5.08 + 0.0243 \cdot T} \rho = 1.00 \rho_{th}$ 473<T<1473 K

 $(\underline{U}_{0.6}, \underline{Pu}_{0.4})\underline{0}_2$

Tab. 10 gibt die gemessenen [5] und die korrigierten Daten für die Wärmeleitfähigkeit an diesem Material wieder.

Tab. 10:	Gemessene und korrigierte Wärmeleitfähigkeiten
	von stöchiometrischem (U _{0.6} , Pu _{0.4})0 ₂

	λ	λ
T	$\rho = 0.95 \rho_{th}$	$\rho = 1.00 \rho_{th}$
873	0.0440	0.0475
1073	0,0360	0.0389
1273	0.0295	0.0319
1673	0.0245	0.0265

 $\begin{bmatrix} T \end{bmatrix} = K \\ \begin{bmatrix} \lambda \end{bmatrix} = W \text{ cm}^{-1} \text{K}^{-1}$

Literatur

- [1] W.Dienst, G.Ondracek in: KFK 1727 (1973)
- [2] H.Hoffmann in: KFK 1272/3(1972)
- [3] G.Ondracek, B.Schulz in: J.Nucl.Mat. 46 (1973) 253 (Veröff. im Berichtszeitr.)

1997 - 1997 - X

- [4] J.B.Conway, A.D.Feith: GEMP-715 (1969)
- [5] H.E. Schmidt: KFK 1400 (1971)
- [6] L.A.Goldsmith, J.A.M.Douglas: J.Nucl.Mat.43(1972) 225
- [7] J.C.Craehuest, J.C.Weilbacher: J.Nucl.Mat. 26 (1968) 132
- [8] H.E.Schmidt: High Temp. High-Press. 3 (1971) 342
- [9] M.Serizawa, H.Kaneko, Y.Yokouchi, M.Koizumi, J.Nucl.Mat.34 (1970) 224
- [10] R.L.Gibby: J.Nucl.Mat. 38 (1971) 163

1122 Bestrahlungsexperimente - Oxid (Parametertests)

1122.1 Einzelparametertests

 Experimentelle Ergebnisse zur mechanischen Wechselwirkung zwischen Oxidbrennstoff und Hülle^{*}(D.Brucklacher, W.Dienst, IMF)

Die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle ist als ein lebensdauerbegrenzendes Problem für Schnellbrüter-Brennstäbe anzusehen. Daher wurden Untersuchungen über die Möglichkeit von Hülldehnungen, die zur Rissbildung führen, für stationäre und instationäre Betriebsbedingungen unternommen.

Die stationäre Wechselwirkung könnte im wirksamsten Fall durch die Spaltproduktschwellung einer nicht restrukturierten äusseren Brennstoffzone verursacht sein, die ziemlich kalt und frei von breiten Rissen ist. Die betreffenden Schwell- und Kriechgeschwindigkeiten von Oxidbrennstoff wurden in verschiedenen in-pile-Kriechkapseln gemessen. Bei Temperaturen zwischen 300 und 1000[°]C betrug die Schwellgeschwindigkeit 0,8±0,1 Vol.-%/% Abbrand. Die Kriechgeschwindigkeit von hochdichtem Oxidbrennstoff (98% TD) bei einer Spaltungsrate von 1x10¹⁴ f/cm³·s unter einer Spannung von 1 kp/mm² lag zwischen 9x10⁻⁷ und 1,1x10⁻⁵/h (für 300 bzw. 1000[°]C). Sie war proportional zur Spaltungsrate und zur Spannung. Die Kriechgeschwindigkeit von porösem U0₂-15% Pu0₂ (86% TD) lag viel höher, maximal um einen Faktor 20⁺⁾.

Aus den Messergebnissen lassen sich die Schwelldrucke zwischen dem schwellenden Brennstoff und der Brennstabhülle berechnen, die für porösen UO₂-PuO₂-Brennstoff bei allen Stableistungen ≥250 W/cm unterhalb 10 kp/cm² liegen, solange genügend Leervolumen für die Brennstoffschwellung verfügbar ist. In einem in-pile Experiment zur direkten Messung des Schwelldruckes ergab sich, dass der Schwelldruck bei einer Stableistung von 500 W/cm unterhalb 25 kp/cm² lag. Die entsprechenden Tangentialspannungen in der Hülle können keine nennenswerten Hülldehnungen ergeben.

Die zweifellos auftretenden Hülldehnungen durch Wechselwirkung mit dem Brennstoff sind daher auf instationäre Riss-Rast-Vorgänge bei Leistungsänderungen im Brennstoff zurückzuführen. Ein Leistungszyklierversuch an kurzen Brennstäben zeigte jedoch, dass bei kurzen Zyklen im Bereich

⁺⁾ D.Brucklacher, I.Alecu, KFK 1272/3, S.112 - 31

niedrigen Abbrandes keine wiederholte Hülldehnung erfolgt. Andererseits wurde an Brennstäben, die in Kapseln oder Bündeln bestrahlt worden waren, bei Abbränden oberhalb 4% eine fortschreitende Hülldurchmesservergrösserung mit einer Dehnungsrate von 0,05-0,13%/% Abbrand gefunden (Abb.31). Die Dehnungswerte scheinen mit der Sinterdichte des Brennstoffes zu steigen, die zwischen 84 und 93% TD 1ag.

Es wurde geschlossen, dass ein Riss-Rast-Vorgang im Brennstoff zur Hülldehnung führt, der sowohl eine feste Haftung zwischen Brennstoff und Hülle (zur geeigneten Rissbildung) als auch lange Leistungszyklen (zur Rissblockierung durch Brennstoff- und Spaltprodukt-Verdampfungstransport sowie Brennstoffschwellung) erfordert. Die partielle Ausheilung thermischer Risse führt dabei zur Einspeisung neuer, relativ grober Porosität, die in ringförmigen Zonen angeordnet ist (Abb 32).

Ein besonderer Typ der Hülldehnung kann sich an den Brennstabenden durch Ansammlung flüchtiger Spaltprodukte im Spalt zwischen Brutstoff und Hülle ergeben (Abb 33). Entsprechende Hülldehnungen wurden nach einer Brennstabbündelbestrahlung am unteren, heissen Ende der Brennstäbe beobachtet.

Veröffentlichung:

D.Brucklacher, W.Dienst Experimental Results on the Mechanical Interaction between Oxide Fuel and Cladding Proc.Symp. on Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors (Brüssel, Juli 1973), IAEA, Wien, demnächst, Paper IAEA/SM-173/31



Abb.31: Plastische Hülldehnung an bestrahlten UO2-PuO2-Brennstäben



Abb.32: Neue, relativ grobe Brennstoffporosität durch Ausheilung tangentialer Risse

Abb. 33:

19b-DFR 350-936-11/12 100x

100,

196-DFR 350-G36-11/11 Ansammlung von Spaltprodukten am Brennstoff-säulenende im Spalt zwischen der Hülle und der ersten UO₂-Brutstoff-tablette

(Linker Streifen: Teil des gedehnten Hüllrohres)

2. Bestrahlungsversuche zur Verträglichkeit[#]

(D. Freund, O. Jacobi, IMF)

Die Arbeiten zur Auslegung und Spezifikation der Versuchsgruppe Mol-16 betreffen im wesentlichen die Stabauslegung und -konstruktion: Es kommen zwei Prüflingstypen zum Einsatz. In der Serie Mol-16/I werden drei Kapseln mit je zwei Prüflingen von 170 mm sowie zwei Kapseln mit je 4 Prüflingen von 80 mm Länge bestrahlt. Anhand dieser Details werden nach Vorliegen der Kapselauslegung die Auslegungsrechnungen weitergeführt.

1122.2 Integrale Parametertests

1122.22 <u>Bestrahlung im FR 2-Helium-Loop</u>^G

Herstellung und Pr üfung der Helium-Loop-Versuchsgruppe 5 (0. Jacobi, D. Freund, IMF)

Wegen der relativ hohen Ausschußquote beim Elektronenstrahlschweißen mußte hier zusätzliches Ersatzmaterial beigestellt werden. Nachdem nun die Hüllrohre und unteren Endstopfen vermessen waren, wurden sie zum Lichtbogenschweißen an den Reaktorbetrieb (HZ) weitergegeben. Alle 26 Schweißnähte waren dicht und wurden von der Fertigungskontrolle als einwandfrei erklärt. Die einseitig verschweißten Rohre wurden dann mit den zugehörigen Strukturmaterialien an das Plutonium-Labor weitergegeben.

Die Bestrahlung wurde mit den Einsätzen C (Hüllmaterial Zr 2) und M (Hüllmaterial Incoloy 800) fortgesetzt. Für die Prüflinge mit 18% Pu, die unter einer 0,2 mm starken Cd-Abschirmung bestrahlt werden, wurde aus den bisherigen Bestrahlungsergebnissen eine Cd-freie Schicht von 65% der Oberfläche des Gasführungsrohres ermittelt, welche bei einem mittleren thermischen Fluß von ca. $7x10^{13}$ n/cm²sec auf eine mittlere Stableistung von 500 W/cm führt.

Veröffentlichung:

 (1) D. Freund, Th. Dippel, D. Geithoff, P. Weimar Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der UO₂/PuO₂-Brennstab-Bestrahlungsexperimente der FR2-Kapselversuchsgruppe 4a. KFK 1523 (April 1973)

2. Auswertung der FR 2-Helium-Loop-Versuchsgruppe 2

(H. Hoffmann, IMF; A. Gerken, PSB)

Mit dem Rechenprogramm BESTAW wurden für jeden der 43 im Kurzzeit-Loop des FR 2 bestrahlten Stäbe thermische Analysen für eine mittlere und eine untere Schnittebene durchgeführt ((1), $\int 1_{-}7$). Es wurden mit jeweils 4 verschiedenen Wärmeübergangszahlen (h = 0,6 bzw. 1,2 W/cm² °C und eine theoretisch ermittelte) 4 x 2 verschiedene Temperaturprofile errechnet (mit und ohne Verdichtung) und diese mit den den Strukturzonenradien zugeordneten Temperaturen verglichen. Es ergaben sich keine guten Übereinstimmungen zwischen den out-of-pile bestimmten Temperaturgrenzen und den errechneten Profilen. Für die Diskrepanzen wurden die Ungenauigkeiten der Temperaturgrenzen (diese erwiesen sich als von der Bestrahlungszeit und der Stableistung abhängig) und der Wärmeübergangszahlen (diese hängen ab von der Temperatur, der Oberflächenrauhigkeit, dem Kontaktdruck und dem Gasgemisch) verantwortlich gemacht.

Die Abhängigkeit der Wärmeübergangszahl vom Kontaktdruck konnte indirekt und die Abhängigkeit der Temperaturgrenze für das Stengelkornwachstum von der Stableistung direkt nachgewiesen werden. Bei diesem Bestrahlungsexperiment wurde der radiale Spalt so klein gewählt, daß der Brennstoff schon während des Anfahrens mit der Hülle in Kontakt trat. Dadurch ist die Stableistung als Maß für den Kontaktdruck, der mit obengenanntem Rechenprogramm nicht ermittelt werden konnte, anzusehen. Die thermische Analyse wurde speziell an zentral geschmolzenen Proben durchgeführt, da die Schmelztemperatur die am genauesten bekannte Temperaturgrenze ist. Abb. 34 gibt die Abhängigkeit der unter diesen Bedingungen ermittelten Wärmeübergangszahl als Funktion der Stableistung wieder. Die Wärmeübergangszahl läßt sich aus diesem Bild bei fehlendem Kontaktdruck zu 0,3 W/cm² ^oC ermitteln.
112-61



Abb. 34 : Wärmeübergang imSpalt in Abhängigkeit von der Stableistung (ermittelt mit einem Temperaturprofil, das auf die experimentell ermittelte Schmelzzone führte) 112-62



In gleicher Weise wurden die Temperaturgrenzen für das Stengelkornwachstum und das ungerichtete Kornwachstum als Funktion der Stableistung und der Bestrahlungszeit ermittelt. Das Temperaturprofil wurde nur für zentral geschmolzene Proben errechnet und an die Schmelztemperatur von 2840°C angepaßt. Die entsprechenden Temperaturen für die Stengelkorn- und Kornwachstumszone konnten dann abgelesen werden. Abb.35 zeigt die Abhängigkeit der Temperaturgrenze von der Stableistung und der Bestrahlungszeit.

Für die Temperaturgrenze des ungerichteten Kornwachstums wurde keine Abhängigkeit von der Stableistung festgestellt.

Die Länge der beim Abkühlen entstandenen Schmelzkavernen (= zentrale Hohlräume am oberen Stabende) wurde zu 20 mm abgeschätzt. Bei niedrigen Stableistungen stimmte die errechnete mit der gemessenen Kavernenlänge recht gut überein; mit zunehmender Stableistung machte sich die Zentralkanalbildung über die Porenwanderung störend bemerkbar.

An 5 ausgesuchten Prüflingsabschnitten, die eine stufenweise Änderung der Brennstoffstruktur zeigen, wurden radiale Riß- und Porenvolumenverteilungen gemessen und mit modelltheoretisch gewonnenen (über SATURN-la $\int 2 \int$) verglichen. Erstere wurden auf der Basis eines vielfach gerissenen Brennstoff-Modells errechnet. Es wurde angenommen, daß der Brennstoff in beliebig viele Keile aufreißt, wenn die beim Zyklieren auftretenden Thermospannungen Zugspannungen sind und die Bruchspannung des Brennstoffes überschreiten. Eine auf dieser Grundlage berechnete Rißvolumenverteilung zeigt Abb.36 für den Prüfling L3-1 mit Zentralkanal. Bei einer Stableistung von 545 W/cm und einer Bestrahlungszeit von 24,4h fand noch keine Rißausheilung statt.

Bezüglich der Porenwanderung erhärtete eine kritische Literaturstudie / 3/ die Annahme, daß der Verdampfungs-Kondensations-Mechanismus den Hauptanteil der Gesamtwanderungsgeschwindigkeit für Poren > 10 µm bildet. Im Rechenprogramm wurde nur dieser Beitrag berücksichtigt und vereinfachend als vom Porenradius unabhängig angesetzt. Die gemessenen Porositätsverteilungen (Abb.37 zeigt die des Prüflings L3-1) konnten durch geeignete Wahl der Wärmeübergangszahlen zwischen Brennstoff und Hülle rechnerisch angenähert werden. Die ermittelten Wärmeübergangszahlen deuten, unabhängig von den Nachrechnungen mit BESTAW, ebenfalls auf eine Druckabhängigkeit hin.

Veröffentlichung im Berichtszeitraum:

(1) H. Hoffmann, D. Geithoff, A. Gerken
 Kurzzeitbestrahlung oxidischer Brennstab-Prüflinge der FR 2-Helium Loop-Versuchsgruppe 2
 KFK-1521 (erscheint demnächst)

Literaturhinweise:

- / 1_/ H. Hoffmann, W. Hellriegel Radiale Porenverteilung kurzzeitig bestrahlter Brennstab-Prüflinge "atw" 6 (1972), S. 317-318
- [2]7 H. Kämpf, H. Elbel, F. Depisch Das Rechenprogramm SATURN-la für Brennstäbe KFK-1575 (1972)
- /37 H. Hoffmann

Wanderung der Herstellungsporen Beitrag in KFK-1400 (1971), S. 161





1122.23 Bestrahlungen in BR 2-Kapseln * 1)

(D. Freund, O. Jacobi, IMF)

 Die Bestrahlung von Pr
üflingen der Versuchsgruppe 8C ist bei den Pr
üflingen 8C-1, -3, -5 und -7 planm
äßig abgeschlossen. Sie erreichten Abbr
ände zwischen 96 und 105 MWd/kg M. Die Spaltgasdruckmessung, die nahezu reibungslos funktionierte, ergibt Freisetzungsraten zwischen 60 und 80 %.

Die Bestrahlung der Prüflinge 8C-2, -4, -6, -8, -9 und -10 dauert an. Wie die bisherigen Untersuchungen zeigen, ist der Stab 8C-1 kurz vor Erreichen des Abbrandzieles vermutlich infolge Überhitzung in der Nähe eines der Abstandshalter zerstört worden.

- Die Arbeiten zur Versuchsgruppe Mol-8D betrafen im wesentlichen die Spezifikation, Prüfung sowie Abnahme der Hochtemperatur-Thermoelemente, deren Lieferung sich durch Beanstandungen bei der Abnahme weiter verzögerte.

Dagegen konnte eine Apparatur zum Einlöten der Thermoelemente fristgerecht in Betrieb genommen werden. Schon die ersten Versuche mit Dummy-Thermoelementen zeigten den günstigen Verlauf des Lötgutes. In Abb.38 ist ein Querschliff durch den oberen Endstopfen mit Dummy-Thermoelement dargestellt. Man kann oberhalb der Lötnaht deutlich das "Kriechen" des Lotes erkennen.

- Die Überlegungen hinsichtlich eines im SNR anzuwendenden Brennstabes mit größerem Durchmesser führen zu einem neuen Bestrahlungsexperiment Mol-17, für welches die Grundspezifikation erstellt wurde. Hiernach sollen 4 Brennstäbe mit 7,5 mm Außendurchmesser in ER 2-Bestrahlungskapseln des Typs FAFNIR bis ca. max. 100 MWd/kg M bestrahlt werden.

¹⁾Letzter Bericht (betr. Mol 8A) in KFK 1271/3





<u>1122.24</u> UO₂-PuO₂-Brennstabbündel-Bestrahlung Mol-7A. Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben¹⁾

(W. Dienst, K. Ehrlich, O. Götzmann, H. Hoffmann, H. Kleykamp, L. Schäfer, B. Schulz, H. Zimmermann, IMF)

Im Bestrahlungsversuch Mol-7A wurden sieben UO₂-20% PuO₂-Brennstäbe (Brennstofflänge 500 mm) in einem Brennstabbündel bestrahlt, das von strömendem Natrium gekühlt wurde. Die Bestrahlung erfolgte im epithermischen Neutronenfluss des Versuchsreaktors BR 2 (Mol) bei Stableistungen zwischen etwa 300 W/cm (am Stabende) und 560 W/cm (im Neutronenflussmaximum) bis zu einem maximalen Abbrand von 45 MWd/kg (U+Pu). Die maximale Brennstoffzentraltemperatur wurde für den Bestrahlungsbeginn zu etwa 2800°C, für den weiteren Bestrahlungsverlauf zu etwa 2000°C berechnet. Die maximale Hüllinnentemperatur (an den heissen Stabenden) lag zwischen 570 und 620°C.

Die erzeugten Spaltgase wurden in drei Stufen als freies Spaltgas, in grossen Blasen zurückgehaltenes Spaltgas sowie in kleinen Blasen und im Kristallgitter zurückgehaltenes Spaltgas, gemessen. Das geschah durch Anbohren der Brennstabhülle, durch Mahlen des Brennstoffes sowie durch chemisches Auflösen des Brennstoffes. Die Messungen ergaben eine leichte Korrektur einer früher aufgestellten Formel für die Spaltgasrückhaltung in drei Brennstofftemperaturzonen ⁺⁾.

Die Untersuchung der Leervolumenverteilung an Brennstabquerschnitten erfolgte durch Ermittlung von Spaltbreiten, Rissbreiten und Zentralkanaldurchmessern sowie durch Vermessung der Porosität mit einem elektronischen Gefügebildanalysator. Die Messergebnisse wurden mit Berechnungen nach dem Brennstabverhaltens-Modell-Code SATURN verglichen. Die über die Wanderung von Sinterporen errechnete radiale Porositätsverteilung beschreibt den wahren Verlauf nur teilweise richtig (Abb.39). Die Abweichung im Bereich der Säulenkristallzone wurde durch Berücksichtigung der Spaltgasporenbildung vermindert. Die gemessene Rissvolumenverteilung liess sich mit gewissen Einschränkungen verifizieren. Die Temperaturgrenze für die Rissausheilung wurde zu etwa 1750°C ermittelt.

⁺⁾ H.Zimmermann, KFK 1727, Januar 1973, Abschnitt 3

¹⁾ Letzler Bericht über Mol 7A Nachuntersuchungen in KFK 1272/3, S. 112-24

Für Stableistungen ₹420 W/cm ist der gemessene Zentralkanaldurchmesser grösser als über die Sinterporenwanderung berechnet. Es ergab sich jedoch ein systematischer Zusammenhang zwischen dem Verhältnis des Zentralkanalquerschnittes zur "Schmierporosität" und der lokalen Stableistung (Abb.40. Die axiale Leervolumenverteilung nach der Bestrahlung scheint eine Funktion der Brennstoffzentraltemperatur zu sein. Das deutet auf einen Materialtransport durch Verdampfung-Kondensation im Zentralkanal hin. Eine Verdichtung in der Randzone des Brennstoffes ist evtl. durch bestrahlungsbedingtes Nachsintern zu erklären (s.Abb.39).

Durch Elektronenstrahl-Mikrosonden-Analyse wurden die Uran-Plutonium-Entmischung im Brennstoff, die Verteilung und Phasenbildung der Spaltprodukte sowie die Hüllinnen- und -aussenkorrosion untersucht.Die Uran-Plutonium-Entmischung im radialen Temperaturgradienten (Abb.4) führt zu einer Plutonium-Anreicherung am Zentralkanal, die am oberen Übergang zum Brutstoff Werte bis zu 28% PuO, (gegenüber ursprünglich 20% PuO,) erreicht, und deren Höhe vom höheren O/M-Verhältnis im Brutstoff zusätzlich beeinflusst wird. Die radiale Verteilung des im Brennstoff gelösten Spaltprodukts Neodym wurde bestimmt. Weiterhin konnte eine grosse Zahl von metallischen und oxydischen Spaltproduktausscheidungen aufgefunden werden, die im Spalt und an der Brennstoffoberfläche teilweise auch Eisen-Nickel (metallische Phasen) oder Chrom (oxydische Phasen) enthalten. Aus den Untersuchungen zur radialen Abhängigkeit der im gesamten Brennstoff auftretenden Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Ausscheidungen ergibt sich in Übereinstimmung mit den β - γ -Autoradiographien ein Maximum der Ausscheidungsdichte im kälteren Bereich der Stengelkristallzone; dabei steigt das Mo/Ru-Verhältnis in diesen Ausscheidungen zunächst mit zunehmendem Abstand vom Zentralkanal an, während es jenseits des Maximums wieder sinkt. Telluride und palladiumhaltige Phasen mit flüchtigen Spaltprodukten (Sn, Sb, Te) treten vorzugsweise in der Porositätszone und im Spalt auf. Barium-Molybdate, -Zirkonate und -Cerate werden gelegentlich im Brennstoff und im Spalt beobachtet, während Cäsium-Oxide, -Molybdate, -Chromate, -Uranate und -Plutonate nur im kälteren Teil des Spaltes gebildet werden. In einem defekten Stab hat das in den Brennstoff eingedrungene Kühlmittel eine ringförmige Natrium-Uranat-Zone gebildet, während das Plutonium in das Zentrum des durch das Natrium bis in den unterstöchiometrischen Bereich reduzierten Brennstoffs mit einer maximalen Konzentration von 42% PuO₂ verlagert wurde. Dadurch wird die Bildung von besonders stabilen Uran-Plutonium-Platinmetall-Phasen ermöglicht, die im Zentralkanal und im zentralkanalnahen Bereich auftreten.

Die mikroskopische Schliffbild- und Mikrosondenuntersuchung der chemischen Reaktion zwischen dem UO₂-PuO₂-Brennstoff (ursprüngl. 0/M =1,98 \pm 0,015) und den Hüllrohren aus drei verschiedenen nichtrostenden austenitischen Stählen ergab, dass die Reaktion bei einer Hüllinnentemperatur von etwa 500°C beginnt. Die Hüllangriffstiefe steigt dann mit der Temperatur stark an und erreicht bei 620°C etwa 100 µm. Eine Abhängigkeit von der Zusammensetzung der Hüllmaterialien war nicht erkennbar. Meistens fand der stärkste Angriff am Übergang Brennstoff/Brutstoff statt (an Korngrenzen max.130 µm tief), möglicherweise durch lokal verstärkten Sauerstoff-Antransport aus dem Brennstoff-Zentralkanal. In den Korngrenzen der Hülle konnten die Spaltprodukte Cs, Mo, Pd und Te sowie eine Cr-Anreicherung nachgewiesen werden. Gelegentlich wurde an der Hüllaussenseite eine durch Na-Korrosion gebildete maximal 5 µm dicke an Cr und Mo angereicherte Reaktionsschicht beobachtet.

Eine Änderung der mechanischen Hüllrohreigenschaften unter Bestrahlung wurde durch Rohrinnendruck-Zeitstandversuche und Zugversuche an Brennstababschnitten geprüft. Die Zugversuchsergebnisse zeigten die übliche Bestrahlungsverfestigung. Die Zeitstandversuchsergebnisse legen den Schluss nahe, dass das Hüllrohr über die gesamte Länge geschwächt worden ist. Eine Abhängigkeit von der schnellen Neutronendosis $(0,5-7\cdot10^{21} n/cm^2)$ konnte nicht beobachtet werden, wohl aber eine deutliche Abnahme der Reststandzeit mit steigender Bestrahlungstemperatur. Der am meisten geschwächte Hüllabschnitt lag am oberen (heissen) Übergang Brennstoff/Brutstoff. Die beobachtete Temperaturabhängigkeit wird mit der Stärke des (inneren und äusseren) Korrosionsangriffes auf die Hülle in Zusammenhang gebracht. Die gemessenen Zeitstandbruchdehnungen erreichten Mindestwerte von etwa 0,5%. Von den eingesetzten Hüllwerkstoffen behielt der nichtrostende Stahl 1.4988 eine höhere Zeitstandfestigkeit als 1.4961 und AISI 316. Veröffentlichung:

W.Dienst, K.Ehrlich, O.Götzmann, H.Hoffmann, H.Kleykamp, L.Schäfer, B.Schulz, H.Zimmermann

UO₂-PuO₂-Brennstabbündel-Bestrahlung Mol-7A. Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben KFK 1736, Juni 1973



12-72





Abb. 44 Gemittelte Konzentrationsschichtlinien der Plutonium-Verteilung in der gesamten Brennstoffzone der unbeschädigten Stäbe 112-75

Bestrahlungen im schnellen Neutronenfluß (performance tests)^{*}

Wechselwirkung des Spalt-Cäsiums mit dem Brutstoff (D. Geithoff, IMF)

Die axiale Wanderung des Spalt-Cäsiums zu den Brennstoffsäulen-Enden ist bei Bestrahlungsexperimenten zur Entwicklung von Schnellbrüter-Brennstäben schon häufig beobachtet worden.

Innerhalb der Arbeiten der PSB-Brennstab-Entwicklung wurden bei den Experimenten Mol-7A und DFR-350 diese Wanderungen mit Hilfe der γ -Spektrometrie eingehender untersucht [1, 2]. Dabei konnten Cäsium-Ansammlungen am Kühlmittel-Eintrittsende (kalt) als auch am Kühlmittel-Austrittsende(heiß) der Brennstoffsäule festgestellt werden. Wegen der höheren Reaktionsgeschwindigkeiten sind besonders die Ansammlungen am heißen Ende für das Stabverhalten kritisch.

In jüngster Zeit ist darauf hingewiesen worden, daß das Cäsium nicht nur zur verstärkten Innenkorrosion führt, sondern auch mit dem Brutstoff unter Bildung von Cäsium-Uranat reagieren kann $\sqrt{3}$. Die dabei sich ergebende Volumenvergrößerung führt dann zu einer zusätzlichen Belastung der Hülle.

Bei der zerstörenden Nachuntersuchung der Brennstäbe aus dem Experiment DFR-350 (Maximalabbrand 5,65 %) wurde den Wirkungen des Cäsiums besonders nachgegangen. Hierbei wurde zunächst gefunden, daß sich das Alkali-Element bevorzugt im Umfangsspalt zwischen der ersten Brutstofftablette und dem Hüllrohr ansammelt und dort als feste Masse den Spalt ausfüllt (s. Abb. 42). Darüber hinaus dringt das Cäsium offenbar auch in die Brutstofftablette ein und führt hier zu einer Veränderung der Oxid-Matrix, die sich in der Keramografie als schwarzer Schatten darstellt. In Abb. 43 sind die unteren Säulenenden zweier Brennstäbe dargestellt. Die jeweils unterste Tablette auf den Bildern, im Experiment als Isoliertablette gegen den Endstopfen gedacht, steht hier für den Anfang der Brutstoffsäule. Sie besteht wie dieser aus UO_2 . Beim Stab G2 wurde eine starke Ansammlung von Spalt-Cäsium festgestellt, die beim Stab G36 fehlt. Dementsprechend ist die veränderte Struktur der UO_2 -Tablette nur beim Stab G2 zu finden. Die beiden Beispiele stehen hier stellvertretend für eine Gruppe mehrerer auf das gleiche Phänomen hin untersuchten Stäbe, bei denen der Cs-Effekt ebenso sichtbar war. Eine wesentliche Schwellung der Brutstofftablette durch die Einwirkung des Cäsiums konnte in den keramografischen Aufnahmen bisher noch nicht beobachtet werden, zumal die Tabletten von Rissen durchzogen sind und damit eine Vermessung der Außendimensionen unmöglich machen. Die Außenvermessungen der Stäbe zeigen jedoch, daß gerade in diesem Bereich eine deutliche Durchmesser-Vergrößerung stattgefunden hat, die nicht durch Hüllrohrschwellen zu erklären ist. Es bleibt abzuwarten, ob bei höheren Abbränden bzw. längeren Stäben die Cäsium-Wechselwirkung mit dem UO₂ eine echte Belastung des Stabes bilden wird.

$\begin{bmatrix} 1 \end{bmatrix}$ D. Geithoff

Die Bestrahlungsnachuntersuchung von SNR-Prototyp-Brennstäben aus einem Sieben-Stab-Bündel Reaktortagung 1971, Tagungsbericht S. 586 - 589

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

[3]

[2]

J.D.B. Lambert Reactor Development Program Progress Report Cs-UO₂ Reaction in NUMEC Fuel Elements Bericht ANL-RDP-15 (April 1973), S. 6.12 - 6.13

GfK Karlsruhe	Cs-Wechselwirkung r	mit der Isoliertablette ab G.2	Abb. 42
	Hülle	UO ₂ -Tablette	



Quantitative Keramografie am Bestrahlungsexperiment DFR-304

(H. Hoffmann, IMF; W. Hellriegel, RB/HZ)

Die quantitative Keramografie am Bestrahlungsexperiment DFR-304 bestand aus zwei voneinander unabhängigen Untersuchungen: Einmal wurde eine Leervolumenanalyse an zwei Bestrahlungsproben des Stabes 19b-Trefoil-G2 durchgeführt, und zum anderen wurde eine neue Präparationsmethode speziell für hochabgebrannte Proben getestet.

a) Hochabgebrannte Bestrahlungsproben enthalten Spaltprodukte, die mit wasserhaltigen Poliermitteln reagieren bzw. sich ganz in Wasser auflösen können. Aus dem Brennstoff herausgelöste Spaltproduktausscheidungen täuschen Poren vor und verfälschen somit die Leervolumenanalyse. Reaktionsprodukte zwischen Brennstoff und Hülle können ebenfalls aufgelöst werden und täuschen dann einen radialen Spalt nach der Bestrahlung vor. Für die quantitative Keramografie hochabgebrannter Brennstoffe wird dadurch eine wasserfreie Poliermethode notwendig.

Es wurde eine Leervolumenanalyse durchgeführt an Schliffen, die über das wasserfreie und zum anderen über das bekannte wässrige Präparationsverfahren herstellt wurden:

1.) Polieren mit rotierender Scheibe und Diamantpulver + Dekalin

2.) Vibrationspolieren mit $Al_2O_3 + CrO_3 + H_2O_3$

Es zeigte sich, daß für vergleichbare Polierzeiten (45 min) beide Methoden vergleichbare Porositätsprofile lieferten. Methode 1.) liefert aber große Reliefbildung auf den Probenoberflächen und ist deshalb für eine qualitative Keramografie nicht geeignet. Als all-round-Methode ist das wasserfreie Polieren mit rotierender Scheibe nicht geeignet.

b) Die Leervolumenbilanz, durchgeführt an den Stababschnitten 19b-Trefoil-G2-9 und 19b-Trefoil-G2-15, deutet auf vernachlässigbare axiale Materialtransporte. Dadurch ist ein Vergleich der gemessenen Leervolumenverteilungen mit errechneten (SATURN-la /1 /) sinnvoll, da die errechneten nur durch radiale Verlagerungen zustande kommen.

Abb.44 zeigt den Querschliff des Abschnittes G2-9 mit eingeblendetem Porositätsprofil. Man erkennt in der Außenzone konzentrische Porositätsanhäufungen und teilweise verschwundene keilförmige Risse. Erstere werden durch Ausheilen tangentialer Risse gedeutet, wobei als Rißausheilmechanismus Diffusion von Leerstellen angenommen wird. Im Gegensatz zu älteren amerikanischen Arbeiten wird dieser Mechanismus auch für den Abbau der keilförmigen Außenrisse angenommen. Christensen /2 / z.B. nimmt als Ursache für das Verschwinden der Außenrisse Schwellen des Brennstoffes an. Bei Zutreffen dieser Annahme müßte z.B. die Spaltgasschwellung der heißen Brennstoffzone ein Schließen dieser Risse schon nach ca. 1 % Abbrand verursachen. bzw. die Schwellung des gesamten Brennstoffes infolge Einlagerung kondensierter Spaltprodukte schon nach 3 - 4 % Abbrand bemerkt werden und bei 6 - 7 % Abbrand zu einem totalen Schließen dieser Risse geführt haben. Dies trifft nicht zu; es wird vielmehr angenommen, daß das Schließen der radialen Risse ebenfalls an das Auftreten und Ausheilen tangentialer Risse gebunden ist.

Die Abb.45 und 46 zeigen den Vergleich zwischen den errechneten und gemessenen Riß- und Porenvolumenverteilungen des gleichen Abschnittes. Abb.45 zeigt gute Übereinstimmung bezüglich der Rißvolumenverteilung. Bei der Berechnung der Porenvolumenverteilung wurde Porenwanderung nach dem Verdampfungs-Kondensations-Modell, lokale Porositätszunahme in der Stengelkornzone infolge Spaltgasschwellung und Hüllaufweitung infolge Hüllmaterial-Schwellung angenommen. Diskrepanzen zur gemessenen Verteilung in der Außenzone lassen sich durch Heißpreßeffekte (bzw. strahlungsinduziertes Nachsintern) und Riß-Ausheil-Phänomene deuten.

Unter der Annahme, daß sich das gesamte Rißvolumen in meßbares Porenvolumen ($\emptyset > 1 \mu m$) umgewandelt hat, läßt sich die heiße Rißbreite vor der Umwandlung abschätzen. Es wurden Werte zwischen 1 und 12 μm abgeschätzt, wobei die mittlere Rißbreite bei ca. 5 μm liegt.

Literatur

[1] H. Kämpf, H. Elbel, F. Depisch Das Rechenprogramm SATURN-la für Brennstäbe KFK 1575 (Sept. 1972)

[2] J.A. Christensen Structure Evolution in an Oxide Fuel Pin, WHAN-SA-79 (1970)



<u>Abb. 44</u> Übersichtsaufnahme des Prüflingsabschnittes 19b-Trefoil-G2-9 mit eingeblendetem Porositätsprofil ($P_0 = 10.8$ °/o)





Abb. 46: Radiale Porositätsverteilung des Prüflingsabschnittes 19b-Trefoil-G2-9

112-83

1124 Brennstäbe mit karbidischem bzw. nitridischem Brennstoff

1124.1 Verfahrens- und Geräteentwicklung^G

Aufbau einer elektronischen Thermowaage zum Betrieb unter Plutoniumbedingungen $\frac{\gamma}{W}$. Laub, D. Vollath, IMF)

Seitens des FSB wurde der Aufbau einer Thermowaage für den Betrieb unter Plutoniumbedingungen angeregt, um damit die Vorgänge bei der karbothermischen Reduktion zur Herstellung von (U,Pu)C studieren zu können.

Es wurde eine automatische Sartorius - Thermowaage angeschafft, deren größter Meßbereich 1 g und deren kleinster Meßbereich 0,1 mg beträgt. Zu dieser Waage wurde ein Hochvakuumofen entwickelt, der für Temperaturen bis 1700 °C verwendbar ist. Die Abb.47 zeigt eine Fotografie dieser Anlage im fertigmontierten Zustand. Die ersten Betriebserfahrungen mit diesem Hochtemperaturwägesystem sind ausgezeichnet. In der derzeitigen Anordnung, bei laufender Rotationspumpe, hat diese Waage eine Genauigkeit von + 4 µg. Dieser Wägefehler wird durch die mechanischen Schwingungen des Wägesystems, welche durch die Rotationspumpe verursacht werden, hervorgerufen. Die Abb.48 zeigt ein typisches Beispiel des Gewichts-Temperatur-Verlaufes der karbothermischen Reduktion von UO2+C zu UC. Man sieht deutlich, daß die Reaktion in mindestens zwei Stufen abläuft. In Abb.48 ist auch der Druck im System eingezeichnet. Man sieht, daß selbst bei der Freisetzung von etwa 50 mg CO der Druck nicht höher ansteigt als etwa 5.10⁻⁵ Torr. Dies bedingt nur sehr kleine Korrekturen der Gewichtskurven, da die Korrekturbeträge infolge thermomolekularer Kraftwirkungen (Knudsen-Effekt) in diesem Druckbereich nur sehr klein sind.



Abb. 47 Elektronische Hochtemperaturthermowaage für Temperaturen bis 1700[°]C mit Vakuumsystem vor dem Boxeinbau



Abb. 48:

Verlauf von Probengewicht und Druck bei der Reaktion $UO_2 + 3C \rightarrow UC + 2CO_2$. Aufheizgeschwindigkeit 1 $^{\circ}/min$

1124.2 Laborexperimente zur Brennstabauslegung ^G

1124.22 <u>Gleichgewichte in keramischen Kernbrennstoffen</u>

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

Die Untersuchungen über das Reaktionsverhalten der Spaltprodukte Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm und Sr in unter- und überstöchiometrischem Urancarbid bei simuliertem hohem Abbrand (10, 20, 30 At.-%) wurden mit einer quantitativen mikroanalytischen Bestimmung der Elemente in den auftretenden Phasen abgeschlossen.

<u>Unterstöchiometrisches Urancarbid (UC_{1-v})</u>

Von den mit Hilfe der röntgenographischen, metallographischen und mikroanalytischen Untersuchungen identifizierten Phasen (U,Zr)C, UMOC₂, U₂RuC₂ und $(U,La,Ce,Pr,Nd)_{x_2} \cdot (Ru,Rh,Pd)_{y_2}C_2$ wurden elementspezifische U-,Zr-,Mo-, Ru-,Rh-,Pd-,La-,Ce-,Pr-,Nd- und C-Profile geschrieben (Abb.49). Wie diese Abbildung zeigt, sind in UC_{1-x}außer Zr geringe Mengen an Mo und Seltene Erden gelöst. Die berechneten Gitterparameter der Mischphasen (U,Zr,Mo,La, Ce,Pr,Nd)C bei 10, 20 und 30 At.-% Abbrand unter Zugrundelegung der mit der Mikrosonde bestimmten Konzentrationen für Mo (0,5 Gew.-%) und Seltene Erden (1,3 Gew.-%) stehen in guter Übereinstimmung mit den gemessenen Gitterparametern (Tab. 11). Ferner zeigt Abb.49, daß die Seltene Erden und Platinmetall enthaltende Phase geringe Mengen an Uran und Kohlenstoff gelöst enthält, und daß Rhodium in sehr geringen Mengen in der Phase U₂(Ru,Rh)C₂ gelöst ist.

Überstöchiometrisches Urancarbid (UC 1+x)

Die quantitative Untersuchung (Punktanalyse) der Mischphase (U,Zr)C ergab ähnliche Konzentrationen an Mo und SeltenenErden in Lösung wie das unterstöchiometrische Carbid.

Von der Seltene Erden und Kohlenstoff enthaltenden Phase wurden elementspezifische Nd- und C-Profile geschrieben. Der Vergleich mit den Nd- und C-Standards ergab etwa 83 Gew.-% Nd und 17 Gew.-% C. Daraus ergibt ein Atomverhältnis C/Nd von etwa 71:29. Diese Werte für C und Nd stimmen mit der Zusammensetzung NdC₂ ziemlich gut überein. Demnach sollten die Seltenen Erden in überstöchiometrischem Urancarbid (UC_{1+x}) als Dicarbide in Ausscheidungen auftreten.

Zusammenfassende Aussagen über das Verhalten der Spaltprodukte in einem plutoniumenthaltenden Carbidbrennstoff werden demnächst als KFK-Bericht erscheinen.

<u>Tab.11:</u> Berechnete und gemessene Gitterparameter von UC bei Lösung von Zr als ZrC_{1-x} und teilweise Lösung von Mo und Seltene Erden als $\alpha-MoC_{1-x}$ bzw. S.E.C_{1-x} S.E. = Seltene Erden

Gitterparameter von UC α (Å)							
berechnet			gemessen				
10 At.% Abbrand	20 At.% Abbrand	30 At.% Abbrand	10 At.%	20 At.%	30 At.%		
4,951	4,945	4,940	4,953	4,943	4,936		



Abb. 49 Elementspezifische Konzentrationsprofile der in UC_{1-x} auftretenden Phasen

1124.3 <u>Bestrahlungsexperimente (Karbid-Brennstoff</u>)^G

1. Abbrandbestrahlungen im DFR

Bestrahlungsexperiment DFR-330

(O. Jacobi, D. Freund, IMF; G. Mühling, PSB)

Die Arbeiten bei der Herstellung der Stäbe für das Bestrahlungsexperiment DFR-330/2/He-O,5 wurden mit einer Abnahme von 14 Stück Brennstäben bei der Firma ALKEM in Hanau abgeschlossen. Abgesehen von Anlauffarben an den Schweißnähten wurden die Spezifikationen im wesentlichen eingehalten. Die visuelle Inspektion des Stabes U-3 ließ eine ca. 85 µm tiefe Fehlstelle erkennen, so daß dieser Stab sowie die Stäbe V-4 und U-9 wegen fehlender XeRd-Monitore zu Reservestäben erklärt wurden. Die Stäbe sind im Juli 1973 nach Dounreay transportiert worden und sollen unmittelbar nach der Assemblierung bestrahlt werden.

2. <u>Hochdruckkapsel zur Bestrahlung von Brennstoff-Schwellproben</u> (H. Häfner, I. Kimmer, IMF)

In der Vergangenheit sind im IMF für den FR2 u.a. Bestrahlungskapseln entwickelt worden, die es erlauben, Kriech- bzw. Schwellbeträge an Kernbrennstoffen unter verschiedenen Betriebsbedingungen, aber durchweg axialer Belastung, zu messen. Mit diesen Kapseln wurden z.T. recht beachtliche Erfolge erzielt. Schwierigkeiten treten aber auf, wenn man die für den einachsigen Spannungszustand gemessenen Werte für allseitige Belastung umrechnen will, vor allem wegen der schwer erfaßbaren Reibungskräfte zwischen Brennstoff und Hülle. Es besteht deshalb nach wie vor der Wunsch, das Brennstoffschwellen unter realistischeren Belastungen, also allseitigen Druckbelastungen, zu ermitteln.

Einleitende Untersuchungen zu einer entsprechenden Kapsel wurden im Frühjahr 1972 angestellt. Sie führten zu einer Hochdruckkapsel (interne Bezeichnung Typ 10), in der die Probenbelastung allseitig durch einen äußeren Gasdruck (max. 500 bar!) aufgebraucht wird. In dieser Kapsel sollen an kleinen Tablettenstapeln (ca. 6 mm Ø) Brennstoffoberflächentemperaturen zwischen 1000 und 1500 °C und Probenbelastungen bis 5 kp/mm² eingestellt werden können. Die Probentemperatur ist durch eine geeignete Meßeinrichtung zu messen und kontinuierlich zu registrieren. Die durch Gasdruckeinfüllung eingestellte Probenbelastung soll während des Betriebs durch geeignete Druckmeßgeber überwacht werden. Der Schwellbetrag des Brennstoffs wird bei der Nachuntersuchung in den Heißen Zellen durch Dichtebestimmung an den einzelnen Pellets ermittelt.

Ende 1972 sind eine Durchführbarkeitsstudie mit einem Entwurf erstellt und gemeinsam mit RBT/M-V eine Reihe von Vorversuchen durchgeführt worden. Die Detailkonstruktion und der Bau einer Prototypkapsel ist in Angriff genommen worden. Bei RBT/M-V werden z.Zt. an einer Attrappe Montage- und Prüftechniken erprobt.

Mit der Bestrahlung des ersten Kapselversuchseinsatzes wird im Frühjahr 1974 gerechnet. Es ist an die Bestrahlung von jährlich ca. 3 KVE gedacht. Die Betriebsüberwachung kann mit vorhandenen out-of-pile Meßeinrichtungen durchgeführt werden.

Beschreibung des Versuchseinsatzes (siehe Abb. 50)

Zwei Probeneinsätze liegen übereinander knapp unter Coremitte im Bereich des axialen Neutronenflußmaximums und sind über jeweils 8 Distanznocken im äußeren Kapselrohr zentriert. Durch vier Bohrungen im Boden der Probenkapsel sind Tauchrohre aus Wolfram oder Molybdän - je nach Brennstoff (Verträglichkeitsproblem!) - lose hindurchgeführt, die zur Aufnahme von Thermoelementen dienen. Auf dem zentralen Thermoelementschutzrohr zur Messung der Brennstoff-Zentraltemperatur ist der Probenstapel - 5 Brennstoffringe und 6 Ringe aus W oder Mo - aufgefädelt. Durch diese abwechselnde Stapelung von Brennstoffringen und gut wärmeleitenden Metallringen soll eine gleichmäßige Temperaturverteilung des Probenstapels erreicht und ein Zerbrökeln der Brennstofftabletten vermieden werden. Die im Probenstapel erzeugte Wärmemenge wird hauptsächlich durch Wärmeleitung und Abstrahlung an das Mo-Zwischenrohr und von dort über das innere Kapselrohr an das äußere Kapselrohr abgegeben. Die Probentemperatur wird durch Verändern des Durchmessers der Zwischenringe (6 bis 9 mm) bzw. der verschiedenen Gasspaltbreiten eingestellt. Da die Wärme auf möglichst definierter Länge radial nach außen abgegeben werden soll, werden die axialen Anteile durch keramische Isolierkörper kleingehalten.

Die vorgesehenen Hochtemperatur-Thermoelemente haben nur eine geringe Länge von ca. 5 cm und tragen eine Edelstahlhülse, die sog. Kupplungshülse, die die Übergangsstelle auf eine edelstahlummantelte Ausgleichsleitung umgibt. Diese Edelstahlhülsen sind ihrerseits mit der sog. Druckhülse dicht verlötet, die nach Verschweissung eine Einheit mit der Probenkapsel darstellt. Mit dem oberen Endstopfen der Probenkapsel sind zwei Druckkapillaren dicht verschweißt. Eine davon dient als Evakuierungsleitung, und die andere führt zu einem Dreiwegstück, von dem aus zwei Anschlüsse zum Druckgeber bzw. zum Einfüllstutzen mit einem Rückschlagventil führen. Über diesen Einfüllstutzen wird bei der Montage je nach der gewünschten Probenbelastung ein Gasdruck von max. 500 bar aufgebracht. In der Anschlußbohrung des oberen Endstopfens ist ein Sintermetallfilter eingebracht, mit dem während der Montage Brennstoffstaub zurückgehalten werden soll. Eine kleine Druckfeder, die im oberen Endstopfen geführt ist, dient zur Niederhalterung des Probenstapels und der Isolierkörper.

In drei achsenparallelen Bohrungen des kurzen Mo-Zwischenrohres sind die Thermoelemente mit ihren Schutzrohren zur Messung der Umgebungstemperatur des Probenstapels untergebracht.



Abb.50: Hochdruck-Schwellkapsel

113 MATERIALUNTERSUCHUNG UND -ENTWICKLUNG

1131 Materialuntersuchungen an technischen Legierungen

1131.1 Hüllmaterial

1131.11 Mechanische und physikalische Eigenschaften technischer Legierungen*

1. Mechanische Eigenschaften

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

Für das Bestrahlungsprogramm Mol 3 B/3 (Kapselbestrahlung zur Hochtemperaturversprödung) wurden unbestrahlte Blechproben von drei Ti-stabilisierten Stählen als Vergleichsversuche bei 650 ^oC und 700 ^oC untersucht:

I = RGT 21 (Röchling) = X12CrNiWTi 1613 W-Nr. 1.4962

11 = 12R72HV (Sandvik) = X10NiCrMoTiB 1515 W-Nr. 1.4970

III = Vaccutherm (Südwestfalen) = X12CrNiWTi 16 13 W-Nr. 1.4962

Von jedem Stahl lagen Proben folgender Vorbehandlung vor:

a) 1150 $^{\circ}$ C/30' + 10% k.v. + 800 $^{\circ}$ C/23 h und für 12R72HV zusätzlich noch Proben der Vorbehandlung b) 1150 $^{\circ}$ C/30' + 10 % k.v. + 850 $^{\circ}$ C/2 h

Die Ergebnisse der bei 650 °C durchgeführten Versuche sind als Beitrag im Bericht KFK-1272/4 mitgeteilt worden. Der vorliegende Beitrag umfaßt die Resultate der Versuche bei 700 °C. Für den Stahl 12R72HV konnte wegen Probenmangel der Zustand a) nicht untersucht werden. Entsprechend den Bestrahlungsbedingungen waren die Proben zuvor 5334 Std. bei 620 °C geglüht worden. In Abb. 1a ist für jede Legierung und Zustand die ermittelte Zeitstandfestigkeitskurve eingezeichnet, und in Abb. 1b ist die sekundäre Kriechgeschwindigkeit $\hat{\epsilon}$ in Abhängigkeit von der jeweiligen Spannung aufgetragen. Die daraus resultierenden n- und k-Werte nach Norton sind im Diagramm angegeben. Wie schon frühere Untersuchungen ergaben, zeigt der Stahl 12R72HV durch die mechanisch-thermische Vorbehandlung eine sehr starke Spannungsabhängigkeit der Werte für Standzeit und sekundäre Kriechgeschwindigkeit auch bei einer Prüftemperatur von 700 °C. Im Vergleich zu den bei 650 °C gefundenen Werten verändert sich bei RGT 21 und Vaccutherm der Spannungs-

App. |---Zeitstandfestigkeit und sekundäre Kriechgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Spannung.



exponent n wenig bzw. nicht, und die k-Werte vergrößern sich um zwei Zehnerpotenzen. Bei 12R72HV ändern sich beide Werte etwas stärker.

Die Zeitstand-Bruchdehnung nimmt auch bei 700 ^oC mit zunehmender Standzeit bei allen drei Stählen ab. Für $t_B > 10^3$ Std. liegen die Werte bei 3-5% für 12R72HV und Vaccutherm und bei 6-7% für RGT 21.

Die metallografischen Untersuchungen zeigen bezüglich des Bruchverhaltens folgendes: Der Stahl RGT 21 bricht bei kurzen Standzeiten transkristallin mit einzelnen interkristallinen Anrissen und zu längeren Standzeiten (~ >500 Std.) interkristallin. Die Legierung 12R72HV zeigt ein transkristallines Bruchverhalten mit einzelnen interkristallinen Anrissen bei den Langzeitproben. Die Proben von Vaccutherm brachen alle eindeutig interkristallin.

Anhand der durchgeführten Zeitstandversuche unter ansteigender Last mit dem Werkstoff 1.4981 bei 700 ^OC wurden 3 Rechenmethoden geprüft, die es ermöglichen sollen, die gemessenen Kriechkurven mathematisch zu beschreiben. Als Ansatz wird die Abhängigkeit der Kriechgeschwindigkeit von der Spannung und der Spannungsanstiegsgeschwindigkeit bzw. von der Spannung und der Dehnung durch ein zweigliedriges Polynom ausgedrückt.

$$\dot{\varepsilon} = a_1 \cdot \sigma^{b_1} \cdot \sigma^B + a_2 \cdot \sigma^{b_2} \cdot \sigma^D \quad bzw.$$

$$\dot{\varepsilon} = a_1 \cdot \varepsilon^{b_1} \cdot \sigma^B + a_2 \cdot \varepsilon^{b_2} \cdot \sigma^D$$

Nach Einführung der Spannungsänderung mit $\sigma = \sigma \cdot t$ und Integration erhält man die Gleichungen für die Kriechkurven:

(1)
$$\varepsilon = a_1 \cdot \sigma^{b_1+B} \cdot \frac{1}{B+1} \cdot \tau^{B+1} + a_2 \cdot \sigma^{b_2+D} \cdot \frac{1}{D+1} \cdot \tau^{D+1} bzw.$$

(2)
$$\varepsilon = \left[(1-b_1) \cdot a_1 \cdot \sigma^B \cdot \frac{1}{B+1} + B^{+1} \right] \frac{1}{1-b_1} + \left[(1-b_2) \cdot a_2 \cdot \sigma^D \cdot \frac{1}{D+1} \cdot + D^{+1} \right] \frac{1}{1-b_2}$$

Die Werte a_1, a_2, b_1, b_2 , B und D sind Konstanten mit unterschiedlichen Werten in den beiden Gleichungen. Ebenso ist es möglich, die time-fraction-Regel auf Dehngrenzlinien zu beziehen und aus den errechneten $\epsilon_i - t_i$ -Paaren Kriechkurven für ansteigende Last zu zeichnen.

(3)
$$\sum_{i=1}^{n} {}^{+}i/{}_{i,\epsilon} = K = 0,45$$
; $t_{ges} = \sum_{i=1}^{n} {}^{+}i$

Die Abb. 2 zeigt die gemessenen Kriechkurven als durchgezogene Linien und die nach (1) und (2) berechneten Kriechkurven als gestrichelte bzw. strichpunktierte Linien. Nach (3) wurden die eingezeichneten Stichproben errechnet.



Abb. 2: Kriechkurven des Stahls 1.4981 bei ansteigender Last
2. Physikalische Eigenschaften

(W. Schneider, E. Schnitzer, IMF)

Die Rückstandsanalyse des Sandvik-Stahls 12R72HV zeigt an, daß das komplizierte Auslagerungsverhalten dieses Stahls durch eine Vielzahl von Ausscheidungen verursacht wird. Die Hauptmenge der Ausscheidungen sind AB-Verbindungen des NaCl-Typs. Bis zu vier verschiedene Phasen dieses Typs mit Gitterkonstanten zwischen 4,26 und 4,34 Å konnten bei einigen Zuständen gefunden werden. Der Analyse nach handelt es sich hauptsächlich um TiC, TiN, Molybdänkarbide bzw. -boride. Daneben werden noch Spinelle, M₂₃C₆- und M₂B-Verbindungen gefunden. Auffällig ist auch ein relativ hoher Zirkongehalt in den Ausscheidungen.

3. Rohrprüfung und Brennstabprüfung

(0. Jacobi, R. Scherwinsky, IMF)

Neben zahlreichen Routineuntersuchungen, u.a. auch an Heizstäben und Druckpatronen für Na-Versuche, wurden die Meßergebnisse der Rohrprüfung an den Hüllrohren für das Experiment DFR-330/3/Na-0,35¹⁾ zusammengestellt und auf entsprechende neu konzipierte Stabbegleitkarten übertragen. Durch eine sorgfältige Auswahl der Hüllrohre konnten so für das Experiment Hüllrohre mit ausgezeichneten Daten (s. Tab. 1) zur Verfügung gestellt werden.

1131.12 Bestrahlungsversuche

1. Mechanische Eigenschaften nach Bestrahlung

(H. Böhm, K.D. Cloß, L. Schäfer, C. Wassilew, IMF)

Für Betriebstemperaturen >600°C erfolgte bisher die Auslegung der Brennelementhüllrohre bei stationärem Reaktorbetrieb so, daß während der Einsatzzeit der Brennelemente eine Kriechverformung von 0,2% aufgrund des Spaltgasinnendruckes nicht überschritten wird. Für einen lösungsgeglühten Werkstoff ist diese geringe zulässige Kriechverformung äußerst konservativ, da für derartige Materialzustände teilweise Kriechverformungen nach Bestrahlung von >1% gemessen worden sind. Kaltverformte und lösungsgeglühte Werkstoffe konnten daher nur aufgrund ihrer Kriechfestigkeit (z.B. 0,2% Zeitdehngrenzen) miteinander verglichen werden, wodurch die lösungsgeglühten Materialien von vornherein den kaltverformten unterlegen waren.

1)Bestrahlung karbidischer Brennstäbe mit Na-Bindung

Tabelle 1

Hüllrohre 9,5[%] x 0,35; Werkstoff-Nr. 1.4988

Bestrahlungsexperiment DFR-330/3/Na-0,35

GfK- Rohr-Nr.	DFR- Stab-Nr.	Außendurchme Soll 9,500 max.	esser ± 0,03 min.	Innendurchm Soll 8,800 max.	esser + 0,03 min.	Wanddicke Soll 0,35	50 <u>+</u> 0,03	Zerstörung Prüfung US	zsfreie EC
l 480/2	Хl	9,500	9,496	8,800	8,792	0,357	0,331	0.B.	0.B.
L 482/1	x 2	9,502	9 , 498	8,804	8,794	0,355	0,338	0.B.	0.B.
l 482/3	X 3	9,504	9,500	8,802	8,794	0,351	0,343	о.В.	o.₿.
l 484/3	x 4	9,502	9,498	8,800	8,796	0,355	0,333	0.B.	0.B.
l 488/2	X 5	9,502	9,500	8,806	8,796	0,355	0,333	0.B.	°.₿.
l 484/2	хб	9,502	9,500	8,802	8,794	0,353	0,335	0.B.	∘. B.

US 🖴 Ultraschall

EC 🖆 Wirbelstrom

Alle Längenangaben in mm

Meßgenauigkeiten:

Außen- und Innendurchmesser \pm 0,002

Wanddicke

<u>+</u> 0,005

Als Kenngröße, die sowohl die Bruchdehnung als auch die Kriechfestigkeit berücksichtigt, wird daher zur Beurteilung des Werkstoffverhaltens vorgeschlagen:

^σ0,5 δ/t

Hierbei ist ô die Bruchdehnung und t die Zeit. Bei einem duktilen Werkstoff möge z.B. die Bruchdehnung nach Neutronenbestrahlung bei 10.000 h um 1,2% liegen. Bei einem Sicherheitsfaktor gegen Bruch von 2,0 könnte man diesen Werkstoff also bis 0,6% Kriechverformung bei 10.000 h betreiben. Die Kenngröße gäbe dann die Spannung an, bei der nach 10.000 h diese Kriechverformung erreicht wäre. Ein spröder Werkstoff hingegen habe eine Bruchdehnung von 0,2%. Unter Zugrundelegung des gleichen Sicherheitsfaktors könnte man diesen Werkstoff bis 0,1% Kriechverformung nach 10.000 h einsetzen. Die Kenngröße gäbe dann die Spannung an, bei der nach 10.000 h einsetzen. Die

Die hier vorgeschlagene Kenngröße hat keinerlei physikalische Bedeutung, noch kann sie für Auslegungsrechnungen direkt verwendet werden. Auch über die Größe des darin enthaltenen Sicherheitsfaktors ließe sich diskutieren. Die Kenngröße ist auch nur dann zu verwenden, wenn Kriechverformungen gegenüber plastischen Verformungen durch Überschreiten der Streckgrenze dominieren.

In Abb. 3 ist diese Kenngröße für den Stahl 1.4970 bei verschiedenen Vorbehandlungszuständen und verschiedenen Prüftemperaturen graphisch dargestellt, Die Ergebnisse stammen aus den Bestrahlungsprojekten Mol 3 B/2 und 3 B/3. Bei der Festlegung der maximal zulässigen Kriechverformung wurde dabei davon ausgegangen, daß bei sehr duktilen Werkstoffen aufgrund der Kühlkanalverengung eine Kriechverformung von 1% nicht überschritten werden darf, d.h. für Bruchdehnungen >2% wurde die 1%-Zeitdehngrenze zugrundegelegt. Das eindeutig beste Verhalten sowohl bei 650 °C als auch bei 700 °C zeigt nach dieser Zusammenstellung der Zustand lösungsgeglüht + ausgelagert + 15% kaltverformt.



<u>Abb. 3:</u> Kenngröße $\sigma_{0,5 \ \delta/t}$ für den Werkstoff Nr. 1.4970 in verschiedenen Vorbehandlungszuständen nach Bestrahlung im BR 2 (Projekte Mol 3 B/2 und 3 B/3)

Die experimentellen Arbeiten zum Zeitstand- und Kriechverhalten bestrahlter Proben des Stahls 1.4970 in vier verschiedenen Werkstoffzuständen bei 700 °C wurden abgeschlossen. Die Untersuchungen umfassen das Bestrahlungsprojekt <u>Mol 3 B/2</u> (ϕ t ~ 1,03 x 10²² n/cm², E >0,1 MeV; 6,5 x 10²¹ n_{th}/cm², T_{bestr} = 640 ° + 15 ° - 38 °C).

Die Versuchsergebnisse der bei 700 °C durchgeführten Zeitstand- und Kriechuntersuchungen zeigen, daß die Bestrahlung zu negativen bis leicht positiven Zeitstandfestigkeitsänderungen führen kann, was aus Abb. 4 deutlich erkennbar ist. Bezüglich des Kriechverhaltens bei 700 °C nach Bestrahlung läßt sich zusammenfassend sagen, daß die Neutronenbestrahlung unter den angegebenen Bestrahlungsbedingungen direkt oder indirekt ebenfalls zu positiven bzw. negativen Änderungen der Kriechgeschwindigkeit führen kann. Die gewonnenen Versuchsergebnisse bestätigen ebenfalls den starken Einfluß des Werkstoffzustandes auf die Duktilität dieses Stahls nach Neutronenbestrahlung.

Im Berichtszeitraum wurde mit der Nachuntersuchung der Proben aus dem Bestrahlungsprojekt DFR 397 (bis 8 x 10^{22} n/cm²) begonnen.

△ UNBESTRAHLT 1.4970 1150°C-30' ▲ BESTRAHLT T=700°C SPANNUNG IN kp/mm² 1150°C-30' + 800°C-23h 9 8 1150°C-30' + 800°C-23h + 15%kv **1150°C−30′+15%**k∨**+800°C−23**h Δ ⁸ 10² **10**⁰ ⁸ 10³ ⁸ 10¹ ⁸10⁴ STANDZEIT IN STUNDEN



Aus dem Bestrahlungsprojekt Mol 3 B/3 (ϕ t ~0,94 x 10²² n/cm²; E >0,1 MeV; T ~650 °C) wurden Untersuchungen über den Einfluß der Neutronenbestrahlung auf das Zeitstand- und Kriechverhalten des Stahls 1.4970 in dem Werkstoffzustand: 1150 °C/30' + 10% k.v. + 850 °C/2 h unter ansteigender Last durchgeführt. Die Ergebnisse für die bestrahlten Proben dieser Untersuchungen bestätigen, daß die Standzeit unter ansteigender Last durch die life fraction rule nach Robinson

$$\sum_{n=1}^{L} \frac{\Delta + i}{\Delta + i} = 1$$

sehr gut beschriebenwird, obwohl diese Beschreibung aufgrund der kumulativen Schädigung normalerweise nur eine grobe Annäherung darstellt.

Anhand dieser Untersuchungen wurden zwei Rechenmethoden geprüft, die es ermöglichen sollen, die gemessenen Kriechkurven mathematisch zu beschreiben. Als Ansatz wird die Abhängigkeit der Kriechgeschwindigkeit von der Spannung und der Spannungsanstiegsgeschwindigkeit bzw. von der Spannung und der Dehnung bestimmt. Nach Einführung der Spannungsänderung mit $\sigma = \sigma \cdot t$ und Integration erhält man aus der Abhängigkeit $\dot{\epsilon} = f(\sigma, \sigma)$ eine Gleichung für die Kriechkurven

(1) $\varepsilon = A \cdot \sigma^{B} \cdot \frac{1}{B+1} \cdot t^{B+1} + a_{2} \cdot \sigma^{b_{2}+D} \cdot \frac{1}{D+1} \cdot t^{D+1}$

und aus der Abhängigkeit $\dot{\epsilon} = f$ (σ, ϵ) eine andere Gleichung für die Kriechkurven

(2) $\varepsilon = \left[(1-b_1) \cdot a_1 \cdot \sigma^{c} \cdot \frac{1}{c+1} \cdot t^{c+1} \right]^{\frac{1}{1-b_1}}$

Die Werte a₁, a₂, b₁, b₂, A, B, c und D sind Konstanten, die sich aus den experimentellen Werten bestimmen lassen.

2. Physikalische Untersuchungen und Strahlenschäden

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

Die Ergebnisse zum Bestrahlungsexperiment VEC 1 wurden veröffentlicht (1). In diesem Experiment wurde die Temperaturabhängigkeit der Porenbildung in den Stählen 1.4988, 1.4981 und 1.4970 bei konstanter Schädigung von 3 x 10¹⁷ C²⁺ Ionen/cm² studiert. Abb. 5 gibt die gefundenen Volumenzunahmen für einzelne Materialzustände wieder. Trotz der relativ wenig unterschiedlichen Schwellbeträge in drei von vier untersuchten Materialien bzw. -zuständen ergeben sich deutliche Unterschiede in der mittleren Größe und der Dichte der Poren, wie aus Abb. 6 b-d für eine Bestrahlungstemperatur von 575 °C hervorgeht.





<u>Abb. 5</u>: Temperaturabhängigkeit der Schwellrate, mit Hilfe von TEM-Werten ermittelt an den stabilisierten Stählen 1.4988, 1.4981 und 1.4970 (Dosis 3 x 10¹⁷C²⁺ Ionen•cm⁻²).

Die außerordentlich niedrige Porenkonzentration im Stahl 1.4970 könnte auf die Wirkung des Titan als Getter für gasförmige Verunreinigungen zurückgeführt werden, so daß in diesem Material lediglich das vorimplantierte Helium (10 ppm Helium) als Keimbildner für Poren wirksam ist. Der Einfluß der Kaltverformung auf die Porenbildung kann aus dem Vergleich der beiden Materialzustände des 1.4988 (Abb. 6, a und b) entnommen werden. Im 20% kaltverformten Material wird die mittlere Porengröße reduziert, und die Temperaturabhängigkeit des Porendurchmessers ist kleiner. Dies führt zu deutlich erniedrigten Schwellbeträgen und einer geringeren Temperaturabhängigkeit von $\Delta V/V$.

Nicht deutlich ist in diesem Experiment der Einfluß von Karbidausscheidungen (Niob- und Titankarbide) auf die Porenbildung geworden. Möglicherweise ist jedoch die etwas reduzierte Porenkonzentration im Stahl 1.4981 auf das geringere Ausscheidungspotential gegenüber dem 1.4988 zurückzuführen. Hier sind weitere Experimente erforderlich. Für experimentelle Untersuchungen der

113-12



<u>Abb. 6:</u> Durch Zyklotronbestrahlung bei 575 $^{\circ}$ C entstandene Poren (Dosis 3 x 10¹⁷ C²⁺ lonen·cm⁻²) a) Type 1.4988, lösungsgeglüht + 5-7% k.v. + 800 $^{\circ}$ C/1 h b) Type 1.4988, lösungsgeglüht + 20% k.v. c) Type 1.4981, lösungsgeglüht + 5-7% k.v. d) Type 1.4970, lösungsgeglüht + 15% k.v. + 800 $^{\circ}$ C/2 h Porenbildung und Hochtemperaturversprödung wurde vorrangig die Adaption der Schwerionenbeschleunigerbox für ihren Einsatz am Ionenbeschleuniger in Darmstadt (GSI) beschrieben. Das Bestrahlungsprogramm sieht zunächst die Simulation der Hochtemperaturversprödung mit Gas-Atomen der Energie <1 MeV im ppm- bis Prozentkonzentrationsbereich vor.

Die aus elastischen Streudaten nach niederenergetischem Ionenbeschuß (2 keV) gewonnenen repulsiven Potentialanteile der interatomaren Festkörperwechselwirkung wurden für die Berechnung von Festkörperwerten verwendet (elastische Konstanten, Debye-Temperatur, Bindungsenergie etc.). Die Berechnung erfolgte zunächst für Systeme mit Edelgaskonfiguration, so daß neben der repulsiven Born-Mayer-Wechselwirkung nur van-der-Waals-Kräfte zu berücksichtigen sind. Für die Edelgase liegen gegenwärtig die experimentell am besten abgesicherten Streudaten vor.

Veröffentlichung:

 K. Ehrlich, R. Groß Temperature dependence of void formation in different stabilized stainless steels.
 IAEA-Symposium on Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors Brüssel, 2.-6.7.1973

(a) Substanting equipment of the second second states are second to the second s Second s

(a) A the second second of the second s second s second s second s second sec second s second s second secon

114 KORROSIONSVERSUCHE UND KÜHLMITTELANALYSEN

1141 Natriumkühlung

1141.1 Korrosionsverhalten von austenitischen Stählen^{*} (H.U. Borgstedt, A. Marin, Helga Schneider, IMF; G. Drechsler G. Frees, K. Hitzig, IRB)

Der Hochtemperatur-Natriumprüfstand des IRB ist in Betrieb genommen worden. Der erste Lauf HT 1 einer Serie von vier Korrosionsversuchen an Hüllrohrinnendruckproben, die von INTERATOM gestellt worden sind, ist begonnen worden und hat im Berichtszeitraum eine Versuchszeit von 1750 Stunden (von 2500 vorgesehenen) erreicht. Neben den 60 Hüllrohrproben, von denen 54 unter Innendruck stehen, sind 21 Blechproben in die Hochtemperaturstrecken und 6 Flachproben in eine zusätzliche Teststrecke im kalten Kreislaufteil eingesetzt worden.

Die Versuchsbedingungen in den Versuchen der Serie sind die folgenden:

Temperatur im Testteil	600	°c
Temperatur in den Testteilen 2+3	700	°c
Strömungsgeschwindigkeit		
Testt. 1-3	5-6	m/s
Reynolds-Zahl	9 x	10 ⁴
laminare Grenzschicht im Na	5 x	10 ⁻⁶ m
Temperatur der kalten Teststr.	340	°c
Temperatur der Kaltfalle	150	- 185 °C
Sauerstoffgehalt	5 -	10 ppm

Während des Versuchs wurden im Natrium Messungen der Gehalte an Sauerstoff, Kohlenstoff und der metallischen Verunreinigungen und im Schutzgas Messungen der Gehalte an Wasserstoff, Stickstoff und Methan vorgenommen. Abb. 1 zeigt, daß der Sauerstoffgehalt im Natrium der Kaltfallentemperatur sehr gut entspricht. Die erste Versuchsunterbrechung ist für Ende Juli 1973 bei einem Stand von 2500 Stunden vorgesehen.

Die eingesetzten Werkstoffe sind die Hüllwerkstoffe 1.4970, 1.4981 und 1.4988 und die Strukturwerkstoffe X12CrMo 9 1, Incoloy 800 und 1.4301 sowie der Kreislaufwerkstoff 1.4919 in der kalten Teststrecke.



<u>Abb. 1:</u> Verlauf der Kaltfallentemperatur (t_{KF}) und der Ergebnisse der Sauerstoffmessung mit der Sonde Nr. TPE-1/349 von UNC (c_0) in den ersten 1500 Versuchsstunden. Der Anfangswert von 18 ppm ist chemischanalytisch bestätigt worden.

Im Versuch HT 1 wurden neue Heizstäbe zum Aufheizen des Natriums in den Hochtemperatur-Teststrecken bis 700 ^OC erstmals über eine längere Betriebszeit erprobt. Von den eingesetzten 72 elektrischen Heizern wurden während der Anfahrphase sechs Stäbe wegen instabilen Verhaltens selektiert und abgeschaltet. Die übrigen Heizstäbe gaben während des weiteren Verlaufs des Versuchs keine Anlässe zu weiteren Störungen.

1141.2 <u>Natriumkorrosionsuntersuchungen an verschleißfesten Werkstoffen</u>* (H.U. Borgstedt, IMF; G. Drechsler, G. Frees, E. Wild, IRB)

Nach dem Abschluß des ersten Laufs im Massetransportkreislauf MT-3 nach 1500 Stunden Expositionsdauer wurden die Gewichtsänderungen an den Proben aus Inconel 718 und Nimonic 90 untersucht. Die gefundenen Werte betragen 0,12 -0,17 mg/cm² und sind von der Probenposition abhängig (Downstream-Effekt). Die Gewichtsverluste bei beiden Werkstoffen sind etwa gleich hoch. Die Nachuntersuchungen an je einer der Korrosionsproben deuten jedoch qualitative Unterschiede im Verhalten beider Werkstoffe an.

Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen (siehe Abb. 2) zeigen, daß der Natriumangriff beim Nimonic 90 die Korngrenzenausscheidungen freilegt, während beim Inconel 718 Ausscheidungen auf der Kornfläche sichtbar werden. Diese Ausscheidungen sind möglicherweise für die Gleiteigenschaften des Inconel 718 von Bedeutung. Die Ergebnisse der Oberflächenröntgenspektrometrie sind bereits nach 1500 Versuchsstunden interessant.

Element			Werkstoffe		
	Nimon	ic 90		Incon	el 718
	vor	nach		vor	nach
Cr	20	30,5		23	26
Со	18	21		**	
Ni	58	45		63	55
Mo	. · · - ·	· .		9	11

Der Korrosionsversuch wird mit dem zweiten Lauf MT-3/2/73 bei 600 $^{\circ}$ C und v = 0,95 m/s fortgesetzt und hat eine kumulierte Expositionszeit von 2100 h erreicht. Die nächste Unterbrechung zur Gewichtskontrolle und zur Unter-suchung je einer weiteren Probe ist nach 3000 Stunden vorgesehen.



<u>Abb. 2</u>: Natriumeffekte auf die Oberflächen von Nimonic 90 (links) und Inconel 718 (rechts), beobachtet mit dem Rasterelektronenmikroskop. Unterschiedliches Verhalten der beiden Werkstoffe ist erkennbar. (Vergrößerung etwa 900:1)

1141.3 <u>Reinheit und Reinheitskontrolle des Natriums</u>* (Helga Schneider, IMF)

Auf Wunsch der Firma Interatom wurden drei NaCl-Proben der Firma Degussa auf Verunreinigungen analysiert. Interatom hat die mit Hilfe der Atomabsorptionsspektralphotometrie gefundenen Werte im IA-Beitrag zur 4. Sitzung des Unterausschusses 1 in Seibersdorf bekanntgegeben. Weiterhin wurden Analysen des Natriums aus dem KNK-Sekundärkreis und aus dem HT-Loop durchgeführt.

Das Schutzgas des HT-Loops wird mit Hilfe eines Massenspektrometers laufend auf seinen Heliumgehalt kontrolliert, um feststellen zu können, ob Helium aus einer Innendruckprobe ausgetreten ist. Es wurde bislang noch kein He-Anstieg im Schutzgas festgestellt. Außerdem wird das Schutzgas auf seine Gehalte an Wasserstoff, Stickstoff, Sauerstoff und Methan in regelmäßigen Abständen analysiert. Bei ungestörten Loop-Bedingungen kann nachfolgende, am 18.5.1973 durchgeführte Analyse als typisch angesehen werden:

> $H_2 = 30 \text{ vpm}$ $N_2 = 6 \text{ vpm}$ $O_2 = 1 \text{ vpm}$ $CH_4 = 0,1 \text{ vpm}$

Im Zusammenhang mit Sauerstoffbestimmungen in Natrium-Metall mit Hilfe der Vanadindraht-Methode stellte sich die Frage nach der günstigsten Vorbehandlung des Drahtes für die Sauerstoffbestimmung mit Hilfe der Heißextraktion. Es ging darum, die eventuell mit Sauerstoff angereicherte Oberfläche zu entfernen. Zur Debatte stand ein chemisches Abbeizverfahren und ein mechanisches Abschmirgeln der Oberfläche. Es zeigte sich, daß durch ein chemisches Abbeizen der Oberfläche zu hohe Sauerstoffwerte vorgetäuscht werden, ein mechanisches Abschmirgeln ist daher vorzuziehen. Bei diesen Untersuchungen zeigte es sich außerdem, daß der worhandene Vanadindraht während der Zeit der Lagerung an Luft offensichtlich erheblich Sauerstoff aufgenommen hat. Der Sauerstoffgehalt war von einem Ausgangsgehalt von 0,01% (Analysenzertifikat der Lieferfirma) auf 0,3% angestiegen. Er ist gleichmäßig in Oberfläche und Matrix verteilt, da die Werte ohne Vorbehandlung und nach Abschmirgeln keine Unterschiede zeigen:

Unbehandelt	:	0	=	0,29%/0,29%
geschmirgelt	:	0	=	0,30%
viel geschmirgelt	:	0	12	0,28%
gebeizt 10 sec	:	0	=	0,43%
gebeizt 2x10 sec	:	0	=	0,38%/0,49%
gebeizt min	•	0	=	0,63%

Es ist unbedingt erforderlich, daß Vanadindrähte, die für Sauerstoffbestimmungen in Na-Metall eingesetzt werden sollen, in trockener Inertatmosphäre gelagert werden.

1142 Dampf- und Gaskühlung

 Heißdampfkorrosion unter Wärmeübergang (HKW-Kreislauf)^G
 (V. Casal, F. Erbacher, J. Vasarhelyi, IRB; S. Leistikow, H. v. Berg, IMF)

Es kamen 12 neue Incoloy 800-Stäbe in geglühter, elektropolierter und in sandgestrahlter Ausführung zum Einsatz und erreichten Versuchszeiten von 240 - 785 Stunden. Vier geglühte und zwei sandgestrahlte Stäbe werden gegenwärtig im Kreislauf exponiert, davon hat ein sandgestrahlter 1300 Versuchsstunden bereits überschritten.

Zur Untersuchung des Einflusses höherer Dampfgeschwindigkeiten auf die Korrosion unter Wärmeübergang wurden zwei Wärmeübergangsteststrecken auf den Betrieb mit der verdoppelten Geschwindigkeit von 30 - 50 m/sec bei 450 - 620 ^OC, 150 at umgerüstet. Seit Mitte April sind darin geglühte Stäbe untersucht worden und haben 357, 411 und 854 Versuchsstunden erreicht.

Die bisherige Auswertung der korrodierten Stäbe nach 1100 - 1300 Versuchsstunden läßt etwa folgende Abhängigkeit der maximalen Metallverluste von der Oberflächenbeschaffenheit erkennen:

geglüht, elektropoliert:	450 mg/dm^2
20% verformt, elektropoliert:	300 mg/dm^2
sandgestrahlt:	150 mg/dm^2

In den isothermen Teststrecken werden gegenwärtig 241 Proben von 10 verschiedenen Materialien, davon 6 Rohrproben, exponiert. Aufgrund einer bislang noch nicht aufgeklärten Störung im vorletzten Lauf traten vor allem an den kaltverformten Proben der Beladung unverhältnismäßig hohe Gewichtszunahmen auf, so daß die Proben entnommen werden mußten und für weitere Untersuchungen entfallen. Die längsten Expositionen erreichen demnächst 4000 Versuchsstunden.

1142.3 <u>Gas-Korrosion</u>^G (S. Leistikow, IMF)

Die Vorversuche für die Auswahl eines geeigneten Heizleitermaterials zur Durchführung von Kreislauf-Korrosionsversuchen in Helium wurden fortgesetzt.

Korrosionsversuche an Rohrproben des Werkstoffs Nr. 2.4869 in Helium ergaben bei 1000 $^{\circ}$ C, 1 at, <3 ppm 0₂, <5 ppm H₂O innerhalb von 1000 Stunden kontinuierliche Gewichtsabnahmen von 150-160 mg/dm², die einhergehen mit einem Metallverlust von insgesamt 450-600 mg/dm². Der im Edelgas enthaltene Sauerstoff wurde vollständig aufgenommen. Die Verwendung dieses Werkstoffes ist also aufgrund seiner bei 1000 $^{\circ}$ C stark sauerstoff-getternden Eigenschaften, verbunden mit Verlusten flüchtigen Oxides, nicht möglich.

Die folgende Tabelle zeigt die Resultate gleichartiger Versuche mit anderen, meist austenitischen Materialien unter Angabe der gemessenen Gewichtsänderungen in mg/dm².

Korrosionsversuche in Helium (1000 $^{\circ}$ C, 1 at, 0_2 -Gehalt: 0,5-3 vpm, H_2° O-Gehalt: 1,7-5 vpm) zur Auswahl eines geeigneten Heizleiterwerkstoffs:

Werkstoff	<u>250 h</u>	<u>500 h</u>	<u>750 h</u>	
Nr. 1.4541	193/184			
Nr. 1.4571	60/71	71/87	108/101	
Nr. 1.4981	-69/-126	-95/-20		$\sqrt{\frac{1}{mg}}/\frac{1}{dm^2}$
Nr. 1.4988	117	163		<u> </u>
Incoloy 800	150/165			
Hastelloy X	140/158			

Durch diese Versuche erfüllte sich zwar die Erwartung verminderter Gewichtsverluste durch flüchtige Oxide infolge höherer Eisengehalte der Legierungen, doch wurden von allen Werkstoffen erneut wesentliche Mengen des angebotenen Sauerstoffes verbraucht, so daß stärkere und weiterwachsende Oxidschichten gebildet wurden. Ihre mechanische Stabilität bei Temperaturwechsel entsprach nicht den Anforderungen. An diesem Materialverhalten änderteneine Voroxidation bei etwas tieferer Temperatur und eine kaltverformende Oberflächenbehandlung nichts. Daher können auch diese Materialien nicht verwendet werden.

Der Bau der Kreislauf-Teststrecke wird deshalb erst ausgeführt, wenn sich eine alternative Methode der direkten Beheizung der Prüflinge oder der Einsatz von Lanthanchromit als sauerstoffunempfindliches Heizleitermaterial als durchführbar erweist.

115 ARBEITEN ZUM BRENNSTOFFZYKLUS

1152 Kernbrennstoff- und Spaltproduktanalyse*

1. <u>Abbrandbestimmung an Proben der FR2-Kapselversuchsgruppe 4b und an Kriech-</u> proben¹⁾

(H. Wertenbach, E. Bolz, E. Gantner, K. Matern, IRCh)

Im IRCh werden routinemäßig Abbrandanalysen an bestrahlten Kernbrennstoffprüflingen durchgeführt / 1, 2, 3 /.

FR2-Kapselversuchsgruppe 4b:

Nach Abschluß der Untersuchungen an der FR2-Kapselversuchsgruppe <u>4a</u> <u>/</u> 4<u>/</u> gelangten die Prüflinge der FR2-Kapselversuchsgruppe <u>4b</u> zur Abbrandanalyse. Bis zum Ende des 2. Quartals 1973 konnten 8 Stäbe aus den Kapselversuchseinsätzen 47 und 48 analysiert werden. Der Abschluß der Untersuchungen an den restlichen Kapselversuchseinsätzen der Gruppe 4b wird gegen Ende des 3. Quartals erfolgen.

Die Prüflinge dieser Versuchsgruppe bestanden aus $UO_2 - 20$ Gew. 7 PuO_2 -Brennstoff in Form von Tabletten oder einvibriertem Pulver. Der Durchmesser lag zwischen 5,0 und 5,26 mm. Das Uran hatte vor der Bestrahlung natürliche Isotopenzusammensetzung; Plutonium enthielt 90, \$7 Pu-239. Angestrebt war ein mittlerer Abbrand von 80000 MWd/t bei einer mittleren Stableistung von 500 W/cm <u>/</u>5_7.

Die sehr ähnliche FR2-Kapselversuchsgruppe 4a erreichte dagegen Stableistungen von max. 700 W/cm. Das führte zu außergewöhnlich starken thermischen Belastungen der Prüflinge. Dabei trat eine starke Uran-Plutonium-Entmischung in radialer und axialer Richtung sowie teilweise zentrales Schmelzen des Brennstoffs auf / 4, 6/. Bei der Abbrandbestimmung durch Messung der schweren Kerne sowie eines oder mehrerer ausgewählter Spaltproduktnuklide muß unter solchen Bedingungen mit einer Verfälschung der Abbrandwerte gerechnet werden. Tatsächlich wurden bei der FR2-Kapselversuchsgruppe 4a zum Teil extreme Unterschiede zwischen den kalorimetrischen und radiochemisch bzw. massenspektrometrisch gefundenen Abbrandergebnissen festgestellt / 4.7

1)Zuletzt berichtet in KFK 1272/1

Bei der FR2-Kapselversuchsgruppe 3 mit angereichertem UO₂ als Brennstoff wurden ebenfalls starke Diskrepanzen zwischen den kalorimetrisch und den radiochemisch bzw. massenspektrometrisch ermittelten Abbrandresultaten registriert (im Mittel 13 %). Die Ursachen dafür sind jedoch in den Faktoren Strahlenschäden der Thermoelemente und Schwankung der Kühlmitteltemperatur während der Bestrahlung zu suchen <u>/3</u>7.

Durch die starke Uran-Plutonium-Entmischung bei der FR2-Kapselversuchsgruppe 4 a sind die anderen Ursachen nicht so klar erkennbar, jedoch deuten die Abbrandergebnisse an den ungeschmolzenen Prüflingen auf eine Strahlenschädigung der Thermoelemente hin.

Bei den niedriger belasteten Prüflingen der Kapselversuchseinsätze 47 und 48 unterblieb das zentrale Schmelzen. Somit waren extreme Verfälschungen der Abbrandergebnisse durch Wanderung der Spaltproduktnuklide bzw. des Brennstoffs nicht mehr zu befürchten. Um aber zuverlässige Werte zu erhalten, wurde der Abbrand nach mehreren voneinander unabhängigen Methoden bestimmt bzw. überprüft:

- über Ce-144 und der Summe der schweren Kerne
- über Nd-148 und der Summe der schweren Kerne
- Abreicherung des Plutoniums und des U-235 im Brennstoff
- Korrelation zwischen dem Abbrand und dem Verhältnis Nd-146/Nd-145.

Tabelle 1:Abbrandbestimmung an den Kapselversuchseinsätzen47 und 48

Abbrand		KVE 47		
(MWd/t)	- 4 B 1 -	- 4 B 2 -	- 4 B 3 -	- 4 B 4 -
Ce-144	101100	99700	100700	95200
Na-148	103800	100100	-	95400
Pu-Abreichg.	(147000)	102500	99000	(139000)
Gew.Mittelwert	103000	100000	100000	95300
ی هی کار این کار این کار این کار این کار این این کار ای این میراند این کار این ک	ann ann ann aige ann ann ann ann ann ann ann ann ann an			
Abbrand (MWd/t)	- 4B5-	кvе 48 - 4 в 7 -	- 4 в 8 -	- 4 B 9 -
Ce-144	955 00	93800	95200	89300
Nd-148	9 54 00	92700	94200	87400
Pu-Abreichg.	93200	96900	97300	87000
Gew.Mittelwert 95100		93800	95100	88000

Für alle Prüflinge liegen – mit Ausnahme des Prüflings $4 \ge 3^{+}$ – Abbrandwerte über Nd-148 vor. Man sieht die gute Übereinstimmung mit den Ce-144-Werten und – abgesehen von den Prüflingen 4 B l und 4 B 4 – mit dem über die Abreicherung des Plutoniums erhaltenen Resultaten.

In Abbildung 1 ist der gewichtete Mittelwert der Abbrandergebnisse gegen das Verhältnis Nd-146/Nd-145 aufgetragen. Aus der geringen Streuung der Meßwerte kann man schließen, daß auch der Mittelwert des Abbrandes über Ce-144 und Nd-148 bei den Prüflingen 4 B 1 und 4 B 4 zumindest innerhalb der Fehlergrenzen $\leq \frac{1}{2}$ 5 % richtig ist.

+) Verlust der Probe



<u>Abb. 1</u>: Korrelation zwischen dem Abbrand und dem Nd-146/145 Verhältnis für KVE 47 und 48.

Tabelle 2:	Isotopenzusammensetzung des Spaltneodyms	ln
	den KVEs 47 und 48	

Masse	- 4 B 1 - R	KVE 47 - 4 B 2 - R	- 4 B 3 - R	- 4 B 4 - R
143	2.179	2.200	2.201	2.262
144	2.732	2.694	2.674	2.684
145	1.779	1.761	1.755	1.800
146	1.576	1.556	1.549	1.579
148	1.000	1.000	1.000	1.000
150	0.5662	0.5633	0.5705	0.5702
Masse	- 4 B 5 - R	KVE 48 - 4 B 7 - R	- 4 B 8 - R	- 4 B 9 - R
143	2.245	2.225	2.231	2.324
144	2.635	2.613	2.616	2.592
145	1.767	1.761	1.751	1.781
146	1.546	1.541	1.528	1.540
148	1.000	1.000	1.000	1.000
150	0.5678	0.5623	0.5662	0.5667

$$R = \frac{Ma}{Ma-148}$$
; $n = 143$, 144 150

MA

Kriechproben:

Wesentlich unproblematischer als bei der FR2-Versuchsgruppe 4 b gestaltete sich die Abbrandbestimmung an den Prüflingen zur Untersuchung des Kriechens keramischer Brennstoffe. Aufgrund der günstigen Anordnung des Brennstoffs <u>77</u> konnte sich kein namenswerter Temperaturgradient in axialer und radialer Richtung aufbauen. Somit konnte Cs-137 als Abbrandmonitor neben Ce-144 verwendet werden. Auf die aufwändigere massenspektrometrische Bestimmung des Nd-148 wurde verzichtet.

Die Ergebnisse sind in Tabelle ³ zusammengestellt. Sie lassen - mit Ausnahme des Kapselversuchseinsatzes 98 - nur geringfügige Verluste des Cs-137 durch Diffusion vermuten. Der Fehler des gewichteten Mittelwertes wird auf $\leq \frac{+}{5}$ % geschätzt.

Tabelle 3: Abbrandbestimmung an Kriechproben

Kapselversuchs- einsatz Nr.	85	87	89	90	98
Prüfling Nr.	- E 12 E 13 -	- D 6/35 -	- E 14 E 15 -	- D 5/38 -	- E 20 -
Brennstoff	U02	U02	UN	UN	U02-Pu02
Anreicherung % U-235	15	8	8	8	15 PuO2
Abbrand (MWd/t) über					
Ce-144	44600 42800	29000	18400 18800	27900	4600
C s-13 7	44000 38800	28900	17600 18500	27900	(3000)
Gew. Mittelwert	<u>44400 41400</u>	<u>29000</u>	<u>18100 18700</u>	27900	<u>4600</u>

Literatur:

- [1] H. Hoffmann, IMF, H. Wertenbach, IRCh: Abbrandbestimmungen an der FR2-Kapselversuchsgruppe 3 KFK 1271/2, S. 115-1 (1971)
- /2/ H. Wertenbach, E. Gantner, IRCh: Abbrandanalyse KFK 1271/1, S. 115-1 (1972)
- [3] H. Hoffmann, H. Wertenbach: Abbrandbestimmung an Kernbrennstoffprüflingen im FR2
 KFK 1704 (April 1973) - (Veröff. im Berichtszeitraum)
- [47 D. Freund, Th. Dippel, D. Geithoff, P. Weimar: Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der UO₂/PuO₂-Brennstab-Bestrahlungsexperimente der FR2-Kapselversuchsgruppe 4 a. KFK 1523 (April 1973)
- [5] D. Freund: Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der Oxidbrennstabproben im FR2
 KFK 1376 (Mai 1972)
- [6] W. Dienst, O. Götzmann, H. Kleykamp, C. Ondracek, B. Schulz,
 H. Zimmermann: Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten UO₂-PuO₂-Brennstäben der Versuchsgruppe FR2-4 a KFK 1727 (Jan. 1973)
- [7] D. Brucklacher, W. Dienst: Creep Behavior of Ceramic Nuclear Fuels under Neutron Irradiation
 J. Nucl. Mat. 42 (1972) 285-296

2. <u>Kolorimetrische Spurenbestimmung von Uran in plutoniumhaltigen</u> Lösungen¹⁾

(E. Mainka, W. Coerdt, IRCh)

Zur Bestimmung von Uranspuren in wässrigen und organischen Lösungen werden in den meisten Fällen colorimetrische Verfahren eingesetzt. Uran bildet mit vielen in der analytischen Chemie häufig benutzten Farbkomponenten stabile Komplexe, deren molare Extinktionskoeffizienten meist hoch sind, sodaß der Nachweis im Mikrogrammbereich geführt werden kann. Häufig sind aber diese Komplexe wenig spezifisch, d.h., daß auch andere Elemente, wie z.B. Thorium und die Transurane, vergleichbare Komplexe bilden. Für unsere Arbeit bedeutet dieses, daß Abtrennungen notwendig sind, Der Erfolg des Analysenverfahrens wird weitgehend davon abhängen, mit welchem Reinheitsgrad eine solche Trennung durchgeführt wird.

Als Trennschritte werden neben Ionenaustauscherverfahren auch Extraktionen benutzt. Für Uran hat man vor allem die Extraktion des Nitrates eingehend untersucht. Eine Literaturübersicht findet sich in /1/.

Zur Extraktion werden sauerstoffhaltige Mittel, wie z.B. Äther, Ketone und Ester, bevorzugt eingesetzt. Der Vorteil der Extraktion als Uranylnitrat liegt in der Tatsache, daß unter diesen Bedingungen nur relativ wenig andere Elemente mitextrahiert werden. Die Anzahl der mitextrahierten Elemente ist abhängig vom Extraktionsmittel und von den verwendeten Arbeitsbedingungen. Wichtig ist in diesem Zusammenhang die Konzentration der Salpetersäure sowie das benutzte Aussalzreagens und dessen Konzentration. Das Analysenverfahren muß also den jeweiligen Ausgangsbedingungen angepaßt werden. Die Extraktion mit Tributylphosphat (TBP) zur Isolierung des Urans wie auch die Ausschüttelung des Urans als Tetrapropylammoniumuranylnitrat (TPAN) mit Methylisobutylketon (MIEK) gehören zu den am häufigsten benutzten Extraktionssystemen. In beiden Fällen erreicht man sehr hohe Verteilungskoeffizienten, sodaß mit einem

1) Erster Bericht

einzigen Extraktionsschritt ~ 99 % des zu bestimmenden Urans isoliert werden können. Je nach der Aufgabenstellung wird das eine oder andere Extraktionssystem bevorzugt. Für die Spurenbestimmung von Uran in reinen Plutoniumlösungen verwenden wir die TBP-Extraktion /2/. Nachdem Francois [3] zeigen konnte, daß bei Extraktionen mit geringeren TBP-Gehalten die Uranabtrennung spezifischer wird, sind verschiedene Verdünnungsmittel erprobt worden. Bei der Wahl dieser Mittel ging man davon aus, daß die uranhaltige Lösung auch unter diesen Bedingungen leichter als Wasser sein soll, und daß außerdem der gute Verteilungskoeffizient erhalten bleiben soll, d.h., mit einem Extraktionsschritt soll die quantitative Abtrennung erreicht werden. Für eine gute Phasentrennung ist weiter eine geringe Wasserlöslichkeit von Bedeutung. Da außerdem angestrebt wird, das Uran direkt in der organischen Phase zu messen, ist ein niedriger Dampfdruck hilfreich. Auf diese Weise kann der Fehler. der durch Verdampfung eintreten kann. ausgeschaltet werden. In Tab. 4 sind die interessierenden Daten für die zwei in der Literatur benutzten Verdünnungsmittel gegenübergestellt.

Tabelle 4:

Verdünnungs-	Dichte	Siedetemperatur	Wasserlöslichkeit
mittel	(g/ml)	(bei 760 mm)	(g/100 ml)
Benzol	0.87	80.1	0.08
Isooctan	0.68	99.2	nicht meßbar

Wie aus Tabelle 4 zu ersehen ist, entsprechen die Werte von Isooctan den zuvor dargelegten Anforderungen in einem höheren Maße als die vergleichbaren von Benzol. Wie haben bei unserem Verfahren deshalb Isooctan als Verdünnungsmittel gewählt. Mit einem Mischungsverhältnis TBP : Isooctan (l : 10) erreicht man eine relativ hohe Selektivität für das Uranylion. Nur Bi-III und Th-IV werden unter diesen Bedingungen mitextrahiert; vorausgesetzt, daß Ce-IV und Pu-IV zu den dreiwertigen Spezies reduziert worden sind [3].

Als kolorimetrisches Reagens wird Dibenzoylmethan eingesetzt. Der Uranylkomplex ist sehr stabil und hat ein hohes Absorptionsvermögen. Es ist möglich, den Farbkomplex direkt in der organischen Phase zu messen, wodurch das Verfahren wesentlich vereinfacht wird.

Arbeitsvorschrift:

Eine Probe, die bis zu 5 mg Plutonium enthalten kann, wird in einem Teflonbecher unter einer Infrarotlampe zur Trockne eingedampft. Der Rückstand wird in einem ml l n HNO3 wieder gelöst. Man fügt 50 μ l einer 2 m Fe(NH₂SO₃)₂ zu /2/. Die Lösung nimmt sofort eine blaue Farbe an. Man läßt sie 5 min stehen, um eine vollständige Reduktion zu erreichen.

Anschließend wird tropfenweise NH3 (\sim 3 m) zugegeben, bis das Eisen beginnt auszufallen.

Man setzt dann 8 ml einer 2.4 M wässrigen Al(NO₃)₃-Lösung zu. Das Eisen wird dadurch wieder gelöst.

Mit 3 ml TBP : Isooctan (1 : 10) wird 30 sec extrahiert. Die Phasentrennung erfolgt sehr schnell.

Es empfiehlt sich 5 x mit 500 µl der Al(NO3)3-Lösung, der 2 Tropfen der Eisen-II-sulfamat-Lösung zugesetzt worden sind, die organische Phase zu waschen.

Ein Aliquot (etwa 2 ml) des so behandelten organischen Extraktes wird in einem 25 ml Meßkolben überführt und mit der vorbereiteten Aceton-Wasser-Lösung von Dibenzoylmethan aufgefüllt. Der Lösung ist außerdem Pyridin als Puffer zugesetzt. Sie setzt sich wie folgt zusammen: 0.138 g Dibenzoylmethan, 809 ml Aceton, 43,5 ml Pyridin werden mit H₂O auf ein Volumen von einem Liter gebracht. Der Uranyldibenzoylmethankomplex kann nach 1 Stunde in einer 1 cm-Küvette bei 410 nm gemessen werden.

Abb. 2 zeigt die so ermittelte Eichkurve. In Tab. ⁵ sind die Ergebnisse zusammengefaßt.

Tabelle 5:

μg U vorgelegt	rel.Standard- abweichung	(V) %
45 µg	± 1.01 μg	2.2
90 µg	± 1.48 μg	1.6
130 µg	± 1.37 µg	1.1
315 µg	± 0.42 μg	0.13
350 µg	± 2.8 µg	0.80
450 µg	± 3.2 µg	0.71
	· ·	

Wie aus Tabelle 5 zu ersehen ist, ist mit diesem Verfahren im allgemeinen eine Varianz (V) kleiner 2 % zu erreichen. Die Eisen-II-sulfamat-Lösung wird wie folgt hergestellt 27: 30 ml H₂0 werden bis zum Kochen erhitzt. In das heiße Wasser gibt man zuerst 21 g NH₂SO₃H und anschließend 5.5 g Fe-Pulver. Nachdem alles gelöst ist, wird gefiltert und nach dem Erkalten auf 50 ml H₂O aufgefüllt. Das Reagens ist 5 - 6 Tage stabil, wenn es im Kühlschrank aufbewahrt wird.

Literatur:

- [1] D.G. Koch, G.A. Koch-Dedic; Handbuch der Spurenanalyse, Springer Verlag 1964
- [2] R.F. Buchanan et al.; Talanta Vol. 6 (1960) S.173/S.181
- [3] C.A. Francois; Anal. Chem., Vol. 30 (1957) S. 50



Abb. 2 : Eichkurve für die photometrische Uranbestimmung mit Dibenzoylmethan bei 410 nm PMQ II (Spalt 0,02 mm)

121 PHYSIKALISCHE EXPERIMENTE

1211 Experimentelle Reaktor- und Neutronenphysik

1211.1 Meßmethoden für Nulleistungsreaktoren

Einfluß von Ätzparametern auf die Computerauswertung von SSTR-Spaltgas-Detektoren ^G1)

(R. Papp, IASR)

Im Zuge der Untersuchung des Einflusses der Spurengrößen von Spaltbruchstücken in Festkörperdetektoren (Makrofol) auf das Zählergebnis der Computerauswertung wurden umfangreiche Ätzserien durchgeführt. Zwölf Detektoren wurden unterschiedlich lang mit Californium bestrahlt und Spurendichten von etwa 2000 bis 7000 Spuren pro mm² erzeugt. Anschließend erfolgte eine 25-minütige Ätzung in KOH und die Auszählung der Folien. Unterschiedliche Spurengrößen konnten anschließend durch mehrmaliges zusätzliches Ätzen (jeweils 5 Minuten) erreicht werden.

Als Ergebnis der zwischen den Ätzdurchgängen jeweils durchgeführten Computerauswertungen erhielt man einen Zusammenhang zwischen Spurendichte und Spurengröße, wobei sich für jede Folie (die Folien weisen untereinander verschiedene Spurendichten auf) eine Kurve ergab, die durch eine Gerade angenähert werden kann (siehe Abb. 1). Die Zahlen an den Geraden geben die wahren Spurendichten für die jeweiligen Folien an.

Die beiden gestrichelten Kurven sind Beispiele für die auf andere Art gewonnenen Spurendichte-Spurengröße-Zusammenhänge; dabei hatte man eine Änderung der Spurengröße mit Hilfe einer Verstellung des Diskriminators erzielt.

¹⁾Letzter Bericht in KFK 1272/4

Noch ungeklärt ist, warum selbst bei exakt gleichen Ätzbedingungen von Folie zu Folie Spurengrößenschwankungen von ± 15% um einen Mittelwert auftreten können. In der Literatur [1] wurde dafür ein Wert < 10% angegeben, doch brachte eine Rückfrage an entsprechender Stelle keine weitere Klarheit.

Weitere Arbeiten zum Zwecke der Spurengrößenanalyse sollen Aufschluß über die Reproduzierbarkeit der gemessenen Kurven liefern, wobei unterschiedliche Spurengrößen nun nicht durch wiederholtes zusätzliches Ätzen, sondern verschieden langes Ätzen mehrerer Folienserien hergestellt werden sollen.

Darüberhinaus soll Klarheit über die Gründe der Schwankung der Spurengrößen bei identischen Ätzbedingungen geschaffen werden.

Referenz

[1] R. Gold, C.E. Cohen

The Review of Scientific Instruments, 43 (Jan. 1972)

and the second second second second



Eine der Anordnung SNEAK 7A sehr ähnliche Anordnung "SUAK 7A" wurde zur Messung des Neutronenspektrums aufgebaut. SUAK 7A enthält die gleiche Core-Mischung wie SNEAK 7A aus UO_2/PuO_2 mit 7,7% Anreicherung und Graphit. Der Reflektor wurde aus Nickel und Eisen gebaut. Die Elemente sind auf einer Gitterplatte mit 54,4 mm als Gitterkonstante aufgebaut. Der Aufbau wurde so gewählt, daß

- i) der gleiche Aufbau für alle Teilmessungen des Neutronenspektrums benutzt werden konnte, und
- ii) für die Interpretation mehrere Möglichkeiten zur geometrischen Beschreibung in der Rechnung offenbleiben.

Das Neutronenspektrum wurde von 60 eV bis 10 MeV bestimmt. Hierzu wurden 5 Teilergebnisse, die mit unterschiedlichen Meßtechniken gewonnen worden waren, zu einem Bestspektrum vereinigt. Die Teilergebnisse sind in Abb. 2 gezeigt, der Deutlichkeit wegen versetzt. Als Bezugskurve dient das Bestspektrum.

Die Messung nach der Flugzeitmethode (1) wurde mit einer Flugstrecke von 52 m und einer Zeitauflösung von 0,5 µs durchgeführt. Als Neutronenquelle diente die Neutronen-Blitzröhre mit 200 Pulsen pro Sekunde bei einer Quellstärke von 10¹⁴ n/s. Das Abklingen des Neutronenflusses wurde mit Hilfe des Programms DECO aus der Flugzeitverteilung herausgefaltet. Die Messung enthält die folgenden mittleren Fehler: 100 eV-11,5%; 300 eV-7,7%; 1 KeV-5.2%; 3 KeV-3.0%; 10 KeV-4.2%; 30 KeV-5,7%; 100 KeV-6.0%; 250 KeV-6.0%; 700 KeV-10%. Hierin sind die Fehler der Untergrundbestimmung und der Ansprechwahrscheinlichkeit enthalten. Der statistische Fehler wurde nicht eingeschlossen, weil er bei der Integration nach größeren Gruppen entfällt. Die übrigen Teilspektren sind nach der Größe des erfaßten Lethargiebereichs geordnet, zur Übersicht werden die folgenden entsprechenden Abschritte wie in Abb. 2 mit A...D bezeichnet.

1)Letzter Bericht in KFK 1272/4
- A: Das mit Rückstoßprotonen-Proportional-Zählrohren in einem extrahierten und kollimierten Strahl gemessene Teilspektrum ist aus zwei Teilen mit den Meßbereichen 0,13 bis 1,2 MeV und 0,6 bis 6,5 MeV zusammengesetzt. Als Neutronenquelle wurde der Kaskadengenerator im Gleichstrombetrieb mit etwa 10⁸ n/s verwendet. Die Verbindung der beiden Teilmessungen zu einer einzigen erfolgt über die Absoluteichung, die bei diesem Detektortyp durch die einfache Geometrie möglich ist. Allerdings sind die statistischen Fehler bei dieser Meßart nicht zu vernachlässigen; 10%. Ein systematischer Fehler von schwer abzuschätzender Größe entsteht durch den Zusatz von He-3 zum Eichen des Spektrometers. Bei der Subtraktion des 700 KeV-Eichpeaks vom Meßspektrum entsteht eine Unsicherheit, die man von 600 bis 800 KeV reichend vermuten muß.
- B: Im gleichen Strahl wurde auch mit dem NE 213-Szintillations-Spektrometer /1_7 gemessen. Der Meßbereich ist 0,4 bis 6 MeV, er kann bis 10 MeV ausgedehnt werden, wenn der Fluß oberhalb 6 MeV abnimmt. Der mittlere Fehler ist 5% oberhalb 0,8 MeV, darunter sind systematische Fehler zu erwarten, die 10% übersteigen.
- C: Die Incore-Messung mit dem Proportional-Kugelzähler ist aus zwei Messungen zusammengesetzt, die von 81 KeV bis 600 KeV und von 120 KeV bis 0,8 MeV reichen. Als Neutronenquelle dienten die Neutronen der Spontanspaltung von Pu-240. Zwei weitere Teilmessungen, die den Meßbereich auf 50 KeV bis 1,4 MeV erweitert hätten, mußten leider wegen unkorrigierbarer systematischer Fehler ausgeschieden werden. Die statistischen Fehler sind mit 57 anzusetzen, systematische Fehler unbekannter Größen an den Enden des Meßbereichs.
- D: Die zweite Incore-Messung mit dem Hochdruck-Protonenrückstoß-Zähler, in dem die Gasionisation ohne Multiplikation gemessen wird, hat einen Meßbereich von 0,6 MeV bis 3 MeV. Als Quelle genügte die Spontanspaltung des Pu-240, es wurde aber auch eine Messung mit zusätzlichen 14 MeV-Neutronen durchgeführt. Wie erwartet wurde das Spektrum dabei härter, aber die Änderung des Verhältnisses der Flüsse bei 800 KeV zu denen bei 2,4 MeV betrug nur 5%, daher wurde dieser Unterschied vernachlässigt. Der mittlere Fehler dieser Messung wird mit dem Fehler in der Messung C vergleichbar angesetzt.

Beim Vereinigen der Teilspektren zu einem Bestspektrum wurden die Teile A, B und D im Bereich 0,8 MeV bis 2 MeV aneinander normiert. Das Anhängen des Teilspektrums D wurde bei 700 KeV stärker gewichtet als bei 200 KeV, weil dort drei Teilmessungen vorlagen. Das Flugzeitspektrum ließ sich in einem so breiten Bereich an das mit den Rückstoßprotonen-Methoden gemessene Teilspektrum normieren, daß der dabei entstandene Fehler klein ist gegenüber dem, der durch das Normieren von C an die übrigen drei entstand. Dieser wird zu 4% aus den Fehlern der Teilmessungen abgeschätzt. Damit setzt sich das Fehlerband ab der Flugzeitmessung folgendermaßen fort: 700 KeV-7%; 1 MeV-7%; 3 MeV-7%; 10 MeV-10%.

Bezieht man die Fehlerangaben auf ein Flußintegral von 100 KeV bis 1 MeV, dann sind die Enden des Spektrums bei 100 eV und 10 MeV auf 12Z genau. In Abb. 3 wird das experimentelle Spektrum mit einem gerechneten verglichen. Die Rechnung wurde mit DIXY in (x,y)-Geometrie durchgeführt $\sqrt{2}$, dabei wurde der KFKINR-Gruppensatz verwendet $\sqrt{3}$. Die Ergebnisse von Messung und Rechnung wurden bei 2 MeV normiert, wo das Spaltspektrum dominiert. Zwar kann die Rechnung nicht als endgültig betrachtet werden, aber es ist auch nicht mehr zu erwarten, daß durch eine bessere Beschreibung der Anordnung in der Rechnung die Diskrepanzen, die ein Vielfaches des Meßfehlers betragen, verschwinden.

Veröffentlichung im Berichtszeitraum:

 F.W. Kappler, D. Rusch and E. Wattecamps Nucl. Instr. and Meth. 110 (1973)

Literaturhinweise:

/ 1_7N. Pieroni, D. Rusch, E. Wattecamps

Measurement of time-dependent fast Neutron Spectra with a NE 213 Scintillator

vorgesehen für Nucl.Instr. and Meth.

- $\sqrt{27}$ W. Höbel et al. KFK-Bericht in Vorbereitung
- <u>/</u><u>3</u>/ E. Kiefhaber: KFK 1572 (1972)



Abb. 2: SUAK 7A - Aufbau und Neutronenspektrum



Abb, 3: SUAK 7A; Vergleich des gemessenen Neutronenspektrums mit einem gerechneten

1213 SNEAK

1213.6 SNEAK-9A*

 Messung des Reaktivitätswertes von simulierten SNR-Kontrollstäben in den Anordnungen SNEAK-9A-1 und -9A-2

(M. Pinter, IASR)

Einleitung

Ziel der Anordnung SNEAK-9A war eine Nachbildung des SNR hinsichtlich seiner Kontrollstäbe. Der Aufbau erfolgte in 3 Schritten: SNEAK-9A-0, -9A-1 und -9A-2. Einzelheiten über diese 3 Cores und das Meßprogramm wurden bereits in [1] ausführlich beschrieben.

Die SNR-Kontrollstäbe werden in 3 Gruppen eingeteilt:

- RT1 erstes Regeltrimmsystem, bestehend aus 3 Kontrollstäben in der Innenzone
- A Abschalt- oder Sicherheitssystem, bestehend aus 3 Kontrollstäben in der Innenzone
- RT2 zweites Regeltrimmsystem, bestehend aus 6 Kontrollstäben in der Außenzone

Die Positionen der Kontrollstäbe sind in den Anordnungen SNEAK-9A-1 und -9A-2 identisch (siehe Abb. 4 und 5), es werden aber in den beiden Anordnungen verschiedene Zustände der Regeltrimmsysteme nachgebildet. In SNEAK-9A-1 sind alle Kontrollstäbe "ausgefahren", d.h. es befindet sich Absorbermaterial (B_4C) im oberen axialen Blanket und Nachfolgermaterial (= Natrium) im Bereich des Cores und des unteren axialen Blankets. In SNEAK-9A-2 sind die Kontrollstäbe der beiden Regeltrimmsysteme teilweise eingefahren, d.h. es befindet sich auch im Corebereich Absorbermaterial. Der dadurch entstehende Reaktivitätsverlust wurde durch eine Vergrößerung der Außenzone des Cores ausgeglichen. Der kritische Zustand von SNEAK-9A-2 wurde mit drei verschiedenen Eintauchtiefen erreicht (gemessen in cm von der oberen Core-Blanket-Grenze RT1/RT2)

> - 40/40 - 28/50 - 58/20

Mit SNEAK-9A-1 wurde also - hinsichtlich der Kontrollstabstellung - der SNR am Ende eines Brennstoffzyklus nachgebildet, während mit SNEAK-9A-2 mögliche Zustände am Beginn eines Zyklus nachgebildet wurden.

Neben der Nachrechnung der Kritikalität waren es vor allem zwei Punkte, die einen wesentlichen Teil des Meßprogrammes ausmachten:

- Messung der Leistungsverteilung bei den drei oben angeführten kritischen Zuständen von SNEAK-9A-2

- Messung des Reaktivitätswertes der Kontrollstäbe bei verschiedenen Stellungen in SNEAK-9A-1 und -9A-2.

Über die Messung der Leistungsverteilung wird von R. Böhme in [2] und [3] berichtet, während im folgenden die Reaktivitätswertmessungen beschrieben werden. Zur Messung des Reaktivitätswertes der Kontrollstäbe wurden folgende zwei Methoden verwendet:

- quasikritische Messungen
- unterkritische Messungen

Bei dem quasikritischen Verfahren wird der Reaktivitätshub des Kontrollstabes mit geeichten SNEAK-Trimmstäben kompensiert. Diese Methode eignet sich am besten für kleine Reaktivitäten ($\rho < 1\%\Delta k$), und wurde daher nur verwendet, um die differenzielle Reaktivitätsänderung mit der Eintauchtiefe, $\Delta \rho / \Delta z$, eines Kontrollstabes in der Nähe des kritischen Zustandes zu messen. Der Großteil der Messungen bestand jedoch aus Bestimmung des Reaktivitätswertes jeweils eines gesamten Regeltrimmsystems, wobei natürlich Reaktivitätswerte von weit mehr als 1% Δk zu erwarten waren. Diese Messungen wurden daher unterkritisch durchgeführt.

Bei Vorversuchen hatte sich herausgestellt, daß in einem schnellen Reaktor vor allem zwei unterkritische Methoden besonders geeignet sind:

- die unterkritische Quellmultiplikation
- das source-jerk-Verfahren.

Bei der unterkritischen Quellmultiplikation wird der Zusammenhang zwischen Reaktivität ρ und reziproker Zählrate Z eines Detektors verwendet

$$\rho \equiv \frac{1-k}{k} = \varepsilon \cdot \frac{1}{Z}$$

Im Punktreaktormodell ist ε eine Konstante, die man durch Registrierung der Zählrate bei einem bekannten unterkritischen Zustand bestimmen kann. ε setzt sich dabei im wesentlichen aus der Detektorempfindlichkeit und der Quellstärke der Neutronenquelle zusammen.

Betrachtet man jedoch einen reellen Reaktor, so sieht man sofort, daß ɛ bei verschiedenen Zuständen des Reaktors verschiedene Werte annehmen kann. Erstens, da sich der Fluß beim Einbringen einer lokalen Störung (z.B. Einfahren eines Regeltrimmsystems) an verschiedenen Stellen des Reaktors verschieden stark ändert und sich somit die Detektorempfindlichkeit (= Impulse/ Gesamtzahl der Spaltneutronen) ändert, und zweitens, da sich die Neutroneneinflußfunktion am Ort der Neutronenquelle und somit die effektive Ouellstärke ebenfalls ändert. Bei der Anwendung der Quellmultiplikationsmethode müssen daher Korrekturfaktoren berechnet werden, die die Änderung von ε mit dem jeweiligen Reaktivitätszustand möglichst gut beschreiben. Da bei einem Urancore mit zentraler Cf-Quelle (SNEAK-9A) Korrekturfaktoren bis zu einer Größenordnung von 20% festgestellt wurden, sind die Rechenmethoden möglichst gut den tatsächlichen geometrischen Verhältnissen anzupassen.

Als zweite Methode wurde zu Vergleichszwecken die source-jerk-Methode verwendet. Eine Neutronenquelle wird in den Reaktor gebracht und so lange gewartet, bis sich der stationäre Zustand eingestellt hat. Dann wird die Quelle möglichst schnell aus dem Reaktor entfernt, wobei eine Flußänderung auftritt, deren Zeitverlauf eindeutig dem Reaktivitätszustand des Reaktors zugeordnet ist. Während des ganzen Vorganges wird der Neutronenfluß registriert. Die Reaktivität erhält man dann durch Auflösung der inverskinetischen Gleichungen nach dem Quellterm mit den Nebenbedingungen, daß die Quellstärke nach dem "Quellsprung" und die Reaktivität konstant sein müssen, auf iterativem Weg.

In der Praxis wurde der Quellsprung auf zwei Arten erreicht. Bei der ersten Methode wurde eine Cf-Quelle mit einer Quellstärke von ca. 4·10⁷ n/sec mit dem Pileoszillator von einer Position in Coremitte zu einer Position im oberen axialen Blanket gebracht. Diese Methode hatte jedoch einige Nachteile:

- wegen der relativ geringen Quellstärke war die Statistik der Detektorsignale bei großen Unterkritikalitäten (∿ 10\$) sehr schlecht
- durch den begrenzten Hub des Pileoszillators wurde die Quellstärke beim Ausfahren nur um einen Faktor 10 verkleinert
- im ausgefahrenen Zustand der Quelle führen Neutronen über Wandstöße zu einem Untergrundsignal, welches das Meßergebnis deutlich beeinflußt. Es mußte daher ein relativ aufwendiges Korrekturverfahren angewendet werden.

Bei der zweiten Methode wurde als Neutronenquelle ein Neutronengenerator verwendet. Der Quellsprung wurde dabei einfach durch Abschalten des Generators erzeugt. Die damit erreichte Quellstärke betrug etwa 10⁸ n/sec. Die Statistik der Detektorsignale war daher besser als bei der oszillierten Quelle. Auch die anderen Nachteile der Quelloszillation sind hier nicht mehr aufgetreten.

Durchgeführte Experimente

In SNEAK-9A-1 wurde gemessen:

- eine vollständige Charakteristik des RTI-Systems
- der Reaktivitätswert, wenn alle RT1- und alle RT2-Kontrollstäbe halb eingefahren sind.

Die Messungen wurden nur mit der Methode der Quellmultiplikation durchgeführt, da zum Zeitpunkt der Experimente weder der Neutronengenerator noch die Cf-Quelle einsatzbereit waren. Als Neutronenquelle für die Quellmultiplikation diente die SNEAK-Anfahrquelle.

In SNEAK-9A-2 wurde gemessen:

- Charakteristik des RT1-Systems
- Charakteristik des RT2-Systems
- Charakteristik beider Systeme gemeinsam
- Reaktivitätswert des Abschaltsystems bei den folgenden Stellungen von RT1/RT2

- 40/40 - 0/63 - 68/0

- die gesamte Abschaltreaktivität (alle Kontrollstäbe ganz eingefahren)

Alle Meßpunkte wurden mit dem Quellmultiplikationsverfahren und dem source-jerk-Verfahren mit der oszillierten Quelle gemessen. Da der Betrieb des Neutronengenerators mit einigen Schwierigkeiten verbunden war, wurden nur die wichtigsten Punkte - vor allem die stark unterkritischen Zustände - auf diese Weise gemessen.

Als Detektoren für alle Meßverfahren dienten je zwei BF₃-Ionisationskammern und He³-Zählrohre, die ungefähr symmetrisch rund um das Core außerhalb des radialen Blankets angeordnet waren. Die Signale der Ionisationskammern wurden von linearen Gleichstromverstärkern verstärkt, und dann in digitale Signale umgewandelt. Die Meßbereichswahl der Verstärker wurde von einer HP-Rechenanlage gesteuert, so daß bei den source-jerk-Messungen durch automatisches Umschalten zu jeder Zeit der günstigste Meßbereich eingestellt wurde.

Erste Ergebnisse

Da die Auswertung der Experimente und die Berechnungen noch nicht abgeschlossen sind, können noch keine endgültigen Aussagen gemacht werden. Generell läßt sich jedoch bereits folgendes feststellen:

Die Ergebnisse der beiden source-jerk-Verfahren stimmen innerhalb der Meßgenauigkeit überein, wenn man bei der oszillierten Quelle eine Korrektur für Streuneutronen im ausgefahrenen Zustand der Quelle anbringt. Die Korrektur beträgt je nach Unterkritikalität bis zu +12% (bei ca. 9 \$).

Die Ergebnisse der vier Detektoren stimmen ebenfalls im Rahmen der Meßgenauigkeit überein. Allerdings war bei stark unterkritischen Zuständen die Zählrohrstatistik so schlecht, daß nur die Ergebnisse der Ionisationskammern verwendet werden konnten.

Der Meßfehler bei den source-jerk-Messungen ist in allen Fällen kleiner als 5%.

Eine erste Auswertung der Quellmultiplikation (ohne Korrekturen für die Änderung der Detektorempfindlichkeit) zeigt im Vergleich zu den source-jerk-Ergebnissen wesentlich größere Reaktivitätswerte (bis zu 30%). Korrekturfaktoren aus DIXY-(r,z)-Rechnungen verkleinern diese Diskrepanz auf etwa 1/3. Weitere Rechnungen in (x,y)-Geometrie bzw. mit Transportcodes sind noch im Gange.

Vergleiche mit Diffusionsrechnungen (KASY, 4 Gruppen, KFKINR-Satz) zeigen eine sehr befriedigende Übereinstimmung mit den source-jerk-Ergebnissen. Es muß jedoch noch der Einfluß der verschiedenen unterkritischen Zustände auf β_{eff} untersucht werden. Als repräsentatives Beispiel sind in Tabelle 1 die Ergebnisse für die Summencharakteristik von RT1 und RT2 angegeben.

Referenzen

[1] M. Pinter PSB - 4. Vierteljahresbericht 1972, KFK-1272/4 1213.6 SNEAK-9A: Geometrischer Aufbau und Meßprogramm

[2] R. Böhme PSB - I. Vierteljahresbericht 1973, KFK-1273/1 1213.6 SNEAK-9A: Messung des Einflusses von Kontrollstäben auf die Leistungsverteilung in der SNR-300-Nachbildung SNEAK-9A-2 - Spaltkammertraversen -

[3] R. Böhme, G. Durance PSB - 2. Vierteljahresbericht 1973, KFK-1273/2 1213.6 SNEAK-9A: Messung des Einflusses von Kontrollstäben auf die Leistungsverteilung in der SNR-300-Nachbildung SNEAK-9A-2 Tabelle 1

Vergleich zwischen Rechnung und Experimenten verschiedener unterkritischer Zustände in SNEAK-9A-2

Stellung der Regeltrimmsysteme RT1/RT2 [cm]	Rechnung KASY, 4 Gr. KFKINR Δk/k	Source Ak/k ¹⁾	j er k R/E	Qu ohne Kor ∆k/k ¹⁾	ellmultip rektur R/E	likation Korrektu DIXY-(Δk/k ¹⁾	r aus (r,z) R/E
45/45	0.0055	0.0059	0.93	0.0061	0.90	0.0059	0.93
50/50	0.0111	0.0118	0.94	0.0126	0.88	0.0119	0.93
60/60	0.0220	0.0225	0.98	0.0260	0.85	0.0234	0.94
70/70	0.0312	0.0318	0.98	0.0377	0.83	0.0331	0.94
80/80	0.0374	0.0379	0.99	0.0462	0.81	0.0402	0.93
90/90	0.0400	0.0408	0.98	0.0504	0.79	0.0438	0.91

1) $\beta_{eff} = 0.689 \cdot 10^{-2}$





Neutronendetektor D



2. <u>Messung des Einflusses von Kontrollstäben auf die Leistungsverteilung</u> in der SNR-300-Nachbildung SNEAK-9A-2

(R. Böhme, G. Durance, IASR)

Die Messung der Leistungsverteilung in der SNEAK-9A-2 Anordnung / 1_7 wurde abgeschlossen. Die in Abb. 6 gezeigte Anordnung wurde bei 3 unterschiedlichen Stellungen der Kontrollstäbe kritisch gemacht:

Konfiguration	Bezeichnung	Eintauchtiefe der Regel-Trimm-Stäbe in der in der Innenzone Außenzone			
1	9A-2	40 cm	40 cm		
2	A 9A-2	28 cm	50 cm		
3	B 9A-2	58 cm	20 cm		

In jeder Konfiguration wurden axiale Traversen der ²³⁵U- und ²³⁸U-Spältrate an den in Abb. 6 eingezeichneten Positionen gemessen. Die meisten Traversen wurden mit Spaltkammern gemessen.

An drei radialen Positionen wurde die Leistungsverteilung aus der Aktivierung der Brennstoffplättchen durch γ -Analyse ermittelt. Die relative Intensität der γ -Emission der Brennstoffplättchen nach ca. 20 h x 500 W Verweilzeit im Reaktor und einer Wartezeit von ca. 30 h wurde mit einem NaJ(Li)-Detektor gemessen. Die Intensitätsverhältnisse nach Untergrundsubtraktion oberhalb der Diskriminatorschwellen bei 430 keV, 580 keV und 890 keV ergaben jeweils eine axiale Traverse. Die gute Übereinstimmung der drei Traversen im interessierenden Corebereich zeigte an, daß die Messung nicht stark durch Änderungen der Spaltproduktausbeute aufgrund von Spektraländerungen beeinflußt wurde. Deshalb wurde für eine vorläufige Auswertung eine der Spaltratenverteilung proportionale Traverse durch Mittelung erzeugt. Eine vorläufige Fehlerschätzung ergab ca. 1% Unsicherheit für jeden Meßpunkt.

Die Traversen in den Positionen 17/20, 16/22 und 09/25 können direkt mit der Summe der Spaltraten aus Kammermessungen in den symmetrischen Positionen 18/20, 19/22 und 26/22 verglichen werden (Abb. 7, 8 und 9).

Die Übereinstimmung der Resultate dieser völlig verschiedenen Meßverfahren ist gut. Geringfügige systematische Abweichungen in der Nähe der Core-Blanket-Grenze können durch Änderungen der Feinstruktur der Flußverteilung in diesem Gebiet hervorgerufen werden. Die Spaltkammern integrieren nämlich über die Flußverteilung in einem größeren Bereich, der außer Brennstoff auch Kühlmittel und Strukturmaterial enthält, während bei der Brennstoffplättchenmethode allein die Brennstoffaktivität gemessen wird.

Der Vergleich der Resultate der unterschiedlichen Meßverfahren sowie eine Reihe von zusätzlichen Experimenten bestätigen die Zuverlässigkeit der Traversenmessungen. Zusammen mit den Ergebnissen von Folienaktivierungen werden die Daten zur Überprüfung von Rechenprogrammen für die SNR-300-Auslegung bereitgestellt.

Referenz

/ 1_7 M. Pinter - 4. Vierteljahresbericht 1972 KFK-1272/4

1213.6 SNEAK-9A: Geometrischer Aufbau und Meßprogramm









Veröffentlichungen zu 1213:

G. Jourdan

Messung und Berechnung des maximalen Na-void-Effekts in einem Plutonium-Reaktor vom SNR-Typ

Reaktortagung Karlsruhe 1973

D. Wintzer, F. Helm, S. Pilate, U. Wehmann

Unsicherheiten bei der Voraussage wichtiger neutronenphysikalischer Parameter des SNR 300 und großer Leistungsbrüter und Reduzierung dieser Unsicherheiten durch SNEAK-Experimente

Reaktortagung Karlsruhe 1973

P.E. Mc Grath and E.A. Fischer

KAPER - A Computer Program for the Analysis of Experiments Performed in Heterogeneous Critical Facilities

Meeting of the American Nuclear Society on "Mathematical Models and Computational Techniques for Analysis of Nuclear Systems", 9.-11. April 1973, Michigan, USA

W.J. Oosterkamp

The calculation of ZPR-6-6A and 6-7 with Karlsruhe data and methods

ANS - Transactions, Vol. 16, June 1973

P. Fehsenfeld, G. Jourdan, M. Pinter, A.M. Raberain, W. Scholtyssek

The analysis of the SNEAK assemblies 9B and 9A-0 ANS - Transactions, Vol. 16, June 1973

122 REAKTORTHEORIE

1222 Rechenverfahren und Berechnung der Eigenschaften von Reaktoren

1222.1 <u>Mathematische, numerische und Datenverarbeitungsprobleme der</u> Reaktorphysik und -technik^G

1. Improvement of the one-dimensional multigroup diffusion program in the NUSYS system¹

(H.B. Stewart, INR)

Previous studies /[1]/ have shown that the numerical accuracy of the NUSYS one-dimensional diffusion program 06731 was not satisfactory. In an attempt to correct this, a careful study of different numerical methods was undertaken /[3]/[7]. Using the customary procedure of fission source iterations with no up-scattering (e.g. /[2]/[7], pp. 190 ff.), the problem reduces to repeated solution of source problems for each energy group:

(1) $(D\phi')' - \Sigma\phi = -f$ in (a_{i-1}, a_i) , i = 1, ..., p

 $D\phi'$ and ϕ continuous at a:

with given boundary conditions at a_0 and a_p . D and Σ are assumed piecewise constant, f is piecewise continuous, and we have chosen slab geometry for simplicity.

The most popular method of solution is to choose a point mesh $\{x_k\}$ and integrate the differential equation over individual mesh steps. This yields three-point difference equations such as

1) Brster Bericht

(2)
$$D_{k+\frac{1}{2}} (\phi_{k+1} - \phi_k)/h - D_{k-\frac{1}{2}} (\phi_k - \phi_{k-1})/h$$

- $(\Sigma_{k+\frac{1}{2}} + \Sigma_{k-\frac{1}{2}}) \phi_k \cdot h/2 = -f_k \cdot h$

Together with difference equations derived from the boundary conditions, one has a tridiagonal matrix which can be inverted by Gaussian elimination. Another solution method begins by factoring the differential equation (1) into three first order equations; for example, the following are equivalent to (1):

$$\alpha' + \alpha^2 / D = \Sigma$$

$$\beta' + \alpha\beta / D = -f$$

$$D\phi' = \alpha\phi + \beta$$

The boundary conditions for (1) give initial conditions for α and β at the left, and a condition for ϕ at the right. Solving (3) involves choosing difference equations, solving for α and then β from left to right, and finding ϕ by solving the last equation from right to left.

It is possible to discretize (3) in such a way that the resulting process is equivalent to Gaussian elimination of equations (2). However, many plausible discretizations of (3) exist which are not equivalent to Gaussian elimination; in particular, the NUSYS Program 06731 apparently uses such a non-equivalent discretization. This fact called for a practical comparison of various discretizations of (3) and Gaussian elimination. The results $\frac{7}{3}$ of this comparison, which used simple reactor model problems are easily summarized:

- (A) All of the methods performed unsatisfactorily in some cases using single precision arithmetic on the IBM 370/165 (i.e. about 7 decimal digits).
- (B) In double precision, Gaussian elimination was clearly more accurate than those discretizations of (3) which were tested.

For these reasons, NUSYS Program 06731 has been reprogrammed to use threepoint difference formulas like (2), solved in double precision arithmetic by Gaussian elimination. (It was not found necessary to store the fluxes in double precision.) The resulting improvement is illustrated by the accompanying Abb. 1, modified from $\sqrt{1}$.

For example, the two upper curves, for bare homogeneous reactor models with 26 groups and with 1 group, show the lack of convergence for small h which had been caused by single precision, and the better accuracy of the new difference formulas even for large h. The lower two curves are for a model with two zones, core and blanket. The one-group model shows essentially the same eigenvalues found by both methods, although a comparison of fission sources shows the new difference formulas to be noticeably better. In the 26-group 2-zone model accuracy is improved, and also corresponds better to the behavior for the problem condensed to one group.

Some other changes in Program 06731 have been or are being made. The acceleration of the outer iterations was found unsatisfacotry, and has been replaced by a standard method of Chebyshev polynomials. The program now calculates, from the fission sources of the final iteration, rigorous bounds on k_{eff} for the discrete problem. Furthermore, the options of time-eigenvalue search and of external source problems are being reactivated. All improvements will be available on 1. August 1973.

It is hoped that the new version of Program o6731 will satisfy user needs for diffusion theory problems of up to 26 energy groups. For more groups, a new code using diffusion and P_i approximations is being written.

References:

/ 1_7 D. Thiem, E. Kiefhaber Unveröffentlichte Mitteilung

/ 2/ G.I. Bell, S. Glasstone

Nuclear Reactor Theory, New York: Van Nostrand, 1970

 $/_3$ 7 H.B. Stewart

Alternative Numerical Methods for One-Dimensional Multigroup Diffusion Problems KFK 1856, to appear



2. Erweiterungen und Verbesserungen für das Flußsynthese-Programm KASY und die Verknüpfung mit einer verbesserten Version des 2-dimensionalen Diffusionsprogramms für Dreiecksgeometrie TREPAN¹⁾

(G. Buckel, INR)

Das Karlsruher Flußsynthese-Rechenprogramm KASY $/ 1_7$ steht schon seit geraumer Zeit für Routinerechnungen zur Auslegung des Kerns von schnellen Leistungsreaktoren zur Verfügung. Dabei wurden hauptsächlich Untersuchungen zur optimalen Anordnung und für die Wirksamkeit von Absorberund Regelstäben angestellt (z.B. $/ 2_7$, $/ 3_7$).

Ausgedehnte Vergleichsrechnungen von KASY mit anderen Rechenprogrammen, die totalnumerische Feinmaschen-Verfahren verwenden, haben gezeigt, daß bei ausreichender Genauigkeit mit der Synthesemethode beachtliche Einsparungen an Rechenzeit und Speicherplatz erzielt werden können $\sqrt{4}, \sqrt{5}, \sqrt{5$

1) Erster Bericht

würde dies eine Anforderung von etwa 2000 K Bytes Kernspeicher für eine reine Rechenzeit von 5 - 10 Stunden für jede spezielle Anordnung der Regel- und Absorberstäbe bedeuten.

Für solche Anwendungen sind die Syntheseverfahren besonders gut geeignet. Den größten Aufwand an Rechenzeit erfordert das Bereitstellen der Versuchsfunktionen. Sind diese aber einmal berechnet, kann mit demselben Satz dieser Versuchsfunktionen für jede beliebige Stellung der Regel- und Absorberstäbe mit einer Syntheserechnung die Neutronenflußverteilung im Reaktor und der zugehörige Wert des effektiven Multiplikationsfaktors ermittelt werden. Dabei erfordert jede Syntheserechnung etwa ein Drittel der Rechenzeit, die zur Berechnung einer Versuchsfunktion erforderlich ist. (Diese Aussage gilt für hexagonal /Z Geometrie - bei XY/Z, R0/Z und RZ/0 Geometrie ist - bedingt durch das schnellere Diffusionsprogramm DIXY zur Berechnung der Versuchsfunktionen das Verhältnis etwa 1 : 1)

Eine wesentliche Erweiterung erfuhr das Rechenprogramm KASY durch die Aufnahme der hexagonal /Z-Geometrie, bzw. genauer Dreiecks/Z-Geometrie, worüber Anfang 1972 in einer Veröffentlichung berichtet wurde [5]. Auslegungsrechnungen mit ausreichender Genauigkeit waren für diese Geometrie aber erst möglich, als auch die Begrenzungen in dem bei der Firma Belgonucléaire entwickelten Rechenprogramm TREPAN zur Ermittlung der zweidimensionalen Versuchsfunktionen in Dreiecksgeometrie erweitert wurden. In der neuen Version von TREPAN (die bei der GfK seit Mitte Mai zur Verfügung steht) sind Diffusionsrechnungen mit 40 Energiegruppen , jeweils 60 Punkten in den beiden Koordinatenrichtungen und 50 Reaktormischungen möglich. Die Anzahl der Reaktorzonen mit konstanter Materialzusammensetzung ist beliebig groß. Außerdem wurden Verbesserungen zum Stabilitäts- und Konvergenzverhalten in das Rechenprogramm TREPAN

Die Verbesserungen in der augenblicklichen Version von KASY bestehen im wesentlichen in:

- der Reduzierung des Kernspeicherbedarfs für das Programm von zuletzt 64 000 Bytes auf 50 000 Bytes und für das Datenfeld durch Verbesserungen in der Organisation des Programmablaufs und der Speicherbelegung.
- 2.) der Reduzierung der Rechenzeit durch Verbesserung des Programmablaufs
- 3.) der Beseitigung sämtlicher expliziter Beschränkungen bezüglich der Anzahl der Energiegruppen, der Gitterpunkte in den drei Koordinatenrichtungen, der Reaktormischungen, der Zonen gleicher Materialzusammensetzung und der Versuchsfunktionen.
- 4.) der Vereinfachung der Dateneingabe durch die Möglichkeit zur Berechnung von Folgefällen. Für jeden Folgefall brauchen im wesentlichen nur die Daten eingegeben zu werden, die sich gegenüber der vorhergehenden Rechnung geändert haben.
- 5.) der Vereinfachung in der Vorbereitung der Versuchsfunktionen. Hierzu als Beispiel: Sollen die Neutronenflußverteilung und der effektive Multiplikationsfaktor in Abhängigkeit von der Stellung eines Regelstabs ermittelt werden, der in gleichmäßigen Schritten von 5 cm in den Reaktorkern eingefahren wird, so müssen die Versuchsfunktionen einmal für die erste Stellung orthonormiert werden und stehen dann für alle Folgefälle zur Verfügung.
- 6.) der Möglichkeit zur Verwendung ortsabhängiger Werte des Spaltspektrums CHI

Mit den beiden neuen Programmversionen von TREPAN und KASY wurden Rechnungen im INR durchgeführt [7]. Es sollte die Abhängigkeit des effektiven Multiplikationsfaktors von der Dampfdichte in einem gasgekühlten 1 000 MWe-Reaktor untersucht werden. Über die Ergebnisse dieser Untersuchungen wurde an anderer Stelle berichtet [8]. ¹⁾ In diesem Zusammenhang soll nur die Anwendbarkeit der Rechenprogramme auf Problemstellungen dieser Art von Interesse sein.

¹⁾Das Problem hat Bedeutung für den Fall eines Eindringens von Wasserdampf aus dem Dampferzeuger (eines gasgekühlten Reaktors mit indirektem Kühlkreis lauf) in den Primärkreislauf infolge eines Lecks.

Da die Größenordnung der untersuchten Effekte als sehr klein zu erwarten war, mußte eine erhöhte Rechengenauigkeit für den Neutronenfluß und den effektiven Multiplikationsfaktor zugrunde gelegt werden. Die für beide Rechenprogramme eingegebenen Genauigkeitsschranken von 10^{-4} für den effektiven Multiplikationsfaktor und von $5 \cdot 10^{-3}$ für den Neutronenfluß ist bei der Beurteilung der ermittelten Rechenzeiten zu berücksichtigen.

Die Versuchsfunktionen wurden für ein Dreieckskoordinatennetz von 36 × 36 Maschenpunkten mit 81 Zonen konstanter Materialzusammensetzung und in einer 26-Energiegruppendarstellung berechnet. Bei der Syntheserechnung wurden 64 Gitterpunkte in der zu synthetisierenden Z-Richtung angenommen. Damit ergaben sich die Schrittweiten von 5,7 cm in X- und Y-Richtung und von 4,2 cm in Z-Richtung. (Das bedeutet, daß für jede untersuchte Dampfdichte Werte für den Neutronenfluß an etwas mehr als 2 Millionen Punkten im Phasenraum berechnet wurden)

Die Rechenzeit zur Erstellung einer Versuchsfunktion betrug 50 Min., eine Syntheserechnung mit 3 Versuchsfunktionen erforderte 18 Min. auf der Rechenanlage IBM 370/185.

Leider erfüllte sich nicht die Erwartung, daß die einmal für eine bestimmte Dampfdichte berechneten Versuchsfunktionen auch für die Syntheserechnungen bei anderen Dampfdichten verwendet werden können. Eine Änderung der Dampfdichte bewirkt eine Änderung der Spektren in den Versuchsfunktionen und die Ergebnisse haben gezeigt, daß die Synthesemethode sehr empfindlich auf Spektrumsänderungen in den Versuchsfunktionen reagiert. Diese Zusammenhänge müssen aber noch eingehender untersucht werden. Doch auch unter Berücksichtigung des Aufwands zur Berechnung einer größeren Anzahl von Versuchsfunktionen als ursprünglich angenommen, waren mit der Synthesemethode noch Ergebnisse mit ausreichender Genauigkeit zu erzielen. Totalnumerische Feinmaschen-Methoden erfordern bei Problemstellungen dieser Art und bei den heute zur Verfügung stehenden Rechenanlagen einen nicht mehr zu vertretenden Aufwand.

Literaturhinweise:

- [1] BUCKEL, G., "Approximation der stationären, dreidimensionalen Mehrgruppen-Neutronen-Diffusionsgleichungen durch ein Syntheseverfahren mit dem Karlsruher Synthese-Programm KASY", KFK 1349, Juni 1971
- [2] HELM, F., e.a., "Physics Investigations of Sodium Cooled Fast Reactors, SNEAK-Assembly 2 ", KFK, June 1971
- [3] JOURDAN, G., e.a., "Physikalische Untersuchungen für den SNR in der SNEAK ", Tagungsberichte der Reaktortagung in Berlin, 20. - 22. April 1970, Seiten 141-144
- [4] PILATE, S., e.a., " A Three-Dimensional Synthesis-Method, Tested and Applied in Fast Breeders", KFK 1345, August 1971
- [5] BUCKEL, G.,e.a, "Three-Dimensional Space Synthesis in Hexagonal Geometry", Proceedings of a Seminar on Numerical Reactor Calculations, IAEA, Vienna, Austria, January 17-21,1972 p. 521 - 529
- [6] MINSART, G., e.a., "Some Improvements to the Stability and the Convergence of the Reactor Codes DTF-IV, Exterminator and TREPAN-TRIBU", Proceedings of a Seminar on Numerical Reactor Calculations IAEA, Vienna, Austria, January 17-21,1972 p 531 - 539
- [7] EISEMANN, E., private Mitteilung, Juni 1973
- [8] EISEMANN, E., "New Investigations of the Reactivity Effect Due to Water Ingress into the Primary Loop of a Gas Cooled Fast Reactor (GCFR)", NEA-GCFR Spezialist-Meeting Studsvik, June 20, 21. 1973

3. <u>D 3 D, ein dreidimensionales Multigruppendiffusionsprogramm</u>¹⁾ (B. Stehle, INR)

Einleitung

Der dreidimensionale Diffusionscode D 3 D wurde entwickelt, um die homogene Multigruppendiffusionsgleichung für echt dreidimensionale Probleme wie verschieden tief eingefahrene Stäbe oder Coreverbiegungen zu lösen. D 3 D löst die Multigruppendiffusionsgleichung mit beliebiger Abwärtsstreuung in cartesischen Koordinaten (x, y, z) und Zylinderkoordinaten (θ , r, z). Für die Anzahl der Gruppen, Mischungen, Maschenpunkte, Mischungszonen gibt es keine Einschränkung. Die Optionen adjungiertes Problem, ortsabhängiges Spaltspektrum, Nichtdiffusionsgebiete, Interrupt-Testart sind implementiert. D 3 D steht seit August 1972 einschließlich Eingabebeschreibung zur Verfügung. Dem Benutzer wird nur ein Minimum an Eingabe zugemutet. Die meisten Größen haben Standardwerte. Alle ableitbaren Größen werden vom Programm berechnet. Das Data Management wird vom Programm übernommen.

Die Auswertung der dreidimensionalen Flüsse ist einem dreidimensionalen Auswerteprogramm AUDI 3 vorbehalten /4/. Die von AUDI 3 angeforderten Daten werden von D 3 D bereitgestellt.

In der Zukunft kann eine weitere Konvergenzbeschleunigung außer der unten (5.122-11) genannten notwendig werden (5.122-12 unten). Zusätzlich zu den vorhandenen Geometrien ist Dreiecksgeometrie geplant.

Eine Programmbeschreibung sowie die Eingabebeschreibung sollen als KFK-Berichte erscheinen.

Lösungsverfahren

Diskretisierung:

Über den Reaktor wird ein 'achsenparalleles' Gitter gelegt, derart, daß die Mischungsgrenzen mit den 'Ebenen' des Gitters zusammenfallen. Durch Boxintegration ($/1_7$ Seite 181 ff) des Gleichungssystems erhält man ein lineares algebraisches Eigenwertproblem, dessen Unbekannte, die Gruppenflüsse an den Gitterpunkten, innerhalb der Energiegruppen mit den Flüssen der Nachbarpunkte (7-Punktformel), außerhalb der Gruppen mit den Flüssen derselben Gitterpunkte verknüpft sind.

Anordnung der Gleichungen:

Die Flüsse werden gruppenweise, innerhalb der Gruppen ebenenweise, in den Ebenen in Vierzeilenblöcken zusammengefaßt. Von den schachbrettartig schwarz-weiß gekennzeichneten Punkten der Ebenen werden zuerst die Flüsse der 'schwarzen' Punkte von Vierzeilenblock zu Vierzeilenblock jeweils von Spalte zu Spalte angeordnet, dann in gleicher Weise die der 'weißen' Punkte ([3]).

Lösungsablauf, Die Iterationen:

Die äußere oder Quelliteration wird durch die klassische Poweriteration ausgeführt. Die inneren Iterationen, die successive Auflösung der inhomogenen Gleichung für jede einzelne Gruppe, werden durch zwei geschachtelte Blocküberrelaxationen ausgeführt: Die durch die Ebenenblockung erzeugte Blocktridiagonalgestalt gibt Anlaß zu einer Blocküberrelaxation mit optimalem Beschleunigungsparameter. Zur Inversion der Diagonalblöcke werden in jeder Ebene die Gleichungen zyklisch reduziert auf die Flüsse der 'schwarzen' Punkte. Die wegen der Vierzeilenblockung auftretende Blocktridiagonalgestalt gibt wieder Anlaß zu einem Blocküberrelaxationsverfahren mit optimalem Beschleunigungsparameter. Diese Blocküberrelaxation ist das im zweidimensionalen Diffusionsprogramm DIXY angewandte Verfahren.

Die optimalen Beschleunigungsparameter werden im vorausaus dem durch Poweriteration berechneten dominanten Eigenwerten der Gauß-Seidel-Matrizen bestimmt. ([1], Seite 97 ff, 283 ff, [2], [3]).

Beschleunigung durch Grobgittertechnik

Aus dem vorgegebenen feinen Punktgitter wird eine Hierarchie grober Gitter konstruiert. Ausgehend vom gröbsten Gitter werden die Gleichungen für die groben Gitter gelöst und nach einer linearen Interpolation als Schätzungen für die Lösungen der Gleichungen der nächst feineren Gitter der Hierarchie benutzt. Auf diese Weise erhält man schließlich die Lösung für das vorgegebene feine Gitter.

Abfragetechnik_

Die Iterationen werden beendet, wenn die maximale relative Änderung zwischen aufeinanderfolgenden Iterationsschritten eine vorgegebene Schranke nicht überschreitet. Um überflüssige Iterationen zu vermeiden, können diese Schranken stufenweise bis zur vorgegebenen Genauigkeit verschärft werden. Eine grobe Abstufung wird von Punktgitter zu Punktgitter vorgenommen.

Die Genauigkeitsstufe für ein Punktgitter wird ausgehend von der Genauigkeitsstufe des gröberen Gitters über Zwischenstufen erreicht. Diese eben genannten Genauigkeitsschranken können bei den inneren Iterationen in Abhängigkeit vom Konvergenzradius verschärft werden. Der Konvergenzradius ist gleich ω -1, wobei ω Relaxationsparameter ist ($\int 1_{\pi}$, Seite 111).

Data Management

Die Verwaltung der Daten ist so ausgelegt, daß von dieser Seite keine Einschränkung für die Benutzung gemacht werden muß. Einerseits wird der Kernspeicher dynamisch belegt. Andererseits können alle großen Datenfelder extern gespeichert werden, sodaß man sich auf Kosten von Transferzeit auf ein von der Zahl der Energiegruppen unabhängiges Minimum an Kernspeicherplatz beschränken kann. Steht jedoch mehr Kernspeicher als das Minimum zur Verfügung, werden diese Felder in Abhängigkeit von der Gebrauchshäufigkeit im Kernspeicher angelegt.

Anwendungen

IAEA-3D-2Gruppen-Benchmarkproblem_eines_Leichtwasserreaktors_von B. Micheelsen ([57]

Die Berechnung thermischer Reaktoren durch Differenzverfahren erfordert bekanntlich feine Maschennetze und eine große Zahl von Iterationen. Bei $40 \approx 40 \approx 39 = 62\ 400$ Maschenpunkten wurde viermal interpoliert. Es ergaben sich 95 + 150 + 110 + 151 = 506 äußere Iterationen bei einer Genauigkeit des Quellkriteriums von 0.001.

Die Rechenzeit betrug 190 Minuten bei 900 K Kernspeicher auf der IBM 370/165. Eine kürzere Rechenzeit hätte sich vermutlich durch schwächere Abfragen in den ersten Schritten erreichen lassen.

SNR-26-Gruppenrechnungen

Da eine dreidimensionale Störungsrechnung zur Zeit noch nicht möglich ist, wurden statt dessen zwei Diffusionsrechnungen durchgeführt, um Auswirkungen von Verbiegungen im Reaktor zu untersuchen.

Bei der zweiten Rechnung mußte eine große Zahl von Mischungen (ca. 1000) verarbeitet werden. Zu diesem Zweck wurde die Möglichkeit geschaffen, die Querschnitte extern zu speichern. Für die Rechnung des gestörten Reaktors wurde als Schätzung die Lösung sowie die Relaxationsparameter vom ungestörten Reaktor benutzt.

Bei einem Netz von $24 \times 28 \times 31 = 20$ 832 Ortspunkten ergaben sich auf der IBM 370/165 folgende Rechenzeiten:

Ungestörter Reaktor:

54 Minuten bei 3 Interpolationen und einer Genauigkeit für das Quellkriterium von zunächst 0.01 für alle Gitter und nach Erreichen dieser Genauigkeit von schließlich 0.001 für das feinste Gitter (Kernspeicherbelegung 700 K).

Diesselbe Rechnung mit von vornherein endgültiger Genauigkeit ergab 96 Minuten Rechenzeit. Ein Versuch ohne Interpolation wurde in diesem Fall nicht durchgeführt.

Gestörter Reaktor:

121 Minuten bei voller Punktzahl und 0.001 Genauigkeit für das Quellkriterium.

Referenzen

- [1] R.S. VARGA, Matrix Analysis, Prentice Hall 1969
- [2] R.S. VARGA, Numerical Methods for Solving Multi-Dimensional Multigroup Diffusions Equations Proceedings of Symposia in Applied Mathematics, Volume 11, pp. 164-189, 1961 American Mathematical Society
- [3] L.A. HAGEMAN, R.S. VARGA, Block Iterative Methods for Cyclically Reduced Matrix Equations Numerische Mathematik 6, Seite 106-119, 1964
- [4] G.BUCKEL, G.WILLERDING, AUDI 3. Ein Rechenprogramm zum Auswerten von energiegruppenabhängigen dreidimensionalen Neutronenverteilungen
 KFK-Bericht in Vorbereitung
- [5] B.MICHEELSEN, H.NELTRUP, Tasks and Problems in Reactor Physics Calculations Risö-M-1572
123 SICHERHEIT SCHNELLER REAKTOREN

1231. Theoretische Untersuchungen und Reaktorsicherheit

1231.1 Ortsabhängiger Dynamikcode KINTIC (L. Mayer, INR)

Die erste Fassung des Codesystems KINTIC, KINTIC-1, wurde in /1/ beschrieben. Inzwischen befindet sich eine erweiterte und verbesserte Version KINTIC-2 in Vorbereitung, deren bereits fertiggestellte neue Optionen die folgenden sind:

- 1. Die verbesserte quasistatische Methode zur Berechnung der Neutronenflußverteilung wurde eingeführt.
- 2. Die Behandlung der Querschnitte wurde auf ein Konzept umgestellt, das mit Dichte und Volumenanteilen der sog. Makromaterialien (Brennstoff, Hülle usw.) arbeitet, Folgen dieser Abänderung sind:
 - a. Ersparnis im Kernspeicherbedarf
 - b. Mikroskopische Querschnitte und Doppler-Koeffizient können wahlweise Funktionen der Konzentrationen der Makromaterialien sein (Beispiel: Mikroskopische Querschnitte und Doppler sind vom jeweiligen Na-Anteil bei Natriumverlust abhängig).
 - c. Vereinfachte und verallgemeinerte Beschreibung der äußeren Störung durch Materialbewegung, z.B. durch Definition einer Änderung der Makromaterialanteile.
- 3. Organisatorische Veränderungen: Unter diesen ist die für den Benutzer wichtigste, daß die Dopplerdaten nicht mehr in Form von gestanzten Karten in die Eingabe eingeordnet werden müssen, sondern als Datenfile auf Band oder Platte übergeben werden.

Die jetzt vorliegende Version von KINTIC-2 ist voll einsatzfähig, jedoch noch nicht dokumentiert. Eine Dokumentation wird frühestens nach dem Einbau in KAPRØS und der Ankopplung der neueren Version des Thermodynamikmoduls erfolgen.

Literatur:

[1] L. Mayer, H. Bachmann KFK-1627 (1972) 1231.1 BNR - Modul

Verbesserte Berechnung der Zustandsgleichung von Brennstoff für die Analyse von Bethe-Tait-Unfällen * 4)

(H.G. Bogensberger, E.A. Fischer, IASR)

Im Zusammenhang mit der Entwicklung des Disassembly-Codes KADIS laufen Arbeiten zur Bereitstellung verbesserter Zustandsgleichungen für den Brennstoff. Die bisher meist verwendete Zustandsgleichung gilt für UO₂ und basiert auf einer Arbeit von Menzies aus dem Jahre 1963. Es ist das Ziel der vorliegenden Arbeiten, die Daten auf einen modernen Stand zu bringen und insbesondere eine Auswertung für das tatsächlich verwendete Mischoxid durchzuführen, dessen Stöchiometrie sich im Laufe des Abbrandes ändert. Dabei soll auch der Einfluß der Spaltprodukte berücksichtigt werden.

Die thermodynamischen Daten von Rand und Markin für Mischoxid

Rand und Markin [1] haben für Mischoxid der Zusammensetzung

U_{1-x} Pu_x O_{2+y}

die thermodynamischen Daten angegeben und die Dampfdrücke berechnet. Dabei wurde angenommen, daß im unterstöchiometrischen Kristall UO₂ und PuO_{2-z} ideal in Lösung gehen; im überstöchiometrischen Kristall gehen UO_{2+z} und PuO₂ ideal in Lösung. Die Autoren betrachten im wesentlichen die Reaktionen¹/(im unterstöchiometrischen Fall)

$$PuO_{2-z}(s) + \frac{z}{2}O_2 \rightarrow PuO_2(g)$$
(1)

Pu0 (g) +
$$\frac{1}{2}$$
 0₂ + Pu0₂ (g) (2)

$$UO_2(s) \rightarrow UO_2(g)$$
 (3)

$$UO_2(g) + \frac{1}{2}O_2 + UO_3(g)$$
 (4)

Für die Partialdrücke der vorkommenden Gase erhält man Gleichungen der Form

RT
$$\ln p_{PuO_2} - \frac{z}{2} RT \ln p_{O_2} = -\Delta g_{PuO_2}(g) + \Delta g_{PuO_{2-z}}(g) + RT \ln x$$
 (5)

Diese Beziehungen, in Verbindung mit entsprechenden Gleichungen für die Reaktionen (2) bis (4), bestimmen die Partialdrücke aller vorkommenden gasförmigen Komponenten als Funktion des O₂-Potentials.

Im überstöchiometrischen Fall lauten die Reaktionsgleichungen unter der Annahme, daß UO_{2+z} ideal in Lösung geht

$$PuO_2(s) \rightarrow PuO_2(g)$$
 (1')

PuO (g) +
$$\frac{1}{2}$$
 $^{0}_{2}$ \rightarrow PuO₂ (g) (2')

$$UO_{2+z}$$
 (s) - $\frac{z}{2}O_2$ + UO_2 (g) (3')

$$UO_2(g) + \frac{1}{2}O_2 \rightarrow UO_3(g)$$
 (4')

1) (5) = solid (9) = gas

Die Subroutine BRODAD (Brennstoffoxid-Dampfdruck) bestimmt aus diesen Beziehungen die Partialdrücke der einzelnen Komponenten. Die freien Enthalpien Δg sind aus [1] entnommen, ebenso die Tabelle des 0₂-Potentials. Die Ergebnisse für 2000[°]K stimmen im wesentlichen mit [1] überein.

Diese Daten können – ähnlich wie die Daten für reines UO_2 – zu höheren Temperaturen extrapoliert werden. Dabei erhält man den Gesamtdruck als Funktion der Temperatur; er ist für x = 0.15 und für verschiedene Stöchiometrien in Abb. 1 dargestellt. Man sieht, daß bei Temperaturen um 2000^oK der Druck sehr stark von der Stöchiometrie abhängt. Bei den hohen Temperaturen um 4000 – 5000^oK, bei denen der Druck so hoch wird, daß er zum Disassembly führt, ist jedoch die Abhängigkeit von der Stöchiometrie nur mehr so schwach, daß sie im Vergleich zur Unsicherheit der Extrapolation vernachlässigbar ist.

Die Subroutine SPAGAD (Spaltgasdampfdruck)

In diesem Unterprogramm kann sowohl der Partialdruck der einzelnen Spaltprodukte als auch der Gesamtdruck berechnet werden. Als Auswahlkriterium für die Berücksichtigung in SPAGAD gilt die relative Häufigkeit und ein hoher Dampfdruck. Im vorliegenden Falle sind dies:

As, Se, Br, Kr, Xe, Sr, Rb, Cd, Te, J, Cs, O.

Eine Sonderbehandlung erfahren die Verbindungen Cs_Br, Rb_Br, Cs_J, Rb_J, As₂0₃, Cd_O und Cs_O₂. Diese Annahme stützt sich auf den bisherigen Kenntnisgrad der chemischen Affinität der betreffenden Elemente [2]. Bei den zu erwartenden Brennstofftemperaturen im Leistungsbetrieb eines schnellen Reaktors (ca. 1000 - 1500° C) kommen freies Brom und Jod praktisch nicht vor. Als bevorzugte Reaktionspartner kennt man Rubidium und Cäsium, die mit ungefähr gleicher Häufigkeit Bromide und Jodide bilden. Die Bestimmung der Partialdrücke für Temperaturen von 3000[°]K bis 5000[°]K erfolgt durch Vergleich von verschiedenen Methoden. Im ersten Falle wird der Sättigungsdampfdruck von bisher gemessenen Daten (3) bis zur fraglichen Temperatur hinausextrapoliert. Im zweiten Fall nimmt man an, daß das Material bei der fraglichen Temperatur vollständig verdampft ist und deshalb näherungsweise als ideales Gas behandelt werden kann. Offenbar hängt es von dem zur Verfügung stehenden freien Volumen ab, welcher Wert der kleinere ist. Der kleinere Wert stellt dann den gesuchten Partialdruck dar.

Bei Temperaturen um 3000° K lösen sich die chemischen Verbindungen sicher wieder in ihre Einzelelemente auf [2]. Eine Sonderbehandlung erfahren die Edelgase Krypton und Xenon sowie der überschüssige Sauerstoff, der bei Betriebsbedingungen keine Reaktionspartner findet. Hier ist die Möglichkeit offengelassen, eine genau bekannte Menge in das Spaltgasplenum abzuführen.

Als Eingabe-Parameter wird der Abbrand (Teilchenzahl für Pu und U), die Temperatur und die Porosität (zur Bestimmung des freien Volumens) gefordert.

Literatur

- [1] M.H. Rand and T.L. Markin AERE-R 5560 (1967)
- [2] Gmelin: Handbuch der Chemie
- [3] Handbook of Chemistry and Physics, R.C. Weast, 52nd Edition 1971-1972, The Chemical Rubber C.O.



Abb.1 Dampfdruck des Brennstoffs als Funktion der Temperatur

1232 Spannungs- und Verformungsanalyse von Reaktorbauteilen und Systemen

1232.4 Verhalten von Reaktorbauteilen unter dynamischer Belastung

Entwicklung eines Rechenmodells zur dynamischen Strukturanalyse eines Reaktorcores unter internen Drucktransienten (H. Zehlein, R. Alexas, IRE)

Die Grundversion eines Programmpakets zur Simulation des Verformungsverhaltens von Brennstabbündeln unter transversalen Drucktransienten wurde einsatzfähig ("Bündelmodell"; programmtechnischer Aufbau in KFK 1273/1 erläutert). Die Programme zum automatischen Aufzeichnen der Rechenergebnisse wurden erweitert und auf typische Testbeispiele (Einzellast am Rand, thermische Dehnung aller Brennstäbe, siehe Abb. 2) angewandt. Eine gute Kontrolle für die Rechengenauigkeit bietet der Testfall "Thermische Last": Hier müssen bei gleichmäßiger Erwärmung des Bündels die Linien OA, OB, OC in sich selbst übergehen (s. Abb. 2).

Folgende weiterführende Arbeiten wurden abgeschlossen:

- Erstellung der in den kartesischen Freiheitsgraden ausgedrückten Flexibilitätsmatrix aus den mittels der Redundantenmethode ermittelten Koeffizientenmatrizen (Einflußkoeffizienten, Systemkoeffizienten). Zweck: Erweiterung auf dynamische Lasten und verallgemeinerte Randbedingungen.
- Analyse der Querschnittsabplattung des BE-Kastens bis zum Vorliegen der "dichtesten Packung" des Brennstabbündels ("Kompaktierung", s. Abb. 3). Für das Modell einer dem Kastenquerschnitt entsprechenden sechsscharnierigen Gelenkkette mit starren Gliedern kann eine dimensionslose Abplattung ξ als Funktion des konstruktiv vorgegebenen Parameters Stababstand/Durchmesser $(\frac{2}{2}\frac{a}{3})$ eindeutig dargestellt werden. Zur Erfassung beliebiger anderer Querschnittsformen dient eine zusätzliche "Koordinate" k, die als Formfaktor interpretiert werden kann. Zweck: Definition des Zeitpunkts, von dem an die Kraftübertragungseigenschaften des Brennstabbündels berücksichtigt werden müssen.



123-8



123-9

Die Überlegungen zur Darstellung des BE-Kastens als dünnwandiger Stabbalken führten zu folgendem Konzept: Das Rechenmodell beinhaltet einen zur Biegeebene symmetrischen Balken, der in Längsrichtung in endliche Bereiche ("finite Elemente") unterteilt wird. Für jeden Bereich wird festgestellt, ob bei dem gerade vorliegenden Verformungs- bzw. Spannungszustand plastisches Fließen eintritt (v. MISES-Kriterium). Entsprechend den beiden möglichen Fällen ergeben sich zwei Elementtypen (s. Abb. 4):

- für rein elastische Dehnungen wird der zugehörige Bereich des Balkens als dünnwandige, geschlossene Schale mit spiegelsymmetrischem, zeitlich variablem Profil idealisiert.
- für elastoplastische Dehnungen wird der betreffende Bereich des Balkens als zusammengesetztes, zeitlich veränderliches Gebilde idealisiert, bestehend aus zwei offenen, dünnwandigen, spiegelsymmetrischen Schalen für den rein elastisch gedehnten Querschnittsbereich, und einer dazwischen "aufgespannten" elastoplastisch gedehnten Membran.



geschlossene Schale

Abb. 4

BALKENTYPEN



Der Ausarbeitung und Programmierung dieses Modells müssen noch Studien zum Einfluß von Vereinfachungen bei der Beschreibung von Kinematik, Statik, Geometrie und Materialverhalten vorangehen. Von solchen Überlegungen unberührt bleibt das Programmpaket zur Ermittlung der Flächenmomente 1. und 2. Ordnung für beliebige dünnwandige Schalenprofile, mit dessen Kodierung begonnen wurde. Die Fertigstellung wird für August 1973 erwartet.

Veröffentlichung:

(1) H. Zehlein

Vergleich marktreifer Finit-Element-Programme für die dynamische Strukturanalyse KFK 1791, April 1973

2. Verformung eines Brennelements durch äußere statische/dynamische Querlasten; Experimente und einfache Theorie

(R. Liebe, IRE)

Experimente

a) Versuche an Brennelement-Modellen:

Die Konstruktion der statisch/dynamischen Belastungseinrichtung und der Modell-Brennelemente ist abgeschlossen; z.Zt. werden dafür Fertigungsangebote eingeholt. Für die Messung von Kräften, Beschleunigungen und Drücken sind piezoelektrische Geber und Verstärker spezifiziert und bestellt worden. Die meßtechnischen Vorversuche an verschiedenen DMS/Kleber Kombinationen ergaben die optimale Anordnung. Für die trägheitsarme Messung der großen BE-Verformungen sind Photodioden-Ketten vorgesehen; der Bau einer entsprechenden Meßvorrichtung ist in Vorbereitung.

b) Materialversuche:

Für die Durchführung des begleitenden Versuchsprogramms "Verhalten von SNR-Kastenwerkstoffen bei hohen Dehnungsraten" ist ein Auftrag an das Euratom-Forschungszentrum in Ispra vergeben worden. Die von der GfK übernommene Fertigung der Zugproben ist in Vorbereitung.

Theoretische Arbeiten

Auf der Basis diskreter Feder/Dämpfer/Massen-Systeme wurde die gekoppelte dynamische Biege- und Abplattungsverformung eines Brennelements berechnet, programmiert und getestet. Unter der vorläufigen Annahme bilinearer Verformungscharakteristika und trapezförmiger Lastpulse ist ein vereinfacht gelagertes SNR-Brennelement untersucht worden. Die zeitlichen Verläufe von Wegen, Geschwindigkeiten, Beschleunigungen, Kräften und Energien zeigen typische Merkmale. Zur Erfassung der dynamischen Wechselwirkung zwischen Struktur und Kühlflüssigkeit wurden erste Vorstellungen sowie 1D- und 2D-Modelle entwickelt. Die Programmierung der "Polsterwirkung" der Flüssigkeit zwischen zwei Kästen ist in der Testphase.

1233 Untersuchung von Kühlungsstörungen#

1233.1 <u>Untersuchungen zur Strömungs- und Temperaturverteilung hinter lokalen</u> <u>Störungen</u>¹⁾

(D. Kirsch, P. Basmer, G. Groetzbach, IRE)

Versuche im Wasserkreislauf

Für die experimentelle Ermittlung der Temperaturverteilung hinter lokalen Kühlkanalblockaden wurde zu Anfang des Jahres eine zweite Teststrecke fertiggestellt und im Wasserkreislauf des IRE installiert. Es war vorgesehen, in dieser Teststrecke die Temperaturverteilung hinter derjenigen Blockade zu messen, hinter der aus den Meßwerten für Massenaustausch und Totwasservolumen die höchste <u>mittlere</u> Kühlmitteltemperatur im Totwasser mit 900 <u>+</u> 80 °C berechnet worden war (KFK 1272/2). Bei dieser Blockade betrug das Verhältnis der blockierten Strömungsfläche zur gesamten durchströmten Fläche $\beta = F_{Bl}/F_{ges}$ = 0,41; die Lage der Blockade war wie in Abb. 5 angedeutet. Wegen eines Fehlers in einer Konstruktionszeichnung wurde jedoch in der Teststrecke zur Ermittlung der Temperaturverteilung eine etwas größere Blockade eingebaut mit $\beta = F_{Bl}/F_{ges}$ = 0,47. Dies ist für den Vergleich mit der Blockade, für die die mittlere Kühlmitteltemperatur im Totwasser berechnet wurde, insofern

¹⁾Letzter Bericht in KFK 1272/3

Weitere Einzelheiten zum Versuchsaufbau sind bereits in KFK 1272/3 angegeben worden. Obwohl die Zahl der Thermoelemente im Totwasser von 36 (davon 27 bei der Messung intakt) bei der ersten Teststrecke auf 46 (davon 44 bei Messung intakt) erhöht wurde, konnte wegen des sehr viel größeren Totwassers kein so vollständiges Bild der Temperaturverteilung erwartet werden wie bei der ersten Teststrecke. Doch wurden die Thermoelemente so verteilt, daß mindestens über die Maximaltemperatur eine gesicherte Aussage möglich ist; auch wurde ein Temperaturprofil senkrecht zur Hauptströmungsrichtung ausgemessen, aus dem die Form der Temperaturverteilung wenigstens qualitativ erschlossen werden kann.

Die Versuchsbedingungen waren denen bei der ersten Teststrecke durchaus ähnlich, d.h. mit unterschiedlichen Durchsätzen und unterschiedlichen Temperaturen wurden Reynoldszahlen zwischen 1,26 · 10⁴ und 8,05 · 10⁴ eingestellt; die Stableistung der Heizer betrug bei allen Versuchen ca. 46 W/cm. Wie bei der ersten Teststrecke ergibt sich wieder, daß die gemessenen Temperaturdifferenzen, wenn sie mit der Aufheizspanne dimensionslos gemacht werden, i.a. unabhängig sind von der Reynoldszahl, wie dies nach theoretischen Untersuchungen erwartet wird (1). Die dimensionslosen Temperaturen einiger weniger Thermoelemente zeigen ein anderes Verhalten, das theoretisch nicht erklärt werden kann und das auch keine sinnvolle Abhängigkeit von der Reynoldszahl oder einer anderen charakteristischen Größe ergibt. Da hier vermutlich eine falsche Anzeige vorliegt, wurden die Meßergebnisse dieser 5 Thermoelemente bei der Auswertung nicht verwendet.

Übertragbarkeit auf Natrium

Daß es zulässig ist, aus den gemessenen Wassertemperaturen auf die Temperaturen eines von Natrium durchströmten Brennelements gleicher Geometrie zu schließen, ist an anderer Stelle ausführlich begründet worden (1). Abb. 5 zeigt die aus den Meßwerten berechneten Temperaturen im Totwasser hinter einer der Versuchsanordnung entsprechenden Blockade in der Coremitte eines SNR-Brennelements, das am Innenrand der zweiten Corezone, also an der Stelle des radialen Leistungsmaximums, angenommen wurde. In einem Abstand x = 10 mm von der Blockade liegen die Meßwerte so zahlreich, daß hier ein Temperaturprofil senkrecht zur Hauptströmungsrichtung angegeben werden kann. Die Form dieses Temperaturprofils wird mit dem Strömungsbild (Abb. 5, unten links) verständlich: Wegen des kleinen Wirbels in der Ecke zwischen Blockade und Kastenwand entsteht an dieser Stelle ein relatives Temperaturmaximum; das daran anschließende relative Minimum wird durch das hier von oben zurückströmende, etwas kältere Kühlmittel verursacht; dieses strömt dann entlang der Blockade zum Totwasserrand und wird dabei weiter aufgeheizt, so daß in der Nähe des Totwasserrandes die höchsten Temperaturen beobachtet werden (dies war auch bei der ersten untersuchten Blockade der Fall); der Totwasserrand selbst ist durch einen sehr steilen Temperaturgradienten gekennzeichnet.

Im Abstand x = 20 mm von der Blockade sind nur 6 Temperaturen angegeben (Abb. 5). Daß diese höher liegen als die Temperaturen bei x = 10 mm, läßt sich wahrscheinlich mit der Wärmeleitung durch die Blockade erklären, die ja von unten durch sehr viel kälteres Kühlmittel angeströmt wird. Andererseits sind nur allenfalls geringfügig höhere Temperaturen zu erwarten als die höchsten aus Meßwerten berechneten (983 °C maximal bei x = 20 mm), da die Temperaturen bei x = 40 mm bereits wieder deutlich niedriger liegen als die bei x = 20 mm (Abb. 5). Auch die übrigen, in Abb. 5 nicht eingetragenen Temperaturen in größeren Abständen von der Blockade liegen mit Werten zwischen 660 °C und 840 °C niedriger. Damit kann man den Schluß ziehen, daß die maximale Temperatur hinter der untersuchten Blockade die Sättigungstemperatur nicht oder allenfalls gerade erreicht. Diese maximale Temperatur ist - wie schon bei der ersten untersuchten Blockade - etwa gleich der aus Massenaustausch und Totwasservolumen berechneten mittleren Kühlmitteltemperatur im Totwasser, von der bekannt war, daß sie zu hoch berechnet wird (1).

Wenn Blockaden, wie zuletzt untersucht, mit einem Blockierungsgrad $\beta = F_{Be}/F_{ges} > 0,4$ sicher detektierbar sind, wie bisher angenommen wurde, könnte man nun weiter schließen, daß das Auftreten von lokalem Sieden hinter Blockaden unwahrscheinlich ist. Doch deuten erste Ergebnisse von Druckverlustmessungen an Stabbündeln mit Blockaden darauf hin, daß die Grenze der Detektierbarkeit bei einem höheren Blockierungsgrad angesetzt werden muß. Die experimentellen Untersuchungen zu dieser Frage sind allerdings noch nicht abgeschlossen.

Veröffentlichung zu 1233.1:

(1) D. Kirsch

Untersuchungen zur Strömungs- und Temperatur-Verteilung im Bereich lokaler Kühlkanalblockaden in Stabbündel-Brennelementen.

Dissertation Universität Karlsruhe (TH) 1973/ KFK-Bericht 1794, Mai 1973

123-15



Abb. 5: Temperaturen im Totwasser hinter einer lokalen Blockade im höchstbelasteten SNR-Brennelement; Blockierungsgrad $\beta = F_{Bl} / F_{ges} = 0,468$



1233.2 <u>Experimentelle Untersuchungen zum Natriumsieden</u>* (W. Peppler, IRE)

Untersuchungen zum lokalen Sieden im Natrium-Siedekreislauf¹⁾ (K. Schleisiek, IRE)

Die Auswertung der Versuche zum lokalen Sieden in der Negativbündel-Teststrecke (16 Unterkanäle) wurde abgeschlossen. Ein zusammenfassender Bericht wird zur Zeit vorbereitet. Bei allen Versuchen wurde festgestellt, daß der lokale Siedeprozeß unter Bildung von Einzelblasen abläuft. Trotz der turbulenten Rückströmung sind erhebliche Siedeverzüge möglich, deren Höhe den Siedevorgang wesentlich beeinflußt. Es wurden drei verschiedene charakteristische Siedeformen beobachtet:

<u>Typ 1 – kein Siedeverzug</u>. Blasen mit etwa konstantem Volumen folgen einander ohne Wartezeit. Sie kondensieren vollständig oder nahezu vollständig. Bei Verringerung des Kühlmitteldurchsatzes werden größere Blasen mit längerer Lebensdauer gebildet.

<u>Typ 2 - geringer Siedeverzug (<50 ^OC)</u>. Es tritt eine Kette von Blasen mit abnehmendem Volumen auf, bis der Gleichgewichtszustand bei Sättigungstemperatur erreicht ist. Die Blasen kondensieren ebenfalls vollständig. Der weitere Ablauf des Siedevorgangs nach dieser Anlaufphase entspricht dem Typ 1.

<u>Typ 3 - hoher Siedeverzug (>80 °C)</u>. Hierbei werden Blasen mit zunehmendem Volumen gebildet, die nicht mehr vollständig kondensieren. Sie nehmen schnell den gesamten Teststreckenquerschnitt ein und verursachen eine Unterbrechung des Kühlmitteldurchsatzes (hydrodynamische Instabilität).

Zur Nachrechnung der Dynamik einzelner Blasen wurde das von K. Gast entwickelte theoretische Modell für lokale Siedevorgänge herangezogen. In diesem Modell wird der Druck in der Blase aus der stationären ortsabhängigen Temperaturverteilung bei Siedebeginn berechnet. Blasendruck und die bei der Verdrängung der Flüssigkeit aufzubringenden Kräfte bestimmen die Wachstumsgeschwindigkeit. Für die Kondensationsphase wird ein isothermer Prozeß angenommen. Die Anwendung dieses Modells auf die Versuche mit Siedeverzug (Typ 2 und 3) lieferte für die erste Siedeblase eine befriedigende Übereinstimmung zwischen Rechnung und Experiment. Auf die nachfolgenden Blasen sowie auf Versuche des Typs 1 ist das Modell nicht anwendbar, da die instationären

1)Letzter Bericht in KFK 1271/4

Wärmetransportvorgänge nicht berücksichtigt werden. Die vom Modell vorhergesagte Wartezeit bis zur Bildung einer neuen Blase wurde nicht beobachtet. Die Analyse der Meßwerte zeigt, daß die Kondensationstemperatur der Blase wegen des flachen Temperaturverlaufs in axialer Richtung nur wenig unter der Gleichgewichts-Sättigungstemperatur liegt. Die Kondensation verläuft zunächst isotherm, in ihrer letzten Phase jedoch adiabat. Der dadurch bedingte Anstieg der Blasentemperatur ermöglicht die sofortige Bildung einer neuen Blase.

Rechnungen für das SNR-Brennelement mit neueren, experimentell ermittelten Temperaturverteilungen zeigen einen ähnlichen Verlauf der Kondensationstemperatur, so daß auch dort eine Wartezeit nicht auftreten wird. Wegen der geringen Wärmekapazität der Hüllrohre reicht eine Blase zum Abbau der Überhitzungsenergie aus. Die beim Versuchstyp 2 beobachteten Blasenketten sind deshalb im Brennelement nicht zu erwarten.

Ein Versagen der Oberflächenkühlung durch vollständige Abdampfung des bei der Blasenbildung entstandenen Natriumfilms (Dryout) wurde bei den Versuchen des Typs 1 und 2 nicht beobachtet. Daraus kann geschlossen werden, daß auch bei lokalem Sieden im Brennelement kein Dryout auftritt, insbesondere da die Versuchsbedingungen wegen der durch die höhere Wärmeleitfähigkeit des Teststreckenwerkstoffs Nickel bedingten höheren Abdampfraten konservativ sind.

Die Analyse der Versuche des Typs 3 zeigt, daß die aufgetretene hydrodynamische Instabilität durch die besonderen geometrischen und hydraulischen Bedingungen der Teststrecke stark begünstigt wird. Für vergleichbare Vorgänge in Brennelementen sind Siedeverzüge und Blasenlebenszeiten erforderlich, die unwahrscheinlich sind.

Durch lokale Siedevorgänge werden typische Durchsatz- und Druckpulsationen erzeugt, die direkt und über die Änderungen der spektralen Zusammensetzung der Durchfluß- und Drucksignale eine Detektion ermöglichen (Abb. 6). Die Temperatur am Austritt enthält dagegen kaum Informationen über lokale Siedevorgänge.



2. Untersuchungen zum integralen Sieden infolge Pumpenausfalls im Natrium-Siedekreislauf (NSK)¹⁾

(A. Kaiser, W. Peppler, K. Schleisiek, IRE)

Als Beispiel eines schweren hypothetischen Unfalls ist der Verlust des Kühlmittels, verursacht durch den Ausfall aller Kühlmittelpumpen, bei gleichzeitigem Versagen der Regeleinrichtung von großem Interesse. Zur Bestätigung der Ergebnisse des Rechenmodells BLØW 3 (letzter Bericht hierüber unter der Nr. 1233.5 in den KFK-Berichten 1272/2 und 1273/1) wurde im NSK eine Serie von 14 Siedeexperimenten zum Pumpenausfall bei voller Leistung durchgeführt. Dabei wurde auf eine weitgehende Übereinstimmung der geometrischen und hydraulischen Daten der Teststrecke mit denen eines Unterkanals eines SNR-Brennelements geachtet. Der hydraulische Durchmesser des ringförmigen Teststreckenquerschnitts betrug 4 mm, die beheizte Länge 500 mm. Auch die Durchfluß-Kennlinie, die Heizleistung und der Druck wurden so gut wie möglich den Reaktorbedingungen angepaßt. Die Versuchsparameter sind nachfolgender Tabelle zu entnehmen.

Versuch Nr. 16/	11,12,13	14	15	16,19,20	17,21,22	23	24	25
Druck / ata_7	0,8	0,8	1,2	1,2	1,2	1,6	1,6	1,6
Wärmefluß / W/cm ² 7	99	123	123	149	180	149	180	213

Die Versuche unterscheiden sich von früheren / 1 7 in folgenden Punkten:

a) Bei Einsetzen des Siedens war ein Restdurchsatz im Kühlkanal vorhanden.

b) Als Folge des Durchsatztransienten ergab sich eine ganz bestimmte axiale Temperaturverteilung.

Die unmittelbar aus dem Versuch gewonnenen Ergebnisse, wie Verlauf und Verteilung von Durchsatz, Void, Temperaturen und Druck wurden ausgewertet und mit dem Modell verglichen. Daran schließt sich eine detailliertere Auswertung an, welche Aufschluß u.a. über Siedeverzüge, Restfilmstärke und charakteristische Siedegeräusche geben wird.

1) Bisher nicht berichtet.

3. <u>Siedeversuche im Siebenstabbündel</u> (K. Mattes, K. Schleisiek, IRE)

Die für das Siebenstabbündel vorgesehenen Heizstäbe sind im IRB in Fertigung. Die Konstruktion der Teststrecke ist im Entwurf abgeschlossen. Die zum Einschweißen der Heizstäbe in die Grundplatte sowie die zum Widerstands-Preßverschweißen der Elektroden notwendigen Tests konnten in Zusammenarbeit mit dem RBT/M erfolgreich abgeschlossen werden. Mit der Anpassung des Natriumsiedekreislaufes (NSK) für diese Versuche wurde begonnen.

Im Rahmen der für Großbündelversuche erforderlichen Heizstabentwicklung wurden vier weitere Heizstäbe im NSK getestet: zwei Heizstäbe vom IRB, ein Heizstab des RCN-Petten sowie der reparierte Heizstab der Firma Pyro-Controle. Diese Heizstäbe erfüllten im wesentlichen das für sie vorgesehene Versuchsprogramm.

Literatur zu 1233.2:

/ 1_7 F.W. Peppler Externer Bericht 8/72-1, Februar 1972

1234 Störfallverhalten von Brennstäben

1234.1 Experimentelle Untersuchungen zum Brennstabversagen (Versuche an der Electrical Pin Burst Facility EPBF)^{1) F}

Weitere Ergebnisse des EPBF-Versuchsprogramms

(A. Alexas, IASR/RPU)

Die bisherigen Niederschmelzversuche erwiesen sich als reproduzierbar.

Die Unfallbetrachtung beschränkte sich zunächst auf den Fall der Simulation der Kühlmittelblockade in einem Kanal mit dem zunächst daraus folgenden schwachen Leistungsanstieg bei relativ hohen Hüllentemperaturen.

1)Letzter Bericht in KFK 1272/4

Es konnte wiederholt festgestellt werden, daß bei prompten (ms-Bereich) Leistungsanstiegen um ca. das 10-fache der stationären Betriebsleistung der Stab im 5-Sekunden-Bereich nach Einleitung der Exkursion zerstört wurde.

Die Zerstörung wurde eingeleitet durch heftige Emission geschmolzenen Materials aus dem Stabinneren. Versuchsauswertungen zeigten, daß sich im Stabinneren eine schwach kegelförmig verlaufende Schmelzzone ausbildete, die jedoch den Zusammenhalt des Stabes zunächst nicht beeinflußt.

Ein anderes Verhalten des UO₂ war bei langsamen (Leistungserhöhung auf das 7-fache der stationären Leistung innerhalb 9 sec) Exkursionen zu beobachten. In diesen Fällen floß das geschmolzene Material direkt aus dem unteren Ende des Stabes heraus, jedoch nicht kontinuierlich, sondern in zeitlich deutlich voneinander getrennten Abständen (Abb. 7). Die geschmolzene Materialmasse

war dabei größer als bei Exkursionen im ms-Bereich. Die Schmelzzone war fast zylindrisch mit einem Durchmesser von ca. 4 mm. Beiden Phänomenen war die Tatsache gemeinsam, daß der Stab bis zu seiner aufgrund der thermischen Ausdehnung erfolgten Verkantung und seinem Zusammenbruch äußerlich intakt blieb, obwohl gegen Ende des jeweiligen Versuchs nicht mehr von einem Stab, sondern eher von einem Rohr die Rede sein muß.

Da es sich bei diesen Versuchen um frische Stäbe handelte, wird noch untersucht, welche Auswirkungen ein Zentralkanal, der sich im SNR ca. 10 h nach der Inbetriebnahme eines Stabes ausgebildet hat, auf die bisher beobachteten Erscheinungen hat.

Inzwischen wurde auch die Kühltechnik endgültig entwickelt und der gesamte Kühlkreislauf in Betrieb genommen. Abbildung 8 zeigt schematisch den Versuchsstand. Erste Kühlversuche zeigten zufriedenstellende Ergebnisse.

Die Temperaturmeßtechnik wurde soweit entwickelt, daß Hüllentemperaturen bis zu + 10 °C genau gemessen werden können.







1234.2 <u>Brennstabversagensmodel1</u> 1) ★ (B. Kuczera, IRE)

Die Weiterentwicklung des Rechenprogramms BREDA <u>[1]</u> konzentrierte sich auf die Einbeziehung von Abbrandeffekten, die als Einzelphänomene in der Materialforschung studiert werden und das Brennstabverhalten unter transienten Lastbedingungen wesentlich beeinflussen. Der Abbrandzustand eines Brennstabes wird durch die veränderte Anfangsgeometrie und einen vorhandenen Spaltgasdruck charakterisiert. Geometrieänderungen resultieren aus der Umstrukturierung des Brennstoffes, was mit der Ausbildung des Zentralkanals und einer radialen Porositätsverteilung innerhalb eines axialen Segments verbunden ist, und werden durch Brennstoff- und Hüllrohrschwellen verursacht. Der Spaltgasdruckaufbau im Zentralkanal infolge der Temperatur- und Volumenänderung sowie der Spaltgasfreisetzung wird durch axiale Integration auf iterativem Wege berechnet. Geringe axiale Verschiebungen der Brennstoffschmelze sind möglich. Die Behandlung des transienten Schwellens in Brennstoffzonen ohne Gefügebeeinflussung ist vorgesehen.

Brennstoffschwellen

Geometrieänderungen bestrahlter Brennstäbe haben zwei Ursachen: die Porenwanderung in der Brennstoffmatrix und das Schwellen infolge des Abbrandes. Schon nach kurzer Einsatzzeit (ca. 24 h) kommt es infolge der radialen Temperaturgradienten zu einer Wanderung der (herstellungsbedingten) Sinterporen und damit zur Ausbildung des Zentralkanals $\int 2_{-}7$. Dies bewirkt eine Herabsetzung der maximalen Brennstofftemperatur (s. Abb. 9). Gleichzeitig tritt eine temperaturabhängige Veränderung der Brennstoffstruktur ein $\int 3_{-}7$. Ein entsprechendes Mehrzonen-Brennstoffmodell (Abb. 9) unterscheidet die Stengelkristallzone ("columnar grain-growth region") mit Temperaturen T_B >1800 °C von der Kornwachstumszone ("equiaxed grain-growth region") mit T_B = 18001300 °C und von der äußeren Zone ohne Gefügebeeinflussung ("unrestructured fuel") mit T_B <1300 °C $\int 4_{-}7$. (Die angegebenen Grenztemperaturen differieren bei verschiedenen Autoren um einige 100 °C $\int 5_{-}7$). Anstelle der ursprünglich homogenen Brennstoffporosität tritt nun für jedes

1)Letzter Bericht in KFK 1272/3

axiale Segment eine radiale Porositätsverteilung, die sich aus dem Temperaturfeld des Reaktorkerns ableitet. Die Zonen ohne Gefügebeeinflussung und die Kornwachstumszone behalten ihre Ausgangsposorität (z.B. 13,6% in bezug auf die theoretische Dichte) bei, während in der Stengelkristallzone die Porosität auf z.B. 5% abnimmt (Porositätsdaten = Eingabewerte). Dadurch ändern sich die thermischen und mechanischen Eigenschaften des Brennstoffs / 6 / 7.

Langfristig ändert sich die Brennstoffgeometrie durch Abbrand-bedingtes Brennstoffschwellen. Die Ursache hierfür ist die chemische Umwandlung von spaltbaren Kernen in feste und gasförmige Spaltprodukte: ca. 15% der stabilen Spaltprodukte sind die Edelgase Xe und Kr /77. Bei den gasförmigen Spaltprodukten unterscheidet man zwischen freiem Spaltgas ("released fission gas"), das zum Gasdruckaufbau im Brennstab beiträgt, und dem Poren- bzw. dem Gitterspaltgas, das in der Brennstoffmatrix zurückgehalten wird ("retained fission gas") und zusammen mit den festen Spaltprodukten zu Brennstoffdichteänderungen führt. Die Angaben über die Schwellbeträge sind mit einem großen Streubereich behaftet. Für theoretisch dichten Brennstoff wurde eine Volumenzunahme infolge der festen Spaltprodukte von 0.32...1,3 (% V/V)/% FIMA berechnet /3.7. Andere Autoren geben 0.7(ZAV/V)/at-Z Abbrand /7.7 und 0.52 bzw. 0.86 (XAV/V)/% Abbrand / 9 7 an. Nach Karsten / 3 7 wird diese Volumenzunahme bei porösem Brennstoff durch teilweises Ausfüllen des Porenvolumens kompensiert. Dazu stehen in der Stengelkristallzone 80%, in der Kornwachstumszone 50% und in der Zone Gefügebeeinflussung 30% des jeweiligen Porenvolumens zur Verfügung.

Die gasförmigen Spaltprodukte haben in der Zone ohne Gefügebeeinflussung eine relativ hohe Gitterlöslichkeit. Diese ist in der Kornwachstumszone geringer, so daß das Spaltgas in kleinen Blasen oder in die Sinterporen ausfällt und damit die Brennstoffporosität erhöht. Da sich die Blasen im Temperaturfeld ähnlich wie die Sinterporen verhalten (Blasenwanderung, Blasenkoaleszenz) $/[10_7]$, tritt der temperaturabhängige Schwelleffekt durch gasförmige Spaltprodukte in dieser Zone deutlich auf. Die Spaltgasfreigabe setzt mit der Wanderung der Blasen zum Zentralkanal ein. B. Frost $/[7_7]$ gibt für die Brennstoffvolumenänderung, die durch gasförmige Spaltprodukte verursacht wird, einen Wert von ca. $1(Z\Delta V/V)/at-Z$ Abbrand an. Integralwerte für die Volumenzunahme des Brennstoffs durch die Anwesenheit von festen und gasförmigen Spaltprodukten werden mit 1.3 $(Z\Delta V/V)/at-Z$ Abbrand $/ 11_7$ bzw. 1.7 $(Z\Delta V/V)/at-Z$ FIMA $/ 12_7$ beziffert. Die Unsicherheit dieser Zahlenangaben wird in $/ 12_7$ mit einem Multiplikationsfaktor ausgedrückt, der zwischen 0.5...2 liegen kann. Infolge des Brennstoffschwellens verändern sich die Anfangsbedingungen der transienten Phase. Die Vergrößerung des Außenradius hat eine Spaltweitenreduzierung zur Folge, und die Verkleinerung des Zentralkanals kann einen Anstieg der maximalen Brennstofftemperatur bewirken $/ 13_7$. - Während der Einsatzzeit kann das Spannungsfeld im Brennstoff zu einer Porositätsminderung ("hot pressing") führen / 14 7. Diese Brennstoffverdichtung wird nicht erfaßt.

Hüllrohrschwellen

Für das Hüllrohrschwellen infolge Porenbildung im Stahl werden in / 17 / 17 / 17mehrere Gleichungen für verschiedene Stähle mit unterschiedlichen Eigenschaften angegeben. Hier wird die im SATURN 1a / 15 / 7 verwendete Formel aus / 16 / 7 für das Material 1.4988 übernommen:

 $\Delta V/V = 8.5 \cdot (\Phi \cdot t \cdot 10^{-23})^{1.6} \cdot exp (- (490-T)/100)^2$

 $(\Delta V/V (\%) = Volumenzunahme, \Phi(n/cm^2 sec) = Neutronenfluß (E >0.1 MeV), t (sec) = Bestrahlungszeit, T (°C) = mittlere Hüllrohrtemperatur).$

Danach ist bei einer flachen axialen Leistungsverteilung ein Schwellmaximum in der Kernmitte (T = 490 °C) zu erwarten. Bei der Berechnung der neuen Abmessungen wird zunächst der mittlere Hüllrohrradius linear um ein Drittel des Schwellwertes vergrößert, anschließend werden der Hüllinnen- und -außenradius über die entsprechend verbreiterte Wandstärke ermittelt.

Spaltgasbehandlung

Die Masse des während einer bestimmten Betriebszeit produzierten Spältgases kann aus dem Abbrandzustand des Brennstoffs ermittelt werden, wenn man davon ausgeht, daß pro Spaltung 0,26 Gasatome erzeugt werden. Wie bereits erwähnt, wird ein Teil dieser Gasmenge freigesetzt und führt zu einer Druckerhöhung im Brennstab, die bei stationären Bedingungen 70 atü nicht überschreiten soll / 18/. Die Freisetzungsrate ist in den einzelnen Zonen verschieden. In der Stengelkristallzone erfolgt durch schnelle Poren- und Blasenwanderung eine nahezu vollständige Freisetzung / 19, 20/, in der Kornwachstumszone liegt dieser Anteil zwischen 26...50% des Produktionsterms / 7, 21/, und in der kälteren Zone ohne Gefügebeeinflussung wird nahezu das gesamte Spaltgas im Brennstoff zurückgehalten $/_7/_$. Für die integrale Spaltgasfreisetzung aus allen Zonen wird die Gleichung von D.S. Dutt $/_22_/$ übernommen, die experimentell für Mischoxid abgeleitet worden ist:

$$F = 1 - \frac{1 - \exp(-6.84 \cdot 10^{-5}B)}{6.84 \cdot 20^{-5}B} / \frac{1}{0.421} \cdot \exp(0.05\chi) \frac{1}{7}$$

 $(F(\geq 0) = Anteil des freigesetzten Spaltgases, \chi (kW/ft) = Stableistung, B (MWd/tM) = Abbrand).$

Darin wird die Abhängigkeit des Freisetzungsanteils von der Brennstofftemperatur implizit über die Stableistung ausgedrückt. Bei höherer Stableistung wird ein größerer Spaltgasanteil freigesetzt. Die gleiche Tendenz zeigen höhere Abbrände. Mit Hilfe dieser Gleichung und einer vorzugebenden Verteilungsfunktion wird die Spaltgaszurückhaltung in den drei Brennstoffzonen berechnet. Dies bezieht sich auf den stationären Reaktorbetrieb.

Wachsen bei einem Leistungsanstieg die Radien der 1800- bzw. 1300 °C-Isothermen in die Kornwachstumszone bzw. die Zone ohne Gefügebeeinflussung (Zonendefinition bei stationären Bedingungen) hinein, dann wird durch die Temperaturerhöhung der lokale Gleichgewichtszustand in bezug auf die Spaltgaszurückhaltung gestört (s. Abb. 10). Zusätzliche Spaltgasmengen fallen aus der Brennstoffmatrix in Blasenform aus und bewirken damit ein transientes Brennstoffschwellen, oder Gasanteile werden freigesetzt. Vollständige Spaltgasfreisetzung in den Zentralkanal setzt beim Brennstoffschmelzen ein. Dabei werden Aufschäumeffekte ("foaming"), die durch Expansion der Gasblasen in der viskosen Brennstoffmasse erzeugt werden <u>/</u>23_7, phänomenologisch nicht behandelt.

Zur Berechnung des Spaltgasdruckaufbaus im Zentralkanal: Ausgehend von den stationären Werten für Spaltgasdruck und -temperatur, dem Zentralkanalvolumen und der in den axialen Brennstoffsegmenten zurückgehaltenen Spaltgasmenge wird nach jedem Thermodynamik-Zeitschritt das Gasverhalten (Xe und Kr) mit Hilfe der Zustandgleichung und der idealen Gasgleichung neu berechnet. Aus der Verschiebung der Isothermenradien wird die Zunahme an freigesetztem Spaltgas ermittelt und über die mittlere Gastemperatur der neue Druck bestimmt. Da ein höherer Gasdruck zu größeren Brennstoffaufweitungen beiträgt, wird nach der Verformungsanalyse das Spaltgasvolumen axial über alle Segmente

123-27

aufintegriert und mit diesem Gesamtvolumen der ursprüngliche Druck nachgerechnet. Treten dabei hinreichend große Druckunterschiede auf, wiederholt sich der Rechenvorgang im Sinne einer Iteration.

Ergebnisse der Testphase

Bei den Testrechnungen mit den neuen Unterprogrammen wurde die Belastung eines (SNR-300 ähnlichen) Brennstabes / 18 / 18 / 18 infolge einer 5 s/sec-Reaktivitätsrampe untersucht. Der zeitliche Leistungsverlauf stammt aus einer entsprechenden Analyse von G. Heusener et al. / 24 / 7. Das axiale Leistungsund Brennstofftemperaturprofil ist zusammen mit der Mehrzonendarstellung der Brennstoffsäule in Abb. 9 gezeichnet.

Bei einer angenommenen Standzeit von 200 d beträgt der maximale Abbrand im Stab 54000 MWd/tM. Ein vorgegebener Spaltgasdruck von 50 atü wirkt stationär im Zentralkanal, dem Spalt und dem Spaltgasplenum. In Abb. 11 sind der Leistungsverlauf, die Geometrieänderungen des 6. axialen Brennstabsegments sowie das Spaltgasverhalten im Zentralkanal über der Zeit aufgetragen.

Aus dem Verlauf der Isothermenradien und des Schmelzradius läßt sich die Spaltgasfreisetzung zeitlich in den Störfallablauf einordnen. Der Druckanstieg wird zunächst durch die Gasfreisetzung und die Temperaturerhöhung bestimmt. Beginnt der Brennstoff zu schmelzen, dann verringert sich das zur Verfügung stehende Gasvolumen durch Expansion der Brennstoffschmelze, und der Spaltgasdruck steigt bis auf ca. 700 atü an. Dies hat rückwirkend eine Brennstabaufweitung zur Folge und führt zu einem zeitlich früheren Brennstabversagen. Für die Berechnung möglicher Brennstoffbewegungen, die nach dem Stabversagen und im Zusammenhang mit der Brennstoff-Na-Reaktion auftreten können <u>/</u>25_7, liefern diese Informationen über den Brennstabzustand die notwendigen Anfangs- und Randbedingungen.





Eine detaillierte physikalische Interpretation der in Abb. 11 dargestellten Kurvenverläufe ist in Vorbereitung.



123-31

Literatur

(1) B. Kuczera, KFK-1729, Dez. 1972 (2) H. Hoffmann, W. Hellriegel, atw, Juni 1972, S. 317 (3) G. Karsten, KFK-700, Dez. 1967, S. V-1 (4) G. Karsten, et al., KFK-878, Nov. 1968 (5) D.H. Thompson, W.W. Marr, Nucl. Eng. Design 17(1971), 361-370 (6) H. Kämpf, G. Karsten, Nucl. Appl. & Techn. Vol.9, Sept.1970, S.288 (7) B.R.T. Frost, Nucl. Appl. & Techn. Vol.9. Aug. 1970, S. 128 (8) F. Anselin, W.E. Baily, Trans ANS 10(1), 103-104, (1967) (9) H. Zimmermann, KFK-1400, Okt. 1971, S. 115 (10) Hj. Matzke, C. Ronchi, KFK-1400, Okt. 1971, S. 127 (11) A. Boltax, et al., Nucl. Appl. & Techn. Vol. 9, Sept. 1970, S. 326 (12) C.M. Cox, F.J. Homan, Nucl. Appl. & Techn. Vol. 9, Sept.1970, S.317 (13) K. Kummerer et al., atw, Okt. 1971, S. 545 (14) B.L. Harbourne et al., Nucl. Technology, Vol.16, Okt.1972, S. 156 (15) H. Kämpf, et al., KFK-1575, Sept. 1972 (16) K. Ehrlich, KFK-1400, Okt. 1971, S. 283 (17) P. Murray, Reactor Technology, Vol.15, No.1, Spring 1972 (18) K. Kummerer, atw, Nov. 1972, S. 574 (19) H. Zimmermann, KFK-1400, Okt. 1971, S. 145 (20) M.D. Freshley, Nucl. Technology, Vol. 15, Aug. 1972 (21) R.H. Hilbert et al., Trans ANS 14(2), 582, (1977) (22) D.S. Dutt et al., Trans ANS 15(1), 198, (1972) (23) R.G. Stuart, G.R. Thomas, Trans ANS 13(2), 654, (1970) (24) G. Heusener et al., Conf-721006, S. 1235 (25) W.E. Kastenberg, E.T. Rumble, KFK-1782, März 1972

1235 <u>Sprengversuche an Core-Modellen</u>* (K. Gast, H. Will, IRE)

Mit diesem Vorhaben sollen die mechanischen Auswirkungen einer Brennstoff-Natrium-Reaktion in einem einzelnen Brennelement auf die Corestruktur untersucht werden.

Im Berichtszeitraum wurde das experimentelle Vorgehen neu überdacht. Danach wird der 1. Modellversuch (voraussichtlich im August 1973) mit einer Charge durchgeführt, die zu einem Spitzendruck von 125 atü im "overstrong wrapper" führen soll und somit etwa 75 atü im Modell erwarten läßt. Durch sukzessive Steigerung der Charge und damit des Druckes soll nach mehreren Versuchen die obere Grenze der tolerierbaren Schäden erreicht werden.

Im Juni wurde ein top end simulation Versuch durchgeführt. Dabei geht es darum, in radial starrer Geometrie die bei einer bestimmten Charge maximal mögliche Verstopfung der Brennelementmischzone durch die beim Flüssigkeitsaustrieb mitgerissene Brutzone zu untersuchen . In Abb. 12 sind die während des Versuches gemessenen Drücke gegeben. Die Nachuntersuchungen, wie Druckverlustmessungen und Maßkontrollen, werden demnächst beginnen.

1236 Untersuchungen zur Brennstoff-Natrium-Reaktion

1236.1 <u>Theoretische Untersuchungen zur Brennstoff-Natrium-Wechselwirkung</u> (P. Baraggioli, L. Caldarola, G. Koutsouvelis, IASR)

1. Zum Einfluß der endlichen Geschwindigkeit der Fragmentation des Brennstoffes und seiner Vermischung mit dem Natrium

Die Rechenprogramme insbesondere für Fälle, bei welchen die "akustische Zeit" gleich oder größer ist als die Zeitdauer der Phase A (d.i. das Zeitintervall vom Zeitpunkt des Inkontaktkommens beider Reaktionspartner bis zum Beginn der Natrium-Verdampfung), sind erstellt und getestet worden.

In dem hier demonstrierten Beispiel beträgt die "akustische Zeit" etwa 4.225 msec. Sie ist somit größer als die Zeitdauer der Phase A, welche etwa 1.697 msec beträgt, und zwar sowohl im Falle der zeitlich konstanten als auch im Falle der variablen, miteinander reagierenden Massen von Brennstoff und Natrium.



123-33

Das Zeitgesetz bzgl. der variablen Massen wurde als linear vorausgesetzt mit einer "Mischungszeitkonstante" von 0.1 msec. Ferner wurden der Rechnung folgende Hauptdaten zugrundegelegt: Radius der Brennstoffpartikel = 117 μ , Massenverhältnis zwischen Brennstoff und Natrium = 8.3.

In Abb. 13 ist der zeitliche Verlauf der mittleren Brennstoff- und Natriumtemperatur, in Abb. 14 der des Druckes und in Abb. 15 der zeitliche Verlauf der Arbeit, bezogen auf ein Gramm reagierenden Brennstoffs, während der Phase A dargestellt, und zwar sowohl bei konstanten als auch bei linear-variablen Massen. Aus den Abbildungen ist der reduzierende Einfluß der endlichen Geschwindigkeit der Fragmentation des Brennstoffes und der Vermischung des Brennstoffes mit dem Natrium ersichtlich.

In bezug auf die entsprechenden Daten bei konstanten Massen wird hier das Druckmaximum um ca. 34.37 und die spezifische Arbeit am Ende der Phase A um ca. 34.27 reduziert.

Andere Fälle, bei welchen die "akustische Zeit" kleiner ist als die Zeitdauer der Phase A, werden z.Zt. untersucht.

2. Zum Einfluß der endlichen Wärmeleitfähigkeit des flüssigen Natriums

Als Referenzfall bei dieser Untersuchung diente der Rechenfall nach Cho-Ivins-Wright.

In Abb. 16 ist der zeitliche Verlauf der mittleren Brennstofftemperatur, der Kontakttemperatur zwischen Brennstoff und Natrium und der mittleren Temperatur des Natriums und in Abb. 17 der des Druckes während der Phase A dargestellt.

Nimmt man an, daß die Natrium-Verdampfung dann beginnt, wenn der Druck gleich dem Sättigungsdruck bei der entsprechenden Kontakttemperatur wird, so beträgt – in dem hier untersuchten Fall – die Zeitdauer bis zum Ende der Phase A 1.48 msec und die mittlere Natrium-Temperatur zu diesem Zeitpunkt 2209 ^OK.

Falls man dagegen annimmt, daß die Natrium-Verdampfung erst dann beginnt, wenn der Druck gleich dem Sättigungsdruck bei der entsprechenden mittleren Temperatur des Natriums wird, dann beträgt die o.g. Zeitdauer 1.65 msec und die mittlere Natrium-Temperatur zu diesem Zeitpunkt 2220 ^OK.



as Functions of the Time.





123-36






Abb. 16

Cho and Wright case - Fuel and coolant temperatures as functions of time



Der Unterschied ist also gering, weshalb bei zukünftigen Rechnungen angenommen wird, daß der Zeitpunkt des Verdampfungsbeginns mit dem Zeitpunkt übereinstimmt, bei welchem der Druck gleich dem Sättigungsdruck bei der entsprechenden mittleren Natrium-Temperatur wird.

Diese Hypothese hat keinen großen Fehler zur Folge, und sie ist zusätzlich konservativ.

1236.2 Experimentelle Untersuchungen zu Brennstoff-Natrium-Reaktionen

Meßeinrichtung für den BNR-Versuchsstand

(St. Müller, G. Thun, IRB)

In / 1_7 ist die prinzipielle Anordnung aufgezeigt, mit der Metallkörper (z.B. zur Simulation von Na-Agglomeraten), die sich durch das Innere eines dickwandigen Edelstahlrohres bewegen, erfaßt werden können. Der Meßaufbau wurde durch eine mit Preßluft arbeitende Vorrichtung ergänzt. Auf diese Weise kann die Geschwindigkeit der Probekörper auf ca. 30 m/s gesteigert werden. Es wurden zwei Auswertungs-Methoden untersucht:

- a) Die Wirbelstrom-Induktionsmethode (für Geschwindigkeiten größer 8 m/sec)
- b) Die Resonanz-Dämpfungsmethode

(auch für Geschwindigkeiten kleiner 8 m/sec, sowie zur Erfassung von Probekörpern kleinen Volumens, wie sie z.B. in einer Zweiphasenströmung denkbar sind.)

<u>Zu a):</u>

Es sollte die Abhängigkeit der Signale von der Geometrie der Probekörper beobachtet werden.

Hierbei wird das dickwandige Edelstahlrohr von einem magnetischen Gleichfeld durchsetzt; das Meßsignal wird in diesem Fall durch die Wirbelströme erzeugt, die beim Bewegen durch das Magnetfeld in den Probekörpern entstehen. Die damit verbundene Änderung des äußeren magnetischen Flusses induziert in einer Spule das erwünschte Signal. Aus Abb. 18 ist die Abhängigkeit der Signalhöhe von der Geschwindigkeit und der Masse bzw. der Form der Probekörper zu erkennen. Die Signale der Vollkörper sind immer größer als die von Rohrkörpern gleicher Außenabmessungen.

Die Schnittpunkte der Linien gehen nicht durch den Nullpunkt der Abszisse, d.h. daß mit dieser Anordnung nur Geschwindigkeiten >5 m/s für große und >10 m/s für kleinere Probekörper erfaßt werden können.

Abb. 19 zeigt die Abhängigkeit der Signalhöhe von der Probenlänge bei gleichbleibender Geschwindigkeit.

Hierbei ist zu beachten, daß grundsätzlich ein sinusförmiges Signal entsteht, wenn die Stirnfläche eines Metallkörpers in das Magnetfeld eintritt, bzw. aus dem Magnetfeld austritt. Bei Proben mit 200 bis 350 mm Länge ist die Entfernung der Stirnflächen zur wirksamen Magnetfeldhöhe allerdings so groß, daß deutlich zwei Signale mit umgekehrter Anstiegsrichtung erfaßt werden. Bei kleineren Längen addieren sich dagegen das Austrittssignal vom "Bug" und das Eintrittssignal vom "Heck" des Probekörpers zu einer gemeinsamen Signalspitze. Diese wurde hier aufgetragen.

Zu b):

Bei dieser Methode werden durch das Wechselfeld eines Oszillators Wirbelströme in den Proben induziert; diese wirken auf die Amplitude der Schwingung ein. Auf diese Weise war es möglich, Probekörper, die aus in Harz isoliert eingegossenen Messing-Muttern M 12 bestanden, auch bei kleinen Geschwindigkeiten noch deutlich wahrzunehmen. Diese Methode wird hinsichtlich ihres Störfeld- und Stabilitätsverhaltens weiter untersucht.

Literatur:

/ 1_/ PSB - 1. Vierteljahresbericht 1973, KFK 1273/1, Juni 1973







1236.3 <u>Niederschmelzversuche an Brennstäben mit Natrium-Kühlung durch</u> <u>direkte elektrische Beheizung</u> **#** 1)

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

Zum Studium der Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Natrium bei Leistungsexkursionen wird eine out of pile-Versuchseinrichtung erstellt. In der Teststrecke können bis zu 7 Brennstäbe mit je 16 cm Brennstofflänge unter strömendem Natrium stationär betrieben und durch scharfe Leistungstransienten abgeschmolzen werden. Die Verhältnisse im Kühlkanal der Teststrecke sollen im Prinzip denen im Brennelement-Kühlkanal entsprechen. Die Versuchsbedingungen, insbesondere Kühlung, Kühlkanalgeometrie und Stabinnendruck können in einem weiten Parameterfeld variiert werden.



1) Letzter Bericht in KFK 1272/2

Im ersten Halbjahr 1973 wurden die letzten Komponenten der Natrium-Anlage in Auftrag gegeben. Die weiteren Arbeiten konzentrierten sich auf die Entwicklung eines funktionsfähigen Brennstabes und eines speziellen Druckaufnehmers zur Messung kurzer Druckpulse. Außerdem wurde eine Einrichtung zur Meßwerterfassung während der Leistungstransiente erstellt, die über die vorhandenen Rechenanlagen und Programmsysteme eine rasche Meßwertverarbeitung ermöglicht.

Es wurden Abschmelzversuche unter Argon-Kühlung zunächst an nicht umhüllten, später an umhüllten UO₂-Stäben durchgeführt. Abb. 20 zeigt die Ergebnisse eines Versuches, bei dem Brennstoff und Hülle nahezu völlig abgeschmolzen wurden. Die bisherigen Versuche führten zu einem vorläufigen Brennstabkonzept mit 5 mm Brennstoffdurchmesser, Al₂O₃-Isolierung (O,3 mm dick) im Argonspalt und potentialfreier Hülle (7 mm Außendurchmesser). Für den Stationärbetrieb wird über den Brennstabwiderstand dessen mittlere Temperatur automatisch geregelt.

Es sind weitere Vorversuche - zunächst unter Gaskühlung, später in einer Natriumkapsel - geplant, die eine Optimierung des Brennstabkonzeptes und des Versuchsablaufes erlauben sollen.

124 ENTWICKLUNG DER INSTRUMENTIERUNG UND SIGNALVERARBEITUNG ZUR KERNÜBERWACHUNG

1241 Nachweiß von Durchflußstörungen an Brennelementen

Temperaturfluktuationen am elektrisch beheizten Brennelement und an der KNK* (L. Krebs, G. Weinkötz, IRB)

In Fortsetzung des vorgesehenen Meßprogrammes wurden sowohl am NW 80-Natriumkreislauf des IRB als auch an der KNK ergänzende Versuchsreihen durchgeführt. Parameter waren erneut die zugeführte Leistung sowie der Durchsatz. Die out-of-pile-Untersuchungen haben das Ziel, die durch vorgegebene Störungen bedingte Änderung der Temperaturrauschsignale zu erfassen und zu verstehen. Zu diesem Zweck wurde in dem vorhandenen 61-Stabbündel außer dem Zentralstab zusätzlich ein Wandstab beheizt. Weiterhin soll bei der zur Zeit laufenden Auswertung geklärt werden, ob eine Abhängigkeit der Temperaturrauschsignale von der Art der eingesetzten Abstandshalter festgestellt werden kann. Die Vorbereitungen für die Messungen bei Durchflußstörungen wurden weitergeführt. Mit der Fertigung des hierzu erforderlichen Blockade-Bündels wurde begonnen (Abb. 1).

Die in-pile-Untersuchungen an der KNK wurden mit Messungen an 10 weiteren Brennelementpositionen ebenfalls fortgesetzt. Hierdurch soll festgestellt werden, ob ein Zusammenhang zwischen der Position des Brennelements im Core und dem zugehörigen Leistungsdichtespektrum besteht. Außerdem soll eine Aussage über die Reproduzierbarkeit der Messungen getroffen werden.

Zusätzlich wurden die Vorarbeiten für den KNK-Meßkopf mit den Spezialmeßfühlern weitergeführt. Die zwischenzeitlich fertiggestellte Konstruktion liegt gegenwärtig dem TÜV zur Begutachtung vor. Der Vorteil dieser Spezialinstrumentierung gegenüber der Betriebsinstrumentierung besteht hauptsächlich in der größeren Empfindlichkeit der Meßfühler. Es ist zu erwarten, daß der Meßkopf noch rechtzeitig für den Einsatz in KNK I bereitsteht.



Abb.1 Blockadebündel NW80

1244 Akustische Meßverfahren in Natrium

1244.1 Ultraschall-Meßtechnik in Natrium*

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

Die Entwicklung temperaturfester Ultraschallübertrager wurde fortgesetzt. Hierbei wurden Lithium-Niobat-Kristalle mit unterschiedlichen Oberflächenbelägen untersucht und Lötversuche mit Hartloten auf Edelstahl-Diaphragmen vorgenommen. Hinsichtlich der Rauhtiefe der Oberfläche und der in Übereinstimmung zu bringenden linearen Ausdehnungsbeiwerte stehen weitere Grundmaterialien vor der Erprobung.

Die Natrium-Testeinrichtung wurde auf ihre Positionierungsgenauigkeit untersucht. Hierzu wurden die Stellmotoren der Prüfeinrichtung über den gesamten x-y-Koordinatenbereich gefahren, wobei die erwartete Genauigkeit der x-y-Vorgabewerte erreicht wurde. Nach Fertigstellung des in Arbeit befindlichen Übertragers wird die Einheit in Natrium bei zunächst 350 ^OC erprobt werden.

1244.3 <u>Akustische Meßtechnik in Natrium-Systemen</u>^F (H. Rohrbacher, H. Arnswald, R. Bartholomay, P. Govaerts, H. Will, IRE)

Während des Berichtszeitraums wurden wiederum Schall-Untergrund-Messungen an der KNK vorgenommen, wobei u.a. auch die Geräusche beim Fall der Schnellabschaltstäbe aufgenommen wurden. Es traten dabei intensive Schallspektren mit etwa 200% über den normalen Betriebsgeräuschen liegenden Pegeln auf. Besonders nach dem Abfallen der Stäbe wurden zyklische Intensitätsmaxima gemessen und auf Magnetband aufgenommen. Die Auswertung der Abschalt-Signale zeigt, daß nicht nur die Körperschallsensoren am Tankauflager gute Ergebnisse lieferten, sondern daß die Meßstelle QSID1 an der Sekundär-Pumpe 1 ebenfalls korrelierbare Signale lieferte. Hingegen konnten keine auswertbaren Schallmeßwerte von den Sensoren der beiden Primär-Pumpen und der Sekundär-Pumpe 2 (QS2D1) zur Abschaltungs-Schallanalyse benutzt werden.

Das stark unterschiedliche Schallspektrum der beiden Sekundärpumpen wurde näher untersucht. Hierzu wurden die Pumpenlasten in 10 verschiedenen Stufen zwischen 10% und 100% variiert und die Schallspektren aufgenommen. Bereits bei der Bandaufnahme zeigte ein Monitor, daß ein Maximum der Schalleistung im Bereich von 50 bis 70% des Pumpendurchsatzes auftritt. Zu hohen Umdrehungszahlen hin nimmt die integrale Schalleistung ab, das Spektrum der Pumpensignale enthält jedoch höher frequente Anteile.

Aufgrund der gewonnenen Ergebnisse können für schallanalytische Meßverfahren an der KNK bereits erste Aussagen über den Schall-Untergrund bei verschiedenen Lastzuständen gemacht werden, die als Basis für eine On-line-Analyse mit Hilfe von Frequenzfenstern und Amplituden-Triggern benutzt werden können.

125 AUSWIRKUNG VON REAKTORSTÖRFÄLLEN AUF DIE UMWELT

1251 <u>Theorie der Aktivitätsfreisetzung</u>¹⁾* (H. Jordan, IASR/RPU)

Experimente im Rahmen des Aerosol-Programms zeigten, daß die Lebensdauer der dispersen Phase eines Aerosols in einem geschlossenen Behälter durch inhomogene Heizung des Trägergases erheblich reduziert wird. Um diesen Effekt beschreiben und rechnerisch auf Reaktor-Containments übertragen zu können, wurde das Rechenprogramm PARDISEKO $/ 1_7$, $/ 2_7$ erweitert.

Es zeigte sich, daß der neue Effekt innerhalb der Fehlergrenzen der Messungen durch Berücksichtigung der Thermophorese beschrieben werden kann.

Thermophorese entsteht immer dann, wenn das Trägergas eines Aerosols einen Energiegradienten erfährt und dadurch die Gasmolekül-Impulsübertragung auf das einzelne Partikel unsymmetrisch erfolgt. Dieses bedeutet eine konstante Partikelgeschwindigkeit, v_T , die umgekehrt proportional dem Energiegradienten ist. Für Knudsenzahlen K^{~1} gilt nach Brock <u>/</u>3_7:

$$\mathbf{v}_{\mathrm{T}} \stackrel{\sim}{=} \frac{-9\pi\eta^2 \mathbf{r}_{\mathrm{B}}(\mathbf{r})}{\rho \mathbf{T}} \quad \left(\frac{1}{1+3 \mathbf{C}_{\mathrm{m}} \mathbf{K}_{\mathrm{n}}}\right) \quad \left(\frac{\mathbf{C}_{\mathrm{t}} \mathbf{K}_{\mathrm{n}}}{1+2 \mathbf{C}_{\mathrm{t}} \mathbf{K}_{\mathrm{n}}}\right) \quad \nabla \mathbf{T}$$

ŵO

η = Dynamische Zähigkeit des Gases
 ρ = Dichte des Gases
 T = Temperatur (^OK)
 VT = Temperaturgradient
 B(r) = Beweglichkeit des Partikels

C_m und C_t sind Parameter, welche die Art der Wechselwirkung Partikeloberfläche-Gasmolekül wiederspiegeln. Ihre Werte schwanken zwischen 1,0 und 2,5.

1) Letzter Bericht in KFK 1272/3

Bei der Verknüpfung der Thermophorese mit PARDISEKO wurde angenommen, daß in erster Näherung die Thermophorese für die in Frage kommenden Partikelradien größenunabhängig ist. Ferner wurde angenommen, daß Thermophorese sich nur in einer dünnen Gasgrenzschicht an den kälteren Wänden abspielt, und daß eine Durchmischung des Systems durch natürliche Konvektion Homogenität im Inneren des Systems gewährleistet. Dabei geht die Dicke der Grenzschicht als wichtiger, aber unbekannter Parameter ein.

Mit der Annahme der Durchmischung des Systems durch Konvektion mußte der in PARDISEKO verwendete Diffusionsansatz der Partikeldiffusion aufgrund von Konzentrationsgradienten im Inneren des Systems aufgegeben werden. Stattdessen wurde ein Grenzschicht-bedingter Diffusionsansatz eingeführt. Nimmt man einen linearen Abfall der Partikelkonzentration in einer Grenzschicht der Dicke δ an, dann ist die Diffusionsgeschwindigkeit v_D der Partikel zu den Wänden hin

 $\mathbf{v}_{\mathrm{D}} = \frac{\mathrm{D}}{\mathrm{\delta}}$

wobei D die Diffusionskonstante der Partikel ist, Dieser Ansatz verlangt einen weiteren unbekannten Parameter, δ , der aber aufgrund des geringen Einflusses der Diffusion weniger ins Gewicht fällt.

Eine genaue Programmbeschreibung des erweiterten Programmes, jetzt PARDISEKO II, ist als KFK-Bericht erschienen (1).

Die weitere Entwicklung des Programmes zielt neben der Einschränkung unbekannter Parameter auf eine Verkürzung der Rechenzeit. Dadurch sollen sowohl Rechnungen für sehr hohe Partikelzahlkonzentrationen ermöglicht, wie auch Gewißheit über die numerische Stabilität der Rechnung gewonnen werden. Das letztere ist von besonderem Interesse bezüglich der Frage, mit welcher Genauigkeit die Partikelgrößenverteilung ihre Form als Funktion der Zeit behält, da a priori Annahmen hierüber große Vereinfachungen erlauben.

Literatur:

/ 1 / K. Keller

Theoretische Behandlung des Aerosolverhaltens in geschlossenen zylindrischen Behältern (PARDISEKO) KFK-1490, Nov. 1971

/2_7 K. Keller

Beitrag zum 2. Vierteljahresbericht 1972 des PSB KFK 1272/2, EUR 4847 d

<u>/</u>3_/ J.R. Brock

On the Theory of Thermal Forces Acting on Aerosol Particles Journal of Colloid Science 17, 768-780 (1962)

Veröffentlichung:

- K. Keller
 Das Aerosolverhalten in geschlossenen Behältern (PARDISEKO II)
 KFK-1758, Juli 1973
- 1254 <u>Kontamination von Kühlkreisläufen</u>¹⁾* (H.H. Stamm, IRCh)

Messung an Kühlmittelproben aus "MFBS-6"

Der in-pile Natriumversuchskreislauf "MFBS-6" im BR2 war seinem Vorläufer "MOL-7A" analog aufgebaut. Im zentralen "H1-Kanal" des Reaktors wurde ein belgisches Siebenstab-Bündel unter einer Cd-Abschirmung bestrahlt; die Stäbe hatten einen Durchmesser von 6 mm und enthielten UO_2 -Pu O_2 -Mischoxid als Brennstoff. Als primäres Kühlmittel diente Natrium, das von zwei EM-Pumpen in Umlauf gebracht wurde. Der Durchsatz wurde elektromagnetisch gemessen und betrug normalerweise 0,57 kg Na/Sekunde. Sekundärkühlmittel war CO₂, als Schutzgas diente Helium. Der Kreislauf wurde am 15.1.70 zum erstenmal in den Reaktor eingesetzt und mit einigen Unterbrechungen bis zum 11. Januar 1972 betrieben (insgesamt 23 Betriebsphasen des BR2).

¹⁾Letzter Bericht in KFK 1272/4

Im Juli 1971 hatte der Gammadetektor einen plötzlichen Aktivitätsanstieg im Schutzgas gezeigt. Aus der bekannten Laufzeit des Schutzgases vom Ausgleichstank zum Spaltgasdetektor konnte darauf geschlossen werden, daß ein Hüllrohrschaden an einem der Brennstäbe 5.5 Tage nach dem Wiederanfahren des Reaktors eingetreten war. Der maximale Abbrand des Brennstoffs in MFBS-6 betrug zu dieser Zeit 63000 MWd/t. Während der folgenden fünf Betriebsphasen bis zum Bestrahlungsende wurden nach der Entnahme von Schutzgasproben regelmäßig Xe-133 und Xe-135 gemessen; der maximale Abbrand der BE-Stäbe wurde in dieser Zeit bis auf 84000 MWd/t gesteigert.

Nach mehrmonatigem Abklingen der Aktivität wurde der Kreislauf in der Heißen Zelle des BR2 zerlegt, und entnommene Proben des Primärkühlmittels wurden nach Karlsruhe transportiert. Die bereits in Mol festgestellte α -Kontamination des Natriums erforderte die Umrüstung einer Heißen Zelle des IRCh mit einem entsprechenden Zeitaufwand. Deshalb konnten die ersten y-spektrometrischen Messungen der Kühlmittelreste erst im 2. Quartal 1973 durchgeführt werden. Abb. I zeigt den Vergleich zwischen den Gammaspektren analoger Proben von MOL-7A und MFBS-6 im Bereich bis zu 2 MeV. Neben der allgemein höheren spezifischen Aktivität der MFBS-6-Proben sind einige langlebige Radionuklide in ihren Spektren zu erkennen, die bei MOL-7A weder in den Kühlmittelresten noch an Rohrwänden sorbiert gefunden wurden: Zr-Nb-95, Ru-Rh-106 und Ce-Pr-144. Die digitale Auswertung der Spektren ergab in allen Kühlmittelproben von MOL-7A ein Verhältnis Cs-137/Cs-134 von 2.6 am Ende des Kreislaufbetriebs, während sich bei den Proben aus MFBS-6 praktisch gleich große Aktivitäten beider Nuklide für den 11. Januar 1972 errechneten. Die Unterschiede im Spaltproduktgehalt der beiden Kühlmittel sind sowohl auf den unterschiedlichen Abbrand bei Eintritt des BE-Schadens (MOL-7A: 40000 MWd/t; MFBS-6: 63000 MWd/t), als auch auf die verschiedene Betriebsdauer nach Eintritt des Schadens (MOL-7A: 22 Tage; MFBS-6: 66 Tage) zurückzuführen.

Radionuklide im KNK-Primärnatrium

Tabelle I faßt die Ergebnisse der spektralen γ-Aktivitätsmessungen zusammen, die in der Zeit von Juni 1972 bis zum Mai 1973 an Natriumproben aus dem KNK-Primärkreislauf durchgeführt worden sind. Die spezifischen Aktivitäten der meisten Radionuklide sind erwartungsgemäß mit steigender Reaktorleistung und mit längerer Betriebsdauer angestiegen. Die dekontaminierende Wirkung des Kühlfallenbetriebs ist nur an Ta-182 und an Sb-124 erkennbar.

Bei der Bestimmung von Radionukliden im Primärkühlmittel der KNK wurde von der Voraussetzung ausgegangen, daß dazu die gleichen Probenahmeverfahren geeignet sind, wie sie sich bei der Bestimmung von Sauerstoff oder Kohlenstoff in Natrium bewährt haben. Das Probenahmegefäß mit sieben Tiegeln wurde daher analog 4 h mit Natrium bei einer Strömungsgeschwindigkeit zwischen 0,6 und 1,2 m³/h gespült. Die Aktivität des Na-24 im Natrium erforderte eine Abklingzeit von etwa 10 Tagen, ehe das Probenrohr ausgebaut und die Tiegel in einer Schutzgasbox entnommen werden konnten. Während dieser zehn Tage mußte die Begleitheizung am Probenrohr eingeschaltet bleiben, da einerseits die hohe Strahlendosis vor Ort ein früheres Schließen der handbedienten Ventile unmöglich machte, andererseits ein Einfrieren von Na-Resten in den geöffneten Ventilen verhindert werden muß. Es ist gut vorstellbar, daß in der relativ langen Nachheizperiode mögliche Ursachen für Analysenfehler verborgen sind. Einmal können Nuklide wie Cs-137 und Cs-134 an den überstehenden Gasraum (Argon) abgegeben werden (der Übertritt dieser Radionuklide in das Schutzgas bei analogen Temperaturverhältnissen wurde durch Messungen am in-pile Loop MOL-7A nachgewiesen), zum anderen können eine verstärkte Wanderung von Verunreinigungen in die Außenschichten des Na-Regulus und eine Sorption an der Tiegelinnenwand vermutet werden. Versuche zur Klärung dieser Fragen stehen für die nächste Zeit im Mittelpunkt der Arbeiten mit dem Ziel, eine zuverlässige, reproduzierbare Probenahmetechnik für Radionuklide in flüssigem Natrium zu entwickeln.

Veröffentlichung:

H.H. Stamm Activation Analysis of Metallic Sodium Paper presented at the International Conference LIQUID ALKALI METALS, Nottingham/England, 4 - 6 April 1973

Tabelle 1Spezifische Aktivitäten (nCi/g Na) einiger Radionuklidein Primärnatrium der KNKin der Zeit von Juni 72 bis Mai 73

Probenahme	'4-P'	'6-	-P'		'8-	P'		'9-P'	'10-P'	'11-P'
Datum	24.6.72	18.1	11.72		29.1	•73		3.4.73	1.5.73	15.5.73
Tiegelbez.	x	A	В	1	3	5	7	- 5	5	6
					<u> </u>					
Na-22	3	12.5	12.3	21	21	22	21	49	70	73
Mn-54	-	0.44	0.32	13	8	8	12	13	16	21
Co-6 0	-	0.23	0.21		0.2	0.2	0.2	0.2	• • •	0.2
Zn-65	-	26.9	27.0	214	159	231	241	606	595	903
Ag-110m	1	4.9	5.0	8.2	8.2	8.9	8.1	23	36	38
SD-124	-	0.5	0.8	1.1	1.3	1.4	1.2	1.4	1.7	0.7
Ta-182	-	4.1	2.7	1.3	1.1	1.2	1.5	1.2	• • •	3.2
Ru-106	-		-	-		-	-	-	9.7	9.5

125-7







126 NATRIUM-TECHNOLOGIE-VERSUCHE

1262 Untersuchungen von Reaktorbauteilen

1262.2 <u>Maschinenelemente unter rollender Reibung in Natrium</u>^F (K. Kleefeldt, IRE)

In der laufenden 1. Versuchsphase werden in Standardtests Kugellager aus fünf verschiedenen Werkstofftypen auf ihr Reibungs- und Verschleißverhalten in Natrium verglichen. Die Teile eines Lagers bestehen dabei aus demselben Werkstofftyp, können aber aus fertigungstechnischen Gründen aus unterschiedlichen Werkstoffen hergestellt sein. Die gewählten Kombinationen sowie Werkstoffbezeichnungen mit Richtanalysen sind in Tab. 1 und 2 zusammengestellt.

Im Berichtszeitraum wurden je zwei Standardversuche mit den Werkstoffen DMo 5 und BG42 durchgeführt. Die Versuchsbedingungen waren wie folgt: Lagertyp käfiglose Kugellager vom Grundtyp 6207, Axialbelastung 280 kp¹⁾, Drehzahl 210 min⁻¹, Temperatur 410 ^oC, Umdrehungen 200.000, Oxidgehalt bei Beginn < 5 ppm. Die Axiallast und die Laufzeit waren dabei aufgrund der Ergebnisse des ersten Versuches so festgelegt worden, daß nach Ende des Versuches ein meßbarer Verschleiß ohne totale Zerstörung des Lagers erwartet werden konnte.

Versuchsergebnisse

Die Nachuntersuchungen und die Auswertung dieser ersten 4 Versuche sind noch nicht abgeschlossen, jedoch lassen sich einige Erscheinungen angeben, die bei den folgenden Versuchen eine stärkere Beachtung erfordern:

1) Die Gewichtsabnahme der Einzelteile (Außenringe, Innenringe, Kugeln), die im wesentlichen durch Verschleiß verursacht wird, schwankt innerhalb desselben Versuches und innerhalb vergleichbarer Versuche beträchtlich, so daß für eine Beurteilung stets mehrere Versuche herangezogen werden müssen. Dennoch ist eine leichte Überlegenheit des Werkstoffes DMo 5 gegenüber dem BG 42 erkennbar.

¹⁾ Bei Versuch I war die Axialbelastung 470 kp.

- 2) Bei den Kugeln ist der Abrieb sehr unregelmäßig. Viele Kugeln zeigen auf einem Großkreis deutliche, z.T. konkave Verschleißbahnen, die auf ein gegenseitiges Auflaufen der Kugeln schließen lassen. Daraus folgt, daß eine einmal vorhandene Drehachse bezogen auf die Kugel über längere Zeiten ortsfest sein muß. Bei intermittierendem Betrieb mit Drehrichtungsumkehr ist dies nicht zu erwarten, so daß die Betriebsweise, welche ein Parameter für spätere Untersuchungen sein kann, einen starken Einfluß auf den Verschleiß vermuten läßt. Der Grund für das Auftreten solcher "Auflaufspuren" an nur einzelnen Kugeln muß noch näher untersucht werden (evtl. Härte- oder Geometrieeinflüsse).
- 3) An einigen Kugeln und Ringen wurden Gewichtszunahmen von mehreren mg gemessen, die zumindest teilweise auf chemische Wechselwirkung zurückzuführen sind und noch näher untersucht werden müssen.
- 4) Das Reibmoment unterliegt im Laufe der Versuchsdauer starken unregelmäßigen Schwankungen mit ausgeprägter ansteigender Tendenz mit zunehmender Laufdauer. Es steigt von anfänglich 1 bis 2 kp cm gegen Versuchsende zeitweise auf 20 - 30 kp cm an. Die starken Schwankungen werden auf Umorientierungen der Kugeln mit ihrem unterschiedlichen Abrieb (vgl. Absatz 2) zurückgeführt.
- 5) Als weitere meßbare Größe während des Versuches hat sich die Axialverschiebung beider Innenringe relativ zu den Außenringen ergeben, die als Summe, zumindest bei starken Abrieben, gemessen werden kann. Dieser axiale Verschleiß betrug bei den Lagerpaaren aus dem Werkstoff BG 42 bei Versuchsende 0,55 bis 0,65 mm, bei einem Lagerpaar aus DMo 5 (Versuch 3) etwa 0,08 mm. Die Meßtechnik hierfür wird für die folgenden Versuche verfeinert.

Werkstoff-	Werkstoff für					
kombination	Ringe	Kugeln				
I	3343	3343				
II	BG 42	BG 42				
III	Ferro-Titanit WF	Ferro-Titanit WF				
IV	GT 20	GT 10				
v	Virium 12	Virium ll				

Tab. 1: Werkstoffkombinationen für Prüflager der Phase 1

Tab. 2: Werkstoffbezeichnungen und Richtanalyse

Werkstoffart	WNr.	Marken- bezeichnung	Richtanalyse (Werte in %)
Werkzeugstahl	3343	DMo 5	0,9 C; 0,3 Si; 0,3 Mn; 4,2 Cr; 5,0 Mo; 6,3 W; 2,0 V; Rest Fe
härtb. Cr-Stahl		BG 42	1,15 C; 0,5 Mn; 0,3 Si; 14 Cr; 4 Mo
Cermet		Ferro-Titanit WF	
11		GT 20	85 WC; 3 TiC + TaC; 12 Co
11		GT 10	94 WC; 6 Co
Co-Hartleg. (Stellit)	1.	Virium ll (≈Stellit 3)	30 Cr; 12 W; < 2 Fe; ≈ 4 Si; Mo, Ni, C,Rest Co
n		Virium 12 (≈Stellitl2)	28 Cr; 8 W; 2 Fe; ~ 4 Si, Mo, Ni, C, Rest Co

1262.3 Versuche zur Werkstoffpaarung unter Natrium

1262.31 <u>Verschweißversuche</u> 1) (K. Mattes, F. Huber, IRE)

Der erste Versuch der Phase III/B wurde durchgeführt. Hierbei wurden je zwei Probenpaare aus dem Werkstoff 1.4981 und 1.6770 unter Natrium mittels der neuen Versuchsvorrichtungen, die ein Auseinanderreißen der Proben unter Na ermöglichen, untersucht.

Die Versuchsbedingungen waren:

Spültemperatur	550 🐔 T 🗧 🕇 700 °C	,
Spülzeit	24 h	
Anpreßtemperatur	600 °C	
Anpreßzeit	72 h	
Anpreßkraft	500 kp	
Kontaktfläche	100 mm^2	
Plugging-Temperatur	<150 °C	

Bei den austenitischen Paarungen wurde kein Selbstverschweißen festgestellt. Die ferritischen Paarungen lieferten Haftkräfte von 125 und 288 kp. Bei diesen relativ niedrigen Werten ist zu berücksichtigen, daß in diesem Fall die Proben nicht bei Raumtemperatur, sondern bei 600 ^OC auseinandergerissen wurden.

Über das Vorhaben wurde in (1) umfassend berichtet.

Veröffentlichung:

(1) F. Huber, K. Mattes

Self-Welding of Structure Materials in Liquid Sodium BNES-Konferenz Nottingham vom 4.4. - 6.4.1973

1)Letzter Bericht in KFK 1272/4

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

Für die Distanzpflaster an dem Brennelementkasten des SNR 300 wurden vom Reaktorhersteller die Werkstoffe

Inconel 718 und Stellit 6H

in die engere Wahl gezogen. Bedingt durch die hexagonale Grundform der BE-Kästen und den sich daraus ergebenden Reibungswinkel ist für das Pflastermaterial ein Reibungskoeffizient $\mu \leq 0,5$ zu fordern. Eine umfangreiche Versuchsreihe zur Ermittlung des Reibverhaltens von Inconel 718 ergab jedoch keine eindeutig positiven Ergebnisse. Unter verschiedenen, bestimmten Bedingungen (Temperatur, Reibweg) wurde der maximal zulässige Reibwert z.T. deutlich überschritten (Abb. 1)¹. Charakteristisch für Inconel 718 ist das Ansteigen des Reibwertes nach zunächst niedrigerer Startreibung innerhalb jeder einzelnen Wechselbewegung bei oszillierendem Reibvorgang.

Versuche zum Einfluß des Reibweges wurden jeweils solange gefahren, bis die Reibkraft einen konstanten Wert annahm (Abb. 3).

Bei Stellit 6H (Aufschweißlegierung mit 27% Cr und ca. 67%Co) ergab sich ein insgesamt geringerer Reibwert (Abb. 2). Dessen Temperaturabhängigkeit erscheint geringer als bei Inconel 718. Dagegen waren hier nach Stillstandszeiten zwischen 1 und 10 h erhöhte Startreibwerte aufgezeichnet worden.

Die Zuordnung der Versuchsergebnisse bereitet jedoch noch immer erhebliche Schwierigkeiten, weil stets eine starke Überlagerung mehrerer verschiedener Parameter vorliegt. Deren Separation muß in weiteren Versuchen angestrebt werden.

Veröffentlichung:

W. Dietz, H. Weber, E. Wild Friction Behaviour of Inconel 718 and Stellite 6H as Fuel Assembly Duct Pad Materials IAEA-Symposium on Fuel and Fuel Elements; Brüssel 2.-6.7.1973

¹⁾ In Abb. 1 und 2 stellt die Abszissenachse innerhalb jedes Temperaturbereiches den Gleitweg (je 2 m pro Meßintervall) dar. - Die schwarz ausgefüllten Meßpunkte m und • entsprechen einer leicht erhöhten Startreibung.







1263 Untersuchungen zur thermo- und hydrodynamischen Kernauslegung

1263.1 <u>Bestimmung von Temperaturfeldern in Brennstabbündeln</u> (H.H. Frey, H. Miller, IRB)

Es existieren verschiedene Rechenprogramme zur Berechnung mittlerer Kühlmitteltemperaturen in den Teilkanälen von Bündelgeometrien. Zwei dieser Codes, nämlich der von Euratom übernommene HERA 1A $_$ 1 $_$ 7 und der bei GfK entwickelte MISTRAL II $_$ 2 $_$ 7 wurden miteinander verglichen, indem für ein Na-durchströmtes 169-Stabbündel mit den SNR-Brennelementabmessungen bei gleichem Massendurchsatz und gleicher Bündelleistung die Kanalmitteltemperaturen am Brennelementaustritt bestimmt wurden. Ergebnisse dieser Untersuchung sind in Abb. 4 für einen Schieflastfall dargestellt. Aufgetragen sind hierbei die Temperaturen des Kühlmittels über einer Ecktraverse des Bündels. Es zeigt sich:

- Aus beiden Programmen ergeben sich bei Vorgabe derselben Kühlmittelquervermischung (Mischrate µ) kaum voneinander abweichende Temperaturprofile.
- 2. Man erhält beträchtliche Unterschiede im Temperaturverlauf, wenn der Mischungskoeffizient aus dem in den HERA-Code eingebauten theoretischen Ansatz ermittelt wird. Dabei ergeben sich umgerechnet unrealistische Mischraten von 70%/cm.

Literatur:

/ 1_7 R. Nijsing and W. Eifler HERA-1A, Heat Transfer in Rod Assemblies EUR 4905e, 1973

[2]7 W. Baumann MISTRAL II, Thermohydraulischer Mischströmungsalgorithmus für Stabbündel KFK 1605, Juni 1972



Abb.4 Temperaturverteilung am Bündelaustritt Vergleich der Codes Mistral I und Hera 1a

1263.3 Lokale Wärmeübergangsmessungen an Bündelgeometrien^{*} (R. Gschlecht, M. Kolodziej, R. Möller, H. Tschöke, IRB)

Zur Auswertung der experimentellen Ergebnisse ist die Kenntnis der tatsächlichen örtlichen Oberflächentemperaturen erforderlich. Nachdem verschiedene Eichverfahren zur Bestimmung der Temperaturdifferenz zwischen eingelötetem Thermoelement und Staboberfläche auf ihre Genauigkeit untersucht wurden / 1_7, ist im Berichtszeitraum eine Eichteststrecke für die Doppelwandmethode konstruiert und gefertigt worden. In maximal 4 Ebenen können damit die Temperaturdifferenzen ausgemessen werden.

Die Konstruktion der Teststrecke wurde bis auf verschiedene Detailzeichnungen abgeschlossen. Prinzipbild siehe Abb. 5.

Literatur:

/1/ IV. Vierteljahresbericht 1972, KFK 1272/4

1263.4 Untersuchungen zur Kühlmittelquervermischung in Na-gekühlten Brennelementen* (E. Baumgärtner, H. Hoffmann, IRB)

Bei Untersuchungen zur Kühlmittelquervermischung in Natrium mit 61-Stabbündeln kamen zwei gitterförmige Abstandshaltertypen zum Einsatz, nämlich Wabengitter (honeycomb grid) und Röhrchengitter (ferrule grid). Die axiale Abstützlänge der Stäbe im Bündel (= Abstand der Gitter) betrug einheitlich H = 150 mm. Der Abstand Δh zwischen dem - in Strömungsrichtung gesehen letzten Gitter und dem Meßquerschnitt betrug für die Bündel mit Wabengittern Δh = 50 und 100 mm und für das Bündel mit Röhrchengittern Δh = 80 mm. Es wurden die mittleren Kühlkanaltemperaturen am Ende der beheizten Stablänge über den Bündelquerschnitt gemessen und daraus mit Hilfe des MISTRAL-Rechenprogrammes die mittlere Mischrate ermittelt. Die oben genannten geometrischen Bedingungen, die Beheizungsartund die Reynoldszahl wurden variiert.





Lokale Wärmeübergang-Messungen Teststrecke für 19-Stabbündel Gemessene radiale Temperaturprofile sind in Abb. 6, die daraus ermittelten Mischraten sind in Abb. 7 dargestellt. Es zeigt sich:

- Für die Bündel mit Wabengittern ergaben sich minimale Mischraten von etwa 2%/cm, für das Bündel mit Röhrchengittern von etwa 1%/cm im betrachteten Reynoldsbereich $10^4 < \text{Re} < 7 \cdot 10^4$.
- Der Abstand zwischen Gitter und Meßebene beeinflußt im betrachteten Bereich (50< h <100) die Meßergebnisse nicht.
- Die Ergebnisse sind für Re>2.10⁴ weitgehend unabhängig von der Re-Zahl.
- Es ergaben sich etwa die gleichen Mischraten bei Beheizung von Wand- oder/ und Zentralstab.

Gegenstand laufender Experimente ist die Untersuchung der Mischrate in Abhängigkeit von der Abstützlänge der Stäbe im Bündel und die Untersuchung von Vermischungsvorgängen unmittelbar vor und hinter gitterförmigen Abstandshaltern.

Veröffentlichung:

H. Hoffmann, E. Baumgärtner Experimental Investigations of the Thermodynamic Behavior of Fast Reactor Fuel Elements with Different Spacer Types. IAEA-Symposium on Fuel and Fuel Elements, Brüssel, July 1973

1263.5 Entwicklung elektrischer Heizelemente*

1. Stand der Erprobung

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

Bei der Erprobung von Heizstäben für Natrium-Siede-Experimente wurde nachgewiesen, daß die Heizstäbe den Anforderungen (170 W/cm² Heizflächenbelastung, 950 °C Natriumtemperatur, Betriebszeit 10 h, 100 Leistungszyklen) gewachsen sind. Zusätzlich wurden die Fertigungsmethoden verbessert, so daß heute Heizstäbe mit kleineren Fertigungstoleranzen herstellbar sind. Mit diesen verbesserten Toleranzen wurde mit der Fertigung der Heizstäbe für ein Siebenstabbündel begonnen.



Fig. 6 Measured Coolant Outlet Temperature Profiles $\vartheta = t_{out} - t_{in}$ as a Function of Radial Subchannel Position for a 61-Rod Bundle with Grid Type Spacers (P/D = 1,32; H = 150mm)



Downstream Distance between Grid and Thermocouples: $\Delta h = 100 \text{ mm}$



2. Auswirkungen fertigungstechnischer Toleranzen indirekt elektrisch beheizter Stäbe auf die Verteilung des Wärmestromes an der Oberfläche des Stabes. (H.M. Politzky, K. Rust, IRB)

An Heizstäbe, die zur Simulierung von Brennstäben bei Natriumsiedeexperimenten dienen, wird unter anderem die Anforderung gestellt, daß die azimutale Temperatur- und Wärmestromverteilung an der Oberfläche der Stäbe bei zentrischer Anordnung in einem natriumdurchströmten, kreisrunden Kanal möglichst gleichmäßig sein muß.

Durch fertigungstechnisch bedingte Ungenauigkeiten, wie beispielsweise ungleichmäßige Wandstärke oder exzentrische Lage des rohrförmigen Stromleiters im Stab, können sich ebenso Variationen der Temperatur- und der Wärmestromverteilung ergeben, wie durch eine ungleichmäßige Dichte der Bornitridschicht, durch die der Stromleiter gegen das Hüllrohr isoliert ist.

Der azimutale Verlauf des Wärmestromes, der hauptsächlich durch den inneren Aufbau der Heizstäbe bestimmt wird, wurde für den in Abb. 8 im Querschnitt dargestellten Heizstab unter Vernachlässigung der axialen Wärmeleitung numerisch berechnet. Untersucht wurden Stäbe, deren Stromleiter mit gleichmäßiger Wandstärke um 0,15 bzw. 0,30 mm exzentrisch angeordnet sind.

Es ergaben sich, wie aus Abb. 8 ersichtlich ist, folgende maximale Abweichungen der örtlichen von der mittleren Wärmestromdichte:

- bei einem Heizstab, dessen Stromleiter um 0,15 mm exzentrisch angeordnet ist, etwa 4%,
- bei einem Heizstab, dessen Stromleiter um 0,30 mm exzentrisch angeordnet ist, etwa 9%.

Bei einem Heizstab, dessen Isolation in Umfangsrichtung Dichteunterschiede von 1:5 aufweist, ergibt sich der in Abb. 9 dargestellte azimutale Verlauf des normierten Wärmestromes. In diesem Fall wurde angenommen, daß sich die Dichte über den Umfang linear ändert und die Wärmeleitfähigkeit der Keramik in gleichem Maße wie die Dichte abnimmt. Dagegen wurde ein über den Umfang konstanter Kontaktkoeffizient zwischen dem Stromleiter und der Isolation einerseits und der Isolation und der Hülle andererseits vorausgesetzt.

Die Abweichung der örtlichen von der mittleren Wärmestromdichte beträgt maximal etwa 12%.


Heizstab mit exzentrisch angeordnetem Stromleiter



Abb. 8 Azimutaler Verlauf der normierten Wärmestromdichte an der Staboberfläche eines natriumgekühlten Heizstabes (exzentrische Lage des Stromleiters) im konzentrischen Ringraum



Heizstab mit einer Isolation unterschiedlicher lokaler Dichte



Abb. 9 Azimutaler Verlauf der normierten Wärmestromdichte an der Staboberfläche eines natriumgekühlten Heizstabes (unterschiedliche Dichte des Isolators) im konzentrischen Ringraum

1263.6 <u>Mechanisch-hydrodynamische Untersuchungen an natriumgekühlten</u> Hochleistungs-Brennelementen ^G1)

(E. Baumgärtner, G. Drechsler, H. Hoffmann, IRB)

Zur Weiterentwicklung von Abstandshaltern für Brennelemente schneller Reaktoren wurden aufgrund von Messungen der Druckverlustbeiwerte und der Größe der Kühlmittelquervermischung wendelförmige Abstandshalter auf ihre thermo- und fluiddynamischen Eigenschaften hin untersucht (1). Im Vordergrund stand die Auswahl einer Bündelkonzeption, welche für eine zulässige Wandtemperatur die höchste und gleichmäßigste Temperaturverteilung über dem Bündelquerschnitt ermöglichen und darüber hinaus einen geringen Druckabfall aufweisen sollte. Diese Forderungen erfüllen Stabbündel mit Wendelrippen als Abstandshalter. Deren Abstützwirkung wurde zunächst in einem Langzeitversuch mit einem Bündel aus Hüllrohren mit 6 Wendelrippen pro Stab als Abstandshalter in turbulent strömendem Natrium bei Temperaturen von 600 ^oC untersucht (2). Die Ergebnisse sollen noch ergänzt werden, wobei ein Bündel aus 3 Rippenrohren zum Einsatz gelangt.

Die erste Phase des Langzeitversuches über 1000 Stunden wurde abgeschlossen. Die Betriebsbedingungen waren:

Natriumtemperatur:	600 °C
Betriebsdruck:	3 kp/cm^2
Natrium-Durchsatz:	$30 \text{ m}^3/\text{h} \pm 1 \text{ m}^3/\text{h}$
Temperatur an der Kaltfalle:	max. 200 °C

Veröffentlichungen:

(1) H. Hoffmann

Experimentelle Untersuchungen zur Kühlmittelquervermischung und zum Druckabfall in Stabbündeln mit wendelförmigen Abstandshaltern. Einfluß der Ergebnisse auf die Auslegung von Brennelementen Schneller Na-gekühlter Reaktoren.

KFK 1843, Mai 1973, (im Druck)

(2) E. Baumgärtner, H.U. Borgstedt, G. Drechsler Untersuchungen des Langzeitverhaltens der Abstützstellen an einem Modell-Brennelement aus Hüllrohren mit sechs integralen Wendelrippen als Abstandshalter in einer isothermen Natrium-Strömung KFK 1723, Februar 1973

¹⁾Erster Bericht

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

Meßergebnisse zum Druckverlust und Durchsatz des Absorber-Stabbündels <u>/</u>1<u>/</u> hatten gezeigt, daß der der Auslegung ursprünglich zugrunde liegende Bündeldurchsatz experimentell nicht nachgewiesen werden konnte. Das Versuchsprogramm wurde daraufhin modifiziert und zusätzlich eine Durchsatzreduktion im Ringraum durch Einbau eines Drosselrings vorgesehen. Die Ergebnisse der mit dieser Einrichtung durchgeführten Versuche sind in Abb. 10 wiedergegeben und mit Ergebnissen aus den Untersuchungen ohne Drosselring verglichen. Es konnte nachgewiesen werden, daß sich der Drosselring-Einbau in den bisher völlig ungedrosselten Ringraum der Bündelposition 5 besonders auswirkt. Hier konnte der Bündeldurchsatz um fast das Doppelte gesteigert werden.

Bei der Durchführung der Versuche wurden Schwingungserscheinungen am Bündel und Drosselring festgestellt. Sie wurden in gezielten Experimenten analysiert.

Literatur:

/1 / KFK 1273/1, S. 126-16

126-21



Abb. 10 Gesamtdruckverlust und Durchsatzverteilung in Abhängigkeit vom Gesamtdurchsatz und den Bündelpositionen. Einfuß der Ringspalt-Durchsatz-Drosselung (Wassertemperatur 80°C)

127. THERMO- UND HYDRODYNAMISCHE VERSUCHE MIT GASFÖRMIGEN MEDIEN

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

Experimentelle Bestimmung der Positionen von Nullschubspannung und Maximalgeschwindigkeit bei turbulenter Strömung durch Ringspalte (K. Rehme, INR)

In drei Ringspalten mit den Radienverhältnissen $\alpha = r_1/r_2 = 0.02$; 0.04 und 0.1 (KFK 1273/1) wurden an einem Luftversuchsstand die Positionen von Nullschubspannung und Maximalgeschwindigkeit für Reynoldszahlen von Re = 2.10⁴ bis Re = 2.10⁵ experimentell untersucht.

Die genaue Kenntnis der Position der Nullschubspannung ist entscheidend für die Beschreibung der Strömung durch Ringspalte hinsichtlich Druckverlust und Geschwindigkeitsprofil und wichtig für die Strömung in Stabbündeln, weil Rechenprogramme für Stabbündel auf Meßergebnissen an Ringspalten basieren. Insbesondere war die Frage zu klären, ob eine Koinzidenz der Positionen von Nullschubspannung und Maximalgeschwindigkeit angenommen werden darf, wie es bei fast allen Untersuchungen in der Literatur der Fall ist.

Die Position der Nullschubspannung wurde mit zwei verschiedenen Methoden bestimmt: 1) durch die Messung der Schubspannungsverteilung in der Strömung mit Hitzdrähten, 2) durch die Bestimmung der Wandschubspannungen am Kernrohr und am Außenrohr durch Preston-Rohre. Zur Bestimmung des Ortes der Maximalgeschwindigkeit wurde ein Doppel-Pitot-Rohr benutzt.

Bei den Messungen mit dem Radienverhältnis $\alpha = 0.1$ ergab sich, daß die verwendeten Abstandshalter zur Zentrierung des Kernrohres einen großen Einfluß auf die Meßergebnisse hatten, obwohl die Meßebene 25 hydraulische Durchmesser stromabwärts lag. Bei den Radienverhältnissen $\alpha = 0.04$ und 0.02 wurde deshalb auf Abstandshalter verzichtet. In Abb. 1 sind die Meßergebnisse für $\beta = r_0/r_2$ (Nullschubspannung) bzw. $\hat{\beta} = \hat{r}/r_2$ (Maximalgeschwindigkeit) in Abhängigkeit von der Reynoldszahl für $\alpha = 0.02$ als Beispiel dargestellt. Zum Vergleich mit den verschiedenen theoretischen Angaben wurden die berechneten Werte nach KAYS und LEUNG [1], nach EIFLER [2] und MAUBACH [3] und QUARMBY [4] miteingetragen.

Für alle drei untersuchten Durchmesserverhältnisse kann man einheitlich feststellen:

- Die gemessenen Positionen von Maximalgeschwindigkeit und Nullschubspannung sind nicht koinzident, wie das für asymmetrische Geschwindigkeitsprofile vermutet worden war [57. Die Position der Nullschubspannung liegt in allen Fällen eindeutig näher beim Kernrohr als die Maximalgeschwindigkeit.
- 2. Die gemessenen Positionen der Nullschubspannung weichen von den von KAYS und LEUNG, EIFLER sowie von MAUBACH angegebenen bzw. berechneten Positionen ab. Die Meßwerte liegen weiter vom Kernrohr entfernt als der von MAUBACH errechnete Verlauf. MAUBACH findet diese Position als den Schnittpunkt der beiden von den Wänden (Kern- und Außenrohr) ausgehenden Geschwindigkeitsprofile, wobei er hierfür das NIKURADSEsche Wandgesetz annimmt. Andererseits liegen die Meßwerte näher zum Kernrohr hin, als sich nach den Berechnungen von EIFLER bzw. nach der von KAYS und LEUNG angegebenen Beziehung ergibt. Die Beziehung von KAYS und LEUNG, Gl. (2), entstand empirisch nach Messungen des Ortes der Maximalgeschwindigkeit verschiedener Autoren, wobei insbesondere die Meßwerte von LORENZ [6] für ein Durchmesserverhältnis von $\alpha = 0.0526$ berücksichtigt wurden. EIFLER dagegen findet seine berechneten Werte wie MAUBACH aus dem Schnittpunkt der beiden von den Wänden ausgehenden Geschwindigkeitsprofile, die jedoch durch Anpassung der Konstanten dieser Profile an die Meßwerte von BRIGHTON [77 erhalten wurden. Da diese Meßwerte unter der Annahme der Koinzidenz von Nullschubspannung und Geschwindigkeitsmaximum erhalten wurden, können mit den EIFLERschen Beziehungen die BRICHTONschen Meßwerte hervorragend beschrieben werden, jedoch nicht die neuen Meßergebnisse.

QUARMBY gibt für dieses Durchmesserverhältnis a = 0.02 berechnete Werte der Position der Maximalgeschwindigkeit an, die er als identisch mit der der Nullschubspannung annimmt. Diese Position berechnet QUARMBY als Schnittpunkt der von beiden Wänden ausgehenden Geschwindigkeitsprofile. Diese Geschwindigkeitsprofile sind jedoch im Gegensatz zu den Ansätzen von EIFLER bzw. MAUBACH nicht vorgegeben, sondern werden durch die Integration von Differentialgleichungen für die Geschwindigkeitsprofile mit einer Runge-Kutta-Technik numerisch gelöst. Dabei werden für die Geschwindigkeitsprofile die gleichen Differentialgleichungen und Konstanten bzw. Funktionen verwendet, wie QUARMBY <u>/87</u> sie für Kreisrohr und parallele Platten entwickelt hat.

Wie Abb. 1 zeigt, werden durch den von QUARMBY berechneten Verlauf die Meßwerte für die Position der Nullschubspannung ganz ausgezeichnet beschrieben. Es zeigt sich also, daß auch die Strömungsparameter in einer Strömung mit stark asymmetrischen Geschwindigkeitsprofil und mit stark unterschiedlicher Wandkrümmung durch die Gesetzmäßigkeiten von Kreisrohren recht gut beschrieben werden können. Allerdings sind derartig einfache Ansätze wie das NIKURADSEsche Wandgesetz (MAUBACH) zumindest bei kleinen Reynoldszahlen dann nicht mehr ausreichend. Die Meßwerte für die Position der Nullschubspannung zeigen jedoch mit steigender Reynoldszahl deutlich die Tendenz, sich an den Verlauf, der sich durch den Schnittpunkt der "Wandgesetz"-Profile ergibt, anzunähern. Mit der QUARMBYschen Methode können natürlich Effekte in der Strömung, wie die Nichtkoinzidenz von Nullschubspannung und Geschwindigkeitsmaximum, nicht beschrieben werden. Allerdings interessiert die Position der Maximalgeschwindigkeit nicht, wenn nur die Position der Nullschubspannung genügend genau angegeben werden kann.

3. Die aufgrund der Wandschubspannungsmessungen am Kern- und Außenrohr mit Prestonrohren ermittelten Werte für die Position der Nullschubspannung stimmen mit den aus den Hitzdraht-Messungen bestimmten Werten ausgezeichnet überein. Bei kleineren Reynoldszahlen werden die mit der Prestonrohr-Methode gewonnenen Ergebnisse sehr ungenau, da die zu messenden Differenzdrücke sehr klein werden. Bei den durchgeführten Messungen am Kernrohr betrug der maximale dimensionslose Wandabstand

etwa $y^{+} = 38$, das maximale Verhältnis von Prestonrohrdurchmesser zur Länge des Geschwindigkeitsprofils etwa 0.063, so daß selbst unter den hier nicht zutreffenden und ungünstigen Annahmen EIFLERs /9/ für das Geschwindigkeitsprofil die Fehler aufgrund von Geometrieeinflüssen auf das Geschwindigkeitsprofil bei den durchgeführten Untersuchungen klein sind.

Die Abhängigkeit der Position der Nullschubspannung vom Durchmesserverhältnis ist in Abb. 2 dargestellt. Bei sehr kleinen Durchmesserverhältnissen hängt diese Position, wie wir gesehen haben, stark von der Reynoldszahl ab. Daher sind in Abb. 2 die Werte für eine Reynoldszahl von Re % 10⁵ zusammengestellt. Als Ordinate wird nach KAYS und LEUNG /17

$$S^{\frac{m}{2}} = \frac{\beta - \alpha}{1 - \beta} \tag{1}$$

gewählt. Nach KAYS und LEUNG ist dann

$$S^{*} = \alpha^{n}, \qquad (2)$$

wobei KAYS und LEUNG n = 0.343 angeben. QUARMBY gibt aufgrund seiner experimentellen Ergebnisse n = 0.366 an [10]. Anhand seiner theoretischen Analyse findet QUARMBY [4] - allerdings für hohe Reynoldszahlen - n = 0.415.

Für die Darstellung der gemessenen Positionen der Nullschubspannung wurden nur Meßergebnisse, die durch Hitzdrahtmessungen, nämlich von SMITH, LAWN und HAMLIN [11], KJELLSTRÖM [12], LAWN und ELLIOTT [13] und die neuen Ergebnisse, sowie durch Prestonrohrmessung von BARTHELS [14] und QUARMBY [10] erhalten wurden, berücksichtigt, da mit diesen Meßmethoden die Nullschubspannungsposition bestimmt wird und die Meßergebnisse beider Methoden gut übereinstimmen, wie wir gesehen haben.

Werden die neuen Meßergebnisse stark berücksichtigt, da sie bei sehr kleinen Durchmesserverhältnissen erhalten wurden und keine Abstandshalter verwendet wurden, so ergibt sich für den Exponenten in Gl. (2) für Reynoldszahlen Re $\gtrsim 10^{5}$ n = 0.386. Dieser Wert ist höher als nach den experimentellen Ergebnissen von QUARMBY, jedoch kleiner als nach dessen theoretischen Resultaten, da hierbei eine hohe Reynoldszahl vorausgesetzt wurde. Wie die Meßergebnisse zeigen (Abb. 1), wird der Exponent n in Gl. (2) mit der Reynoldszahl wachsen.

Zum Vergleich mit den zahlreichen Ergebnissen für die Position der Maximalgeschwindigkeit sind diese in Abb. 3 dargestellt. Die Meßergebnisse werden durch die von KAYS und LEUNG angegebene Beziehung mit n = 0.343 recht gut beschrieben. Die Gerade mit n = 0.386 für die Position der Nullschubspannung liegt deutlich tiefer als die Meßwerte für die Maximalgeschwindigkeit. Die eigenen Meßwerte für a = 0.02und 0.04 liegen tiefer als die Meßwerte von CROOKSTON [15] für a = 0.0318und SARTORY [16] für a = 0.0262. Die Ursache dafür liegt wahrscheinlich darin, daß sowohl CROOKSTON wie auch SARTORY horizontale Teststrecken verwendeten und die als Kernrohre gespannten Drähte durchhängen. CROOKSTON verwendet zwar zusätzlich noch Abstandshalter, die jedoch die Ausbildung eines ungestörten Geschwindigkeitsprofils verhindern, wie die neuen Messungen gezeigt haben.

Literatur:

- /1/ W.M. Kays and E.Y. Leung Heat transfer in annular passages - Hydrodynamically developed turbulent flow with arbitrarily prescribed heat flux, Int. J. Heat Mass Transfer <u>6</u>, pp. 537 - 557 (1963) [2] W. Eifler Über die turbulente Geschwindigkeitsverteilung und Wandreibung in Strömungskanälen verschiedener Querschnitte, Dissertation Technische Hochschule Darmstadt (1968) /37 K. Maubach Reibungsgesetze turbulenter Strömungen in geschlossenen, glatten und rauhen Kanälen von beliebigen Querschnitt, Dissertation Univ. Karlsruhe, Ext. Bericht INR-4/69-22 (1969) /4/ A. Quarmby An analysis of turbulent flow in concentric annuli, Appl. Sci. Res. <u>19</u>, pp. 250 - 273 (1968) [5] K. Maubach and K. Rehme Negative eddy diffusivities for asymmetric turbulent velocity profiles ? Int. J. Heat Mass Transfer 15, pp. 425 - 432 (1972) [6] F.R. Lorenz Über die turbulente Strömung durch Rohre mit kreisringförmigem Querschnitt, Mitteilungen des Instituts für Strömungsmaschinen der TH Karlsruhe Nr. 2 (1932) [7] J.A. Brighton The structure of fully developed turbulent flow in annuli, Ph. D. Thesis, Purdue University (1963) [8] A. Quarmby Improved application of the von Karman similarity hypothesis to turbulent flow in ducts, Journal Mechanical Engineering Science 11 (1), pp. 14 - 21 (1969) /9] W. Eifler Begrenzungen für die Anwendbarkeit von Preston-Rohren in Kanalströmungen, Wärme- und Stoffübertragung 3, pp. 58 - 62 (1970) [10] A. Quarmby An experimental study of turbulent flow through concentric annuli, Int. J. Mech. Sci. 9, pp. 205 - 221 (1967) [11] S.L. Smith, C.J. Lawn and M.J. Hamlin The direct measurement of wall shear stress in an annulus, C.E.G.B. Report RD/B/N 1232 (1968)
- [12] B. Kjellström and S. Hedberg On shear stress distributions for flow in smooth or partially rough annuli, Report AE-243 of AB Atomenergi, Stockholm (1966)

- [13] C.J. Lawn and C.J. Elliott
 Fully developed turbulent flow through concentric annuli,
 C.E.G.B Report RD/B/N 1878 (1971)
- [14] H. Barthels Darstellung des Wärmeübergangs in konzentrischen Ringspalten unter Benutzung der Analogie zwischen Impuls- und Wärmeaustausch, Report Jül-506-RB der KFA Jülich (1967)
- [15] R.B. Crookston Heat and momentum transfer for turbulent flow in annuli with small cores, Ph. D. Thesis, Carnegie Institute of Technology, Pittsburgh (1966)
- [16] W.K. Sartory Turbulent flow in annular ducts, Ph. D. Thesis, Carnegie Inst. of Technology, Pittsburgh (1962)

Veröffentlichungen im Berichtszeitraum:

- (1) K. Rehme, Simple method of predicting friction factors of turbulent flow in non-circular channels, Int. J. Heat Mass Transfer <u>16</u>, pp. 933 - 950 (1973) and KFK 1802
- (2) J. Marek, K. Maubach and K. Rehme, Heat transfer and pressure drop performance of rod bundles, NEA-GCFR Collaborative Development Programme - Specialist Meeting on Core Performance, Studsvik (Schweden), June 1973.





verhältnis



128 ENTWURFSSTUDIEN FÜR GAS- UND DAMPFGEKÜHLTE BRUTREAKTOREN

1281 <u>Studien zu gasgekühlten schnellen Reaktoren</u>^G

Materialien für den Core-Catcher eines gasgekühlten Brutreaktors¹⁾ (L. Barleon, S. Dorner, INR)

Wenn man für den hypothetischen Fall eines Zusammenschmelzens des Cores eine Wanne zum Auffangen der Schmelze (Core-Catcher) vorsieht, ist es erforderlich, eine eingehende Studie über die Anforderungen an das Wannenmaterial und eine Auswahl der geeigneten Werkstoffe zu machen. Das Produkt eines "Core-Meltdown" besteht aus einer oxidischen Brennstoffschmelze und geschmolzenem Hüll- und Strukturwerkstoff. Die anderen Materialien des Reaktors, z.B. Graphit im thermischen Schild, werden ebenfalls zu beachten sein.

Als Hüll- und Strukturwerkstoff soll vor allem Stahl vorausgesetzt werden, d.h. man hat hauptsächlich die Reaktionen des Tiegelmaterials mit den Metallen Fe, Ni, Cr und in geringeren Mengen mit Si, Mn, Mo, Ti und Nb zu beachten. Bei der Behandlung der Frage, wie sich eine Schmelze von sehr hoher Temperatur beherrschen läßt, könnte man zunächst an den Einsatz von Hochtemperaturwerkstoffen für den Tiegel zu denken. Deshalb wurden bei diesen ersten Studien die Überlegungen im wesentlichen auf solche Werkstoffe beschränkt. Wie jedoch die ersten Ergebnisse von thermodynamischen Modellrechnungen $/ 1_{2}$ zeigen, ist es möglich, daß die Anforderungen, die man an die Tiegelwerkstoffe zu stellen hat, wesentlich niedriger sind.

1. Anforderungen an das Material der Auffangwanne

Bei der Auswahl geeigneter Werkstoffe für eine Auffangwanne können folgende Eigenschaften ausschlaggebend sein:

1)Letzter Bericht in KFK 1272/1

1. hoher Schmelzpunkt,

2. hoher Siedepunkt - (höher als der des Brennstoffs),

3. keine Reaktion mit den Komponenten der Coreschmelze,

4. möglichst geringe Löslichkeit mit der Schmelze,

5. hohe spezifische Wärme, hohe Dichte,

6. gute Wärme- und Temperaturleitfähigkeit,

7. leichte Verarbeitung,

8. Verfügbarkeit und Preis,

9. Verträglichkeit mit Wasser,

10. schlechte Reflektoreigenschaften - starke Neutronenabsorption,

11. gute Verträglichkeit mit dem Strukturmaterial des zusätzlichen Kühlsystems,

12. kleiner Ausdehnungskoeffizient - Thermoschockbeständigkeit.

2. Hochschmelzende Werkstoffe

Bei der Auswahl von hochschmelzenden Werkstoffen wurde als Kriterium zugrunde gelegt, daß ihr Schmelzpunkt über dem Schmelzpunkt von oxidischem Brennstoff liegt, der für das System UO₂-PuO₂ in den Bereich 2850^o-2400 ^oC fällt. Solche Werkstoffe sind in folgenden Werkstoffgruppen zu suchen:

```
a) reine Metalle (z.B. W, Re, Ta)
```

- b) Oxide (z.B. PuO₂, UO₂, ZrO₂)
- c) Karbide und Graphit
- d) Boride
- e) Silizide
- f) Sulfide
- g) Cermets und Composites (mit Graphit)

Eine Sichtung der Materialdaten bekannter Hochtemperaturwerkstoffe zeigt, daß es eine größere Anzahl von Werkstoffen gibt, die einen Schmelzpunkt oberhalb 2850 ^OC haben.

Da der Dampfdruck im System UO₂-PuO₂ oberhalb des Schmelzpunktes sehr stark zunimmt, würde eine Brennstoffschmelze mit höheren Temperaturen rasch aus dem Tiegel ausdampfen. Deshalb ist der Siedepunkt der in Frage kommenden Werkstoffe weniger kritisch für deren Verwendung als Wannenmaterial.

3. Verwendbarkeit der hochschmelzenden Werkstoffe

Obwohl für reinen oxidischen Brennstoff unter Inertatmosphäre die Verwendung der höchstschmelzenden Metalle als Wannenmaterial möglich wäre, bestehen dagegen Bedenken wegen der Legierungsbildung mit dem geschmolzenen Strukturmaterial.

Die Oxide sind weitgehend mit dem Brennstoff in flüssiger Phase mischbar und haben eine schlechte Wärmeleitfähigkeit. Vorteilhaft ist bei den Oxiden, daß sie weniger empfindlich gegen eine oxidierende und Wasserdampfatmosphäre sind.

Die Karbide zeichnen sich durch hohe Schmelzpunkte und relativ gute Wärmeleitfähigkeit aus. Neben die Karbide ist auch der Graphit zu stellen. Man wird nur dessen Stabilität gegenüber der oxidischen Brennstoffschmelze berücksichtigen müssen.

Die Schmelzpunkte der Boride, Nitride und Silizide sind im allgemeinen niedriger, die Wärmeleitfähigkeit ist in der gleichen Größenordnung wie die der Karbide.

Da Graphit ein leicht verfügbares und preiswertes Material darstellt und außerdem viele der oben genannten Anforderungen erfüllt, wurde das System Brennstoffschmelze-Graphit besonders intensiv untersucht.

4. Das System: Graphit - hochschmelzendes Metall-Oxidschicht-Coreschmelze

Durch eine Metallzwischenschicht auf dem Graphit könnte eine Gas- bzw. CO-Entwicklung verhindert werden. Da es aber wahrscheinlich ist, daß beim Coreschmelzen eine größere Menge des geschmolzenen Strukturmaterials in die Auffangwanne gelangt und sich hier mit der Metallzwischenschicht legiert, wäre daran zu denken, daß man auf diese Schicht eine hochschmelzende Oxidschicht aufbringt. Diese sollte vorerst den Kontakt zwischen einem geschmolzenen Strukturmaterial und der hochschmelzenden Metallschicht verhindern. Von der schützenden Oxidschicht wäre zu verlangen, daß sie möglichst ein hohes spezifisches Gewicht besitzt, damit sie stets unterhalb des Strukturmaterials bleibt. Das Oxid sollte eine hohe freie Bildungsenthalpie besitzen, damit es von dem hochschmelzenden Metall nicht reduziert wird. Die Mischbarkeit mit der Brennstoffschmelze wäre nicht sehr nachteilig, da damit nur die Wärmequelldichte erniedrigt würde. Als schützende Oxidschicht wäre das ThO₂, UO₂, HfO₂ und ZrO₂ geeignet. Von den hochschmelzenden Metallen bieten sich besonders die für die UO₂-Schmelze geeigneten Tiegelmetalle W (Schmpkt. 3410 °C), Mo (Schmpkt. 2610 °C) und Ta (Schmpkt. 2996 °C) an. Wegen der hohen Dichte empfiehlt sich besonders Wolfram ($\rho = 19,3$ g/cm³) und Tantal ($\rho = 16,6$ g/cm³), da auch bei einer Legierungsbildung mit dem Strukturmaterial die resultierende Legierung im weiten Bereich eine höhere Dichte als die Brennstofschmelze hätte. Damit bliebe eine metallische Schutzschicht nach wie vor auf dem Graphit.

Die Reaktion des Wolframs mit C führt zu WC mit einem Schmpkt. von 2600 °C (Sdpkt. 6000 °C), und die Reaktion des Tantals mit dem Graphit liefert TaC (Schmpkt. 3880 °C, Sdpkt, 4730 °C). Die Karbidbildung erscheint nicht nachteilig. Anstelle der Aufbringung einer Oxidschicht auf das hochschmelzende Metall (W, Ta) wäre als Schutzschicht gegen das flüssige Strukturmaterial auch eine hochschmelzende Karbidschicht geeignet.

Literatur

[7] L. Barleon, M. Dalle Donne und S. Dorner Temperature and Heat-Flux Distribution in the Molten Core Mass of a GCFR after a Hypothetical Melt-Down Accident, KFK-1755

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

Im Juni fand eine Besprechung zur Abstimmung der weiteren Bearbeitungspunkte für die DSR- und GSB-Sicherheitsstudien statt. Als Grundlage diente eine von Interatom erarbeitete Studie, in der Vorschläge für schwerpunktmäßige Untersuchungen unter Berücksichtigung von Genehmigungsgesichtspunkten gemacht wurden.

Die Arbeiten an den neu zu erstellenden Rechenprogrammen zur Beschreibung der Kühlmittelverlustunfälle und des Notkühlverhaltens des DSR wurden intensiv weitergeführt. Die einzelnen Unterprogramme des Notkühlprogramms sind ausgetestet und wurden zum Gesamtprogramm zusammengestellt. Das Kühlungsverlustprogramm hat inzwischen einen Status erreicht, daß mit den ersten Rechenläufen begonnen werden konnte.

Für den Auslegungsunfall des DSR (Bruch einer Nutzdampfleitung) wurde mit einem einfachen Rechenprogramm vorab das Verhalten der Hüllrohrtemperaturen bis zu 1000 s nach dem Unfall berechnet. Falls das umfangreiche Programmsystem später das Ergebnis bestätigt, daß die Brennstoffhüllen nach Durchlaufen eines Temperaturminimums erst wieder nach etwa 1 Stunde Betriebstemperatur erreichen, würde bei der Kernnotkühlung das Sprühsystem nicht einzugreifen brauchen.

Zum Problemkreis Kernschmelzen erfolgten Überlegungen zur Möglichkeit von Dampfexplosionen sowie Untersuchungen zur Wärmeabfuhr durch Konvektion der Brennstoffschmelze unter Einbeziehung der Theorie der Rollzellen.

Die Bethe-Tait-Rechnungen wurden abgeschlossen mit Untersuchungen zur Energiefreisetzung von kugelförmigen Brennstoffmassen verschiedener Größe und Zusammensetzung, bei Zufuhr von Reaktivitätsrampen und unter Berücksichtigung der Spektrumsabhängigkeit der Dopplerkonstanten.

Die Möglichkeit der Nachwärmeabfuhr durch Naturumlauf wurde untersucht. Außerdem wird derzeit überprüft, ob ein zusätzlicher Kühler im Brennelementlagerbecken bei Versagen aller anderen Einrichtungen die Abfuhr der Nachwärme gewährleisten kann.

Zur Auslegung des Druckabbausystems wurde das Rechenprogramm TABU den DSR-Verhältnissen entsprechend modifiziert. Die Vorgänge beim An- und Abfahren des DSR wurden neu überdacht und zu einem Bericht zusammengestellt. Es erfolgte eine Berechnung der Druckgefäßbelastung infolge Wärmespannungen nach dem Bruch einer Nutzdampfleitung. Mit den Untersuchungen über die kritischen Rißlängen beim DSR-Druckgefäß wurde begonnen.

Die Überprüfung der Reaktivitätsbilanz machte eine Anzahl nuklearer Rechnungen für Zyklusanfang und das Regel- und Abschaltsystem erforderlich. Der Reaktivitätswert des Kontroll- und Abschaltsystems reduziert sich im dampffreien Zustand des Reaktors gegenüber dem Betriebszustand um etwa 15%. Weitere neutronenphysikalische Rechnungen wurden zur Bestimmung der Reaktivität des zusammengeschmolzenen Kernes und der Abbrandabhängigkeit der Flutreaktivität durchgeführt. Im IRB wurde eine auf neueren Messungen basierende Reibbeiwertbeziehung zur Berechnung des Druckabfalles in Brennelementbündeln erstellt. Bei Anwendung dieser neuen Reibbeiwertbeziehung ergibt sich ein kleinerer Druckabfall im Bündel und ein erhöhterWärmeübergang, vor allem in den strömungsungünstigeren Eckkanälen.

Unter Verwendung der neuen Reibbeiwertbeziehung sowie einer um 15% günstigeren Formel für den Wärmeübergang wurden weitere thermodynamische Rechnungen für den DSR-1000 mit der Programmgruppe COBRA-THEDYBER durchgeführt. Die Ergebnisse zeigen, daß der Druckabfall im Kern abgesenkt und der Nettowirkungsgrad der Gesamtanlage angehoben werden kann, wobei die Corehöhe mit 85 cm konstant gehalten wurde.

Beiträge zum Teilprojekt 129 (Entwurfsstudien zu natriumgekühlten Brutreaktoren) erscheinen voraussichtlich im nächsten PSB-Vierteljahresbericht.

اليون الكلي المحمد الكلام الفراد المحمد المحمول الكلم المحمد المحمد المحمد المحمد المحمد المحمد المحمد المحمد ا المحمد المحم المحمد المحم