

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

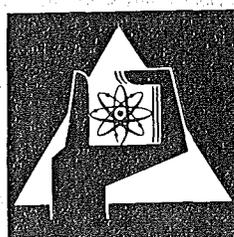
August 1973

KFK 1839

Institut für Material- und Festkörperforschung

**Oxid-Cermet-Brennstäbe:  
Herstellung, Eigenschaften und Bestrahlungsverhalten**

P. Weimar, H. Zimmermann



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

**KARLSRUHE**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1839

Institut für Material- und Festkörperforschung

Oxid-Cermet-Brennstäbe:

Herstellung, Eigenschaften und Bestrahlungsverhalten

---

von

P. Weimar

H. Zimmermann

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

Dieser Bericht beruht auf Arbeiten zur Herstellung von Cermetbrennstäben und Eigenschaftsmessungen an ihnen im IMF und auf Ergebnissen der Nachbestrahlungsuntersuchungen in den Heissen Zellen und im IRCh, für deren Bereitstellung und Bearbeitung wir allen beteiligten Mitarbeitern vom IMF, vom IRCh und von RBT danken, insbesondere Frau Dr.Schneider und den Herren F.Bauer, J.Burbach (IMF), Dr.Wertenbach (IRCh), P.Brunner, H.Enderlein, B.Schweigel (RBT/Z), R.Pejsa und vor allem Herrn F.Weiser (RBT/CuM), der in guter Zusammenarbeit mit dem IMF die umfangreichen metallographischen Arbeiten sehr sorgfältig ausgeführt und damit beträchtlich zu diesem Bericht beigetragen hat.

Als Manuskript eingereicht am 6. Juli 1973

## Zusammenfassung

Oxid-Cermet-Brennstäbe mit idealisiertem Brennstoffgefüge und metallischer Bindung zwischen Brennstoff und Hülle haben einige Eigenschaften, die von Brennstäben mit Oxidpellets nicht erreicht werden. Das kontinuierliche Metallnetzwerk sorgt für eine wesentlich verbesserte Wärmeleitfähigkeit und eine niedrigere Zentraltemperatur während der Bestrahlung. Die niedrigere Zentraltemperatur und die metallische Umhüllung der Spaltstoffteilchen setzen die Freisetzung von Spaltgasen und flüchtigen Spaltprodukten herab oder verhindern sie. Das Fehlen eines Spaltgasplenums ist daher charakteristisch für Cermetbrennstäbe. Für die Verwendung in schnellen Reaktoren kommen nur Cr und V aufgrund ihres kleinen Absorptionsquerschnittes für schnelle Neutronen als Matrixmetalle in Betracht.

Cermets mit idealisiertem Gefüge wurden durch Beschichten von  $\text{UO}_2$ -Kügelchen mit Cr, V oder Mo durch Abscheidung aus der Gasphase, Einvibrieren dieser metallisierten Teilchen in die Hüllrohre, z.B. in Inconel 625- oder Hastelloy X-Hüllen bei  $\text{UO}_2$ -Cr-Cermets, Verschliessen der Hüllrohre durch Elektronenstrahlschweißen und isostatisches Heisspressen unter He hergestellt. Der Metallgehalt der Cermets betrug 20 bzw. 30 Vol.-%. Einige Eigenschaften der  $\text{UO}_2$ -Cr-,  $\text{UO}_2$ -V und  $\text{UO}_2$ -Mo-Cermets werden beschrieben.

Sieben Bestrahlungseinsätze -einer mit  $\text{UO}_2$ -Mo-, vier mit  $\text{UO}_2$ -Cr- und zwei mit  $\text{UO}_2$ -V-Proben- wurden im FR 2 bei mittleren Stabileistungen von 470 - 700 W/cm und mittleren Hülltemperaturen von ungefähr  $600^\circ\text{C}$  bis zu Abbränden von 10 bis 95 MWd/kg U bestrahlt. Jeder Bestrahlungseinsatz enthielt acht oder vier Proben.

$\text{UO}_2$ -30% Cr-Cermets mit Inconel 625-Hülle wurden ohne Schaden bis zu 60 bzw. 95 MWd/kg U Abbrand bestrahlt. Die Hastelloy X-Hüllen hatten nach diesen Abbränden Mikrorisse, allerdings lagen ihre Temperaturen bis zu  $100^\circ\text{C}$  über denen der Inconel 625-Hüllen. Keine der hochabgebrannten  $\text{UO}_2$ -Cr-Cermets in Inconel 625- oder Hastelloy X-Hülle zeigte eine Dimensionsänderung. Die Proben mit 20% Cr wiesen eine Entmischung von  $\text{UO}_2$  und Cr auf. Das Cr ist im Probenzentrum verdampft und in den kälteren Aussenzonen kondensiert. Keine Entmischung trat bei Cermets mit 30% Cr auf. Die V-Hüllen der  $\text{UO}_2$ -V-Cermets waren infolge Versprödung durch Sauerstoffaufnahme während der Bestrahlung gerissen.

Unter Berücksichtigung der Tatsache, dass die Auflösung der idealisierten Cermetstruktur die zulässige Zentraltemperatur begrenzt, wird gefolgert, dass  $\text{UO}_2$ -30% Cr-Brennstäbe mit Stableistungen von ca. 800 W/cm und Hülltemperaturen von  $650^\circ\text{C}$  bis zu Abbränden  $\geq 60$  MWd/kgU bestrahlt werden können. Eine weitere Steigerung der Stableistung kann nur mit einem Matrixmetall erfolgen, das einen niedrigeren Dampfdruck hat.

Oxide-Cermet Fuel Rods:  
Production, Properties and Irradiation Behaviour

Abstract

Oxide cermet fuel pins with idealized fuel structure and metallurgically bonded cladding have some properties which cannot be obtained by pins with oxide pellets. The continuous metal network in the fuel provides a considerably larger thermal conductivity and a lower central temperature during irradiation. The lower central temperature and the metallic envelopment of the fissionable oxide particles decrease or prevent the release of fission gases and volatile fission products. Therefore, the absence of a gas plenum is characteristic of cermet pins. For use in fast reactors only Cr and V are potential matrix metals because of their low cross sections for fast neutrons.

The cermets with idealized structure were produced by metallizing  $\text{UO}_2$  spheres with Cr, V, or Mo by a vapor-deposition process. The spheres are vibrated into the cladding tubes, for instance in Inconel 625 or Hastelloy X tubes in the case of  $\text{UO}_2$ -Cr cermets. After electron beam welding of the tubes the pins are isostatically hot-pressed in He atmosphere. The metal content of the cermets was 20 and 30%, respectively. Some properties of the  $\text{UO}_2$ -Cr,  $\text{UO}_2$ -V, and  $\text{UO}_2$ -Mo cermets are described.

Seven irradiation capsules, one with  $\text{UO}_2$ -Mo, four with  $\text{UO}_2$ -Cr, and two with  $\text{UO}_2$ -V samples, were irradiated in the FR 2 reactor at mean rod powers of 470 - 700 W/cm and mean cladding temperatures of about 600°C to 10 - 95 MWd/kg U burnup. Each of the capsules contained eight or four fuel rod samples.

$\text{UO}_2$ -30 vol.-% Cr cermets with Inconel 625 cladding were irradiated to 60 and 95 MWd/kg U burnup without showing any failure. At these burnups the Hastelloy X claddings were probably damaged by microcracks. However, the temperatures of the Hastelloy X claddings were nearly 100°C higher than those of the Inconel 625 claddings. The high burnup  $\text{UO}_2$ -Cr samples with Inconel 625 or Hastelloy X cladding did not show dimensional changes in any case. The samples with 20% Cr showed a depletion of Cr in the fuel centre region. Cr had been evaporated and condensed in the outer regions of the fuel. No such depletion was found in the cermet fuel with 30% Cr. The vanadium claddings of the  $\text{UO}_2$ -V cermets were damaged by many cracks in consequence of oxygen embrittlement during irradiation.

Bearing in mind that the disintegration of the idealized cermet structure limits the central temperature it is suggested that  $\text{UO}_2$ -30% Cr fuel pins can be operated with linear rod powers of about 800 W/cm and cladding temperatures of  $650^\circ\text{C}$  to burnups of 60 MWd/kg U and probably more. A further increase of the rod power can be achieved only with a matrix metal having a lower vapor pressure.

Inhalt:

	Seite
1. Einleitung	1
2. Herstellung	2
3. Mechanische und physikalische Eigenschaften	2
4. Brennstabproben für Bestrahlungsversuche	4
5. Bestrahlungsbedingungen	6
6. Nachbestrahlungsuntersuchungen	6
7. Ergebnisse der Nachbestrahlungsuntersuchungen	8
7.1 UO <sub>2</sub> -Mo-Cermets	8
7.2 UO <sub>2</sub> -Cr-Cermets	9
7.2.1 Allgemeines	9
7.2.2 Hüllundichtigkeit	10
7.2.3 Gefügeänderung	12
7.3 UO <sub>2</sub> -V-Cermets	13
8. Schlussfolgerungen	14
9. Literatur	16



## 1. Einleitung

Das Konzept eines Oxid-Cermet-Brennstabes mit einem heissgepressten Hüllrohr verspricht einige Eigenschaften, die man mit einem reinen Oxid-Tablettenbrennstoff nicht erreichen kann. Durch das im Cermet vorhandene kontinuierliche metallische Netzwerk hat der Brennstoff eine wesentlich verbesserte Wärmeleitfähigkeit und damit eine niedrigere Zentraltemperatur während des Reaktoreinsatzes. In gleicher Richtung wirkt die metallische Bindung zwischen Brennstoff und Hülle. Hierdurch ergibt sich eine höhere zulässige Stabileistung und eine geringere Spaltgasfreisetzung. Letzterer Effekt sollte noch durch die Metallhüllen der Spaltstoffteilchen verstärkt werden. Daher kann das Spaltgasplenum in Cermetbrennstäben entfallen. Brauchbare Ergebnisse sind jedoch nur für Cermetbrennstäbe mit einer gewissen Brennstoffporosität zu erwarten, weil diese die Hülle von der mechanischen Belastung durch das Brennstoffschwellen entlastet. Durch das Einbringen der Metallmatrix und die Warmpressschweissung zwischen Brennstoff und Hüllrohr tritt eine beachtliche Festigkeitssteigerung des Brennstabes ein.

Im Kernforschungszentrum Karlsruhe wurden Oxid-Cermet-Brennstäbe für zwei verschiedene Reaktortypen in Betracht gezogen:

- Für einen gasgekühlten Schnellbrüter [1]. Für den ersten Entwurf eines solchen Reaktors kommt jedoch nur ein konservatives Brennelement mit Oxidtabletten, Hülle aus nichtrostendem Stahl und Spaltgasplenum in Frage. Als weiterführendes Konzept verspricht der sogenannte Coated-Particles-Brennstoff die höheren Kühlgastemperaturen. Das Cermet-Konzept (Oxid-Cr oder V) wurde daher nicht mehr in die Überlegungen einbezogen.
- Für einen schnellen Hochfluss-Testreaktor [2] wurde eine Oxid-nichtrostender Stahl-Variante betrachtet. Als Herstellungsmethoden wurden das isostatische Heisspressen und das Strangpressen erprobt [3]. Mit der Aufgabe dieses Reaktorprojektes war das Interesse an diesen Cermets erloschen, da sie wegen des relativ hohen Metallgehaltes und fehlenden Brutstoffes nicht für schnelle Leistungsreaktoren geeignet sind.

Als die Oxid-Cermet-Brennstoffe aus den angeführten Gründen nicht mehr weiter bearbeitet wurden, haben sie in einigen russischen Arbeiten Beachtung gefunden [4]. 1972 wurde von Nesterenkow et al. ein Konzept für einen gasgekühlten Reaktor vorgestellt, bei dem die hier behandelten Cermetbrennstäbe als mögliche Brennelemente erwogen werden. Dieser  $N_2O_4$ -gekühlte Reaktor ist aber bisher nur durch eine Studie und durch Kühlkreislaufuntersuchungen sowie Untersuchungen über die Bestrahlungsstabilität des Kühlmittels  $N_2O_4$  bearbeitet werden.

## 2. Herstellung

Zur Herstellung eines Cermet-Brennstoffes mit möglichst günstigen Eigenschaften durch eine sogenannte idealisierte Struktur ist als Ausgangsmaterial eine Brennstoffphase mit kugelförmigen Teilchen notwendig. Für die hier dargestellten Versuche wurden als Ausgangsmaterial kugelförmige  $UO_2$ -Teilchen verwendet. Sie wurden zum Teil über einen modifizierten Sol-Gel-Prozess mit nachfolgendem Sintern<sup>(Nukem, BDR)</sup>, zum Teil über einen Agglomerationsprozess<sup>(Risley, England)</sup> hergestellt. Die Durchmesser der  $UO_2$ -Kugeln lagen bei ca. 110  $\mu m$ . Dieses Ausgangsmaterial wurde anschliessend über einen Vapor-Deposition-Prozess metallisiert. Bei der Beschichtung ging man beim Molybdän vom Pentachlorid, beim Vanadin vom Tetrachlorid und beim Chrom von einer organischen Chrom-Verbindung [5,6,7] aus. Die drei Metalle scheiden sich durch thermische Zersetzung dieser Verbindungen verschieden schnell und mit unterschiedlicher Reinheit aus der Gasphase ab. Eine Schichtstärke von ca. 6  $\mu m$  ergibt für 100  $\mu m$ -Kugeln einen Metallgehalt des Cermets von ca. 30 Vol.-%. Die metallisierten  $UO_2$ -Kügelchen wurden anschliessend in metallische Hüllrohre einvibriert, diese mittels Elektronenstrahlen verschweisst und isostatisch heissgepresst [8]. Der zum Heisspressen verwendete Autoklav wird in Bild 1, der Druck-Temperatur-Zyklus beim isostatischen Heisspressen in Bild 2 gezeigt. In Bild 3 wird der Zusammenhang zwischen Pressdruck und integraler Cermetdichte bei  $T = \text{const}$  dargestellt.

## 3. Mechanische und physikalische Eigenschaften des Cermet-Brennstoffes

Zur Charakterisierung der mechanischen Eigenschaften wurden Biegeversuche (4-Punkt-Auflage) bei einer Belastungsgeschwindigkeit von 1 mm/min ausgeführt [9]. Bild 4 zeigt die beobachtete Abhängigkeit der Biegefestigkeit von der Metallkonzentration für  $UO_2/Mo$ -,  $UO_2/Cr$ - und  $UO_2/V$ -Cermets.

Wie man erkennt, zeigen die beiden erstgenannten Cermetarten ein scharf ausgeprägtes Minimum auf der metallarmen Seite bei ca. 6 bzw. 12 Vol.-% Metall. Für  $\text{UO}_2/\text{V}$  dürfte dieses Minimum zwischen 15 und 20 Vol.-% Metall liegen. Die Lage dieser Minima scheint mit der unterschiedlichen Integrität der Metallkomponente im Cermet zusammenzuhängen. Das Auftreten zahlreicher Kerbstellen durch Unterbrechungen innerhalb der Schichten bei geringen Metallgehalten bewirkt eine Herabsetzung der Festigkeit des Cermets bis auf Werte unterhalb derjenigen der reinen Keramik. Die Lage des Minimums wird offenbar stark von der Hochtemperatur-Plastizität der Metallkomponente, d.h. von ihrem Verhalten während des Heisspressvorganges bestimmt. Bei ähnlicher Hochtemperatur-Plastizität von Keramik und Metall scheint sich eine optimale Struktur durch eine fehlerarme Metallschicht zu ergeben. Bei höheren Metallgehalten tritt bei  $\text{UO}_2/\text{Mo}$  und  $\text{UO}_2/\text{Cr}$  eine starke Festigkeitszunahme auf, und es werden recht hohe Werte erzielt. Für Cermets mit Vanadinmatrix wurde hingegen nur eine relativ schwache Verbesserung der Biegefestigkeit mit steigendem V-Gehalt beobachtet [10]. Weiter wurde die Abhängigkeit der Biegefestigkeit von der Prüftemperatur im Hochvakuum ermittelt. In Bild 5 sind die Daten für  $\text{UO}_2/\text{Mo}$ -Cermets, in Bild 6 für  $\text{UO}_2/30$  Vol.-% Cr- bzw.  $\text{UO}_2/45$  Vol.-% V-Cermets vergleichend dargestellt. Es ist mit Ausnahme des  $\text{UO}_2/30$  Vol.-% Mo-Cermets jeweils eine Abnahme der Biegefestigkeit um ca. 30% bei  $1000^\circ\text{C}$  gegenüber Raumtemperatur zu beobachten. Das  $\text{UO}_2/30$  Vol.-% Cr-Cermet zeigt dieselbe Temperatur-Abhängigkeit wie das  $\text{UO}_2/45$  Vol.-% V-Cermet (Bild 6). Der erzielte Verbund zwischen Cermet und Hüllrohr beim isostatischen Heisspressen führt bei  $\text{UO}_2/\text{Cr}$ -Cermets mit warmfestem Hüllwerkstoff nach den bisherigen Ergebnissen zu höheren Zeitstandfestigkeiten. Mittels einer 3-Punkt-Biegekriecheinrichtung wurden im Hochvakuum bei  $900^\circ\text{C}$  Kriechkurven sowohl an nichtumhüllten als auch an umhüllten Cermets aufgenommen. Die Standzeit in Abhängigkeit von der Biegespannung wird in Bild 7 gezeigt. Der Unterschied zwischen nichtumhüllten und umhüllten  $\text{UO}_2/30$  Vol.-% Cr-Cermets ist auffallend. Vergleichsweise ist die entsprechende Kurve für  $\text{UO}_2/\text{V}$ -Cermets mit Reinvanadin-Hülle miteingezeichnet.

An  $\text{UO}_2/\text{Mo}$ -,  $\text{UO}_2/\text{Cr}$ - und  $\text{UO}_2/\text{V}$ -Cermets wurden Leitfähigkeitsmessungen ausgeführt. Sowohl die elektrische Leitfähigkeit [11] als Konzentrations- bzw. Temperaturfunktion als auch die konzentrationsabhängige Wärmeleitfähigkeit [8] wurden gemessen. In Bild 8 ist die Abhängigkeit des spezifischen elektrischen Widerstandes von der Metallkonzentration für drei

bzw. fünf verschiedene Metall-Konzentrationen dargestellt. Man sieht eine starke Abnahme des elektrischen Widerstandes mit zunehmendem Metallgehalt; bei dem  $\text{UO}_2/30$  Vol.-% Mo-Cermet kann man gegenüber reinem  $\text{UO}_2$  eine Zunahme der elektrischen Leitfähigkeit um ca. 11 - 12 Grössenordnungen feststellen. In den Bildern 9 und 10 sind die Temperaturfunktionen des spezifischen elektrischen Widerstands  $\rho$  für  $\text{UO}_2/\text{Mo}$  und  $\text{UO}_2/\text{Cr}$ -Cermets dargestellt. Selbst bis zu Temperaturen von  $1000^\circ\text{C}$  läuft die  $\rho$ -Funktion parallel zu der des Matrixmetalls, d.h. das in hoher Konzentration vorhandene  $\text{UO}_2$  hat keinen wesentlichen Einfluss auf die Leitfähigkeit [4]. Bild 11 zeigt die Widerstandswerte für  $\text{UO}_2/30$  Vol.-% Metall-Cermets als Funktion der Temperatur; man erkennt einen Anstieg mit steigender Temperatur; die Widerstandswerte steigen von den Mo-haltigen über Cr- zu den V-haltigen Cermets, wie es die Daten der Basismetalle vermuten lassen.

In Bild 12 ist der Verlauf der technisch viel wichtigeren Wärmeleitfähigkeit bei  $T = 100^\circ\text{C}$  in Abhängigkeit von der Metall-Konzentration dargestellt. Auch hier gilt die erwähnte Reihenfolge. Man kann feststellen, dass schon 20 Vol.-% Chrom in guter Verteilung genügen, um die Wärmeleitfähigkeit gegenüber  $\text{UO}_2$  ungefähr zu verdoppeln. Die Abhängigkeit vom Cr-Gehalt der  $\text{UO}_2/\text{Cr}$ -Cermets über den gesamten Konzentrationsbereich wird in Bild 13 angegeben. Die Funktion hat einen S-förmigen Verlauf, der Wert für reines Cr wurde der Literatur [6] entnommen.

Bild 14 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit für  $\text{UO}_2$ , einige Matrixmetalle und die zugehörigen  $\text{UO}_2$ -20 Vol.-% Metall-Cermets. Aus der Abbildung geht hervor, dass z.B. ein  $\text{UO}_2$ -20 Vol.-% Cr-Cermet bei  $800^\circ\text{C}$  eine um ca. eine Grössenordnung bessere Wärmeleitfähigkeit hat als reines  $\text{UO}_2$ .

#### 4. Brennstabproben für Bestrahlungsversuche

Für die Spezifikation von Brennstabproben für Bestrahlungsversuche stellt der Absorptionsquerschnitt der Matrixmetalle für schnelle Neutronen ein entscheidendes Kriterium dar. In Tabelle 1 werden diese Werte für einige Matrixmetalle dargestellt. Danach sind nur Cr und V als Matrixmetalle für schnelle Reaktoren mit hohen Kühlmitteltemperaturen geeignet. Nach einigen Vorversuchen mit Molybdän-Matrix kamen nur noch Cr und V zur Verwendung.

Matrix	$\sigma_{\gamma}(100\text{KeV})$ (mb)	$\sigma_{\gamma}(\text{therm})$ (barn)
Cr	6,8	3,1
V	9,5	15,1
Mo	71,0	2,7
Nb	100,0	1,15
SS1613	8,34	-

Tab. 1: Absorptionsquerschnitte für schnelle und thermische Neutronen für einige Matrixmetalle

Bei der Hüllmaterialauswahl kamen im Hinblick auf hohe Kühlgastemperaturen bei einem gasgekühlten schnellen Brüter nur hochwarmfeste und oxydationsbeständige Werkstoffe in Betracht. So wurden für die  $\text{UO}_2$ -Cr-Cermets mit hohem Zielabbrand Inconel 625 und Hastelloy X gewählt. Die Materialkombinationen, die Hüllmaterialien und Herstellungsbedingungen können aus Tabelle 2 entnommen werden.

Nr.	Cermet/Hülle	Probenform Länge x $\varnothing$ x Hüllstärke (mm)	Proben- anzahl	Metall- gehalt (V/o)	Dichte (%th.)	Heisspressbedingungen		Halte- zeit (h)
						Druck (at)	Temp. (°C)	
A	$\text{UO}_2$ -Mo Niob	62x7,1x0,3	8	20 Mo	75	700	1260	4
B	$\text{UO}_2$ -Cr Niob	62x7,1x0,3	8	30 Cr	90	500	1360	4
				20 Cr	83	400	1300	4
C	$\text{UO}_2$ -Cr Incoloy 800	62x6,3x0,4	8	30 Cr 20 Cr	92,5 90	450	1200	3
D	$\text{UO}_2$ -Cr Inconel 625 Hastelloy X	105x8,4x0,4	4	30 Cr	83	150	1200	2
				20 Cr	80			
E	$\text{UO}_2$ -Cr Inconel 625 Hastelloy X	105x8,3x0,4	4	30 Cr	80	150	1200	2
				20 Cr	78	200		
F	$\text{UO}_2$ -V Vanadium	105x8,2x0,4	4	20 V	85-90	210	1300	2
		105x8,2x0,4	4	30 V 20 V	85 86	210 400	1300 1300	2

Tab. 2: Cermet-Herstellungsbedingungen

## 5. Bestrahlungsbedingungen

Die Bestrahlungen wurden im FR 2 bei thermischen Neutronenflüssen zwischen  $6$  und  $8 \cdot 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>·s durchgeführt. Die wichtigsten Bestrahlungsbedingungen und Materialdaten der Prüflinge sind in der Tabelle 3 aufgeführt. Die mittleren Stableistungen lagen zwischen  $450$  und  $700$  W/cm bei mittleren Hülltemperaturen um  $600^{\circ}\text{C}$ . Die maximalen Werte der Stableistung und der Hülltemperatur lagen z.T. erheblich höher. Der maximal erreichte Abbrand betrug  $95,6$  MWd/kgU bei einem Bestrahlungseinsatz mit UO<sub>2</sub>-Cr-Brennstäben.

Die Bestrahlungen erfolgten in einer Na-K-gefüllten Kapsel (interne Bezeichnung "Kapseltyp 5a"). Eine derartige Kapsel ist schematisch mit einem Cermetbrennstab im Bild 15 dargestellt. Die Bestrahlungsprobe hat an einem Ende einen Gewindebolzen und am anderen eine Gewindemuffe. Damit werden mehrere Proben zu einem Probenstrang verschraubt. Dieser befindet sich in einer eutektischen Na-K-Schmelze in einer Innenkapsel aus rostfreiem Stahl. Die Zentrierung erfolgt durch dünne gelochte Rippenringe, die sich zwischen den einzelnen Proben befinden. Diese Ringe dienen auch zur Führung der Thermoelementtauchrohre. Die Temperaturmessstellen, insgesamt sind es zehn, befinden sich in verschiedenen axialen Positionen im Na-K. Die Innenkapsel steckt ihrerseits in einer Aussenkapsel aus Zircaloy 2, die mit einer eutektischen Pb-Bi-Legierung gefüllt ist. Der Bestrahlungseinsatz steht im Kühlwasserstrom des FR 2.

## 6. Nachbestrahlungsuntersuchungen

Nach der Bestrahlung wurden in den Heissen Zellen des Reaktorbetriebs die Bestrahlungseinsätze demontiert und die Nachbestrahlungsuntersuchungen vorgenommen. Zunächst wurde die Bestrahlungskapsel angebohrt und auf Spaltgas geprüft, das evtl. aus den Prüflingen entwichen ist. Dann folgte nach der Demontage der Prüflinge ihre visuelle Kontrolle. Bild 16 zeigt die vier UO<sub>2</sub>-Cr-Prüflinge des Bestrahlungseinsatzes E nach Bestrahlung. Nach der visuellen Inspektion wurde an den Stäben eine Röntgen-grobstrukturprüfung mit dem Betatron durchgeführt, und zur Kontrolle der  $\gamma$ -Aktivität über die Brennstofflänge wurde ein  $\gamma$ -scan angefertigt. Bild 17 zeigt einen derartigen  $\gamma$ -scan. Bei der Dimensionskontrolle wurden Länge und Durchmesser der Prüflinge ermittelt. Zur Durchmesserbe-

Brennstoff	UO <sub>2</sub> -Mo		UO <sub>2</sub> -Cr												UO <sub>2</sub> -V		
	A	B	C				D				E				F	G	
Einsatz Nr.	A	B	C				D				E				F	G	
Metallanteil Vol.-%	20	20	20	30			20	30	20	30	20	30	20	30	20	20	30
Hüllmaterial	Nb	Nb	Nb	Incoloy 800	Inconel 625		Inconel 625		Hastelloy X		Hastelloy X		Inconel 625		V	V	V
Wandstärke, mm	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5
Zahl der Proben	8	8	1	3	3	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
Probendurchmesser, mm	6,4-6,9	6,4-6,9	7,0	6,3	6,3	6,3	8,4	8,4	8,3	8,3	8,3	8,3	8,3	8,3	8,3	8,3	8,3
Probenlänge, mm	62	62	62	62	62	62	116	116	116	116	116	116	116	116	116	116	116
Probedichte, % TD	75,85, 100	90,93	80	90	92,5	92,5	80	83	80	83	79	81	78	79	84-90	84,87	85
UO <sub>2</sub> -Gewicht, g	ca.9,8	ca.9,8	9,86	ca.6,4	ca.5,9	5,90	26,35	23,06	26,05	23,10	26,12	22,47	25,84	22,71	ca.23	ca.23	ca.21
Bestrahlungsdauer, d	60	38	100	100	100	100	226	226	226	226	395	395	395	395	189	100	100
Abbrand, MWd/kg U	14 <sup>1)</sup>	10 <sup>2)</sup>	31,1 <sup>1)</sup>	31 <sup>1)</sup>	33 <sup>1)</sup>	34,7 <sup>1)</sup>	60,2 <sup>1)</sup>	60,9 <sup>1)</sup>	58,2 <sup>1)</sup>	60,6 <sup>1)</sup>	84,8 <sup>1)</sup>	93,7 <sup>1)</sup>	95,6 <sup>1)</sup>	89,3 <sup>1)</sup>	55 <sup>1)</sup>	18 <sup>2)</sup>	19 <sup>2)</sup>
Stableistung, W/cm																	
mittlere	550	500	560	450	450	460	670	640	600	595	535	510	600	490	715	450	435
maximale	600	580	600	500	500	600	800	730	690	670	710	640	740	630	800	600	610
Hülltemp., °C																	
mittlere	635	590	650	450	430	405	550	565	685	585	600	550	565	550	700	550	535
maximale	685	665	685	500	500	515	690	655	775	655	770	680	710	690	815	700	715

- 1) radiochemisch bestimmt  
2) auf Grund therm.Daten berechnet

Tab. 3: Materialdaten und Bestrahlungsbedingungen der Cermetbrennstäbe

stimmung wurde ein Wendelschrieb mit einem Profilometer aufgenommen. In Bild 18 werden die Wendelschriebe eines  $\text{UO}_2$ -Cr-Brennstabes vor und nach Bestrahlung bis zu einem Abbrand von 93,7 MWd/kg U gezeigt. Der Durchmesser vor und nach Bestrahlung ist innerhalb der Messfehlergrenzen von  $\pm 0,02$  mm gleich.

Nach den zerstörungsfreien Untersuchungen wurden die Prüflinge zur Bestimmung des aus dem Brennstoff freigesetzten Spaltgases angebohrt. Nach Absaugen der Spaltgase wurde deren Menge gaschromatographisch bestimmt. Zur Bestimmung des gebundenen Spaltgases wurden Brennstoffproben gemahlen. Das während des Mahlvorganges freigesetzte Spaltgas stammt aus Poren im Brennstoff und wird deshalb als Porenspaltgas bezeichnet. Der gemahlene Brennstoff wurde anschliessend in Säure aufgelöst. Dabei wurde das restliche im Brennstoff enthaltene Spaltgas freigesetzt. Dieses wird als Gitterspaltgas bezeichnet. Es befindet sich im  $\text{UO}_2$  in dynamischer Lösung und in sehr kleinen Blasen. Für die Gefügeuntersuchungen wurden an verschiedenen Stellen der Prüflinge Proben für Längs- und Querschliffe entnommen. Auch für die radiochemischen Abbrandanalysen, die im Institut für Radiochemie über die Bestimmung des Ce/Pr-144 als Abbrandindikator vorgenommen wurden, wurden Proben entnommen.

## 7. Ergebnisse der Nachbestrahlungsuntersuchungen

### 7.1 $\text{UO}_2$ -Mo-Cermets

Über das Bestrahlungsverhalten dieser Cermets wurde bereits ausführlich berichtet [12]. An dieser Stelle sollen deshalb nur die wesentlichsten Ergebnisse wiederholt werden. Die Nb-umhüllten acht Prüflinge dieses Bestrahlungseinsatzes enthielten 20 Vol.-% Mo und wurden bei 550 W/cm mittlerer Stableistung und  $635^\circ\text{C}$  mittlerer Hülltemperatur bis zu einem Abbrand von 14 MWd/kg U bestrahlt. Die Cermetdichten betragen 75, 85 und fast 100% TD.

Die Stäbe mit 75 und 85% TD zeigten nach Bestrahlung Durchmesserzunahmen von durchschnittlich 0,85%. Bei den Prüflingen mit fast 100% TD wurde eine mittlere Durchmesserzunahme von 1,5% gemessen. Auf Grund der äusseren Dimensionsänderungen wurde für den Brennstoff mit 75 und 85% TD eine mittlere Schwellgeschwindigkeit von 1,3 Vol.-%/ U-Abbrand und für

die hochdichten Proben eine von 1,7 Vol.-%/ % U-Abbrand errechnet. Während die Nb-Hüllen der Prüflinge mit 75 und 85% TD rissfrei blieben, zeigten die der hochdichten Proben Risse mit überwiegend axialem Verlauf. Die geringe Bruchdehnung des Nb ist auf eine Versprödung durch Sauerstoffaufnahme aus verunreinigtem He während der Herstellung durch Heisspressen zurückzuführen. Die Hüllrisse setzten sich teilweise im Brennstoff fort. Derartige Makrorisse traten bei den niederdichten Prüflingen nicht auf.

Bild 19 zeigt die Gefügeausbildung der verschiedenen dichten Proben nach Bestrahlung. Bei der Probe mit 75% TD weisen ein Teil der  $UO_2$ -Teilchen diametrale Risse auf. Auch die meist nur aus einer Kornlage bestehende Mo-Schicht um die  $UO_2$ -Kugeln ist häufig gerissen. Diese Risse haben ihre Ursache in den thermischen Spannungen in den Teilchen infolge des sehr ungleichmässigen Wärmeflusses in diesem hochporösen Gefüge. Mit steigender Dichte verschwinden diese Risse. Die hochdichten Proben weisen praktisch keine Mikrorisse mehr auf.

Auf Grund dieser Bestrahlungsergebnisse ergab sich, dass die optimale Cermetdichte bei ca. 85% TD liegen muss.

## 7.2 $UO_2$ -Cr-Cermets

### 7.2.1 Allgemeines

Mit Ausnahme des Bestrahlungseinsatzes B wurden jeweils Proben mit 20 und mit 30% Cr und mit Hüllen aus hochwarmfesten Fe-Ni- und Ni-Legierungen bestrahlt. Die acht Prüflinge des Einsatzes B hatten 20% Cr und Nb-Hüllen. Über das Bestrahlungsverhalten dieser Proben wurde ebenfalls bereits in [12] ausführlich berichtet. Sie wurden bis zu einem Abbrand von 10 MWd/kg U bestrahlt. Wegen der versprödeten Nb-Hüllen sind sämtliche Proben gerissen. Auf Grund der geringen Festigkeit der Cr-Matrix im Vergleich mit der der Mo-Matrix, trat bei den  $UO_2$ -Cr-Cermets eine höhere Schwellung als bei den  $UO_2$ -Mo-Cermets auf. Sie wurde zu etwa 2 Vol.-%/ % U-Abbrand abgeschätzt.

Die Proben des zweiten  $UO_2$ -Cr-Bestrahlungseinsatzes wurden bis zu einem Abbrand von ca. 32 MWd/kg U bestrahlt. Hüllmaterialien waren bei sechs Proben Incoloy 800 und bei je einer Probe Inconel 625 und Nb.

Die Nb-umhüllte Probe stammt noch aus der Charge des ersten  $\text{UO}_2$ -Cr-Einsatzes. Die mittlere Stableistung dieser Probe betrug 560 W/cm und die mittlere Hülltemperatur  $650^\circ\text{C}$ . Die Probe war gerissen. Die übrigen Proben dieses Bestrahlungseinsatzes hatten auf Grund ihres kleineren Durchmessers nur eine mittlere Stableistung von 450 W/cm. Ihre mittlere Hülltemperatur betrug  $440^\circ\text{C}$ . Die Proben zeigten bei diesen vergleichsweise milden Bestrahlungsbedingungen keine Hüllrisse und keine Durchmesserzunahmen. Das idealisierte Cermetgefüge blieb unverändert. Die Proben mit 20% Cr zeigten eine stärkere Neigung zur Rissbildung als die mit 30% Cr.

Am interessantesten und am aussagekräftigsten sind die beiden letzten  $\text{UO}_2$ -Cr-Einsätze, die 0,5 mm starke Inconel 625- bzw. Hastelloy X-Hüllen hatten und bis zu Abbränden von 60 bzw. 95 MWd/kg U bestrahlt wurden. Die mittleren Stableistungen lagen zwischen 490 und 670 W/cm. Die mittleren Hülltemperaturen reichten von  $550$  bis  $685^\circ\text{C}$ . Beim Hastelloy X wurden maximal  $775^\circ\text{C}$  gemessen, beim Inconel 625  $710^\circ\text{C}$ .

Alle Proben beider Einsätze waren nach Bestrahlung in einem guten und unversehrten äusseren Zustand. Es wurden keine Beschädigungen entdeckt. Bei keiner Probe wurde im Rahmen der Messgenauigkeit von  $\pm 0,02$  mm eine Durchmesseränderung gefunden. Auch Längenänderungen konnten nicht festgestellt werden. Die Inconel 625- und Hastelloy X-Hüllen erwiesen sich also als fest genug, das Brennstoffschwellen in die Herstellungsporosität zu leiten.

### 7.2.2 Hüllundichtigkeit

Beim Anbohren der Bestrahlungskapseln wurde in beiden Fällen Spaltgas gefunden, und zwar in der Kapsel D (mittlerer Abbrand 60 MWd/kg U, mittlere Stableistung 625 W/cm)  $34,82 \text{ cm}^3$  und in der Kapsel E (mittlerer Abbrand 91 MWd/kg U, mittlere Stableistung 535 W/cm)  $14,28 \text{ cm}^3$ . Diese Befunde deuten auf Mikrorisse in den Hüllen einzelner Prüflinge. Bei den Prüflingen mit 20% Cr, ausser bei der Inconel 625-Probe des Einsatzes E, wurden auch vereinzelt Mikrorisse an den Hüllinnenseiten gefunden, die jedoch nicht bis an die äussere Oberfläche reichen. Die gefundene maximale Risstiefe beim Inconel 625 beträgt 0,4 mm. Bei Hastelloy X wurde eine maximale Risstiefe von 0,2 mm bei der Probe E 1 beobachtet. Bei den Prüflingen mit 30% Cr wurden derartige Risse nie entdeckt.

Einen Hinweis auf die Dichtigkeit der Hüllen können auch die in der Tabelle 4 aufgeführten radiochemisch bestimmten Abbrandwerte liefern.

Pro- be	%Cr	Hüllmat.	G <sub>o,27</sub> <sup>1)</sup> cm <sup>3</sup>	F <sup>2)</sup> cm <sup>3</sup>	P <sup>3)</sup> cm <sup>3</sup>	G <sup>4)</sup> cm <sup>3</sup>	(F+P+G) cm <sup>3</sup>	G <sub>o,27</sub> <sup>-</sup> (F+P+G) cm <sup>3</sup>
D 1	20	Inc.625	37,989	4,112	19,027	3,429	26,568	11,421
D 2	30	"	33,978		20,141			
D 3	20	Hast.X	36,158	1,637	14,299	5,088	21,024	15,134
D 4	30	"	33,531	4,967	18,551	4,819	28,337	5,194
Kap- sel				34,82			Summe	31,749 <34,82

- 1) theoret.entstandene Spaltgasmenge bei 0,27 Gasatomen/Spaltung
- 2) freies Spaltgas
- 3) Porensplattgas
- 4) Gittersplattgas

Tab.4: Spaltgasdaten des UO<sub>2</sub>-Cr-Bestrahlungseinsatzes D

Als Abbrandindikatoren wurden die Spalt nuklide Ce-144 und Cs-137 benutzt. Das Ce und sein Nachfolger Pr verbleiben am Ort ihres Entstehens, während das Cs flüchtig ist. Fehlendes Cs lässt also auf Hüllundichtheiten schliessen. Aus den in der Tab.5 wiedergegebenen Abbrandwerten ergibt sich dann, dass die Proben D 1, D 3 und E 1 mit 20% Cr und die Probe E 2 mit 30% Cr und Hastelloy X-Hülle undicht waren. Die Inconel 625-umhüllten Proben E 3 und E 4 waren nach diesen Befunden dicht geblieben. Zu den Proben D 2 und D 4 können keine sicheren Aussagen gemacht werden. Auf Grund der Spaltgasbilanz für den Einsatz D (Tabelle 4) ist jedoch nicht auszuschliessen, dass auch diese beiden Proben geringe Mengen Spaltgas freisetzten. Die in der Kapsel dieses Einsatzes gefundene grosse Spaltgasmenge lässt sich nur erklären, wenn zumindest der Prüfling D 4 mit 30% Cr und Hastelloy X-Hülle Spaltgas freigesetzt hat. Der Prüfling D 2 könnte dicht geblieben sein, wenn pro Spaltung mindestens 0,28 Spaltgasatome entstanden sind.

Einsatz	Probe	Abbrand, MWd/kg U	
		Ce-144	Cs-137
D	1	60,2	39,0
	2	60,9	58,8
	3	58,2	48,9
	4	60,6	57,1
E	1	84,84	76,87
	2	93,73	69,62
	3	95,60	97,82
	4	89,34	95,28

Tab. 5: Radiochemisch bestimmte Abbrandwerte

Aus den in den Prüflingen gefundenen Mengen freien Spaltgases und dem zur Verfügung stehenden freien Volumen lassen sich Spaltgasdrücke von 10 bis 40 at unter Betriebsbedingungen gegen Bestrahlungsende abschätzen. Der maximal mögliche Spaltgasdruck (Hüllrisse erst gegen Bestrahlungsende) läge bei ca. 100 at. In den Proben E 2, E 3, und E 4 konnte kein freies Spaltgas nachgewiesen werden. Bei der Probe E 2 ist das auf Undichtheiten zurückzuführen, während bei den Proben E 3 und E 4 offenbar das gesamte Spaltgas im Brennstoff zurückgehalten wurde. Diese beiden Proben standen damit unter keinem nennenswerten Spaltgasdruck.

### 7.2.3 Gefügeänderung

Alle vier Prüflinge mit 20% Cr aus den Bestrahlungseinsätzen D und E zeigen eine Entmischung von  $UO_2$  und Cr im Zentrum, die bei den Prüflingen mit 30% Cr nicht auftritt (Bild 20 und 21). Das Cr ist unter dem Einfluss des Temperaturgradienten nach aussen gewandert, d.h. es ist an den wärmeren Stellen im Innern verdampft und in den kälteren Zonen weiter aussen kondensiert. Zurück blieb im Zentrum das  $UO_2$ , das sich durch Zusammensintern der einzelnen Partikel und durch Porenwanderung umstrukturierte, wobei es teilweise sogar zur Zentralkanalbildung kam (Bild 21). Aus den Bildern 20 und 21 ist auch die stärkere Rissbildung in den Proben mit 20% Cr zu ersehen.

Bild 22 zeigt die Gefügeausbildung einer Probe mit 20% Cr nach einem Abbrand von 60 MWd/kg U in Abhängigkeit vom Radius. Von aussen nach innen kann man verschiedene Zonen unterscheiden :

- die Grenzzone zwischen Brennstoff und Hülle
- eine Zone mit fast unverändertem Brennstoffgefüge, in der lediglich Porositätsänderungen im  $UO_2$  stattfanden
- eine Cr-angereicherte Zone, in der die Auflösung des idealisierten Cermetgefüges mit dem Eindringen von Cr in die  $UO_2$ -Partikel längs der Korngrenzen beginnt
- die  $UO_2$ -Zone, aus der das Cr praktisch vollständig verdampft ist.

In Bild 22 wird das Gefüge der Probe E 2 mit 30% Cr in der Aussenzonenzone und im Zentrum einer Probe nach einem Abbrand von 93,7 MWd/kg U gezeigt. Wesentliche Gefügeunterschiede zwischen Rand und Zentrum gibt es nicht, lediglich die Poren in den  $UO_2$ -Kugeln im Zentrum sind etwas grösser.

Infolge der  $UO_2$ -Cr-Entmischung bei den Proben mit 20% Cr kommt es neben einer verstärkten Spaltgasfreisetzung auch zu einer stärkeren Freisetzung von flüchtigen Spaltprodukten, die für den Hüllangriff verantwortlich sind. In den Bildern 24.u.25 werden derartige Angriffszonen an den Inconel 625- und Hastelloy X-Hüllen der 20% Cr-Proben nach einem Abbrand von ca. 60 MWd/kg U gezeigt. Die maximale Breite der Reaktionszonen beträgt 0,2 mm bei beiden Proben, wobei die Temperatur des Hastelloy X ca.  $100^{\circ}C$  über der des Inconel 625 lag. Bei den 20% Cr-Proben des Einsatzes E wurden nur Reaktionsschichten von maximal 0,1 mm Breite beobachtet. Die Gründe hierfür dürften in der niedrigeren Stableistung dieser Proben und der damit verbundenen geringeren Freisetzung flüchtiger Spaltprodukte sowie in der während der letzten Bestrahlungszyklen niedrigeren Hülltemperatur zu suchen sein. Alle Proben mit 30% Cr aus beiden Einsätzen wiesen keinen merklichen Hüllangriff auf.

### 7.3 $UO_2$ -V-Cermets

Es wurden zwei Einsätze mit je vier Prüflingen bestrahlt. Der erste Einsatz (Einsatz F), der nur Proben mit 20% V enthielt, erreichte bei einer mittleren Stableistung von 715 W/cm und einer mittleren Hüll-

oberflächentemperatur von  $700^{\circ}\text{C}$  einen mittleren Abbrand von  $55 \text{ MWd/kg U}$ . Die Bestrahlung des zweiten Einsatzes (G), der zwei Proben mit 20% V und zwei mit 30% V enthielt, wurde nach einem Abbrand von ca.  $18,5 \text{ MWd/kg U}$  wegen Thermoelementausfalles abgebrochen. Die mittlere Stabileistung betrug bis zu diesem Zeitpunkt  $450 \text{ W/cm}$  bei einer mittleren Hülltemperatur von  $550^{\circ}\text{C}$ . Die übrigen Material- und Bestrahlungsdaten sind in der Tabelle 3 aufgeführt. Hüllmaterial war bei beiden Einsätzen in Ermangelung von Rohren aus geeigneten V-Legierungen Reinvanadin.

Nach der Bestrahlung stellte sich heraus, dass die Hüllen sämtlicher Prüflinge gerissen waren. Bild 26 zeigt einen Querschliff durch einen solchen Prüfling. Auffallend ist die im Vergleich mit Mo und Cr herstellungsbedingt ungleichmäßige Verteilung der V-Matrix. Ursache des Reissens der V-Hüllen war deren Versprödung durch Sauerstoffaufnahme, die vermutlich während der Bestrahlung aus der Na-K-Füllung der Kapsel erfolgte. Eine Oxydation während der Herstellung ist weniger wahrscheinlich, da die Proben nach dem Heisspressen metallisch blank waren.

Bild 27 zeigt das grobkörnige Gefüge einer V-Hülle mit Oxidausscheidungen an den Korngrenzen.

In Bild 28 ist das Gefüge am Rand und im Zentrum einer  $\text{UO}_2$ -20% V-Probe nach einem Abbrand von  $54 \text{ MWd/kg U}$  dargestellt. In der Randzone ist das Gefüge durch die Bestrahlung nicht merklich beeinflusst worden. Im heisseren Teil dagegen sieht man einige Poren im V, die sich offenbar auf der Wanderung zum Zentrum befinden. Im Vergleich zum Cr ist die Wanderungsgeschwindigkeit infolge des wesentlich niedrigeren Dampfdruckes des V sehr klein. Anzeichen für einen sich bildenden Zentralkanal oder eine merkliche  $\text{UO}_2$ -V-Entmischung gibt es noch nicht.

## 8. Schlussfolgerungen

Auf Grund der durchgeführten Versuche muss als Voraussetzung für ein erfolgreiches Bestrahlungsverhalten von Cermetbrennstäben mit idealisiertem Gefüge die Erhaltung dieses Gefüges angesehen werden. Eine Entmischung von keramischem Brennstoff und Matrixmetall durch Verdampfung des Metalls im Zentrum kann wegen der damit verbundenen verstärkten Freisetzung von Spaltgasen und flüchtigen Spaltprodukten und den Folgen

dieser Freisetzung -Aufbau eines unzulässig hohen Spaltgasdruckes und Hüllschwächung durch Spaltproduktangriff- nicht zugelassen werden.

Eine Abschätzung der maximalen Zentraltemperatur der Prüflinge mit 20% Cr in den Bestrahlungseinsätzen D und E, in denen eine  $UO_2$ -Cr-Entmischung beobachtet wurde, ergab bei Verwendung der Wärmeleitfähigkeit für das unbeeinflusste Cermetgefüge Werte zwischen 1200 und 1300°C. Bei Berücksichtigung des Zeiteinflusses wird man wohl bei  $UO_2$ -Cr-Cermets als maximal zulässige Grenze der Zentraltemperatur 1200°C ansehen müssen. Damit sind Cermets mit 20% Cr für technisch interessante Bestrahlungsbedingungen nicht geeignet. Bei einem Cr-Gehalt von 30% ist bei einer Hülltemperatur von 650°C eine Stableistung von 800 W/cm als Grenzwert anzusehen, mit dem Abbrände von mindestens 60 MWd/kg U erreicht werden können. Eine Steigerung der Stableistung wäre möglich, wenn ein Matrixmetall mit niedrigerem Dampfdruck verwendet werden könnte. Berücksichtigt man gleichzeitig die Forderung nach einem kleinen Einfangquerschnitt für schnelle Neutronen, so kommt nur V in Betracht, dessen Nachteil jedoch in seiner hohen Sauerstoffaffinität liegt, wodurch die Verwendung in einem U-Pu-Mischoxid-Cermet ausgeschlossen wäre.

Inconel 625 und Hastelloy X als Hüllmaterial sind mit einer Wandstärke von 0,5 mm in der Lage, das Brennstoffschwellen in die Herstellungsporosität zu lenken und damit die äussere Dimensionsstabilität zu wahren. Jedoch ist die Frage der Mikrorissbildung nicht restlos geklärt. Inconel 625 hat sich bis zu mittleren Temperaturen von 565°C bei max. Temperaturen von 700°C bewährt, wenn der Cermet-Brennstoff 30 Vol.-% Cr enthielt. Hastelloy X erwies sich als anfälliger gegen Mikrorisse, wobei allerdings beachtet werden muss, dass die Temperaturen der Hastelloy X-Hüllen in beiden Bestrahlungseinsätzen bis zu 100°C höher lagen als die der Inconel 625-Hüllen.

Literatur

- [1] M.Dalle-Donne, S.Förster  
Gasbrüter - Memorandum (Sept. 1970)
- [2] M.Fischer  
Durchführbarkeitsstudie für den Schnellen Hochflusstest-  
reaktor FR 3, KFK 1356 (März 1971)
- [3] S.Nazaré, G.Ondracek, F.Thümmeler  
Zur Technologie von Cermets, High Temperatures - High Pressures 3  
(1971) 615
- [4] V.B. Nesterenkow  
Physikalische und technische Parameter des dissoziierenden Stick-  
stofftetroxides in Kernkraftwerken mit gasgekühlten schnellen  
Reaktoren (Übersetzung), Minsk, 1972
- [5] H.Schneider, D.Schönwald  
Die Abscheidung von Molybdän auf Zirkonoxid- und Uranoxidkugeln  
aus der Gasphase, KFK 555 (Jan. 1967)
- [6] H.Schneider, D.Schönwald  
Die Abscheidung von Chrom auf  $UO_2$ - und  $Al_2O_3$ -Kugeln aus der Gas-  
phase, KFK 787 (Juli 1968)
- [7] H.Schneider, D.Schönwald  
Die Abscheidung von V aus der Gasphase, KFK 1292 (Okt.70)
- [8] P.Weimar, F.Thümmeler, H.Bumm  
Herstellung und Eigenschaften von Cermets mit idealisiertem  
Gefüge durch isostatisches Heisspressen beschichteter Teilchen,  
2.Europ.Symp.über Pulvermetallurgie, Stuttgart, Mai 1968 und  
J.Nucl.Mat. 31 (1969)
- [9] P.Weimar  
Herstellung und Eigenschaften von Cermets mit idealisiertem  
Gefüge ( $UO_2/Mo$ - und  $UO_2/Cr$ ), Diss. 1969, TH Univ. Karlsruhe
- [10] H.Bumm et al.  
Neuere Ergebnisse auf dem Gebiet der Cermets mit idealisiertem  
Gefüge durch isostatisches Heisspressen beschichteter Teilchen,  
Symp. on Fast Reactor Fuel and Fuel Elements ANS, Karls-  
ruhe (Sept. 1970)
- [11] C.S.Swamy, P.Weimar  
Electric Conductivity of Cermets with Idealized Structure  
between Room Temperature and  $1000^{\circ}C$ , Powder Met.Int.(1970)
- [12] W.Dienst, P.Weimar  
Erste Bestrahlungsversuche an  $UO_2$ -Mo- und  $UO_2$ -Cr-Cermets mit  
80 Vol.-%  $UO_2$  in Nb-Hüllen, Kernforschungszentrum Karlsruhe,  
Externer Bericht 6/69 - 1

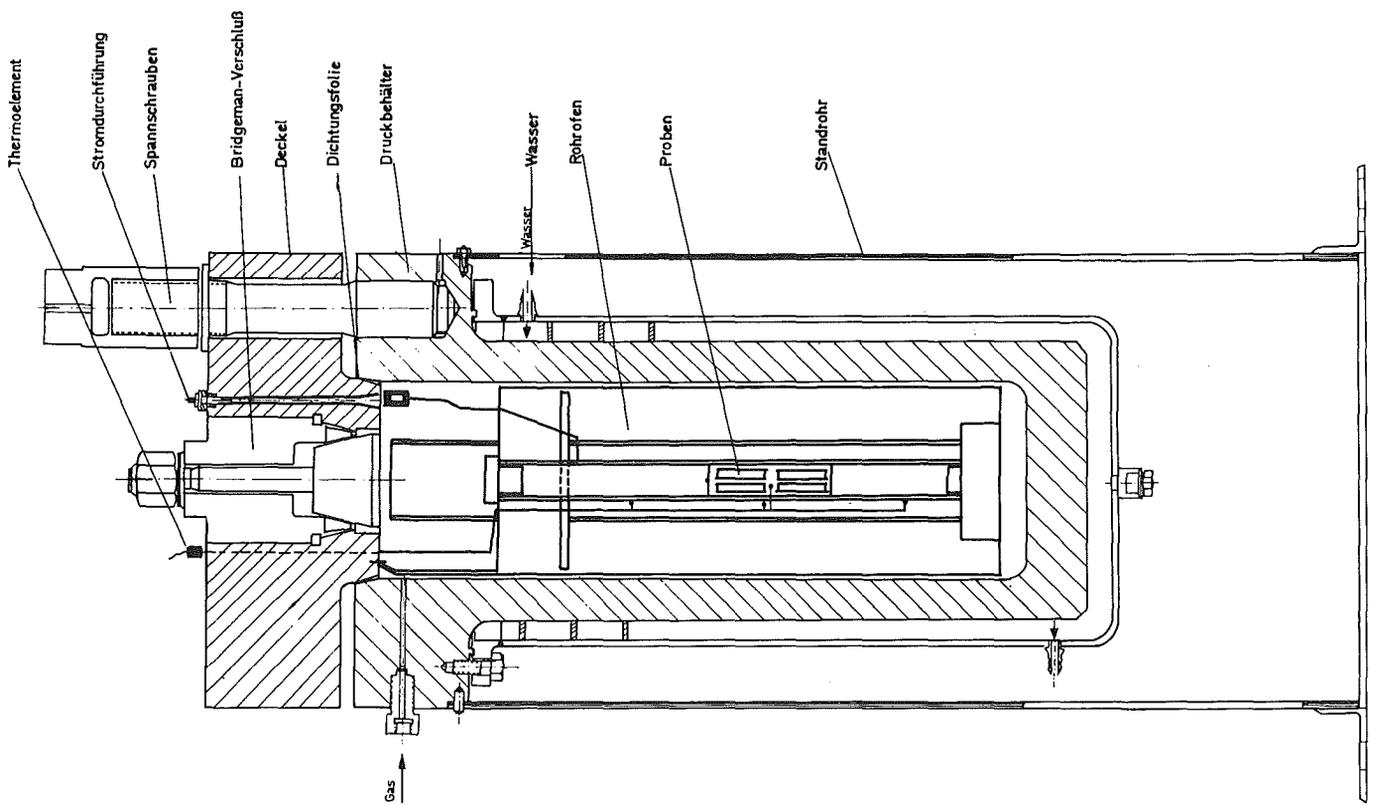
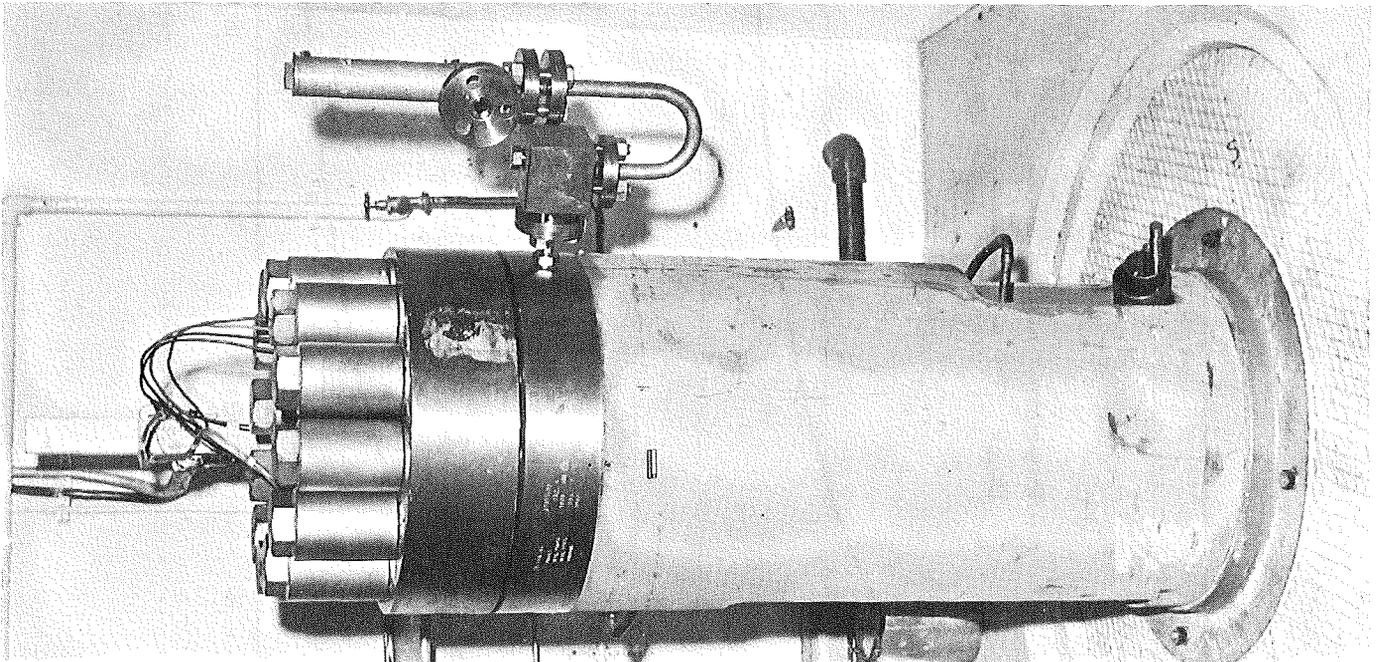


Bild 1: Schnitt und Ansicht des Heisspressautoklaven (Hersteller UHDE)

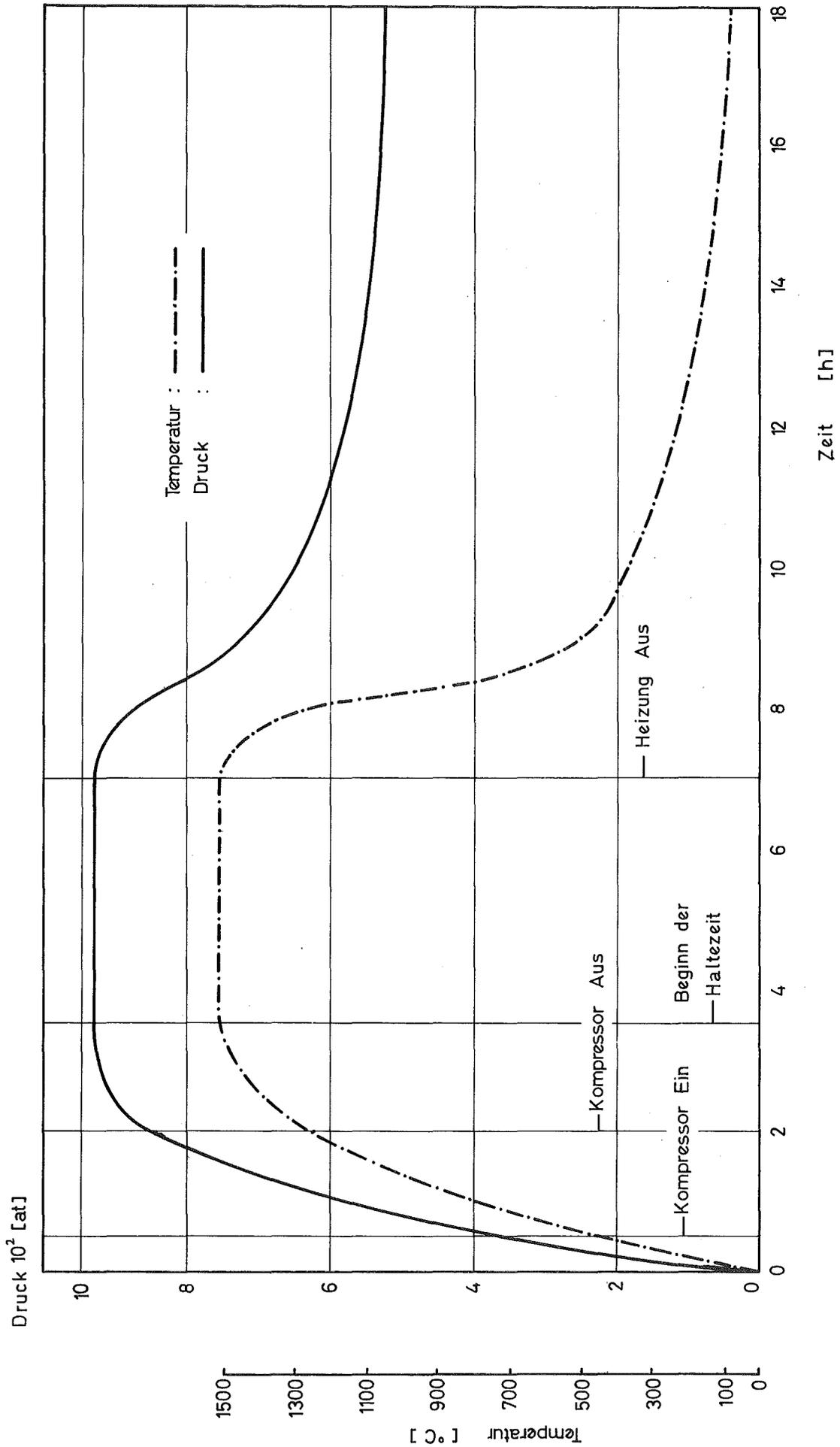


Bild 2: Druck-Temperatur-Zyklus beim isostatischen Heisspressen

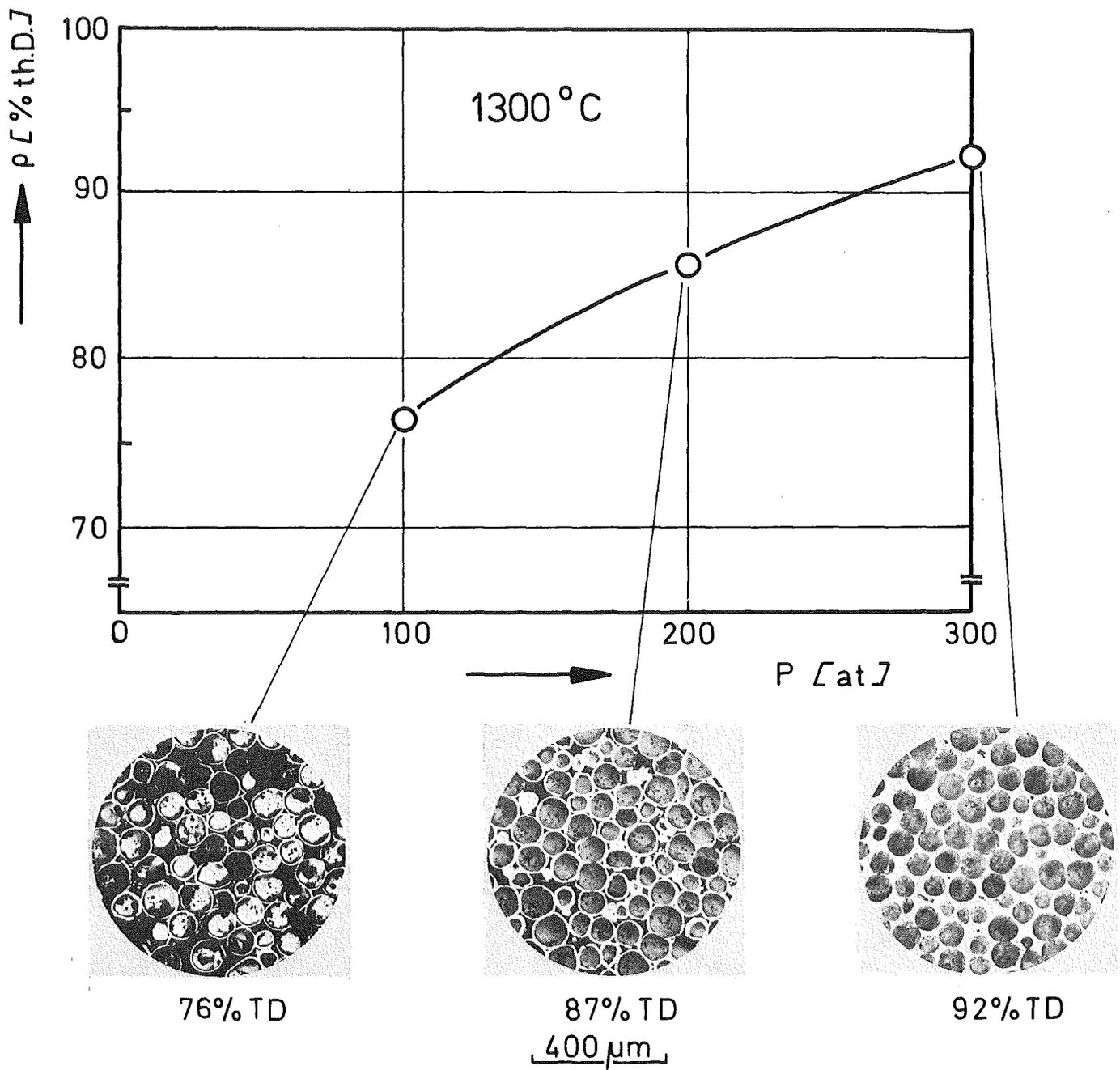


Bild 3: Dichte als Funktion des Druckes für  $UO_2/30$  Vol.-% Cr Cermets

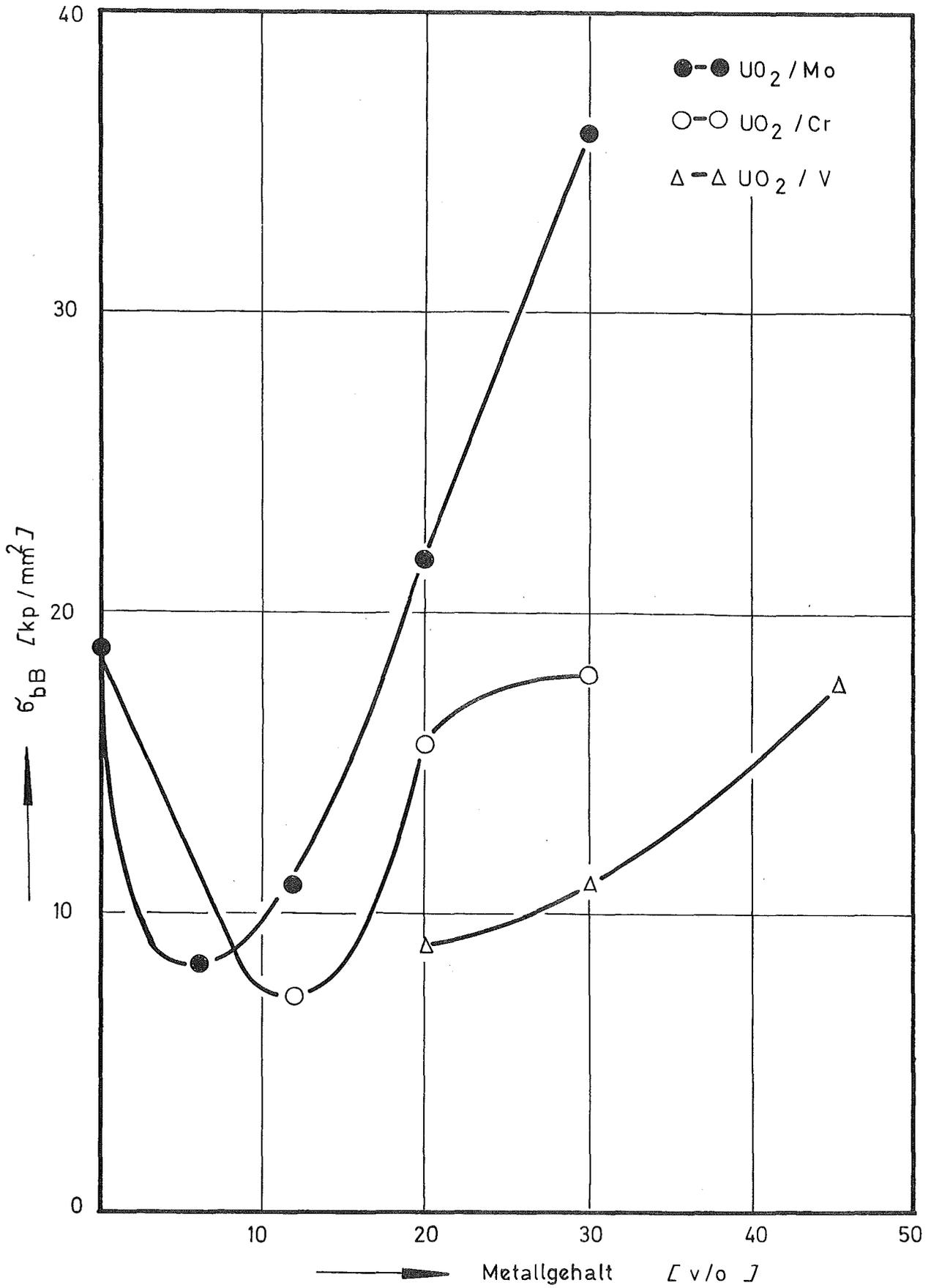


Bild 4: Biegefestigkeit als Funktion des Metallgehaltes für UO<sub>2</sub> (Mo, Cr, V)-Cermets

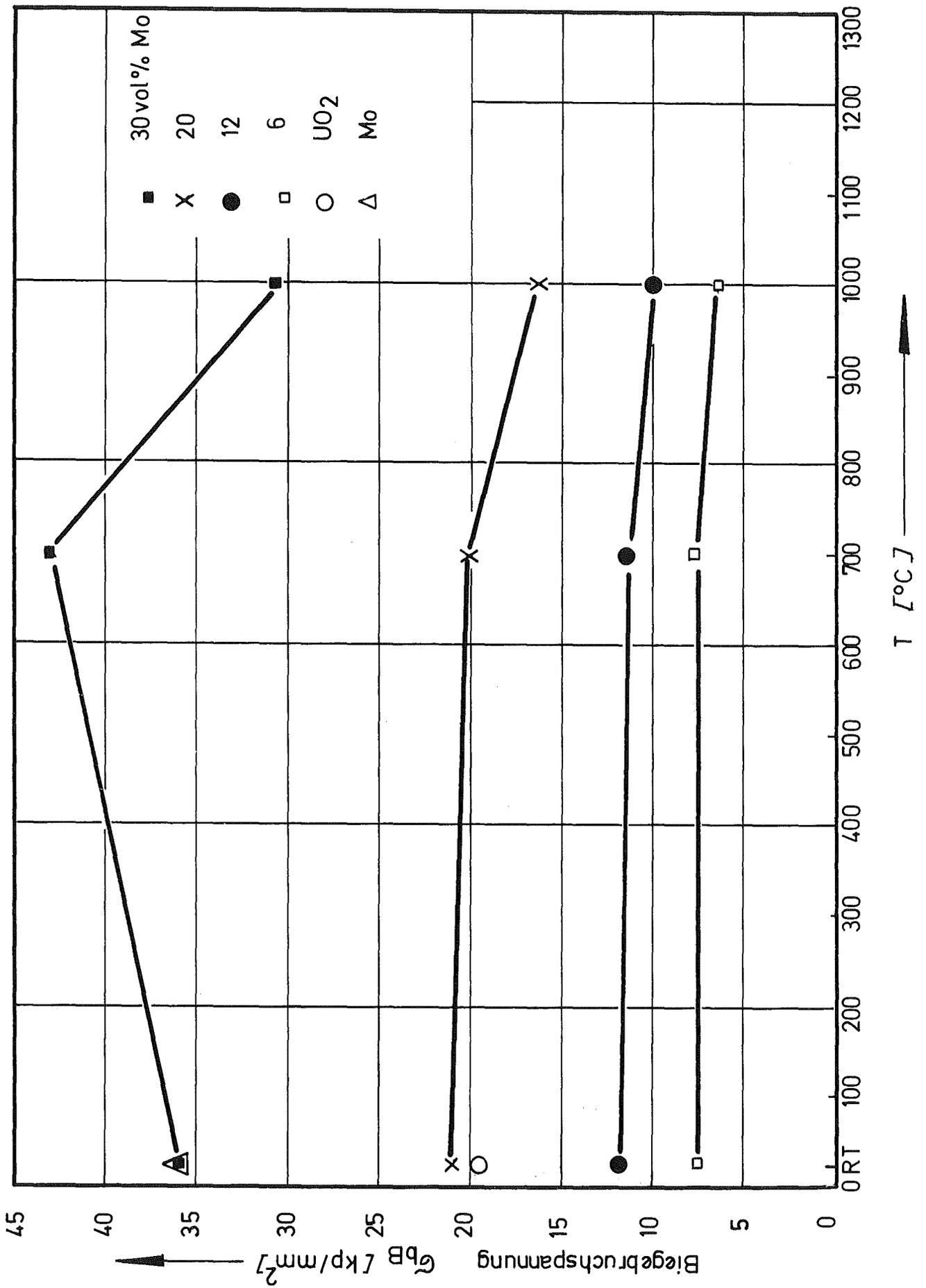


Bild 5: Biegefestigkeit als Funktion der Temperatur für einige  $\text{UO}_2$  / Mo-Cermets

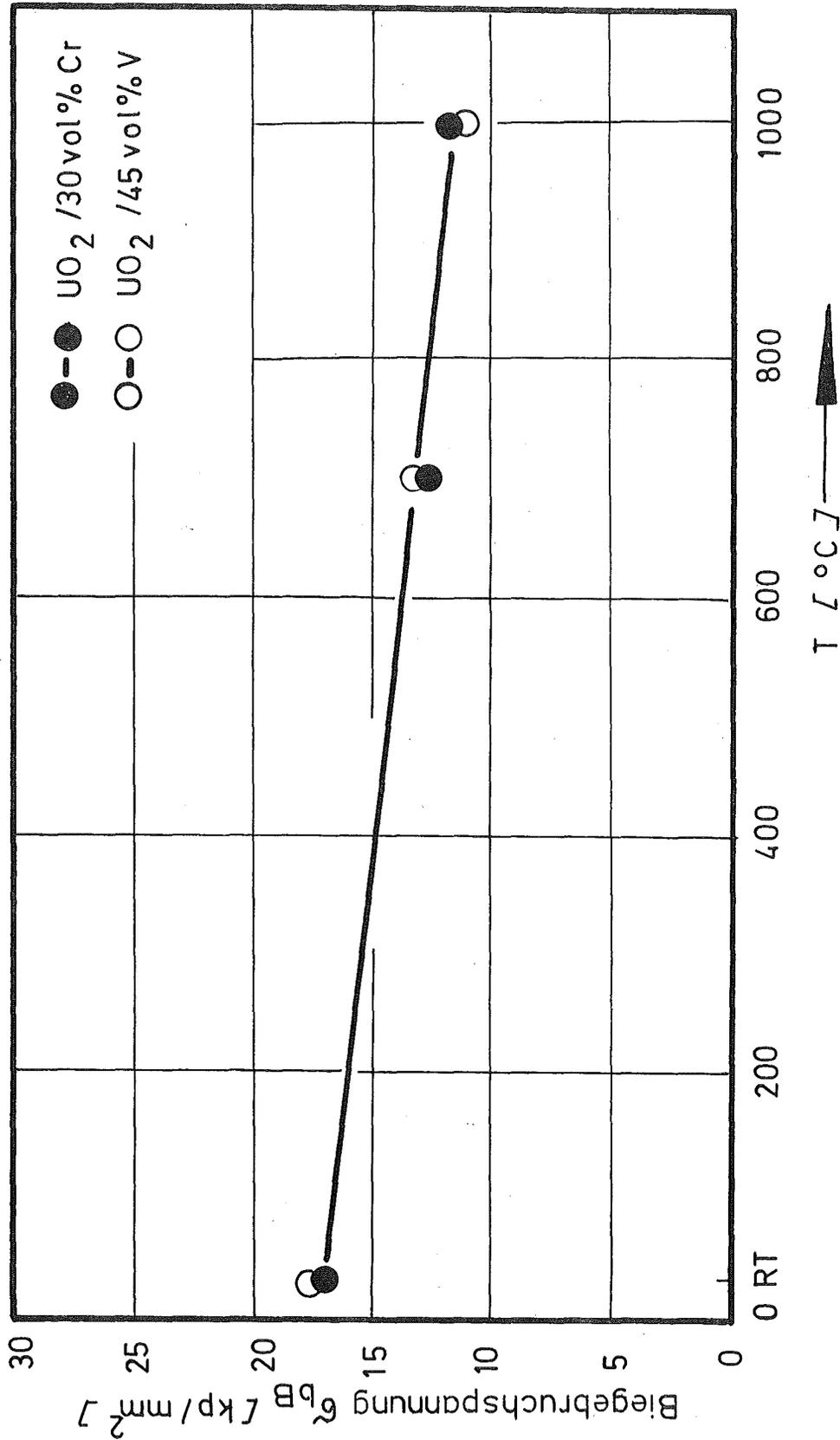
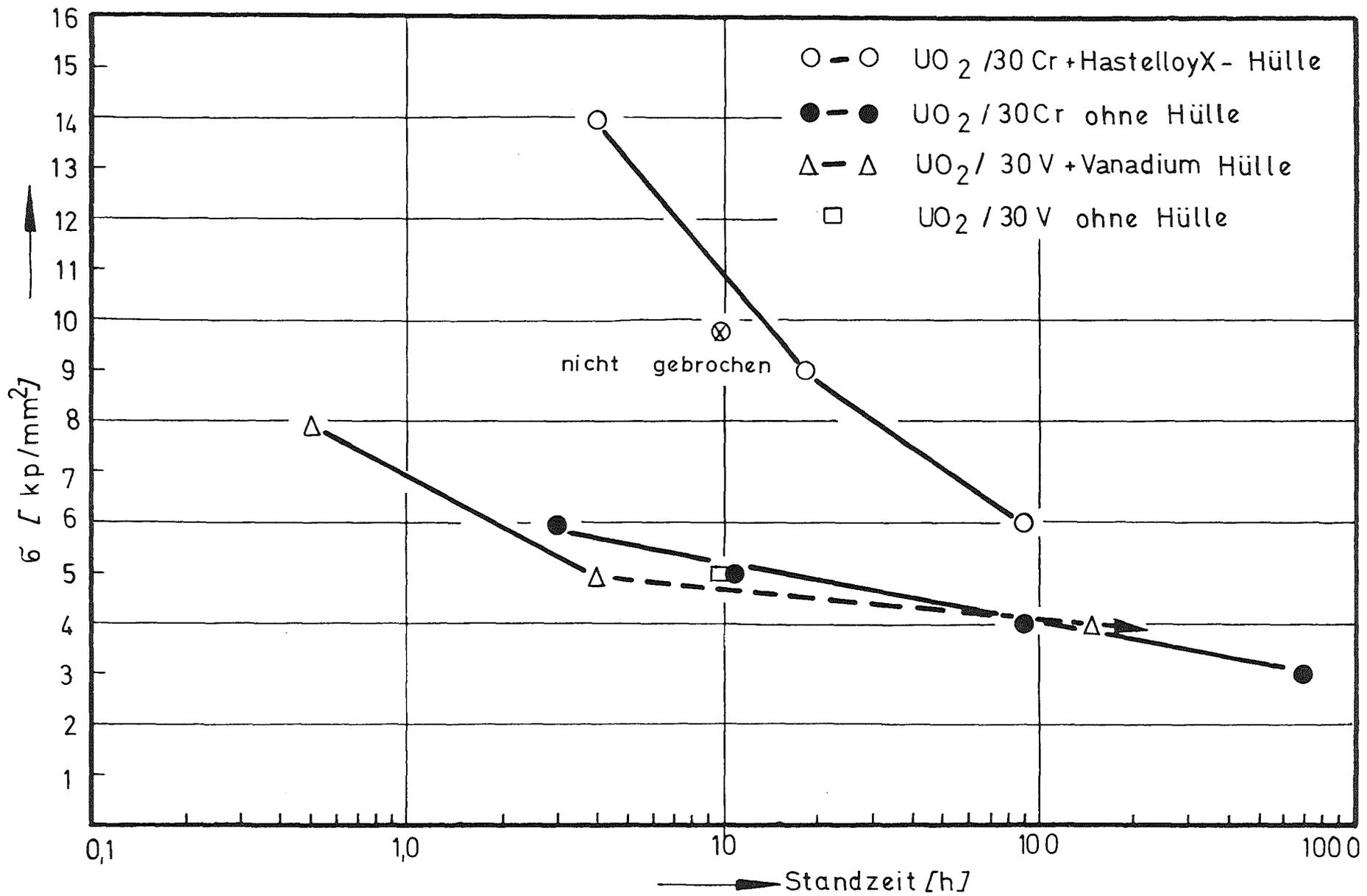


Bild 6: Vergleich der temperaturabhängigen Biegefestigkeit für UO<sub>2</sub>/30 Vol.-% Cr und UO<sub>2</sub>/45 Vol.-% V-Cermets

Bild 7: Standzeit für umhüllte und nichtumhüllte  $UO_2/30 \text{ Vol.}\% \text{ (Cr, V)\text{-Cermets}}$



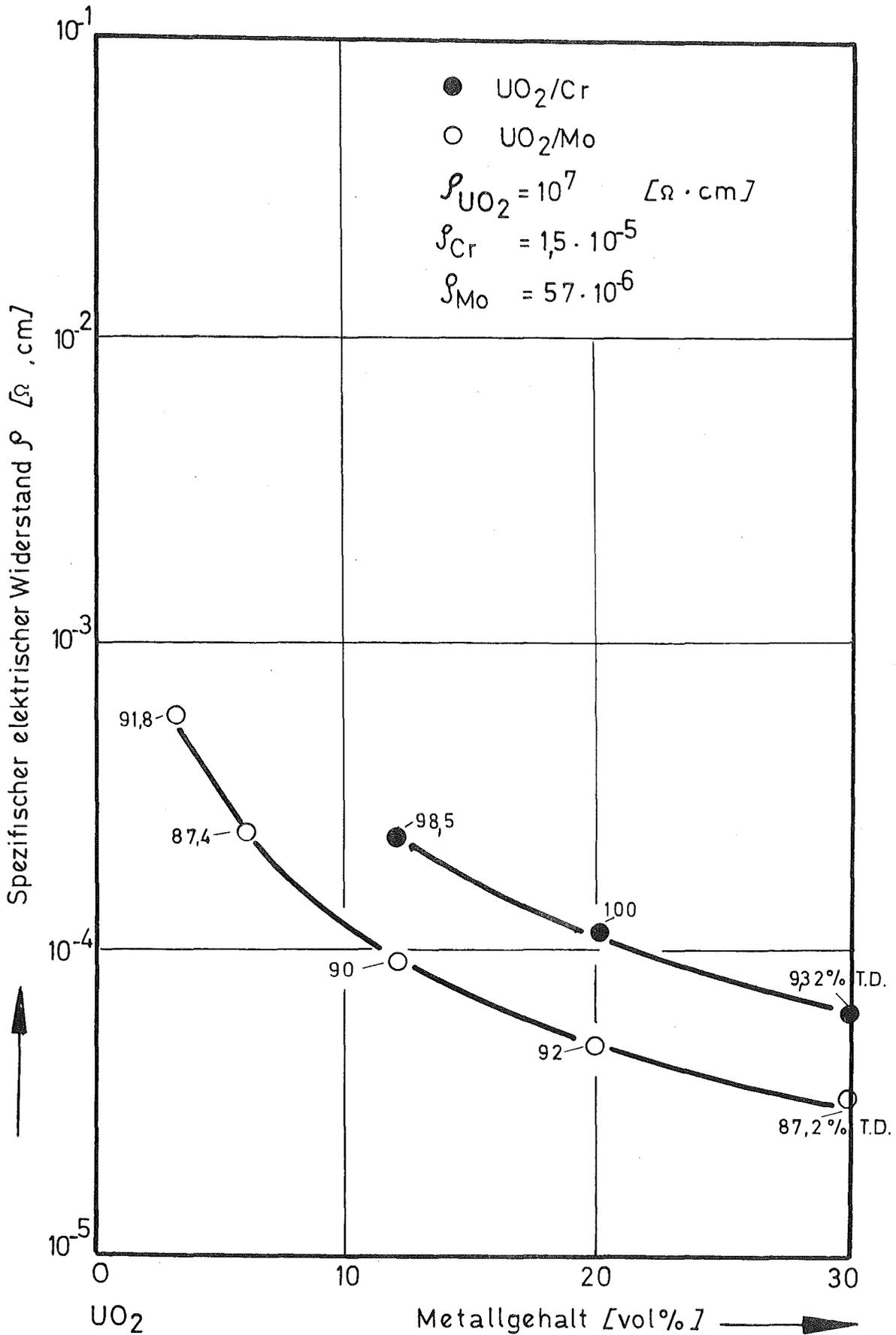


Bild 8: Spezifischer elektrischer Widerstand als Funktion des Metallgehaltes für UO<sub>2</sub>/Mo- und UO<sub>2</sub>/Cr-Cermets

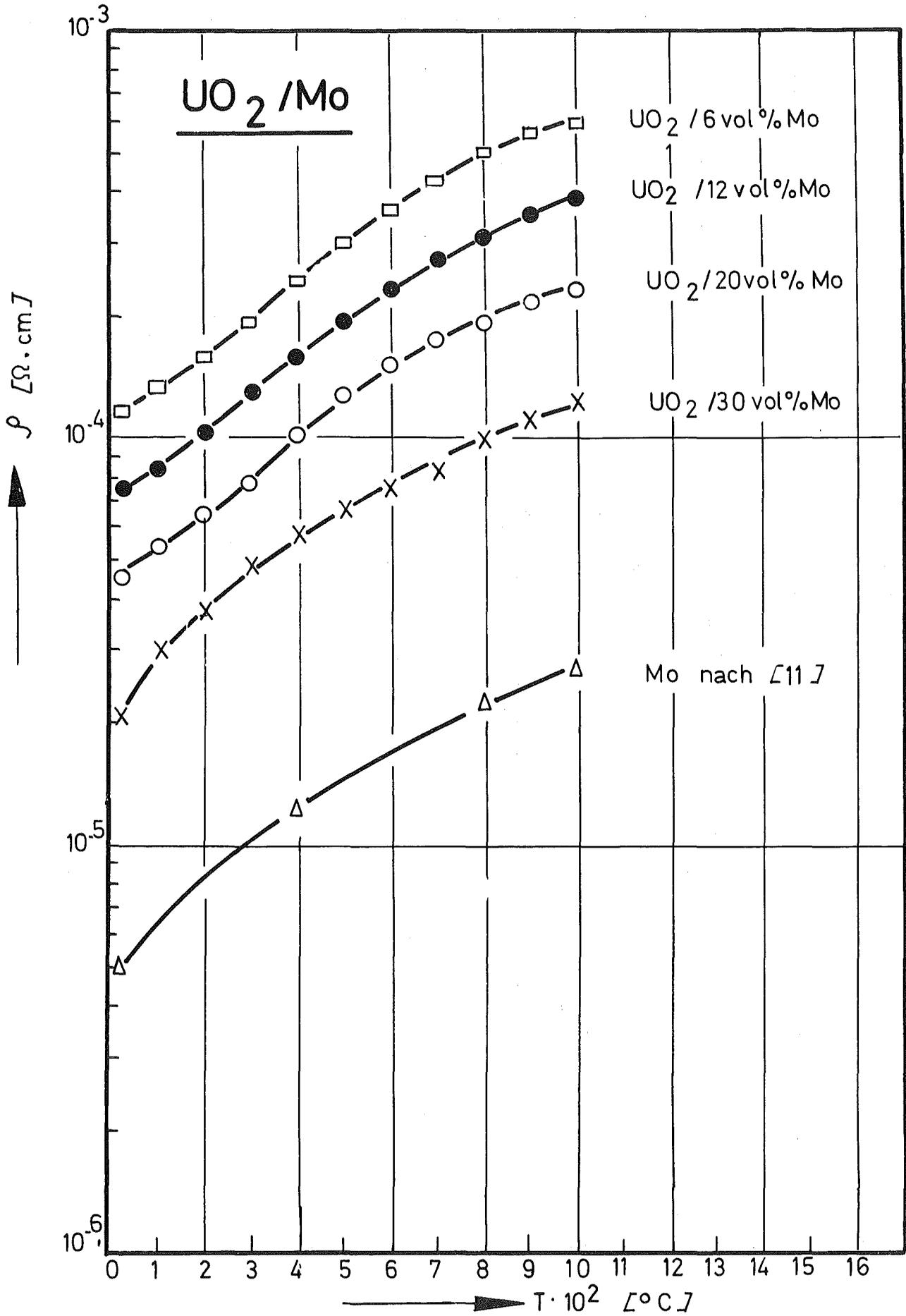


Bild 9: Temperatur-Funktionen des spezifischen elektrischen Widerstandes für idealisierte UO<sub>2</sub>/Mo-Strukturen

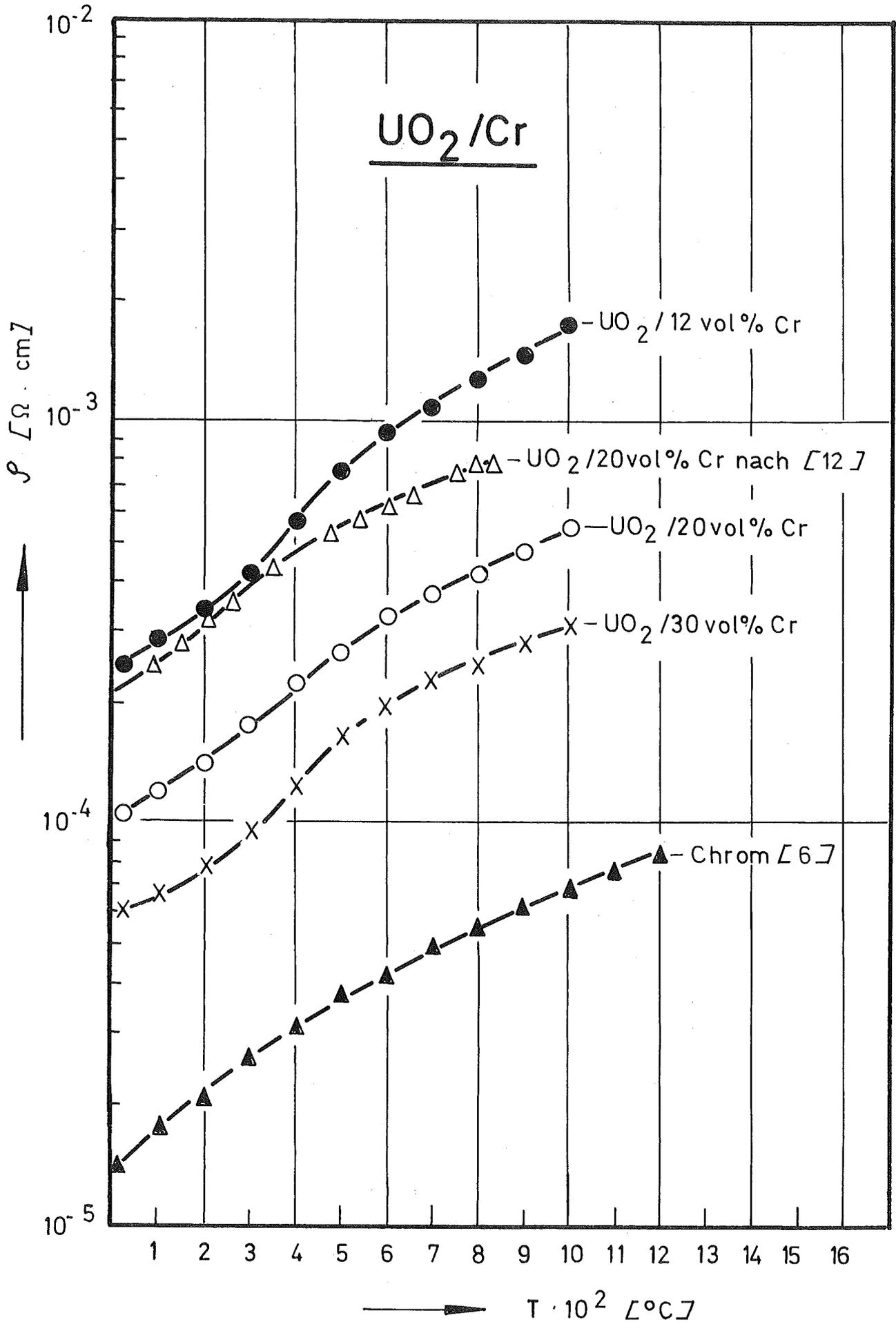


Bild 10: Temperatur-Funktionen des spezifischen elektrischen Widerstandes für idealisierte UO<sub>2</sub>/Cr-Strukturen

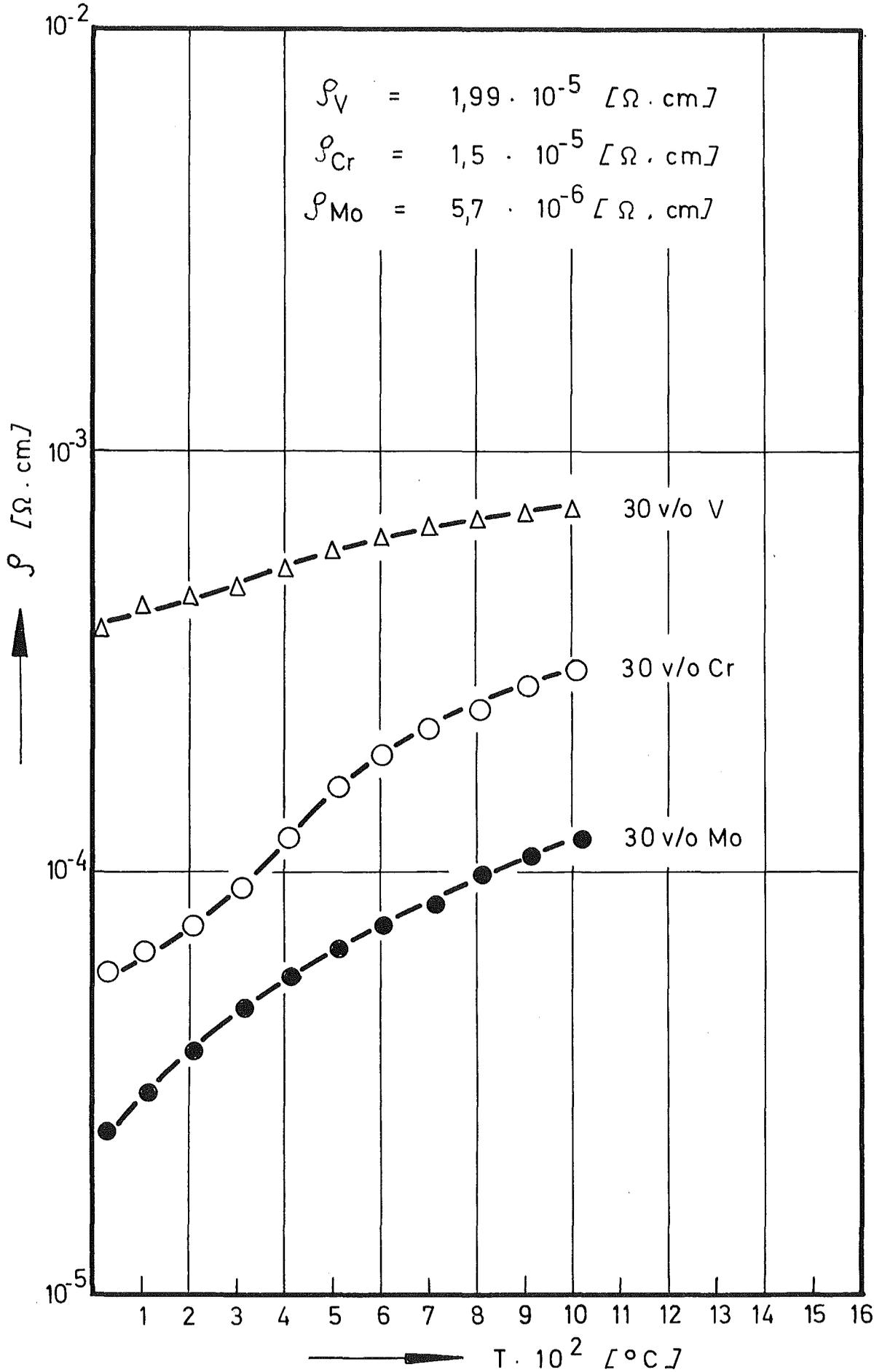


Bild 11: Vergleich des spezifischen elektrischen Widerstandes als Funktion der Temperatur für  $\text{UO}_2/30 \text{ Vol.-% (Mo, Cr, V)-Cermets}$

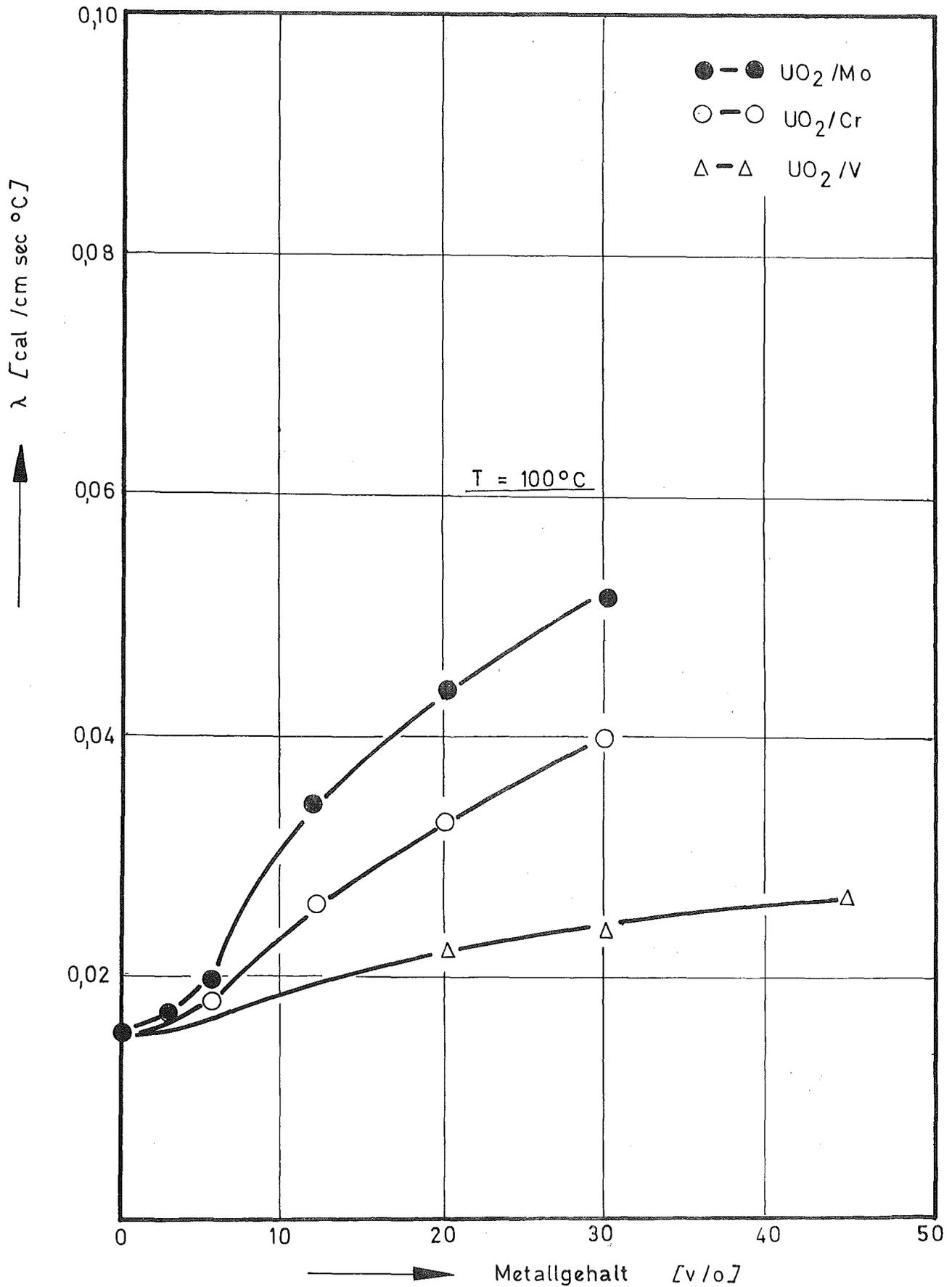


Bild 12: Wärmeleitfähigkeit als Funktion des Metallgehaltes für  $\text{UO}_2/(\text{Mo}, \text{Cr}, \text{V})$ -Cermets

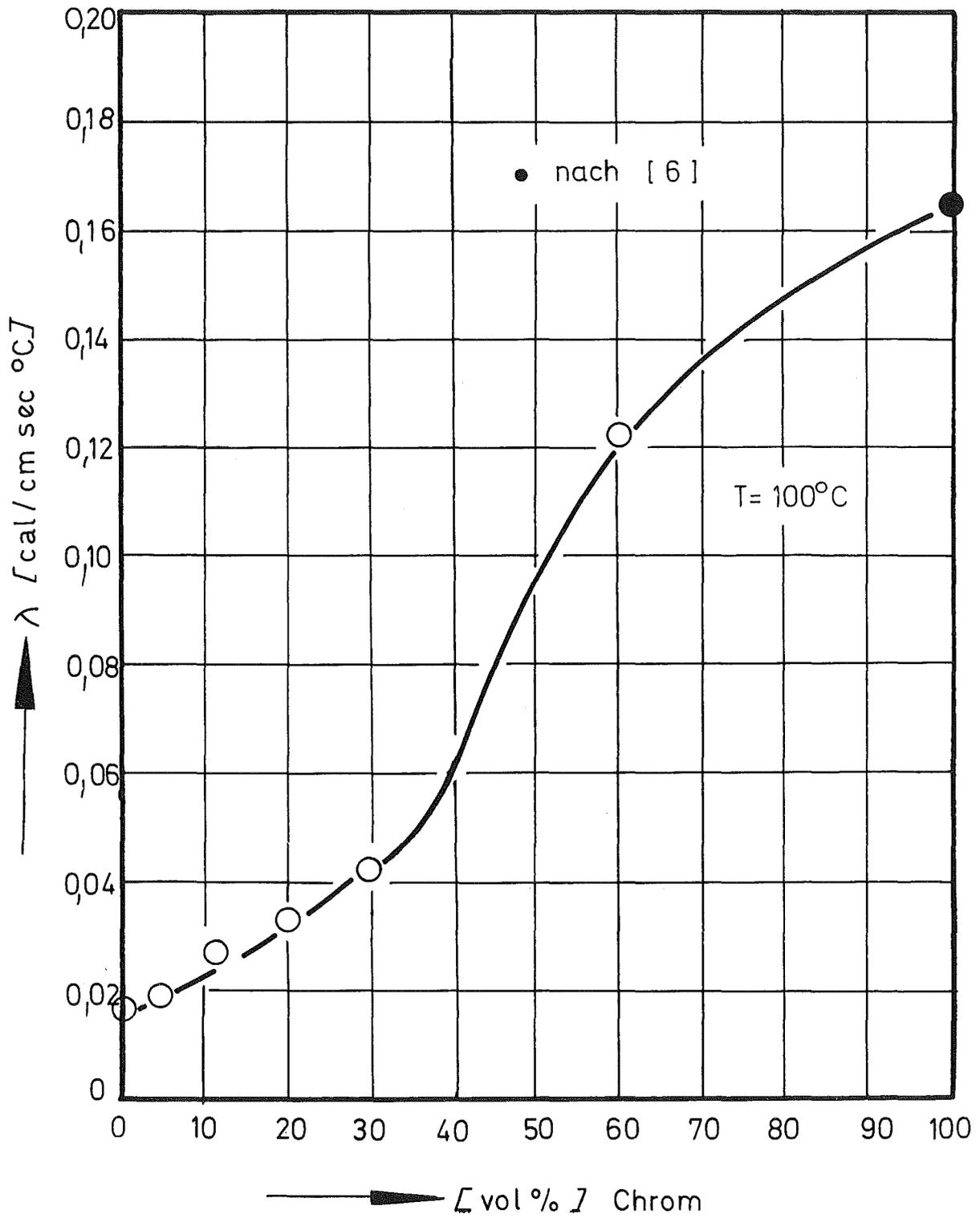


Bild 13: Wärmeleitfähigkeit von  $\text{UO}_2/\text{Cr}$ -Cermets als Funktion des Metallgehaltes bei  $100^\circ\text{C}$

○ U.Heubner

●, ■, ▲, X G.W.Cunningham et. al.

+ own measurements

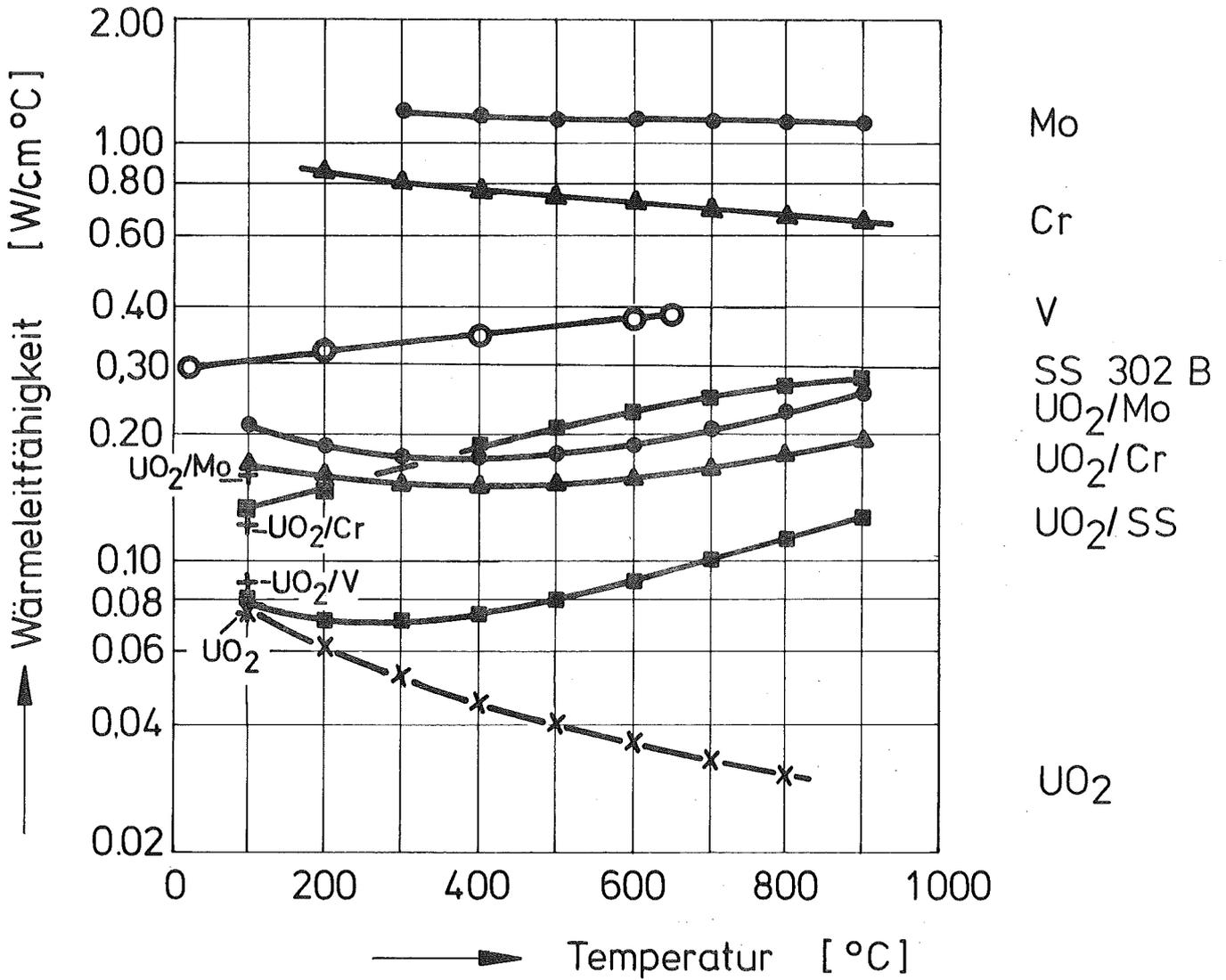


Bild 14: Temperatur-Funktionen der Wärmeleitfähigkeit für UO<sub>2</sub>, einige Matrixmetalle und UO<sub>2</sub>/20 Vol.-% Metall-Cermets

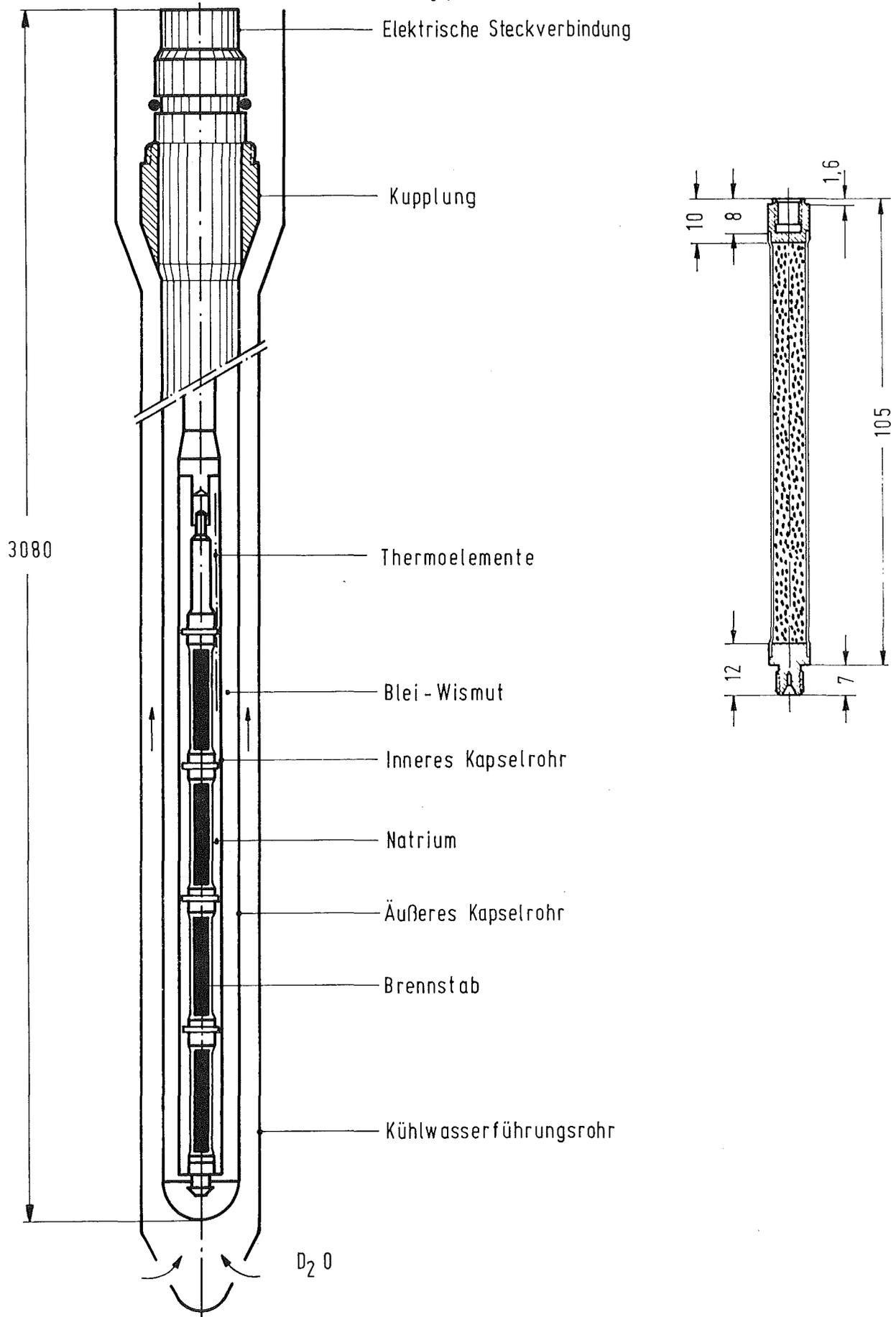


Bild 15 : FR2 - Bestrahlungskapsel Typ 5a und Cermet - Bestrahlungsprobe - schematische Darstellung

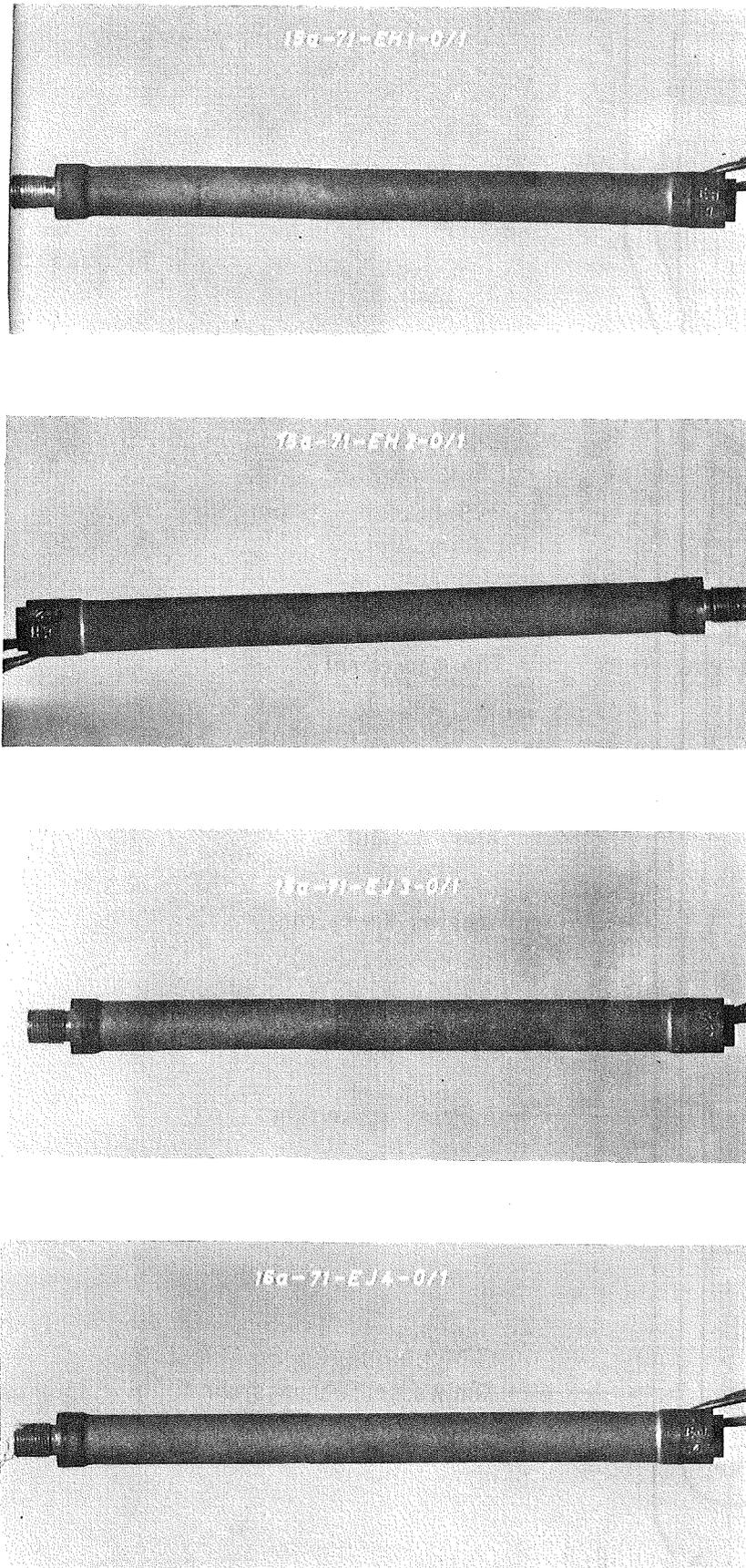


Bild 16: Die  $\text{UO}_2$ -Cr-Proben des Einsatzes E nach Bestrahlung -  
Abbrand: 85 - 95 MWd/kg U

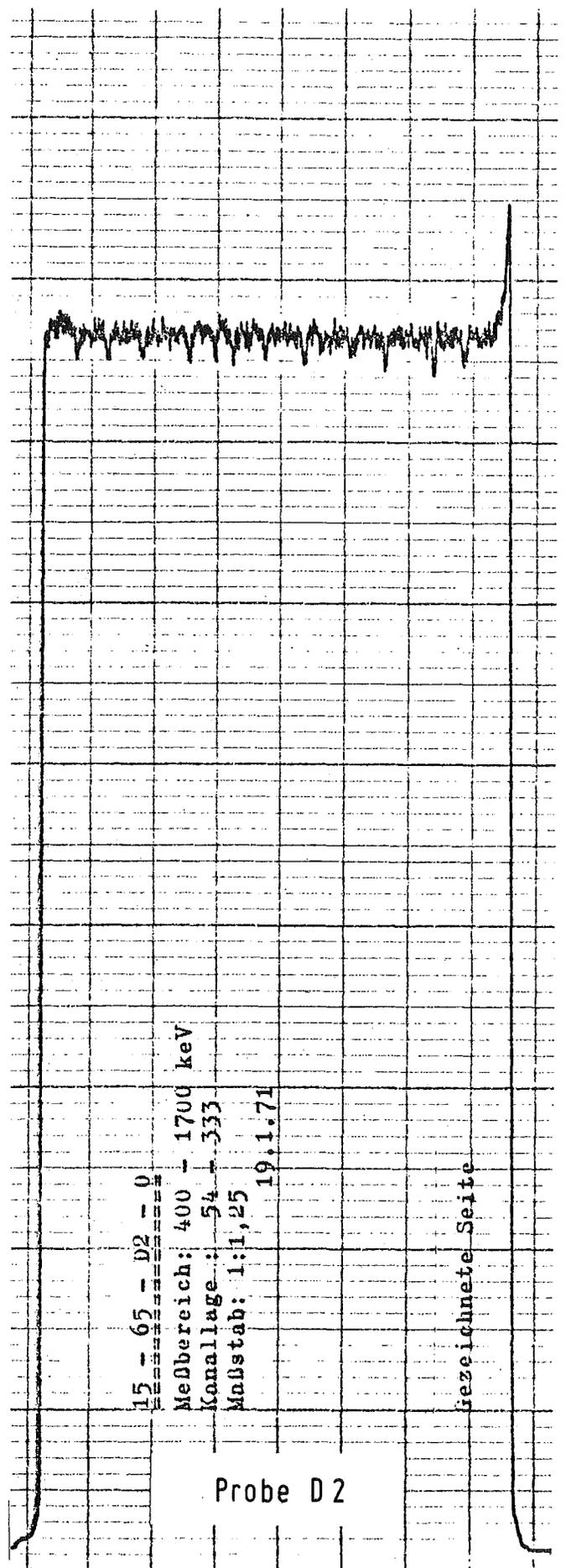
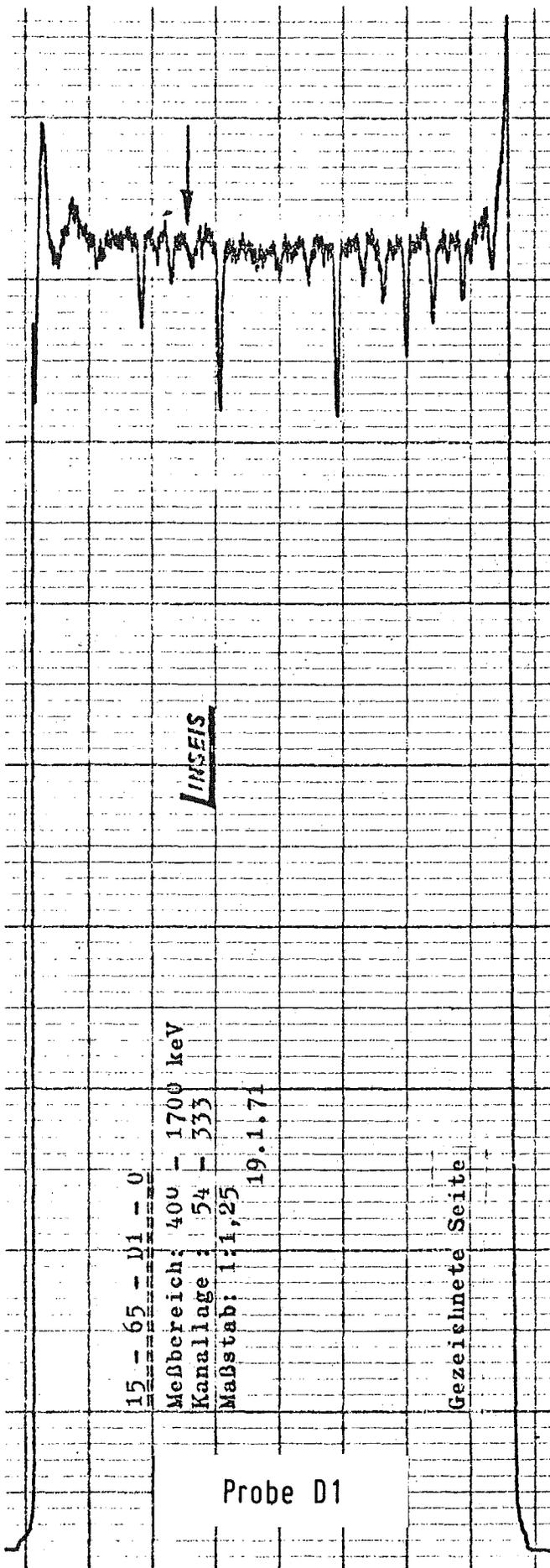


Bild 17: Integrale  $\gamma$ -Profile einer  $UO_2$ -20% Cr-Probe und einer  $UO_2$ -30% Cr-Probe nach ca. 60 MWd/kg U Abbrand

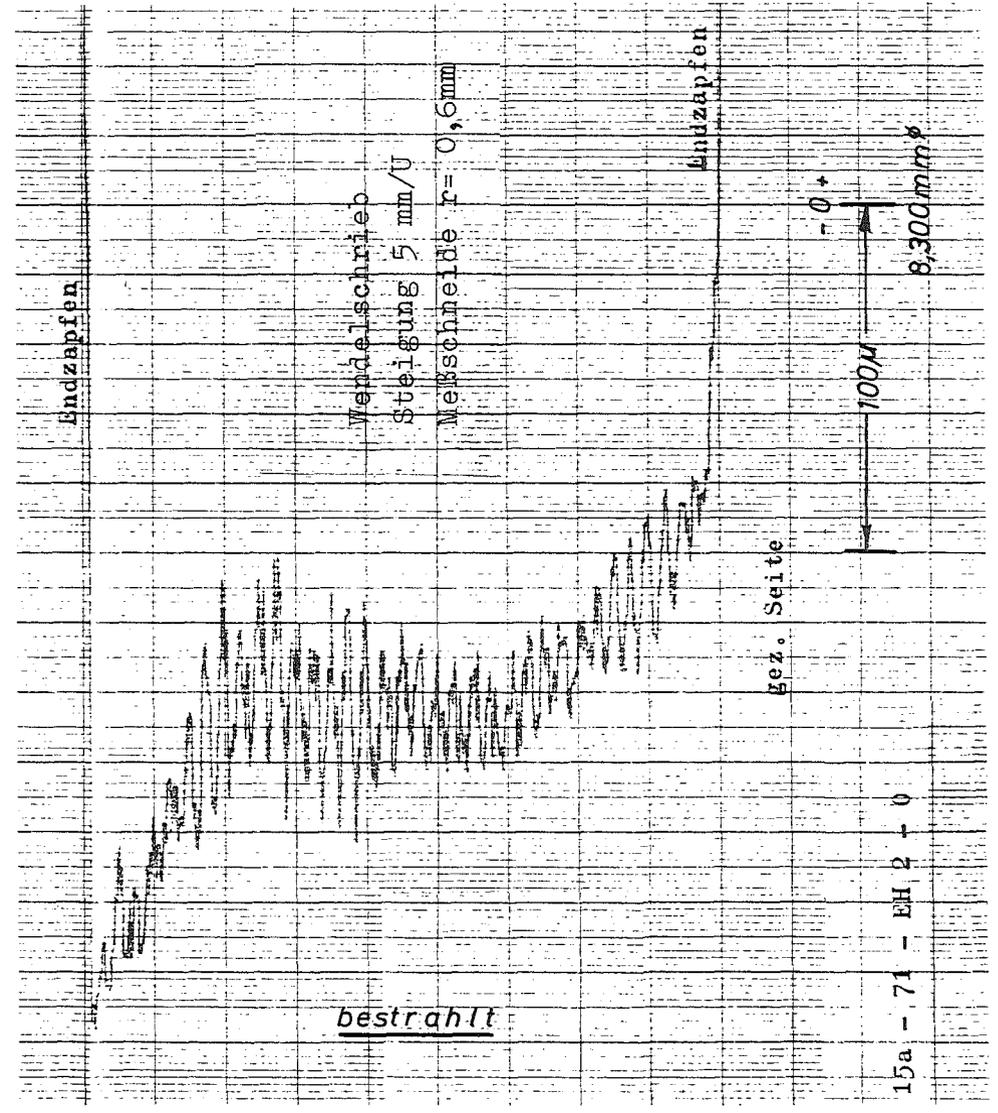
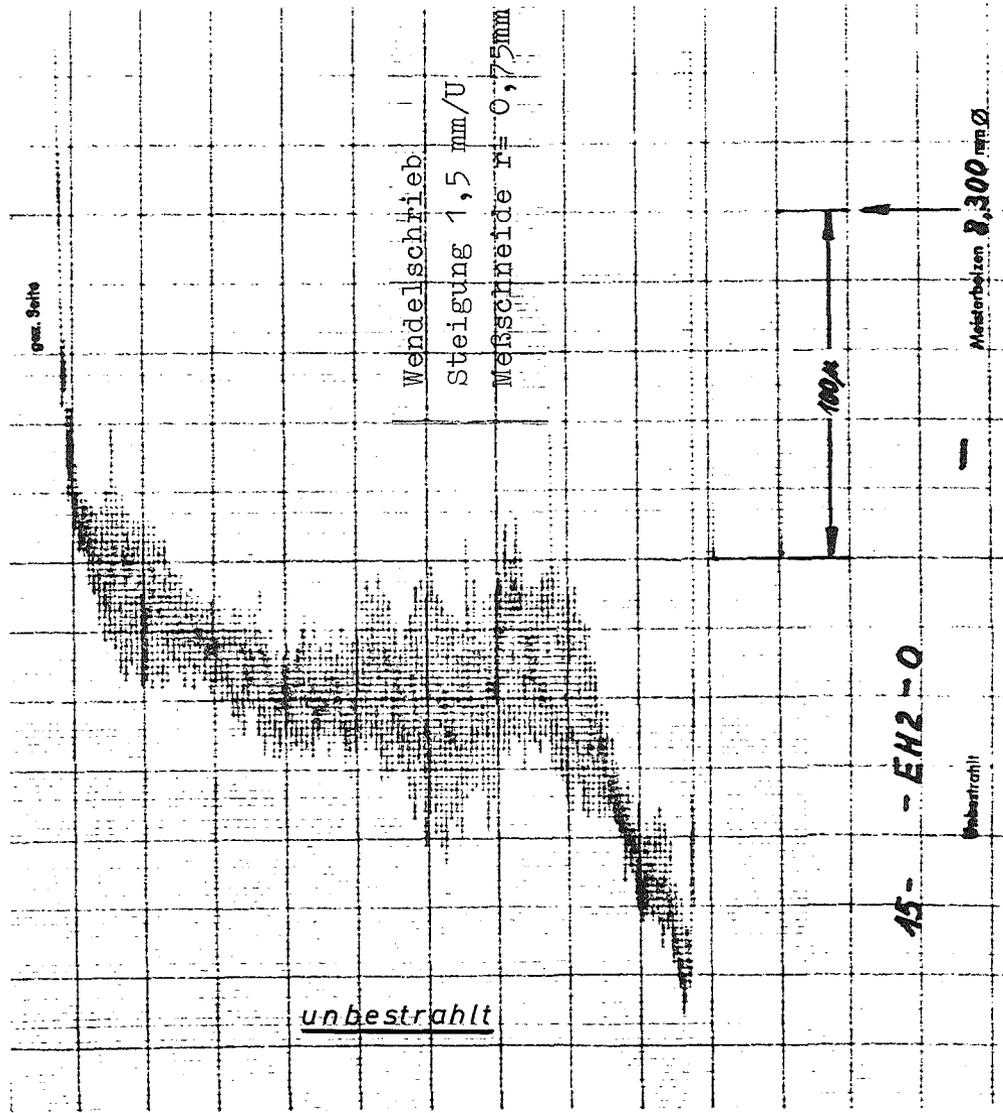
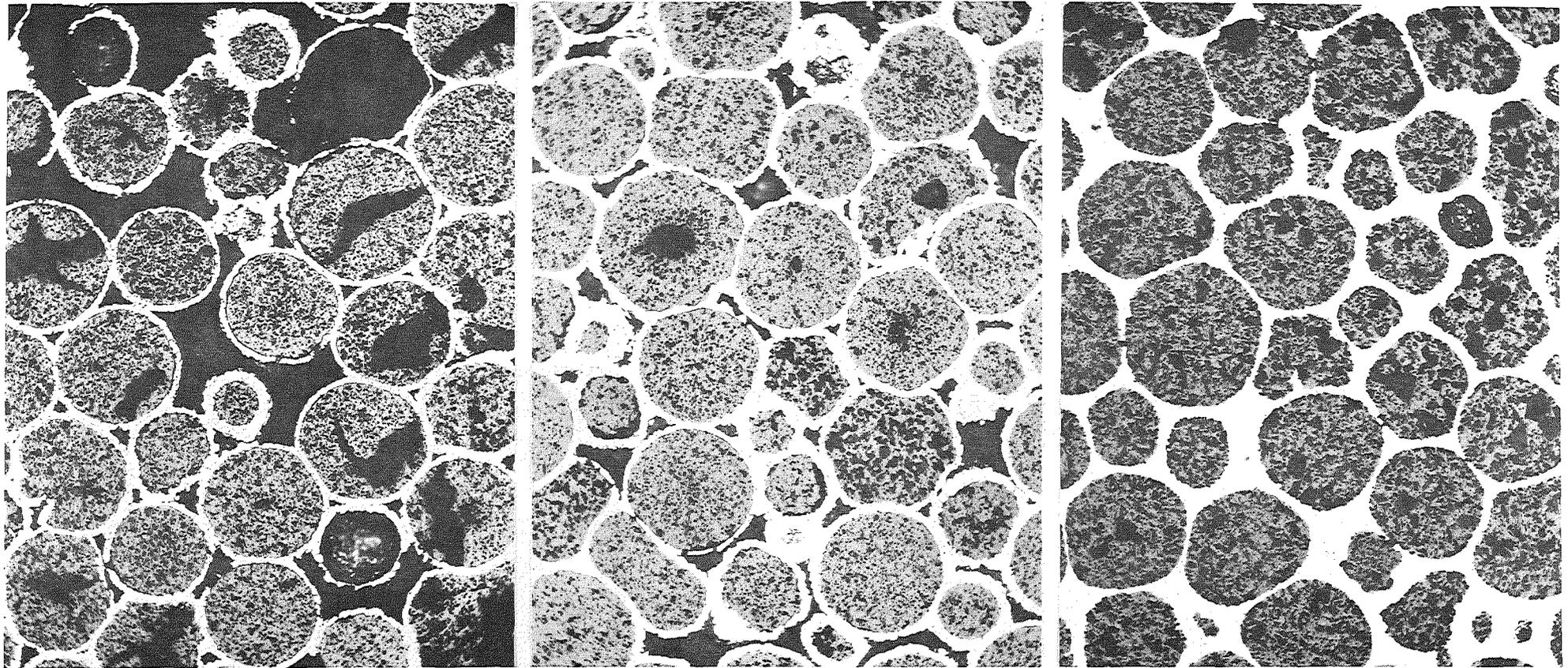


Bild 18: Profilometer-Messkurven (Wendelschriebe) einer  $UO_2$ -Cr-Probe vor und nach Bestrahlung

(Abbrand 93,7 MWd/kg U)



Ausgangsdichte :

75% TD

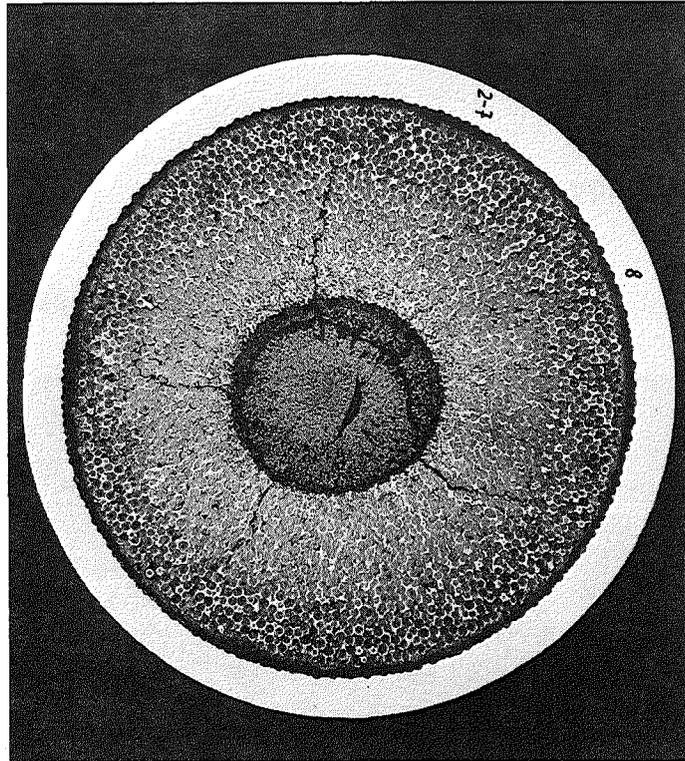
85% TD

100% TD

0,1mm

Abbrand	14 MWd / kg U
mittlere Stableistung	550 W / cm
mittlere Hülltemperatur	650 °C

Bild 19: UO<sub>2</sub>-Mo-Cermets verschiedener Dichte nach Bestrahlung

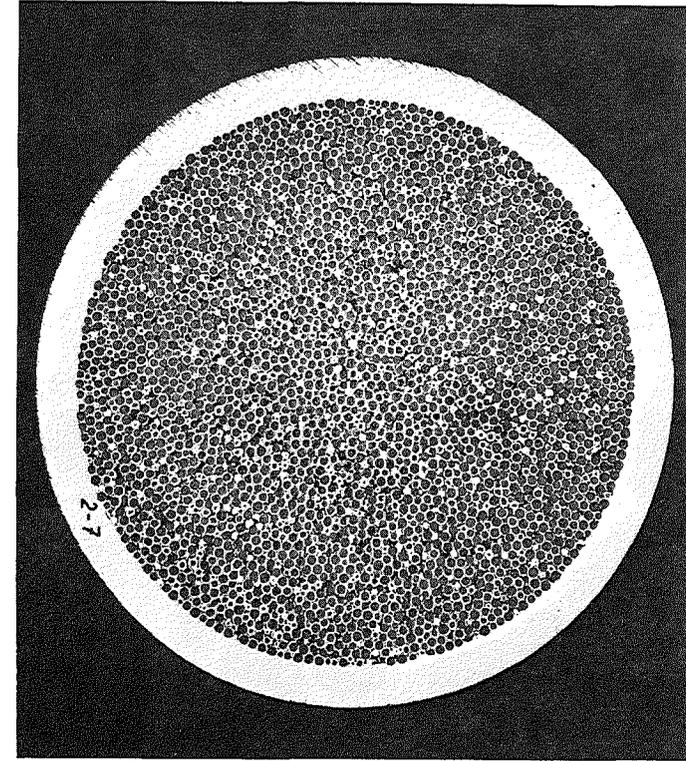


20 % Cr

Abbrand 84,8 MWd / kg U

mittlere Stableistung 535 W/cm

mittlere Hülltemp. 600 °C



— 1mm

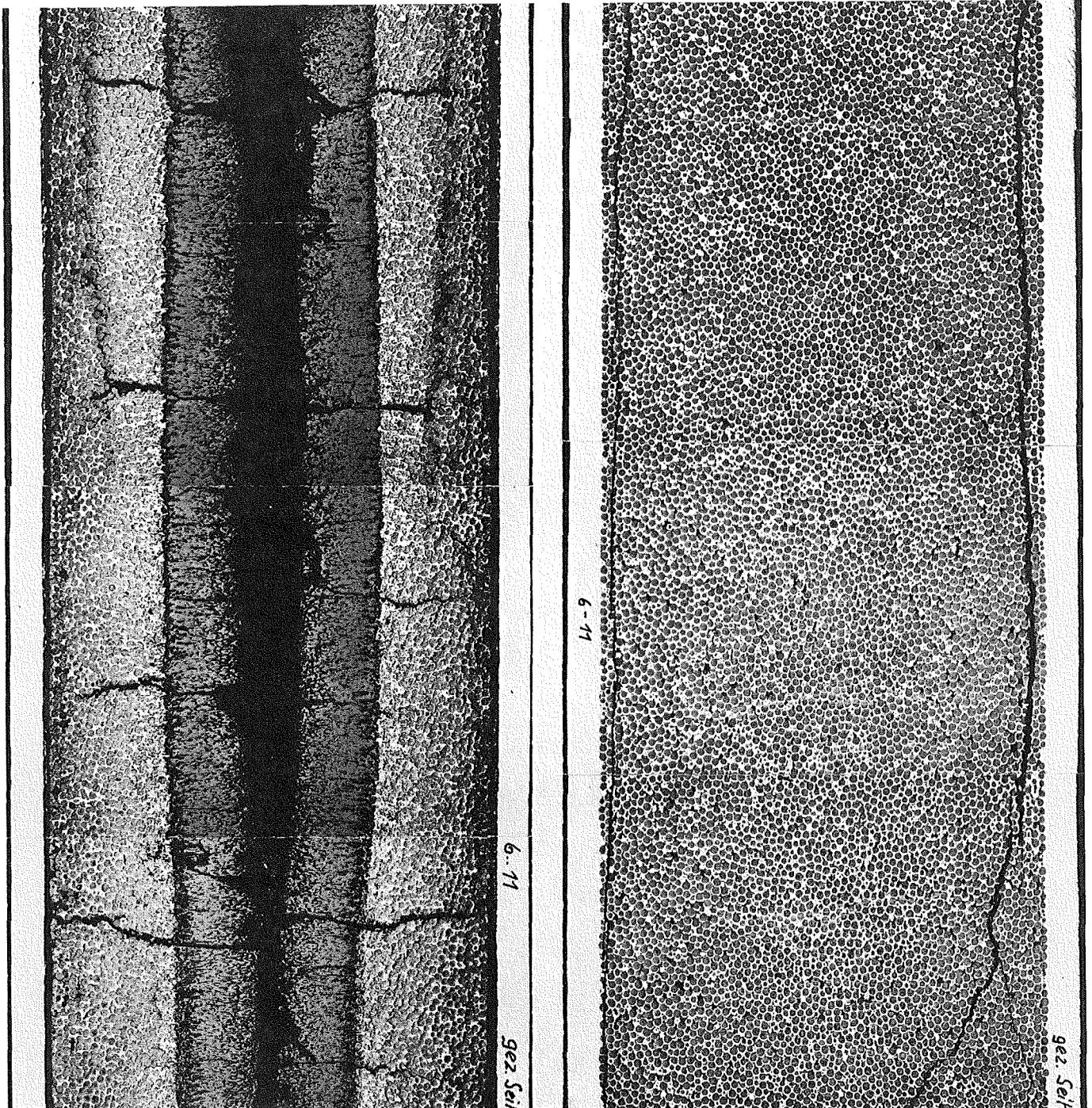
30 % Cr

Abbrand 93,7 MWd / kg U

mittlere Stableistung 510 W/cm

mittlere Hülltemp. 550 °C

Bild 20: UO -Cr-Cermets nach Bestrahlung - Querschliff



— 1 mm

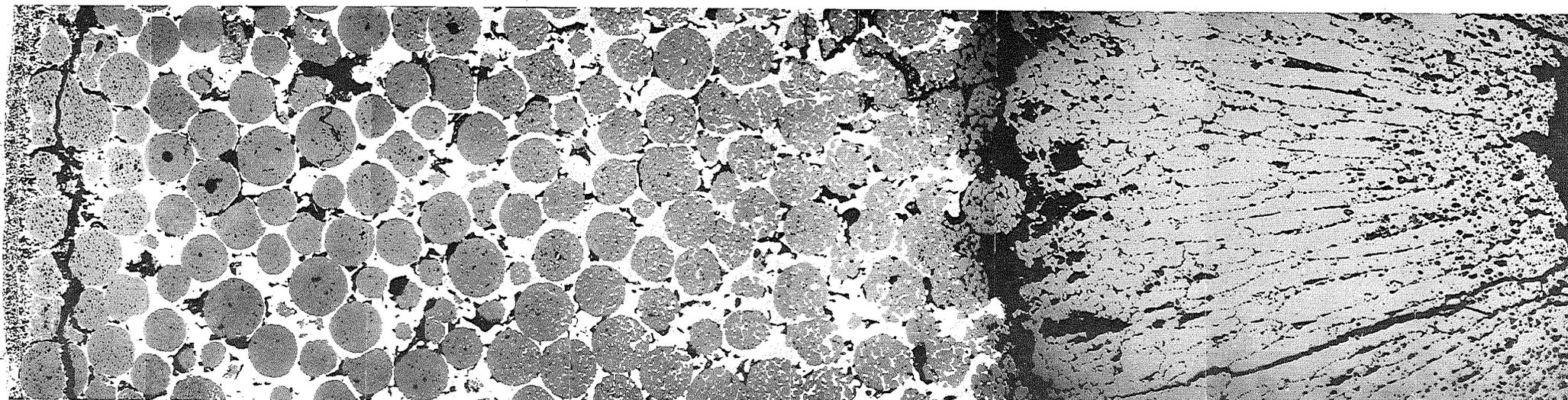
20% Cr

Abbrand 95,6 MWd / kg U  
mittlere Stableistung 600 W / cm  
mittlere Hülltemperatur 565 °C

30% Cr

Abbrand 93,7 MWd / kg U  
mittlere Stableistung 510 W / cm  
mittlere Hülltemperatur 550 °C

Bild 21: UO<sub>2</sub>-Cr-Cermets nach Bestrahlung-Längsschliff



1mm

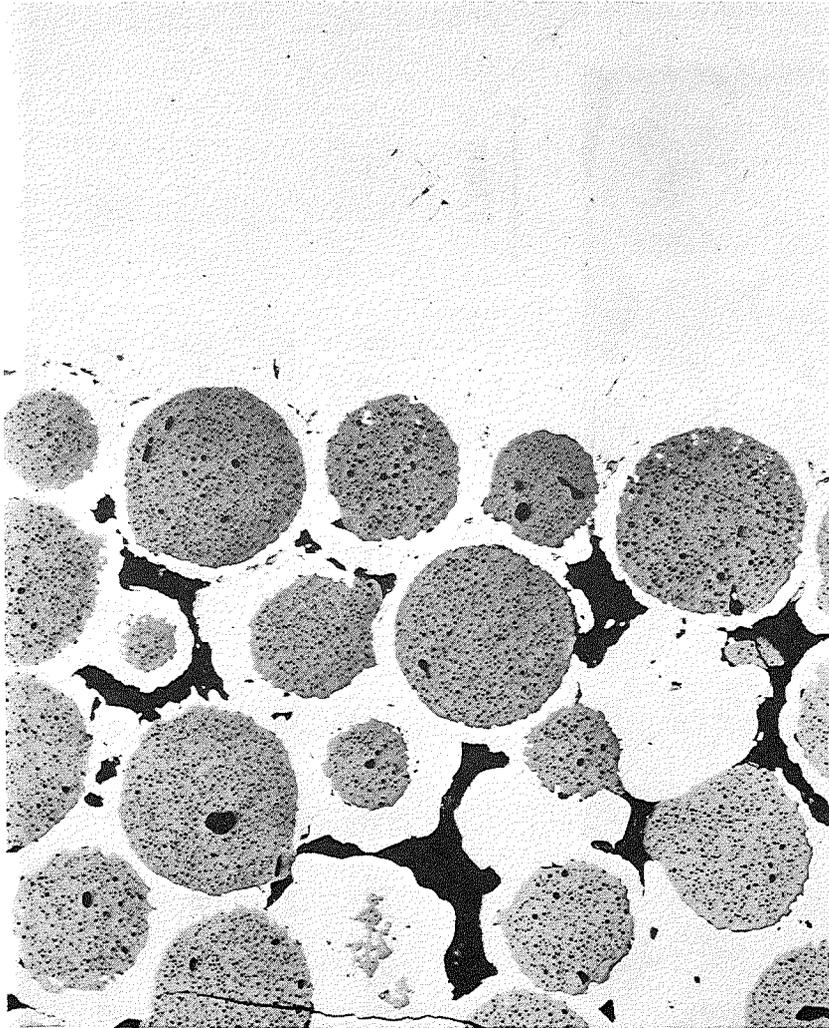
UO<sub>2</sub> - 20 % Cr, Inconel 625 - Hülle

Abbrand 60,2 MWd / kg U

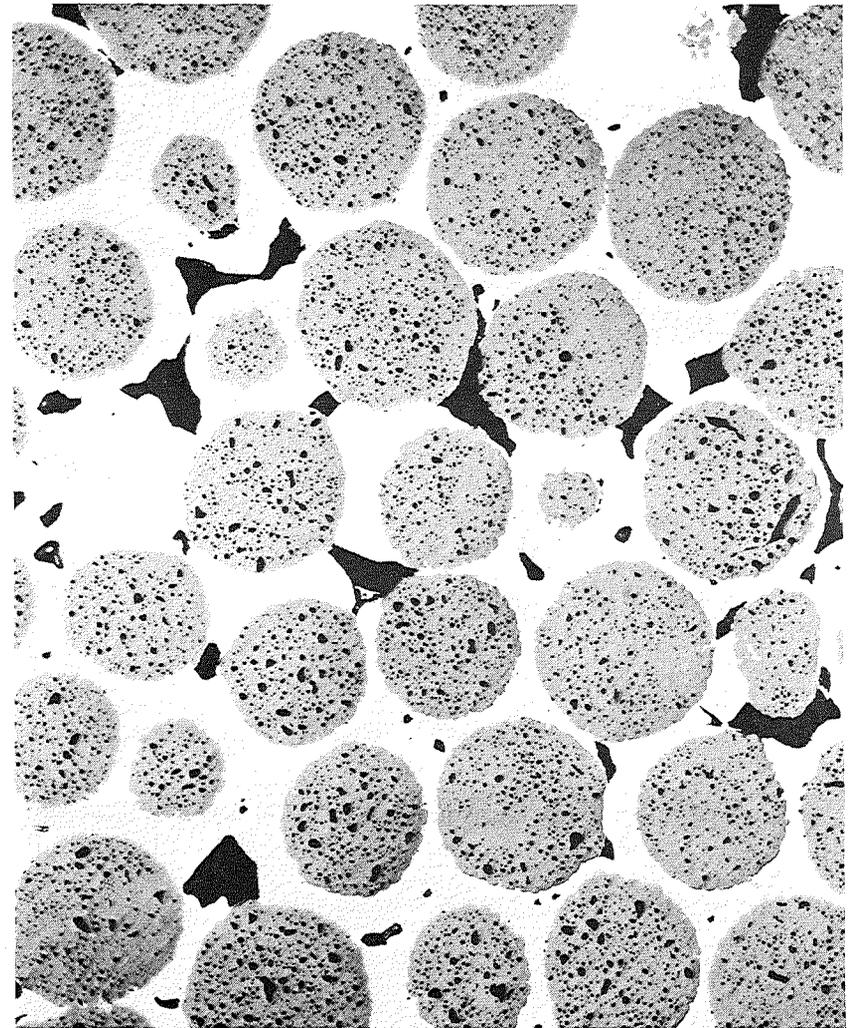
mittlere Stableistung 670 W / cm

mittlere Hülltemperatur 550 °C

Bild 22: Gefügeausbildung der Probe D1 nach Bestrahlung in Abhängigkeit vom Radius



Rand

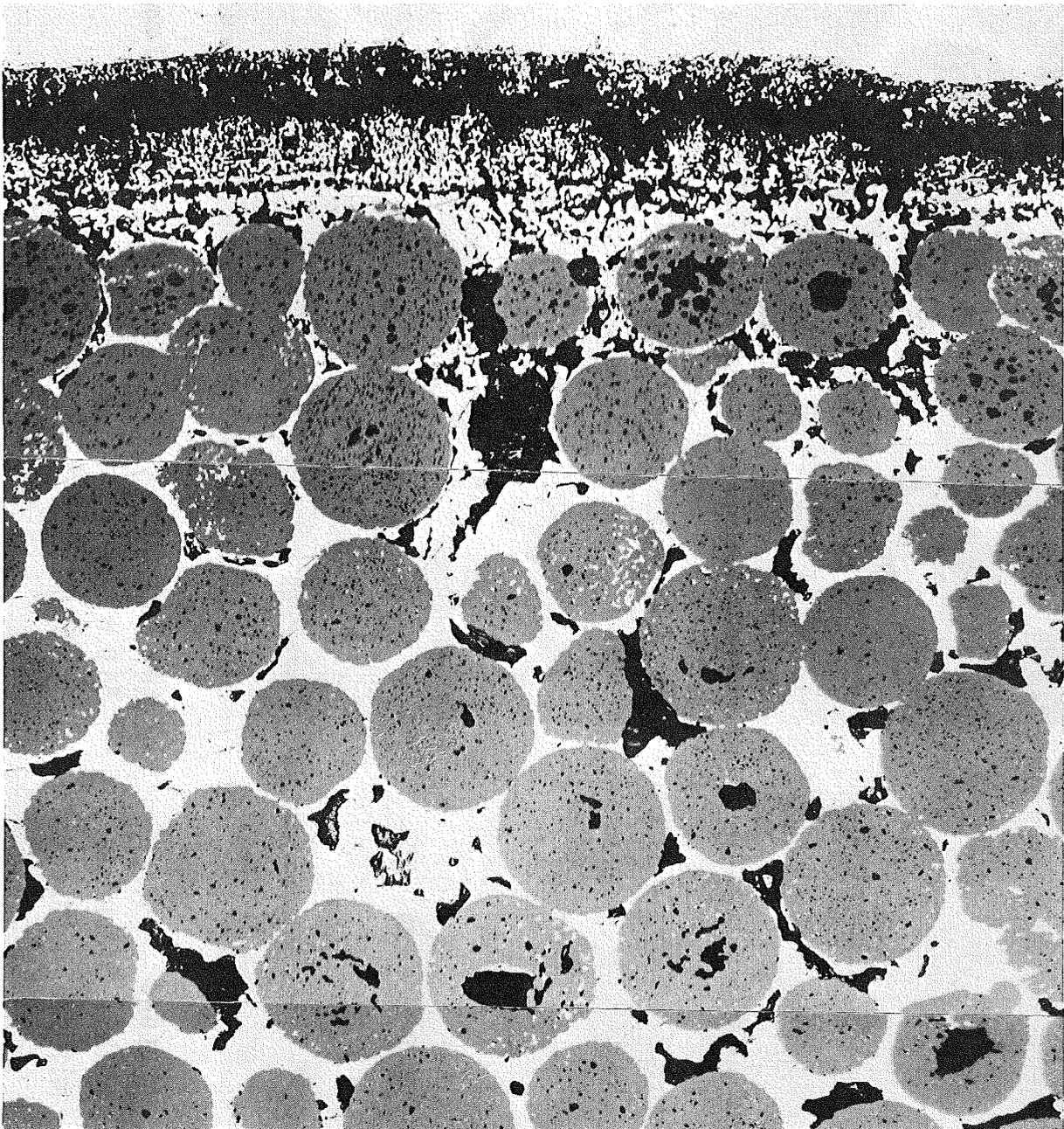


Zentrum

Abbrand 93,7 MWd / kg U  
mittlere Stableistung 510 W / cm  
mittlere Hülltemperatur 550 °C

— 0,1 mm

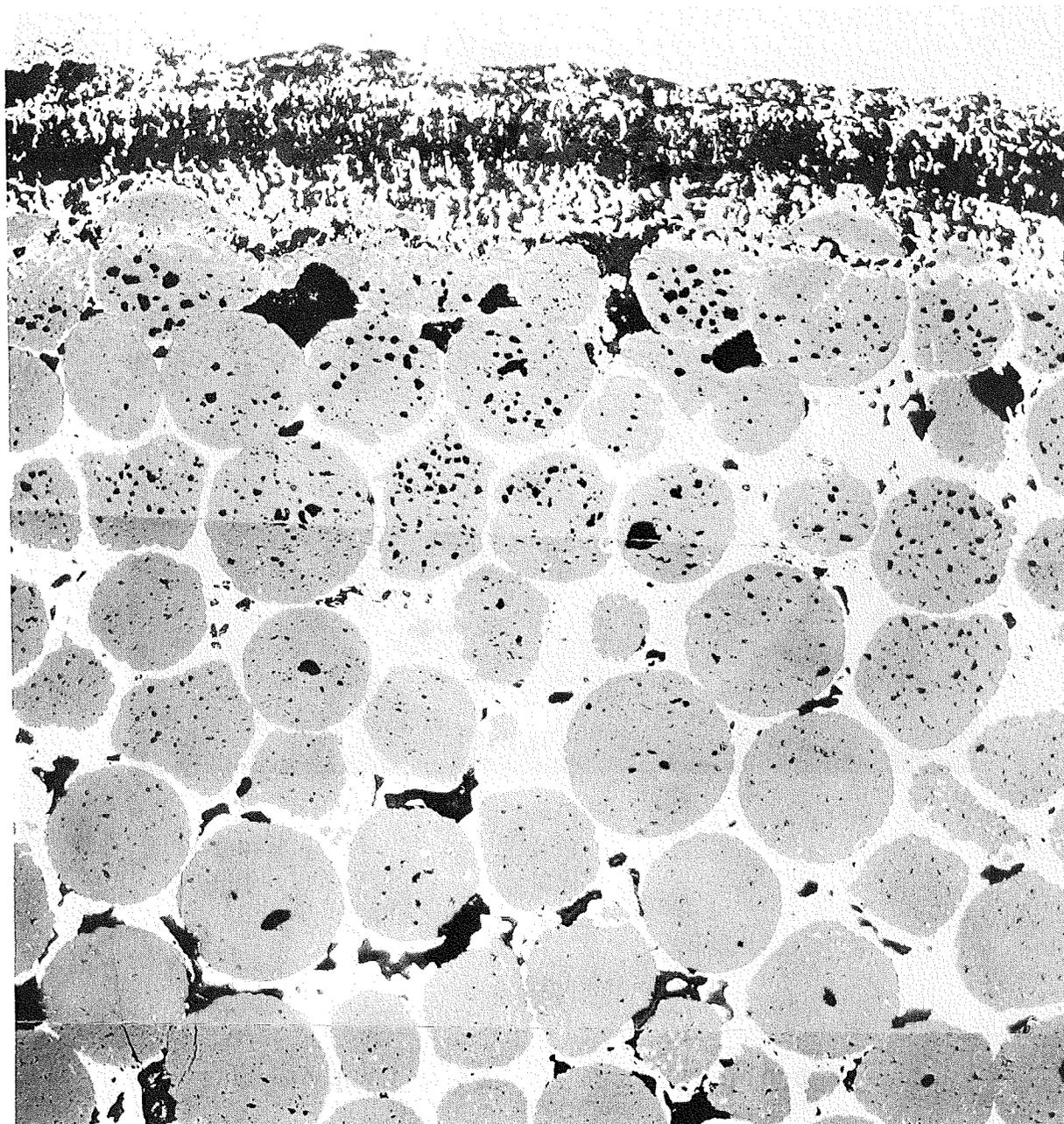
Bild 23: Gefüge der Probe E 2 nach Bestrahlung am Rand und im Zentrum



0,1mm

Abbrand	60,2 MWd / kg U
mittlere Stableistung	560 W / cm
mittl. Hülloberflächentemp.	550 °C
maximale ..	690 °C

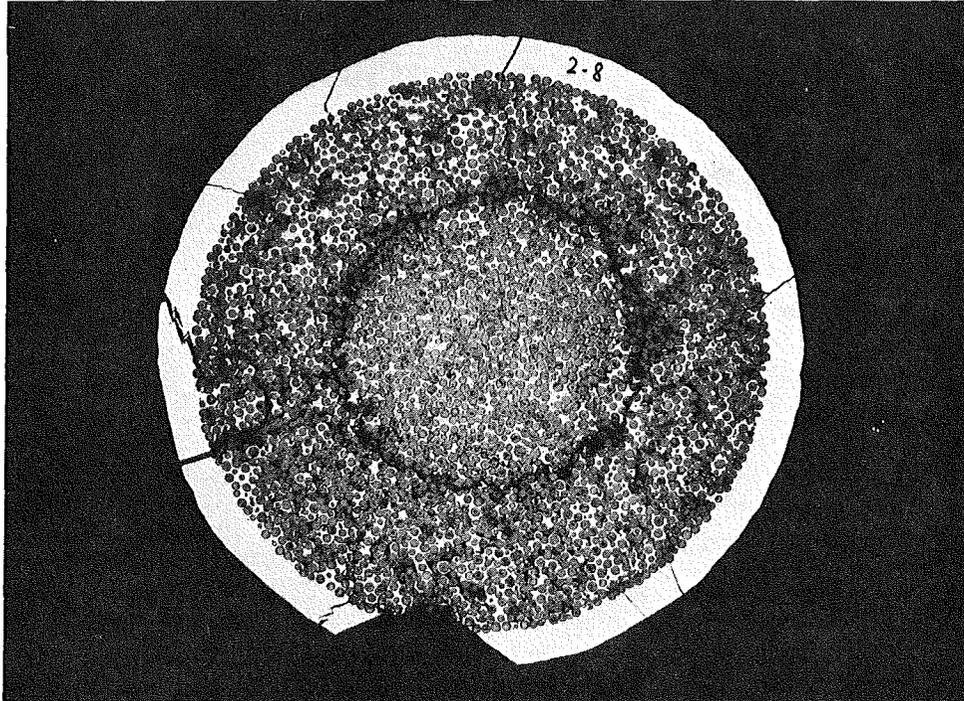
Bild 24: Reaktionszone zwischen einem  $\text{UO}_2$ -20%Cr-Cermet und der Inconel 625-Hülle



0,1 mm

Abbrand	58,2 MWd / kg U
mittlere Stableistung	535 W / cm
mittl. Hülloberflächentemp.	685 °C
maximale	775 °C

Bild 25: Reaktionszone zwischen einem  $\text{UO}_2$ -20% Cr-Cermet und der Hastelloy X-Hülle



1mm

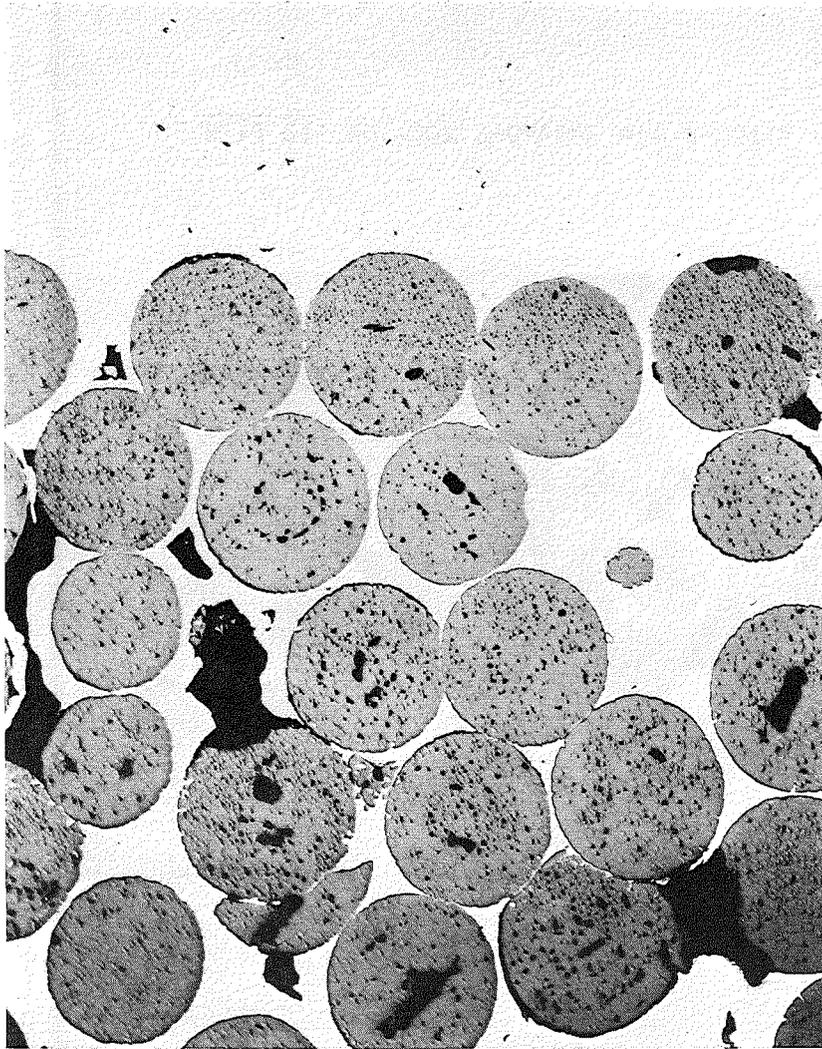
Abbrand	54,4 MWd / kg U
mittlere Stableistung	735 W / cm
mittlere Hülltemperatur	690 °C
maximale Hülltemperatur	750 °C

Bild 26: UO<sub>2</sub>-20% V-Cermet mit V-Hülle nach Bestrahlung

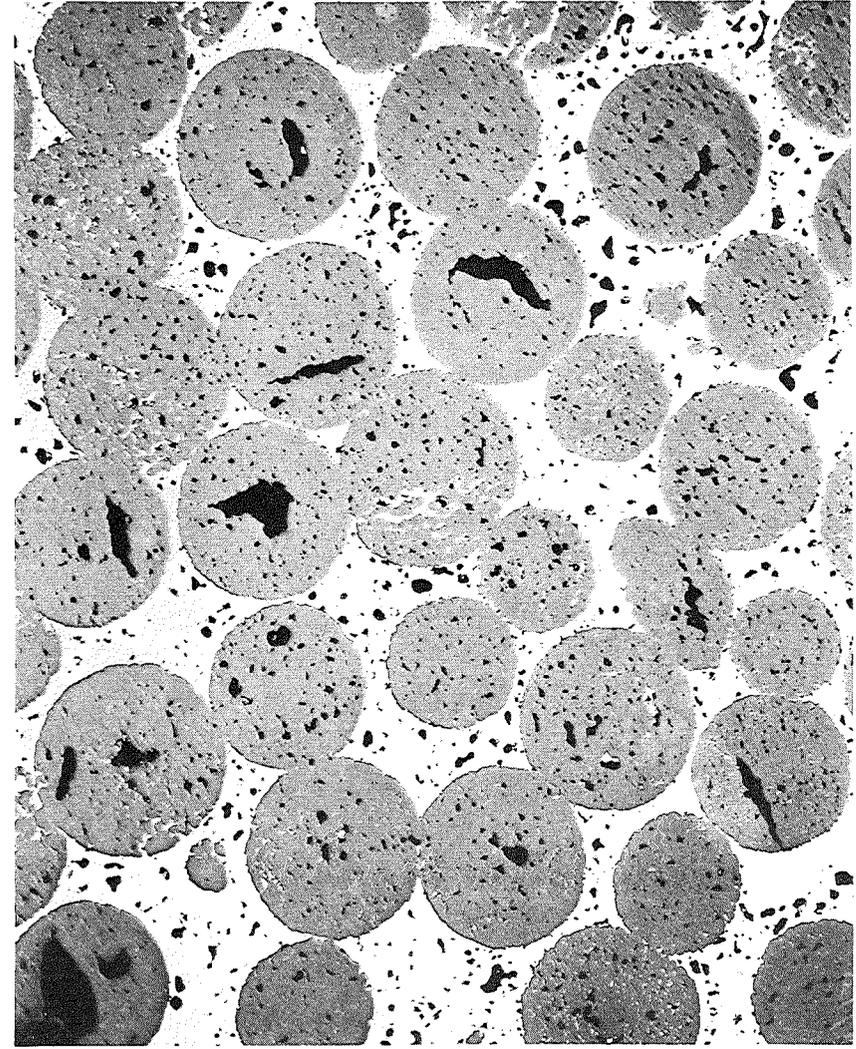


Abbrand 17,5 MWd / kg U  
mittlere Stableistung 440 W/cm  
mittlere Hülltemperatur 540 °C  
maximale Hülltemperatur 600 °C

Bild 27:  $\text{UO}_2$ -20% V-Cermet mit V-Hülle nach Bestrahlung - Oxidausscheidungen in der Hülle



Rand



Zentrum

— 0,1mm

Abbrand 54,4 MWd / kg U  
mittlere Stableistung 735 W/cm  
mittlere Hülltemperatur 690 °C

Bild 28: Gefüge am Rand und im Zentrum einer UO<sub>2</sub>-20% V-Probe nach Bestrahlung