

# KARLSRUHE

Wärz 1974

Projekt Schneller Brüter

4. Vierteljahresbericht 1973



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H.

KARLSRUHE

KFK 1273/4 EUR 4974 d



### KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1273/4 EUR 4974 d

## Projekt Schneller Brüter

4. Vierteljahresbericht 1973

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

### Zusammenfassung

Der Bericht beschreibt Arbeiten des 4. 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:

Brennstabmodelle sind weiterentwickelt und bei der Auswertung von Bestrahlungsversuchen angewandt worden. - An einem Beispiel der Mischoxidherstellung wird eine praktisch verwertbare Sinterformel präsentiert. Für die Produktionskontrolle sind verbesserte Verfahren entwickelt worden, insbesondere zur Bestimmung des stöchiometrischen Verhältnisses Sauerstoff/Metall des Brennstoffes.

Verträglichkeitsuntersuchungen mit simuliertem abgebrannten Oxidbrennstoff haben bisher keine eindeutige Bevorzugung eines bestimmten Hüllrohr-Stahltyps ergeben, der anderen austenitischen Stählen bezüglich des Verträglichkeitsverhaltens deutlich überlegen wäre.

Die Nachuntersuchung zweier in RAPSODIE bestrahlter Brennstabbündel (max. Neutronenfluenz  $8,5 \cdot 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>) ergab bei Stäben mit 1.4988-Stahl erheblich höhere Durchmesservergrößerungen (etwa 6,5%) als bei Stäben mit 1.4970 (etwa 0,5%). Bei diesen zeigte sich lokal ein gewisser Einfluß der Wechselwirkung des Spalt-Cäsiums mit dem Brutstoff auf die Hüllrohraufweitung. - Bei Schlüssen auf das Hüllmaterialschwellen erweist sich der Einfluß der plastischen Verformung auf die Hüllrohraufweitung als wesentlich.

Die Auswertung der Bestrahlungsnachuntersuchungen des Trefoil-Experimentes DFR 304 erbrachte u.a. eine korrigierte Formel für die Spaltgasrückhaltung, eine Messung der Grenze der Kornwachstumszone bzw. der Grenze für die Ausheilung radialer Risse und eine Bestimmung der Leervolumenverteilung im Oxidbrennstoff. Mit der Mikrosonde wurden die U-Pu-Entmischung, Verteilung und Phasenbildung der Spaltprodukte und die Hüllkorrosion untersucht. Mikroskopische Schliffbilduntersuchungen zeigen nennenswerte Eindringtiefen (100-110 µm) der chemischen Reaktion Brennstoff-Hülle oberhalb 550 °C Hüllinnentemperatur. Zur Herstellung karbidischer Brennstoffe im Labormaßstab ist eine UC-PuC-Arbeitslinie in Betrieb genommen worden. Zur Untersuchung des Verträglichkeitsverhaltens Karbidbrennstoff-Hülle sind Glühungen von Flachzerreißproben in Kontakt mit karbidischen Brennstoffen durchgeführt und die mechanischen Eigenschaften nach der Glühung gemessen worden, mit günstigen Ergebnissen. - Von der ersten im FR 2 abgeschlossenen Karbidbestrahlung (FR 2 Loop Versuchsgruppe 4a) liegen Ergebnisse der Mikrosonden-Nachuntersuchung vor.

### Materialuntersuchung und -entwicklung:

Unter den vier verschiedenen Werkstoffzuständen, in denen der Stahl 1.4970 im Programm DFR 397 (max. Neutronenfluenz  $8,3 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$ ) eingesetzt war, zeigt der Zustand lösungsgeglüht+ausgelagert+kaltverformt – wie auch nach der BR 2-Bestrahlung Mol 3B/2 – die besten Nachbestrahlungseigenschaften.

Andererseits werden mechanische Eigenschaften von W.Nr. 1.4981 <u>bei</u> Bestrahlung in Mol-2 Druckröhrchenexperimenten untersucht. Hier zeigen 15% kalt verformte Rohre eine bedeutend stärkere Abnahme der Zeitstandfestigkeit durch die Bestrahlung als die nur schwach kaltverformten Proben. Erste Versuchsergebnisse von Mol 3B/5 und Mol 5B/6 stehen bezüglich der Zeitstandfestigkeit in Einklang mit den Ergebnissen von Mol 2.

In dem Experiment DFR 397 waren neben dem Stahl 1.4970 auch 1.4981 und 1.4988 eingesetzt. Bei Temperaturen über 600 <sup>o</sup>C sind Volumenzunahmen bis zu mehreren Prozent aufgetreten, bei deutlicher Temperaturabhängigkeit der Poren- bzw. Bläschenbildung. Einem grundlegenden Verständnis der Schwell- und Kriechvorgänge unter Bestrahlung dienen die fortgesetzten Simulationsbestrahlungen mit Ionen im VEC Harwell.

### Korrosionsversuche und Kühlmittelanalysen:

Hüllrohrinnendruckproben sind im Natriumhochtemperaturprüfstand bisher 4200 h exponiert gewesen (Ziel: bis zu 10 000 h). Die Versuche lieferten für die Abhängigkeit der Korrosionsgeschwindigkeit von dem Sauerstoffgehalt des Natriums Werte, die etwa den Literaturangaben entsprechen. Bei 700 <sup>°</sup>C exponierte Proben wiesen ferritisierte Oberflächen auf. Auch Kriechgeschwindigkeiten sind gemessen worden.

and the second second second second second

- 2 -

Das Korrosions-, Massetransport- und Verschleißverhalten von Pflasterwerkstoffen in Natrium wird untersucht; Zwischenergebnisse liegen vor.

Die Korrosionsversuche in Heißdampf wurden abgeschlossen, diejenigen in Helium fortgesetzt.

### Arbeiten zum Brennstoffzyklus:

Das Auflöseverhalten zerhackter Brennstäbe (mittl. Abbrand bis zu 6.1%) ist in der Anlage MILLI untersucht worden. Der Brüterbrennstoff mit  $15\%Pu0_2/85\%U0_2$ war in siedender Salpetersäure von Konzentrationen über 7.5 M HNO<sub>3</sub> schnell und gut lösbar.

Abbrandbestimmungen an FR2 Brennstoff (Kapselversuchsgruppe 4b) führten zu merklich abweichenden Ergebnissen zwischen den über die Pu-Abreicherung und den über Ce-144 bzw. Nd-148 gefundenen Werten. Dies wird auf erhebliche axiale Wanderung der schweren Atome zurückgeführt.

### Physik:

Mit Plattenspaltkammern wurden in SNEAK 9B Spektralindices höherer Pu-Isotope gemessen. Im Hinblick auf spätere Anwendung werden geeignete Verfahren zur Computerauswertung von Spaltspurdetektormessungen entwickelt.

Es werden Aufbau und Zielsetzung der Anordnungen SNEAK-9C beschrieben, insbesondere im Hinblick auf die Festlegung der SNR-300 Brennstoffanreicherung. Kerndatenmessungen am van-de-Graaff-Generator galten vor allem Resonanzen mittelschwerer Kerne, am Zyklotron Spaltquerschnitten von U-235 und U-238 sowie  $(n,\gamma)$ -Querschnitten von Cr und Ni.

2-dimensionale Neutronenverteilungen in Transportnäherung können nunmehr mit akzeptablem Aufwand mit dem Programm SNOW berechnet werden.

### Sicherheit und Instrumentierung:

Nach Ermittlung der Temperaturverteilungen hinter undurchlässigen partiellen Kühlkanalblockaden in einem SNR-Brennelement wurde auch der durch die Blockaden verursachte Druckverlust gemessen. Hieraus wurde zur Beurteilung der Detektierbarkeit die entsprechende Durchsatzreduktion berechnet. Bei den abgeschlossenen Versuchen zum Brennelementverhalten unter Siedeverzug (BEVUS) sind an den Brennelementkästen keine Verformungen infolge Beanspruchung durch Innendruck (Kondensations- und Siededruckstöße) entstanden. Es wurden Siedeverzüge bis zu 70 <sup>O</sup>C erreicht. Zur Blasendynamik hat sich eine Reihe von qualitativen Aussagen ergeben.

Das Programm BRENDY zur Berechnung von Brennstoff-Natrium-Wechselwirkungen (BNR) steht nunmehr zur Verfügung. In einer weiteren BNR-Programmentwicklung wird u.a. die zeitliche Variabilität der reagierenden Massen berücksichtigt. Wie sich zeigt, hängen Druckmaximum und spezifische Arbeit empfindlich von dem angenommenen Zeitgesetz ab. BNR-Versuche sind in Vorbereitung.

Das tankinterne Notkühlkonzept für den SNR 300 und das hierfür erstellte Rechenprogramm sind in einem mit Wasser im Maßstab 1:3 durchgeführten Modellversuch überprüft und qualitativ bestätigt worden.

Für gasgekühlte Schnellbrüter werden Gesichtspunkte zum Entwurf eines Core-Catchers diskutiert.

### Technologie:

Im Hinblick auf das Betriebsverhalten von Wälzlagern wurden Kugellager aus verschiedenen Werkstoffen auf Reibung und Verschleiß in Natrium erprobt. Hierbei zeigte sich Wolframcarbid den untersuchten Werkzeugstählen überlegen. Verschleiß- und Verschweißversuche richteten sich auch auf das Gleitverhalten von Nickelbasislegierungen, die als Pflasterwerkstoffe für SNR-Brennelementkästen in Frage kommen.

Die Kühlmittelquervermischung in Na-durchströmten Brennelementen hängt nach Untersuchungen am 61-Stab-Bündel mit Röhrchenabstandshaltern praktisch nicht von der Entfernung Abstandshalter-Abstandshalter und Abstandshalter-Meßgitter ab.

Dieser Bericht wurde zusammengestellt von R. Hüper.

### Abstract

This report describes work performed in the fourth quarter of 1973 within the framework of the Fast Breeder Project (PSB) at Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe or on its behalf.

Some of the most important results achieved in specific areas are these:

### Fuel Pin Development:

Fuel pin models have been developed further and applied in the evaluation of in-pile experiments.

A practically applicable sintering formula is presented on the basis of an example of mixed oxide fabrication. Improved methods of production control have been developed especially for determination of the stoichiometric ratio of oxygen and metal in the fuel.

Compatibility studies with simulated spent oxide fuel so far have not indicated any clear-cut preference for a specific type of cladding steel clearly superior to other austenitic steel grades in terms of its compatibility behavior.

The post-irradiation examination of two fuel pin bundles irradiated in RAPSODIE (max. neutron fluence  $8.5 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>) indicated considerably greater increases in diameter (approximately 6.5%) in pins made of 1.4988 steel than in pins of 1.4960 (approximately 0.5%). In the latter pins, a certain local influence of the interaction between fission cesium and the fertile material upon the cladding tube expansion was determined. If conclusions are drawn with respect to swelling of cladding materials, the influence of plastic yielding upon cladding tube expansion turns out to be important.

Evaluation of the post-irradiation examinations of the DFR 304 Trefoil experiment inter alia resulted in a corrected formula for fission gas retention, a measurement of the limit of the grain growth zone and the limit of radial crack recovery, respectively, and a determination of the distribution of voids in oxide fuel. The microprobe was used to study U-Pu demixing, distribution and phase formation of fission products, and cladding corrosion. Micrograph studies indicate sizable depths of penetration (100-110  $\mu$ ) of the chemical reaction between the fuel and the cladding above 550 °C of internal cladding temperature. A UC-PuC line for fabrication of carbide fuel on a laboratory scale has been commissioned. Annealing of flat tensile test specimens in contact with carbide fuels was performed to study the compatibility behavior of the carbide fuel with the cladding; the mechanical properties after annealing were measured with favorable results. Results of the microprobe post-irradiation examination of the first carbide irradiation concluded in the FR2 are available (FR2 Loop test group 4a).

### Materials Studies and Materials Development:

Of the four different materials conditions to which 1.4970 steel had been exposed in the DFR 397 program (max. neutron fluence  $8.3 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>), the condition of solution tempered+age hardened+cold worked exhibits the best post-irradiation properties, as had been the case already after the Mol 3B/2 irradiation in BR2.

On the other hand, mechanical properties of the material No. 1.4981 were studied <u>during</u> irradiation in Mol-2 pressure tube experiments. 15% cold worked tubes exhibited a much stronger decrease in creep rupture strength as a consequence of irradiation than the specimens subjected to only a small amount of cold working. The first test results of Mol 3B/5 and Mol 5B/6 agree with the results of Mol 2 as far as creep rupture strength is concerned.

In the DFR 397 experiment, steel grades 1.4981 and 1.4988 were used in addition to 1.4970. At temperatures above 600 <sup>O</sup>C there were increases in volume up to several percent with a clear temperature dependence of void and bubble formation. More detailed knowledge of the radiation-induced swelling and creep processes will be provided by the continued simulation irradiations with ions in VEC Harwell.

### Corrosion Experiments and Coolant Analyses:

Internally pressurized cladding tube samples so far have been subjected to 4200 hours in the sodium high temperature test rig (goal: up to 10.000 hours). The experiments performed furnished values of the dependence on oxygen content of the sodium of the corrosion rate which approximately agree with data in the literature. Samples exposed at 700  $^{\circ}$ C had ferritized surfaces. Also creep rates were measured.

The corrosion, mass transfer, and wear behavior of pad materials in sodium is being studied; the first interim results are available.

The corrosion experiments in superheated steam were finished, those in helium are being continued.

### Work on the Fuel Cycle:

The dissolution behavior of chopped fuel pins (average burnup up to 6.1%) has been studied in the MILLI facility. The breeder fuel containing 15%  $PuO_2/85\%UO_2$  was easily and quickly dissolved in boiling nitric acid of concentrations in excess of 7.5 M HNO<sub>2</sub>.

Burnup assays of FR2 fuel (capsule test group 4b) resulted in major differences between the values found through plutonium depletion and those found through Ce-144 and Nd-148, respectively. This is assumed to be due to major axial migration of the heavy atoms.

### Physics:

Plate fission chambers were used in SNEAK 9B to measure spectrum indices of higher plutonium isotopes. Suitable methods of computer evaluation of fission track detector measurements were developed with a view to subsequent application.

The structure and the purposes of the SNEAK-9C assemblies are outlined, especially with regard to determining the fuel enrichment of SNR-300.

Nuclear data measurements performed on the Van-de-Graaff generator above all referred to resonances of medium-heavy nuclei, whereas those performed on the cyclotron were devoted to fission cross sections of U-235 and U-238 and  $(n,\gamma)$ -cross sections of Cr and Ni.

Two-dimensional neutron distributions in transport approximation can now be calculated with the SNOW program within an acceptable computer-time.

### Safety and Instrumentation:

After determination of the temperature distributions downstream of impermeable partial cooling channel blockages in an SNR-fuel element, also the loss of pressure generated by the blockage was measured. This was used to calculate the respective flow reduction for assessment of the detectability. In the experiments on fuel element behavior under delayed boiling conditions (BEVUS), which have been finished, no deformations occurred on the fuel element boxes due to stresses caused by internal pressure (condensation and boiling pressure shocks). Boiling delays up to 70 °C were achieved. A number of qualitative findings were made with respect to bubble dynamics.

The BRENDY program for calculation of fuel-sodium interactions (BNR) is now available. In another BNR-program development, the variability with time of the reacting masses is taken into account among other factors. It is evident that the pressure maximum and the specific work are sensitively dependent upon the time law assumed. BNR-experiments are under active preparation.

The emergency cooling concept for tank internals of the SNR 300 and the computer program established for this purpose have been verified and confirmed qualitatively in a model scale test in water on a 1:3 scale.

In the sector of gas cooled fast breeders aspects of the design of a core catcher are being discussed.

### Technology:

With respect to the operational behavior of rolling bearings ball bearings made of various materials were tested for friction and wear in sodium. Tungsten carbide proved to be superior to the tool steel grades investigated. Wear and seizing tests were carried out also to determine the sliding behavior of nickel-base alloys which may be used as pad materials for the SNR-fuel element boxes.

According to studies in a 61-pin bundle with tubular spacers, transverse cooling mixing in fuel elements exposed to a sodium flow practically is not a function of the distance between spacers or between the spacer and the measurement grid.

This report was compiled by R. Hüper.

- 8 -

### 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-<u>F</u>olgeprogramm (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-Vierteljahresbericht zitiert. Fehlendes Zitat bedeutet stets, daß der letzte Beitrag im unmittelbar vorhergehenden PSB-Vierteljahresbericht erschienen ist.

Die folgenden Institute der GfK haben zu dem vorliegenden Vierteljahresbericht beigetragen:

IAK	=	Institut für angewandte Kernphysik
IASR	<b>=</b> 73	Institut für angewandte Systemtechnik und Reaktorphysik
IHCh	=	Institut für Heiße Chemie
IMF	=	Institut für Material- und Festkörperforschung
INR	=	Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik
IRB	=	Institut für Reaktorbauelemente
IRCh	=	Institut für Radiochemie
IRE	=	Institut für Reaktorentwicklung
RBT	=	Reaktorbetrieb und Technik

Ferner liegt ein Beitrag von der Technischen Hochschule Darmstadt vor.

# 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

and the state of the state of the state of the

- 126. Natrium-Technologie-Versuche
- 128. Entwurfsstudien zu gas- und dampfgekühlten Brutreaktoren
- 129. Entwurfsstudien für große Natriumbrüter

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

Zum Druck eingereicht im Februar 1974

### 112 BRENNSTABENTWICKLUNG

1120 Brennstab-Modelltheorie\*

### 1. Weiterentwicklungen der Brennstab-Modelltheorie (H. Kämpf, IMF)

### A. Physikalisches Gasschwell- und Gasfreisetzungs-Modell

Da die Notwendigkeit besteht, verfeinerte Modelle zum Gasschwellen und zur Gasfreisetzung zu entwickeln bzw. anzuwenden, wurde mit dem im ANL entwickelten GRASS-Code  $\langle 1, 2 \rangle$  eine Studie durchgeführt. Ziel war, die Grundzüge des betriebsmäßigen Gasverhaltens im Oxid zu erkennen und den auslegungsmäßig interessanten Parameterbereich abzugrenzen. Wesentliches Ergebnis war, daß Gasschwellen und Gasfreisetzung nur in dem Temperaturbereich zwischen 1400 °C und 1700 °C detailliert modelliert werden müssen und daß Gasschwellen eine bemerkenswerte Druckabhängigkeit besitzt.

### B. Fortgeschrittene Brennstoffmechanik

Die Brennstoffmechanik bereitete in fortgeschrittenen Brennstab-Codes große Schwierigkeiten, die insbesondere durch relativ große Computerzeiten und durch numerische Instabilitäten zum Ausdruck kamen.

In der Mehrzahl der Codes wird ein Formalismus angewandt, in dem die Spannungen u.a. als Funktion der Kriechdehnungen dargestellt sind. Die Kriechzuwächse werden außerhalb des eigentlichen Formalismus mittels der Spannungen berechnet. Früher wurden diese Zuwächse mit einem Spannungsmittelwert iteriert. Die Kriechzuwächse mußten dann aus Stabilitätsgründen kleiner als die elastischen Dehnungen sein. Dies führte im Brennstoff zu den Schwierigkeiten, die bei SATURN-la zum Teil durch Einführung des 2-Zonen-Modells behoben wurden. Neuerdings werden diese Schwierigkeiten teilweise durch Vermeidung dieser Iteration vermindert.

Allen bisher in Brennstab-Codes für die Brennstoffmechanik angewandten Formalismen ist der transiente Charakter gemeinsam. In den in Ratenform geschriebenen Spannungs-Dehnungs-Beziehungen kommen sowohl die Spannungen

**\*** BzFE-Nr. 431.0

Zuletzt berichtet in KFK 1273/2

selbst als auch die zeitlichen Ableitungen der Spannungen vor. Letztere kommen über die Raten der elastischen Dehnungen in diese Gleichungen und sind im Brennstoff in einem weiten Feld von Bedingungen klein gegenüber den übrigen Termen auch bei zeitlich veränderlichen Bedingungen. Die aus diesem Grunde vernachlässigten Raten der elastischen Dehnungen führen zum quasistationären Mechanik-Formalismus. Dieser verhält sich zum transienten Formalismus etwa wie die transiente Wärmeleitfähigkeitsgleichung zur quasistationären.

Als Vorteile des quasistationären Formalismus sind vor allem die Vermeidung numerischer Instabilitäten und schnelle Computerzeiten zu erwarten. Das Zeitintervall geht in den Formalismus überhaupt nicht ein, da Verformungsraten und Spannungen bestimmt werden. Weiterhin ist der quasistationäre Formalismus deutlich einfacher als der transiente und daher zur Berücksichtigung vitaler Brennstoffphänomene wie Rißbildung, druckabhängiges Gasschwellen und Heißpressen, Gasfreisetzung u.a. geeigneter. Diese Überlegungen sind in  $\sqrt{3}$  enthalten.

## C. Rechenprogramm UPUGAS zur Berechnung der U-Pu-Entmischung und anderer thermischer Brennstoffgrößen

Das Rechenprogramm UPUGAS dient zur Berechnung auslegungsmäßig notwendiger thermischer Brennstoffgrößen wie U-Pu-Umverteilung, Temperaturverteilung, Porositätsverteilung und Zentralkanalradius in Abhängigkeit der Zeit für vorgegebene Geometrie, Oberflächentemperatur und Stableistung.

In UPUGAS gründet sich die Berechnung der U-Pu-Umverteilung auf den Verdampfungs-Kondensations-Mechanismus. Daher wurde von den Unterprogrammen TEMPV und POROS des Brennstab-Codes SATURN-1 ausgegangen. TEMPV liefert die Temperaturverteilung. In POROS wird die Porenwanderung auf der Basis des Verdampfungs-Kondensations-Prozesses berechnet. Dabei wird für eine bestimmte Ringaufteilung die Änderung des Porenvolumens in einem vorgegebenen Zeitintervall berechnet. Die entscheidende Größe ist die temperatur- und temperaturgradientabhängige Porenwanderungsgeschwindigkeit, die sich auf den Verdampfungs-Kondensations-Mechanismus gründet. Die Berechnung der U-Pu-Entmischung erfolgt durch Umdeutung der Porenwanderung nach innen in eine entsprechende Massenwanderung nach außen und Berücksichtigung, daß die U-Pu-Zusammensetzung des Dampfes i.a. ungleich der des festen Mischoxides ist. Für die thermodynamischen Abhängigkeiten des Pu/U-Verhältnisses in der Gasphase wurden die in /4/ angegebenen Beziehungen verwendet. Das skizzierte Programmsystem UPUGAS wurde für eine vorgegebene sich mit der Zeit nicht ändernde O/M-Verteilung getestet. Die relativ einfache Einbeziehung der sich mit der Temperatur und damit mit der Zeit ändernden O/M-Verteilung steht noch aus. Die Integrierung der U-Pu-Entmischung im SATURN-System ist einfach möglich, wie aus der Art des Vorgehens folgt.

Zu erwähnen bleibt, daß das vollständige Bild der U-Pu-Entmischung die Berücksichtigung des Mechanismus der Thermodiffusion erfordert. Dieser Entmischungsmechanismus wurde von Bober et al. untersucht und programmiert/5/. Während die Thermodiffusion insbesondere für hohe Temperaturen und lange Zeiten dominierend ist, überwiegt der Verdampfungs-Kondensations-Mechanismus bei nicht zu hohen Temperaturen und kürzeren Bestrahlungszeiten.

2. Analyse der Hüllrohrverformung durch Schwellen bei den Bestrahlungsexperimenten DFR-304 und DFR-350 mit Hilfe des Rechenprogrammes SATURN-la

### (H. Elbel, IMF)

Nach Beendigung der im Reaktor von Dounreay durchgeführten Bestrahlungsexperimente DFR-304 und DFR-350 wurden mittlere Durchmesservergrößerungen gefunden, die bei den Hüllrohren aus dem Material 1.4988 bis zu 0,7 bzw. 0,58 % betragen  $\angle 6$ , 7 $\angle 7$ . Über einen weiten Bereich der Stablänge ist diese Hüllrohraufweitung auf die durch Porenbildung im schnellen Neutronenfluß zurückgehende Volumenvergrößerung des Hüllmaterials zurückzuführen  $\angle 8 \angle 7$ . Eine durchaus vorhandene mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle bzw. die Belastung der Hülle durch den wachsenden Spaltgasdruck führte in diesem Bereich des Brennstabes nicht zu einer merkbaren Hüllrohrverformung.

Mit Hilfe des Rechenprogrammes SATURN-la wurde eine Analyse der axialen Verteilung der bei den Stäben mit dem Hüllmaterial 1.4988 gemessenen Durchmesservergrößerung auf der Basis der IMF-INTERATOM-Schwellformel [9,7] mit dem Ziel durchgeführt, deren Temperaturabhängigkeit zu überprüfen. Diese Analyse ergab, daß die ursprünglich vorgeschlagene Referenztemperatur von 490 °C zu hoch veranschlagt ist. Im Rahmen der für die beiden Experimente DFR-304 und DFR-350 anzunehmenden Ungenauigkeiten in der Bestimmung der Hüllrohrtemperaturen ergibt sich eine gute Übereinstimmung zwischen gemessener und berechneter Durchmesservergrößerung, wenn die Referenztemperatur bis auf 460°C abgesenkt wird. Für die Formel, die das Schwellverhalten des Hüllmaterials 1.4988 beschreibt, wird deshalb folgende Beziehung vorgeschlagen:

$$\frac{\Delta V}{V} = 8,5 \cdot (D/D_0)^{1,6} \cdot \exp \left[ - \left( \frac{T - 460 \circ c}{100 \circ c} \right)^2 \right]^{-7} \%$$
  
mit  $D_0 = 1 \cdot 10^{23} \text{ n/cm}^2.$ 

In Abb. 1 ist die damit berechnete und die gemessene axiale Verteilung der Durchmesservergrößerung am Beispiel der beiden Stäbe DFR-304/G2 und DFR-350/G21 dargestellt. Die Abbildung wird ergänzt durch die jeweilige axiale Verteilung von Dosis und Innen- bzw. Außentemperatur des Hüllrohres. Während für das Trefoil-Experiment DFR-304 mit über die gesamte Bestrahlungszeit konstanten mittleren Hüllrohrtemperaturen gerechnet wurde, wurde bei dem Bündel-Experiment DFR-350 eine Abnahme der Hüllrohrtemperaturen angenommen. In der Abb. 1b sind deshalb die über den ersten und über den letzten (vierten) Betriebszyklus gemittelten Innen- bzw. Außentemperaturen der Hülle angegeben.

Der Vergleich der berechneten mit den gemessenen Hüllrohraufweitungen zeigt eine für die beiden Experimente unterschiedliche Diskrepanz im Wert des Maximums. Bei DFR-304 liegt der gemessene Maximalwert über dem berechneten Wert, bei DFR-350 darunter. Diese Diskrepanz kann zum einen durch Ungenauigkeiten bei der Vermessung der Stäbe vorgetäuscht werden. Sie kann zum anderen ihre Ursache aber auch in einer unterschiedlichen Beschaffenheit der Hüllmaterialien, dem unterschiedlichen Neutronenspektrum an den beiden Bestrahlungspositionen und der unterschiedlichen Lage der Brennstäbe zum Flußmaximum im Reaktor haben. Diese Fragen können jedoch nur durch eine quantitative Analyse dieser Einflüsse geklärt werden.

#### Literatur

[1]	CHE-YU-Li et al.; Nucl. Appl. and Techn. 9, 188 (1970)
[2]	R.B. Poeppel; New Orleans Conf. 1971, S. 311
[3]	H. Kämpf; ANL-Report (im Druck)
[4]	W.J. Lackey et al.; Nucl. Techn. 16, 120 (1972)
[5]	M. Bober, G. Schumacher; Nucl. Techn. 7 (1973), S. 121
[6]	D. Geithoff, K. Kummerer; KFK 1377, Mai 1972
[7]	Ph. Dünner, Ch. Heyne; private Mitteilung
[8]	K. Ehrlich; Reaktortagung Karlsruhe 1973
[9]	K. Ehrlich; Beitrag in KFK 1400, Oktober 1971
	and a second provide the second se



Abb.1 Außen-u. Innentemp. der Hülle, Dosis u. Hüllrohraufweitung

112-5

 <u>Untersuchungen zur Brennstab-</u> und Brennelementmechanik<sup>1</sup>
 (H. Fabian, U. Krugmann, K. Lassmann, Institut für Reaktortechnik der TH-Darmstadt)

### A. URANUS, ein eindimensionales Rechenprogramm zur Brennstabanalyse

Für eine eindimensionale Stabuntersuchung wurde das Rechenprogramm URANUS fertiggestellt. Es soll in speziellen Fällen als Testprogramm für mehrdimensionale Untersuchungen zur Verfügung stehen und für technologische Untersuchungen verwendet werden, die sich im wesentlichen auf zyklische Vorgänge beziehen.

URANUS soll sowohl die numerische Genauigkeit als auch die numerische Stabilität gegenüber anderen Programmen verbessern, bei gleichzeitiger Reduktion der Rechenzeit. Das Programm ist konsequent in Blockstruktur aufgebaut. Neu an der mechanischen Behandlung sind drei Punkte:

- Es liegt eine geometrisch nichtlineare Theorie zugrunde, d.h. man ist nicht mehr auf die Einschränkung angewiesen, daß nur kleine Verformungen auftreten. Dies sollte sich vor allem bei der Behandlung der inneren, heißen Brennstoffzonen positiv auswirken.
- Für die Beschreibung des gerissenen Brennstoffs wird eine neue Methode eingeführt. Zugelassen sind Risse in allen Koordinatenrichtungen.
- Der Brennstoff wird in eine beliebige Anzahl von Grobzonen eingeteilt, in denen jeweils andere elastische Konstanten gelten (Temperaturabhängigkeit von E und ν). Die Grobzonen sind in eine beliebige Anzahl von Feinzonen unterteilt.

Zur Zeit wird untersucht, wie sich Risse in der Tablette in Abhängigkeit von der Leistungsänderung bilden bzw. ausheilen. Es ist geplant, diese Untersuchungen durch genauere, mehrdimensionale Rechnungen zu überprüfen.

### B. Brennstabberechnung nach der Methode der Finiten Elemente

Die Finitelementmethode erlaubt es über die eindimensionale Berechnung eines Brennstabhüllrohres hinaus, technologisch sehr bedeutsame Fragen in radialer, axialer und tangentialer Koordinate zu diskutieren.

<sup>1)</sup>(Vertrag Nr. 601/A3/286540)

Ein auf dieser Methode basierendes Computerprogramm FINEL wurde am Institut für Reaktortechnik entwickelt und für zweidimensionale Betrachtungen in radialer und axialer Koordinate eines Hüllrohres mit sehr gutem Erfolg zur Berechnung von radialen und axialen Belastungen sowie Endstopfen- und Schweißnahtfragen eingesetzt. Das Programm wurde erweitert und zur Berechnung des mechanischen Verhaltens einer Brennstofftablette eingesetzt. Als Ergebnis einer Rechnung ist in Abb. 2 die Deformation einer frei verformbaren Tablette unter Axiallast und Temperatureinfluß dargestellt. Die verformte Kontur läßt deutlich den "Bambuseffekt" erkennen: große Radialverschiebung an den Tablettenrändern (z = 0 u. z = h) und starke Aufwölbung der Tablettenober- und unterseite. Insgesamt ergibt sich aus dieser Rechnung eine axiale Längung der Tablette von 5%. Die verformte Kontur zeigt, daß es sehr problematisch ist, zur Pelletberechnung einen ebenen Verzerrungszustand anzunehmen.

Ein weiteres Rechenprogramm ZIDRIG erlaubt es, für einen ebenen Schnitt durch das Hüllrohr zweidimensionale Probleme in radialer und azimutaler Koordinate zu diskutieren. Hiermit wurden über das rotationssymmetrische Hüllrohr hinausgehend variable Geometrien, wie Ovalität und Wandstärkeschwankungen, sowie Rippen eines Hüllrohres betrachtet. Als Beispiel ist in Abb. 3 der Verlauf von Tangentialspannung und Radialverschiebung eines Hüllrohres aufgetragen, dessen Innenradius um + 0,03 mm schwankt. Die größte Radialverschiebung entsteht im Bereich der dickeren Wandstärke und die größte Tangentialspannung an der Stelle kleiner Wandstärken. Allgemein kann nach den Rechnungen zu variabler Hüllrohrgeometrie - Wandstärkeschwankungen und Ovalität - gesagt werden, daß sich die Verformungen und Spannungen aus zwei Anteilen zusammensetzen: konstanter Anteil + Anteil der Geometrieschwankung. Bei der Spannungsverteilung in radialer und azimutaler Koordinate für ein Hüllrohr mit Rippen zeigen sich nicht unerhebliche Spannungsüberhöhungen unter der Rippe an der Hüllrohrinnenwand und im Rippengrund, während die Rippenspitze praktisch spannungsfrei wird.

Ein drittes Programm - PRESTO - behandelt dreidimensionale Strukturen mit speziellen finiten Elementen, welche Freiheitsgrade in radialer, axialer und azimutaler Koordinate aufweisen. Hiermit können derzeit beliebig geformte Hüllrohre für den rein elastischen Fall diskutiert werden.

## <u>C. Schalentheoretische Arbeiten zur Auswertung von Experimenten an</u> Brennstabhüllrohrproben

Zur Auswertung der experimentellen Arbeiten (Zeitstandversuche an Rohrprüflingen unter Innen- oder Außendruck und hohen Temperaturen) wurde eine Schalentheorie entwickelt. Als Ergebnisse liegen explizit vor

- für Innendruckversuche: zeitlicher Verlauf der Aufweitung des Rohrprüflings,
- für Außendruckversuche: zeitlicher Verlauf des mittleren Druckmessers und der Ovalität des Rohrprüflings,
- für Standzeitmessungen: Abhängigkeit der Standzeit des Rohrprüflings von der Anfangsgeometrie, den Werkstoffparametern und der Außendruckbelastung.

Für den Verformungsvorgang werden elastische Verzerrungen und Kriechprozesse berücksichtigt.

Die Standzeiten nach der Schalentheorie wurden mit Standzeiten nach Malmberg /1/, Hoff /2/ und Laßmann /3/ verglichen. Dabei zeigte sich gute Übereinstimmung mit Malmberg und Laßmann. Nach Hoff sind allgemein nach gleicher Belastung höhere Standzeiten zu erwarten. Der Grund dafür liegt in der Tatsache, daß Hoff elastische Verzerrungen vernachlässigt.

Mit den hiermit vorliegenden Ergebnissen wird die Auswertung von Daten aus Langzeitversuchen erheblich vereinfacht. Es sind nicht mehr Parameterstudien mit Rechencodes notwendig, um die Werkstoffdaten zu ermitteln; ihr Einfluß liegt explizit vor.

/1/ T. Malmberg

Über einige Variationsprinzipien der Kriechmechanik und ihre Anwendung auf das Kriechkollaps-Problem von Brennstabhüllrohren KFK 1390

/2/ N.J. Hoff et al.

A Study of Creep Collapse of a Long Circular Cylindrical Shell Under Uniform External Pressure

J. Aerospace Sciences (Okt. 59)

/3/ K. Laßmann

Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von zylindrischen Brennstäben eines Kernreaktors KFK 1853

### D. Experimentelle Arbeiten an Brennstabhüllrohrproben

Die Standzeitmessungen an Rohrproben unter Außendruck und hohen Temperaturen konnten abgeschlossen werden.

An Rohrproben aus Edelstahl X10 CrNiTil89 und X5 CrNil89 wurde überprüft, welche Aussagen sich aus den Messungen der Standzeit gewinnen lassen.

Die Meßergebnisse zeigt Abb. 4. Die Isothermen lassen sich in der vorliegenden doppelt-logarithmischen Auftragung in guter Näherung durch Geraden darstellen, wie es auch nach allen theoretischen Überlegungen zu erwarten war. Daraus lassen sich Aussagen über Verformungsmechanismen und Materialdaten gewinnen, die allerdings mit Unsicherheiten belastet sind.

Eine Extrapolation der Zeitstandfestigkeit auf realistische Einsatzzeiten ist in hohem Maße spekulativ, da die Versuchssandzeiten maximal 700 Stunden erreichten.

Zur kontinuierlichen Messung der Rohrverformung unter hohen Temperaturen und Außendruckbelastung wurde eine Meßvorrichtung in Betrieb genommen, die die Rohrgeometrie kapazitiv erfaßt. In das unter Außendruck stehende, sich verformende Rohr wird eine Meß-Sonde elektrisch isoliert eingeführt. Die Kapazität der Anordnung gibt Aufschluß über die Form des Rohrquerschnittes.

Abb. 5 zeigt ein Beispiel für den Anstieg der Kapazität im Laufe der Einsatzzeit der Meßanordnung. Die Messungen werden mit Hilfe der Schalentheoretischen Ergebnisse (vgl. Abschnitt C) ausgewertet.

Nach einem analogen Verfahren wird zur Zeit eine Meßvorrichtung zur Messung der Rohraufweitung unter Innendruck entwickelt. Ziel der Messungen sind, nach Aussagen über Kriechparameter der eingesetzten Werkstoffe, speziell ihre Abhängigkeit von der Temperatur und von Größe und Vorzeichen der Rohrbelastung.

112-9









.

### 1121 Oxidischer Brennstoff - Laboruntersuchungen

### 1121.0 Herstellung im Labormaßstab

# 1. Möglichkeiten zur Herstellung nachsinterstabiler, oxidischer Kernbrennstofftabletten definierter Porosität

(H. Wedemeyer, E. Günther, J. Esteban, IMF)

Im Gegensatz zu den Brennstoffen thermischer Reaktoren haben die oxidischen Brennstoffe schneller Brutreaktoren eine geringe Dichte (nur etwa 80% theoretischer Dichte). Die Forderung der Nachsinterstabilität der Brennstofftabletten führte bei der Herstellung zunächst zu Schwierigkeiten, die jedoch durch einen Abbau der Sinteraktivität (Calzination) hochsinterfähiger Ausgangspulver oder durch Zumischen von Sinterschrott behoben worden sind. Diese Verfahren haben den Nachteil, daß zu jeder Herstellungscharge durch umfangreiche Vorversuche die geeignete Calzinations-Temperatur bzw. das geeignete Mischungsverhältnis ermittelt werden muß.

Erfolg verspricht das Einbringen definierter Porositäten durch Zugabe von leicht zersetzbaren Substanzen wie Ammoniumdiuranat (ADU) zum hochsinterfähigen Ausgangsmaterial. Dieser Weg ist jedoch bisher nicht in großem Umfang beschritten worden, da eine Optimierung der Poren besonders im Hinblick auf ihre Größe schwierig ist. Zum anderen hätten gerade solche Brennstoffe gegenüber den herkömmlichen eine Reihe von Vorteilen, wie z.B. eine hohe Nachsinterstabilität oder das Vorhandensein überwiegend geschlossener Porosität. Dies müßte wegen der höheren Leitfähigkeit des Brennstoffes allgemein zu einer Verbesserung des in-pile-Verhaltens führen.

Nachfolgend werden die Ergebnisse von Versuchen wiedergegeben, bei denen das Sinterverhalten und die Porositätseigenschaften von hochsinterfähigem  $UO_2^-$ Pulver (Korngröße (KG) <80 µm) und  $UO_2^-25\%$  Pu $O_2^-$ Pulver (KG < 80 µm/< 45 µm) mit Zusätzen von jeweils 6% ADU (KG < 25-45 µm) oder 6% Uranyloxalat (wie gefällt) verglichen werden.

Die aufgenommenen Sinterkurven (Abb. 6) nach 2 Stunden Sintern bei 1650 <sup>o</sup>C unter Ar-H<sub>2</sub> zeigen eine deutliche Abhängigkeit von der Art des Zusatzes. Die erreichte Enddichte ist beim Oxalat-Zusatz wesentlich geringer als beim ADU-Zusatz. Die Wiederholung des Sinterns ergab bei allen Proben eine weitere Verdichtung um weniger als 0,5% der theoretischen Dichte; hier scheint die Oxalat-Zugabe etwas günstiger zu sein.

★<sub>BzFE-Nr. 322.1</sub>

Zuletzt berichtet in KFK 1273/2

Die metallografische Untersuchung wurde hauptsächlich an den Pu-freien Proben durchgeführt. Hier wird der Unterschied zwischen den Zusätzen von ADU bzw. Uranyloxalat besonders deutlich. Während durch den Oxalat-Zusatz große, "normal" geformte Poren entstehen, bewirken die ADU-Zusätze große Poren, die meist (wahrscheinlich immer) gefüllt sind, so daß die Poren eine pilzkappen-ähnliche Struktur besitzen (Abb. 7). Diese Form entsteht wohl dadurch, daß sich die vollständige Zersetzung des ADU zu UO<sub>2</sub> erst bei Temperaturen vollzieht, bei denen die Oxide bereits sintern. Ein ähnlicher Vorgang sollte auch bei der Oxalat-Zugabe beobachtet werden; nur dürften die entstandenen  $U_{\rm J}O_8$ -Partikel sehr viel kleiner sein. Außerdem ist die Zersetzung bereits bei der Entwachsungstemperatur weit fortgeschritten. Die Unterschiede der durch die Zusätze bewirkten Poren kommt auch durch die Messungen zur Porengrößenverteilung zum Ausdruck. Die Messung der offenen Porosität zeigt eine nur geringe Abhängigkeit von der Art des Zusatzes. Der prozentuale Anteil an der Gesamtporosität ist wesentlich geringer als bei vergleichbaren UO<sub>2</sub>-

Diese Ergebnisse sind durch die metallografische Untersuchung einiger Puhaltiger Proben, durch die autoradiografische Untersuchung zur Beobachtung der Pu-Verteilung und durch die Bestimmung der offenen Porosität einiger Proben ergänzt worden. Hier zeigt sich, daß die mit ADU-Zusatz gesinterten Proben eine etwas andere Porenstruktur besitzen; die Poren sind z.B. weniger mit Material ausgefüllt. Die autoradiografische Untersuchung ergibt, daß diese Einschlüsse Pu-frei sind. Diese charakteristischen Merkmale sind bei den mit Oxalat-Zusatz gesinterten Proben nicht zu beobachten (Abb. 8).

Proben, die ohne Zusätze gesintert worden sind.

## 2. Vorausberechnung der Tablettengeometrie von maßgesintertem Brennstoff mit gezielter Unterstöchiometrie (H. Pollanz, IMF)

Die meisten Formeln zur Beschreibung des Sintervorganges sind für die Herstellung von Sinterkörpern aus keramischen oder metallischen Ausgangspulvern ohne praktischen Nutzen. Am Beispiel der Herstellung von UO<sub>2</sub>-30 % PuO<sub>2</sub>-Brennstoff in Form von maßgesinterten Tabletten mit einer definierten Stöchiometrie von O:Me = 1,93 und O:Me = 1,98 wird hier eine praktisch verwendbare Sinterformel präsentiert. Sie soll die exakte Vorausberechnung von Herstellungsparametern für oxidischen Brennstoff ermöglichen, wenn die Konstanten des Ausgangspulvers einmal bekannt sind und sich unter sonst gleichen Bedingungen die Prozeßvariablen nur innerhalb gewisser Grenzen ändern.

112-15

Bezeichnung	Größe	Dimension
a, a <sub>0</sub> , a <sub>1</sub> , a <sub>2</sub>	Ordinatenabschnitt der Sintergeraden	g/cm <sup>3</sup>
b <sub>0</sub>	Ordinatenabschnitt der Schwindungsger.	
<sup>b</sup> 0,D	Ordinatenabschnitt der Durchmesser- schwindungsgeraden	
$\mathfrak{D}_{\mathbf{O}}$ is the second s	Durchmesser des Preßkörpers	cm
$\mathbf{D}_{\mathbf{E}}$ is the set	Durchmesser des gesinterten Körpers	cm cm
$\mathbf{H}_{\mathbf{O}}^{\mathbf{D}}$ , the second se	Höhe des Preßkörpers	em en
$\mathbf{H}_{\mathbf{R}}$ is the first of the	Höhe des gesinterten Körpers	en e
m <sup>an</sup> and the second	Steigung der Sintergeraden	
n star see	Steigung der Schwindungsgeraden	en en langer af tradisioner fan de service. En se
$\mathbf{Q}_{\mathbf{r}}$ , $\mathbf{r}$ , $\mathbf{r}$	(scheinbare) Aktivierungsenergie	kcal/Mol
${f R}$ , we can be a state of the second	allg. Gaskonstante = 1,9865 $\cdot$ 10 <sup>-3</sup>	kcal/Mol· <sup>0</sup> K
So	Preßkörperdichte	g/cm <sup>3</sup>
$S_{\rm E}$ , the second second	Enddichte des Sinterkörpers	g/cm <sup>3</sup>
$\mathcal{G}_{\mathbf{p}}$ is a point with a start	= 100 $\cdot S_{\rm E}/S_{\rm mH}$ , Enddichte in % th.D.	
Sult.	theoretische Dichte des Materials	g/cm <sup>3</sup>
S and the Area of	lineare Schwindung, $0 < s < 1$	Maximation of Landon States of Auflin A
$\mathbf{s}_{\mathbf{D}}$	Durchmesser-Schwindung	an an an san san an an taon an Taon amin'
$\tilde{s_{\rm H}}$	Höhen-Schwindung	an an an tha an an an tha an an Tha an an an tha an
$\mathbf{T}^{(1)}$ where $\gamma$ is the second second	isotherme Sintertemperatur	or or K
$v_0$ , $v_0$ , $v_0$ , $v_0$	Volumen des Preßkörpers	cm <sup>3</sup>
V <sub>E</sub>	Volumen des gesinterten Körpers	cm <sup>3</sup>

In nachfolgender Tab. 1 sind die verwendeten Größen und ihre Bezeichnungen zusammengefaßt.

Die Brennstofftabletten werden durch Pressen der Ausgangspulver in Matrizen mit definierten Durchmessern, durch Entwachsen und Sintern nach einem vorgegebenen Temperatur-Zeit-Schema hergestellt. Zur Variation der Sinterergebnisse wird im allgemeinen nur jeweils der Parameter Sintertemperatur geändert, während die Auf- und Abheizraten und die isotherme Haltezeit konstant bleiben.

Trägt man die Enddichte der Sinterkörper  $\, {m arsigma}_{
m E} \,$  bzw.  $\, {m eta} \,$  in Abhängigkeit von der Preßkörperdichte  $S_0$  auf, so ergeben sich für ein definiertes Ausgangspulver und für gleichbleibende Parameter des Pressens, Entwachsens und Sinterns jeweils Geraden von annähernd gleicher Steigung m und einer Parallelverschiebung (a2-a1) zu höheren Dichten mit steigender Temperatur T:

 $S_{\rm E} = {\rm m} \cdot S_0 + {\rm a}$ ,

für T = const. (1)

und

$$S_{E} = m \cdot S_{C} + a_{0} \cdot e^{-\frac{Q}{RT}}$$
, für  $T \neq \text{const.}$  (2)

Für die Abhängigkeit der linearen Schrumpfung des Durchmessers s<sub>D</sub> und der Höhe s<sub>H</sub> als Funktion von  $\mathcal{G}_0$  und T ergeben sich lineare Gleichungen mit negativer Steigung n :

$$s = -n \cdot g_0 + b_0 \cdot e^{-\frac{Q}{RT}}$$
(3)

Hierbei wird vereinfacht angenommen, daß s<sub>D</sub> und s<sub>H</sub> die gleiche Steigung haben und sich um einen konstanten Faktor (je nach Pulver- und Preßparametern) unterscheiden. Damit wären  $S_E$  und s jeweils nur von der Preßkörperdichte  $S_0$ und der Sintertemperatur T abhängig. Es gilt aber auch bei Isotropie der Schwindung

$$\left(\frac{D_{E}}{D_{O}}\right)^{3} = \left(\frac{H_{E}}{H_{O}}\right)^{3} = \left(\frac{V_{E}}{V_{O}}\right)$$
 (4)

und

$$1 - s \stackrel{3}{)} = \frac{g_0}{g_E}$$
(5)

wenn

$$\left(\frac{D_{E}}{D_{0}}\right) = \left(\frac{H_{E}}{H_{0}}\right) = (1 - s)$$
 ist. (6)

Mit (5) und (2) ergibt sich die Schwindung s

S

$$f = 1 - \frac{3}{\sqrt{\frac{g_0}{m \cdot g_0 + a_0 \cdot e^{-Q/RT}}}}$$
(7)

Sind die Anisotropiewerte und die Korrekturwerte eines Pulvers bekannt, so können die zum Maßsintern auf  $D_E$  erforderlichen Matrizenmaße ( $\sim D_0$ ) aus (6) und (7) als  $D_0 = f(D_E, \mathcal{G}_0, T)$  vorausberechnet werden:

$$D_{0} = \frac{D_{E}}{2\sqrt{\frac{S_{0}}{m \cdot S_{0} + a_{0} \cdot e^{-Q/RT}}}}$$
(8)

Soll nach (3) gerechnet werden, so ist die Sinterformel

$$D_{0} = \frac{D_{E}}{1 + n \cdot S_{0} - b_{0,D} \cdot e^{-Q/RT}}$$
(9)

Die für ein gegebenes  $UO_2$ -30 %-Pu $O_2$ -Ausgangspulver vorausberechneten Herstellungsdaten werden anhand der gemessenen Größen für Geometrie und Dichte bestätigt.

Die Einstellung eines vorbestimmten und auf  $\Delta 0:Me = \pm 0,005$  reproduzierbaren Sauerstoff/Metall-Verhältnisses zwischen 1,94 und 2,00 wird dadurch erreicht, daß ein definiertes  $H_2/H_2$ 0-Verhältnis, das dem Temperatur-Zeit-Verlauf des Sinterns und anderen geometrischen und reaktionskinetischen Parametern angepaßt ist, eingestellt wird. Über eine Befeuchtung von Argon-5 %-Wasserstoff als Sintergas über einer Eisschicht bei tiefen Temperaturen wird entsprechend der Taupunktskurve ein Sintergas von definierter Feuchtigkeit erzielt. Diese wird durch Meßzellen am Gaseinlaß und Gasauslaß während des Sinterns ständig analysiert und registriert. Abb. **9** zeigt die Abhängig-

keit der Stöchiometrie-Werte von der Feuchtigkeit des Sintergases für  $UO_2$ -30 % -PuO<sub>2</sub>-Tabletten nach einer Sinterung bei 1600 °C mit 4 Stunden Aufheizzeit und 2 Stunden Haltezeit. Auch hier kann das in 2 Stunden erzielte O:Me-Verhältnis als lineare Funktion des H<sub>2</sub>O-Gehaltes angegeben werden. O:Me-Verhältnisse kleiner als 1,94 werden durch die Verwendung von normalem bzw. extrem trockenem Sintergas in Verbindung mit der Variation von Sinterparametern erzielt.



Abb. 6 Sinterkurven von UO2 und UO2/25 %-PuO2-Tabletten





UO2 (+ 6 % Oxalat)

UO2 (+ 6 % ADU)

UO2: ungeätzt Vergr. = 200 x



UO2/PuO2 (+ 6 % Oxalat) U02/Pu02: geätzt Vergr. = 450 x

Abb. 7 Schliffbilder gesinterter Oxid-Proben vergleichbarer Dichte



UO2/PuO2 (+ 6 % ADU)





UO2/PuO2(+ 6 % ADU) UO2/PuO2 U0<sub>2</sub>/Pu0<sub>2</sub>(+ 6 % Oxalat) Autoradiografische Aufnahmen von Oxid-Proben (Vergr. 50 x)

Abb. 8



Abb. 9

0:Me-Werte von UO<sub>2</sub>-30 %-PuO<sub>2</sub> als Funktion der Feuchtigkeit des Sintergases, jedoch nur gültig für konstante Chargengröße. 1600 °C/2 Stunden Haltezeit, 4 Stunden Aufheizzeit Ar-5 %-H<sub>2</sub>, 120 Liter/Stunde

### 112-21

### 1121.1 Technologische Eigenschaften von Mischoxid

Entwicklung verbesserter Methoden zur Produktionskontrolle\*

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

Eine wesentliche Unsicherheit bei der quantitativen Beurteilung von  $\alpha$ -Autoradiografien im Bezug auf eine Pu-Teilchengrößenverteilung ist der Einfluß der Probenpräparation. Um diesen Einfluß zu untersuchen, wurden von einer Probe in verschiedenen Stadien der metallografischen Präparation  $\alpha$ -Autoradiografien angefertigt. Diese  $\alpha$ -Autoradiografien wurden nach /1/ umkopiert und 280 x vergrößert. An diesen Vergrößerungen wurde eine Klassifizierung der Teilchen nach Flächen vorgenommen. Abb. 10 zeigt den Logarithmus der Teilchenfläche gegen die Summenhäufigkeit der Teilchen bis zu der angegebenen Größenklasse.

In dieser Abb. ist: A =

 A = geschliffene Probe (Papier 600)
 B = Probe geschliffen und 5 min mit 1 μm Diamant poliert (gute metallografische Politur)
 C = Probe geschliffen und 15 min mit 1 μm Diamant poliert ("überpoliert")

Zu dem Teilchengrößenverlauf der Probe B ist weiterhin noch der  $3 \sigma$  -Streubereich für verschiedene Teilchenzahlen eingezeichnet. Man sieht, daß bei einer Teilchenfläche von > 800  $\mu$ m<sup>2</sup> ( $\stackrel{2}{=} 32 \mu$ m Ø) die Präparation keinen statistisch signifikanten Einfluß auf das Meßergebnis hat. Da man beim Aufstellen einer Teilchengrößenstatistik jedoch auch die kleinen Teilchen berücksichtigen muß, ist eine Standardisierung der Probenpräparation notwendig.

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

Der Aufbau einer Meßanlage zur zerstörungsfreien Bestimmung des O/Me-Verhältnisses in plutoniumhaltigen Kernbrennstoffen über eine Messung elektrochemischer Potentialdifferenzen wurde abgeschlossen und erste Messungen an realistischen Brennstofftabletten durchgeführt. Abb. {{ zeigt eine fotografische Aufnahme der fertiggestellten Anlage

<sup>/1/</sup>KFK-Bericht 1273/2, S. 112-22



112-22
Die Anlage wird bei einer Temperatur von 900 <sup>o</sup>C betrieben, als Referenzelektrode wird eine Mischung von 50 % Fe und 50 % Fe0 verwendet. Die Anordnung der Meßelektroden und des Elektrolyten wurde bereits in (1) beschrieben. Da die Anlage später vollautomatisch arbeiten soll, wird sie von einem Kleinrechner (Diehl Alphatronic), der als Prozeßrechner eingesetzt wird, gesteuert. Der Rechner fragt über ein Digitalvoltmeter (Schlumberger A 200) die Meßwerte für Temperatur und EMK ab und wertet die Meßergebnisse nach der Methode der kleinsten Quadrate aus. Darüber hinaus wird auch die Meßanlage vom Rechner ein- und ausgeschaltet. Ein vereinfachtes Strukturdiagramm des verwendeten Steuer- und Auswerteprogrammes ist in Abb.12 zu sehen.

Zur Zeit wird für die Auswertung eine auf theoretischen Überlegungen basierende Formel verwendet, deren Anwendbarkeit durch Vergleichsmessungen mit einer früher entwickelten Thermowaage überprüft wird.



Abb. 11

Anlage zur zerstörungsfreien Bestimmung des O/Me-Verhältnisses

(1) Bericht in 1273/2





## 1121.2 Vergleich des Verträglichkeitsverhaltens von verschiedenen austenitischen Stählen mit simuliertem abgebranntem Oxidbrennstoff \*\* (P. Hofmann, O. Götzmann, IMF)

Vom thermodynamischen Standpunkt betrachtet sollten alle austenitischen Stähle ein ähnliches Reaktionsverhalten zeigen, da sie chemisch ähnlich zusammengesetzt sind. Dennoch gibt es Hinweise, daß sich die Stähle z.T. ganz verschieden verhalten /1/. Bis heute wurden jedoch noch keine systematischen in-pile Untersuchungen durchgeführt, die eindeutige Aussagen über den Unterschied des Verträglichkeitsverhaltens der verschiedenen austenitischen Stähle – die als Hüllmaterialien in Betracht kommen – zulassen. Auch die verfügbaren Ergebnisse von Bestrahlungsexperimenten mit verschiedenen austenitischen Stählen lassen keinen Vergleich zu, da die Ausgangs- und Bestrahlungsdaten teilweise sehr unterschiedlich sind. Aus diesem Grunde war es interessant zu erfahren, wie sich verschiedene austenitische Stähle bei out-of-pile Untersuchungen – unter gleichen Versuchsbedingungen – gegenüber simuliertem abgebranntem Oxidbrennstoff verhalten.

Die Experimente wurden mit teilsimulierten Abbrandsystemen durchgeführt, die nur die reaktiven Spaltprodukte Cs, J, Se und Tellur enthalten. Der simulierte Abbrand betrug 10 und 20 At.-%, das 0/M-Verhältnis des Brennstoffs 2.01 und 2.08 (M = U bzw. U+Pu). Die Versuchstemperatur variierte zwischen 400 und 1000 °C, die Glühzeit zwischen 50 und 2000 h. Als austenitische Stähle kamen die Stahltypen 1.4401, 1.4970, 1.4981 und 1.4988 zum Einsatz (Zusammensetzung der Stähle s. Abb. 13).

Das Reaktionsverhalten der austenitischen Stähle gegenüber dem simulierten abgebrannten Oxidbrennstoff hängt vorwiegend von der Temperatur sowie der Spaltproduktkonzentration und dem Sauerstoffpotential des Brennstoffs ab (Abb. 13, 14). Alle untersuchten Stähle zeigen nahezu das gleiche Verträglichkeitsverhalten, d.h. die Unterschiede im Reaktionsumfang betragen z.B. bei 750  $^{\circ}$ C/1000 h und einem simulierten Abbrand von 10 At.-% maximal 45 µm (<u>+</u> 15%). Bei 20 At.-% Abbrand oder geringerer Temperatur (<750  $^{\circ}$ C) sind die Unterschiede noch kleiner (Abb. 13, 14). Mit Ausnahme des Stahles 1.4970 (T>700  $^{\circ}$ C) ist der Reaktionsumfang bei 20 At.-% simuliertem Abbrand größer als bei 10 At.-%, wobei mit steigender Temperatur die Unterschiede zwischen 10 und 20 At.-% stark zunehmen.

/1/ P. Hofmann, O. Götzmann in KFK 1273/3

<sup>\*</sup> BzFE-Nr. 313.1



Abb. 13: Spaltprodukteindringtiefen in austenitische Stähle als Funktion der Temperatur für teilsimulierte oxidische Abbrandsysteme; simulierter Abbrand 10 und 20 At.%.



Abb. 14: Reaktionen der teilsimulierten oxidischen Abbrandsysteme mit austenitischen Stählen; simulierter Abbrand 10 und 20 At.%.

Bei Temperaturen unterhalb 650 °C kommt es i.a. zu schichtförmiger Reaktion des Brennstoffs und der Spaltprodukte mit der Stahlhülle. Oberhalb 650 <sup>°</sup>C finden neben diesen Reaktionen mit ebener Reaktionsfront auch Korngrenzenreaktionen statt. Bei einem Hüllangriff entlang der Korngrenzen spielt aber neben der chemischen Zusammensetzung der Stähle auch noch deren Korngröße und die Belegung der Korngrenzen mit Karbidausscheidungen eine Rolle. Während der Einfluß der Korngröße des Hüllmaterials auf den Reaktionsumfang einigermaßen bekannt ist /2/, d.h. bei Reaktionen entlang der Korngrenzen die Spaltprodukt-Eindringtiefe mit steigender Korngröße zunimmt, ist der Einfluß der Ausscheidungen noch nicht geklärt. Da sowohl die Korngröße als auch das Ausscheidungsverhalten der Stähle stark durch die Vorbehandlung (Kaltverformung, Auslagerung) beeinflußt wird, ist der Vorbehandlung der Stähle vor dem Reaktoreinsatz besondere Bedeutung beizumessen. Erste Versuchsergebnisse mit verschiedenen austenitischen Stählen des gleichen Typs, aber unterschiedlicher thermischer und mechanischer Vorbehandlung zeigen bei Korngrenzenreaktionen eine deutliche Abhängigkeit der Geschwindigkeit des Hüllangriffs vom Vorbehandlungszustand /1/.

Für die chemischen Wechselwirkungen des teilsimulierten Abbrandsystems mit den austenitischen Stählen 1.4401, 1.4970, 1.4981 und 1.4988 erhält man für eine Glühzeit von 1000 h die in Abb. 14 angegebenen Eindringkoeffizienten  $(x^2/t)$  für 10 und 20 At.-% Abbrand. Die Aktivierungsenergien für die chemischen Reaktionen variieren zwischen ca. 13 kcal/mol (1.4970, 20 At.-%) und etwa 20 kcal/mol (1.4970, 10 At.-%; 1.4401, 20 At.-%).

Vergleicht man das Reaktionsverhalten der austenitischen Stähle mit dem simulierten Abbrandsystem, so ergibt sich bei einem Abbrand von 10 At.-% für den Stahl 1.4988 das beste und für den Stahl 1.4970 das schlechteste Verträglichkeitsverhalten. Die beiden Stähle 1.4401 und 1.4981 liegen dazwischen (Abb. 14). Bei einem simulierten Abbrand von 20 At.-% zeigen die beiden Stähle 1.4970 und 1.4981 oberhalb 600 °C ein besseres Verträglichkeitsverhalten als die Stähle 1.4401 und 1.4988.

Nach diesen Versuchsergebnissen ergibt sich <u>keine eindeutige Bevorzugung</u> für einen bestimmten Stahltyp, der den anderen austenitischen Stähle bezüglich des Verträglichkeitsverhaltens deutlich überlegen wäre.

/2/ 0. Götzmann, P. Hofmann, KFK 1619 (1972)

Hinsichtlich kritischer Betriebsbedingungen eines Brennelementes unter Reaktoreinsatz, wie hohe Hüllmaterialtemperaturen als auch hohe Spaltproduktkonzentrationen, zeigt der Stahl 1.4981 jedoch insgesamt ein etwas besseres Verträglichkeitsverhalten gegenüber dem simulierten abgebrannten Oxidsystem als die übrigen austenitischen Stähle. Aus diesen Gründen würde bei der Auswahl eines geeigneten Hüllmaterials anhand dieser Versuchsergebnisse dem austenitischen Stahl 1.4981 der Vorzug zu geben sein.

Bei der Auswahl eines Stahles, im Hinblick auf ein gutes Verträglichkeitsverhalten gegenüber dem abgebrannten Oxidbrennstoff, ist aber außerdem zu beachten, daß das Reaktionsverhalten (Reaktionsumfang) stark vom Vorbehandlungszustand der Stähle abhängt. Bei anderer mechanischer und/oder thermischer Vorbehandlung der Hüllmaterialien kann sich das relative Verträglichkeitsverhalten stark verändern /1/. Es ist deshalb unbedingt erforderlich, das Reaktionsverhalten der Stähle in Abhängigkeit der Kaltverformung sowie der Auslagerungstemperatur und -zeit zu untersuchen. Wahrscheinlich ist der Einfluß der Vorbehandlung wesentlich größer als derjenige der unterschiedlichen chemischen Zusammensetzung der austenitischen Stähle.

#### 1122 Bestrahlungsexperimente - Oxid (Parametertests)

## 1122.11 Schwellproben-Bestrahlungen im FR2\*

# Druckschwellkapsel mit kontinuierlicher Dehnungsmessung<sup>1</sup> (H. Häfner, K. Philipp, IMF)

Seit 1969 werden im FR2 instrumentierte Kapseln zur kontinuierlichen Messung des Brennstoffkriechens bei Temperaturen unter 1000 <sup>o</sup>C bestrahlt. Der Aufbau dieser Bestrahlungsprobeneinsätze, von denen schon fast 40 in Betrieb waren, wurde in /1/ beschrieben. 1971 wurde darüberhinaus im IMF eine Druckschwellkapsel für Temperaturen über 1000 <sup>o</sup>C entwickelt /2, 3/.

- **\*** BzFE-Nr. 315.2
- 1) Vg1. KFK 1272/4, S. 112-40

## Kurze Beschreibung des Versuchseinsatzes (siehe Abb. 15)

Eine Brennstoffsäule von z.B. 4 mm  $\emptyset$  und 40 mm Höhe ist in einer dickwandigen Molybdänhülle eingeschlossen. Diese Mo-Hülle sitzt, über Distanznocken zentriert, in einer inneren Kapsel, durch deren Boden Thermoelemente zur Bestimmung der Probentemperatur hindurchgeführt werden. Die Probenbelastung wird über einen entsprechenden Gasdruck in der äußeren Kapsel erreicht, der über Druckübertragungsstück und Druckstempel auf die Probe wirkt. Knapp über der Probe ist der induktive Wegaufnehmer angeordnet, dessen Kern auf dem Druckübertragungsstück fixiert ist.

Längenänderungen des Brennstoffs werden von einem Faltenbalg aufgenommen und direkt auf den Kern übertragen. Mit dem induktiven Wegaufnehmer können Längenänderungen von < lµm bei einer absoluten Genauigkeit von ca.  $\pm$  3 µm erfaßt werden. Der Gesamtschwellbetrag kann außerdem nach Ende der Bestrahlung über Meßbolzen (Kontrollmaß) in den Heißen Zellen nachgemessen werden. Zwei solche inneren Probenkapseln sitzen, ebenfalls über Distanznocken zentriert, übereinander in der äußeren Druckkapsel. Über die Breite der Gasspalte zwischen Mo-Hülle und Innenkapsel sowie zwischen Innenkapsel und Außenkapsel können die gewünschten Probentemperaturen eingestellt werden. So ist es möglich, die beiden Proben gleicher Belastung, aber verschiedenen Temperaturen auszusetzen. Bei Probentemperaturen unterhalb 1100 <sup>O</sup>C werden normale Chromel/Alumel-Thermoelemente von 1 mm Ø verwendet, darüber müssen Hochtemperatur-Thermoelemente z.B. mit W5**E**e/W26Re-Adern eingesetzt werden.

#### Literatur:

/1/ H.E. Häfner, H. Will Instrumentiere Brennstoffkriechkapsel Kerntechnik 12, 454 (1971)

/2/ H.E. Häfner, K. Philipp Fr2-Bestrahlungskapsel zur Untersuchung des Brennstoffschwellens KFK-Bericht 1398 (1971)

/3/ H.E. Häfner

Bestrahlungskapsel zur Untersuchung des Brennstoffschwellens Atomwirtschaft, Atomtechnik 2, 76 (1973)



Abb.15: Schematische Darstellung einer Druckschwellkapsel mit kontinuierlicher Dehnungsmessung.

# 2. <u>Einfluss der Sinterdichte auf das bestrahlungsinduzierte Krie-</u> <u>chen von U0</u> <u>2</u> <u>-15% Pu0</u> <u>2</u> <u>-Proben</u> (D.Brucklacher, IMF)

Die Kriechversuche unter Bestrahlung wurden an UO<sub>2</sub>-15% PuO<sub>2</sub>-Proben mit zwei weiteren Kapseln im FR 2 fortgeführt. Es sollte der Einfluss der Porosität auf die bestrahlungsinduzierte Kriechgeschwindigkeit bei verschiedenen Temperaturen untersucht werden. Die leicht unterstöchiometrischen Proben hatten Ausgangsdichten von 86 und 93,5% TD.

In der ersten Bestrahlungsperiode wurden die Proben jeweils unter einer Druckspannung von 1.5 kp/mm<sup>2</sup> bei Temperaturen zwischen 400 und  $600^{\circ}$ C bestrahlt. Die Spaltungsrate betrug ca.  $2x10^{-9}$ Spaltungen/(U+Pu)-Atom.s. Für allen Proben zeigt die  $\varepsilon(t)$ -Kurve einen sigmoidalen Verlauf. Verdichtungsprozesse und primäres Kriechen scheinen bei einer Ausgangsdichte der Proben von 93.5% TD zu einer linearen Verformung von ca. 0.8% zu führen, während bei einer Ausgangsdichte von 86% TD diese Verformung um ca. 1% höher liegt. Der Bereich des stationären Kriechens wird nach einem Abbrand von ca. 0.4 At.-% erreicht.

In einer zweiten Bestrahlungsperiode wurden durch Umsetzen der Bestrahlungskapseln auf Reaktorpositionen mit höherem Neutronenfluss die Spaltungsraten erhöht(auf ca.  $3x10^{-9}$ Spaltungen/(U+Pu)-Atom·s) und die Probentemperaturen auf 650 bis 900°C angehoben. Nach dem Umsetzen stellt sich unterhalb 700°C schnell wieder eine stationäre Kriechgeschwindigkeit ein. Bei Temperaturen oberhalb 700°C führt eine zunächst sehr hohe, mit der Zeit abnehmende Verformungsgeschwindigkeit zu einer linearen Verformung der Probe um ca. 1.5%.Die sich danach einstellende stationäre Kriechgeschwindigkeit liegt wesentlich niedriger als bei Temperaturen um 600°C.

Die Werte für die Konstante des bestrahlungsinduzierten Kriechens  $[\dot{\epsilon}/\sigma \cdot \dot{S} \cdot \exp (-5200/RT)]$  sind für die in diesem Berichtszeitraum untersuchten Mischoxidproben in Tabelle **1** aufgeführt. Dort ist T die mittlere Brennstofftemperatur,  $\dot{\epsilon}$  die Kriechgeschwindigkeit,  $\sigma$  die Druckspannung und  $\dot{S}$  die Spaltungsrate. Zur Beschreibung der Temperaturab-

\*) Letzter Bericht in KFK 1273/1 BzFE-Nr. 315.2 Tabelle 1: Bestrahlungsbedingungen und Kriechkonstante für UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Proben mit zwei verschiedenen Sinterdichten

Probe Nr.	Dichte [% TD]	т [°С]	σ [kp/mm <sup>2</sup> ]	S [Spaltungen/ (U+Pu)-At.• s	έ / σ•ṡ•exp(-5200/RT) [mm <sup>2</sup> /kp]	Abbrand [%]
				-9	2	
E 30/1	86 %	415	1,5	2•10	1,37•10-	0,6
E 30/2	86 %	625	1,5	3,1•10 <sup>-9</sup>	1,31.10 <sup>2</sup>	0,85
E 31/1	86 %	580	1,5	2·10 <sup>-9</sup>	1,08•10 <sup>2</sup>	0,4
E 31/2	86 %	880	1,5	2,8.10 <sup>-9</sup>	<0,5·10 <sup>2</sup>	0,85
E 33/1	86 %	480	1,5	1,8.10 <sup>-9</sup>	1,16·10 <sup>2</sup>	0,4
E 34/1	93,5%	405	1,5	1,8.10 <sup>-9</sup>	0,86•10 <sup>2</sup>	0,45
E 34/2	93,5%	630	1,5	3.10 <sup>-9</sup>	0,59·10 <sup>2</sup>	0,65

hängigkeit des bestrahlungsinduzierten Kriechens wird eine Aktivierungsenergie von 5200 cal/mol verwendet, sie wurde in früheren Versuchen an  $\rm UO_2$  und  $\rm UO_2-15\%$  Pu (86\% TD) bestimmt (1, 2). Für die bei der Ermittlung der Kriechgeschwindigkeit zu berücksichtigende Schwellung des Brennstoffs durch Spaltprodukte wird ein Wert von 0.8 Vol.-%/% Abbrand angenommen.

Die Kriechkonstanten für Proben mit Ausgangsdichten von 86 und 93.5% TD unterscheiden sich nur um einen Faktor  $\leq$  2. Dieser Unterschied ist (auch unter Berücksichtigung der Nachverdichtung der Proben zu Beginn der Bestrahlung) geringer, als auf Grund von Kriechdaten keramischer Materialien ohne Bestrahlung zu erwarten ist (2). Eine Erklärung dafür sind die jeweils hohen "effektiven" Porositäten durch die inhomogene Pu-Verteilung (2), die sich weit weniger unterscheiden als die wahren Porositäten der Proben.

Der starke Abfall der Kriechkonstante für poröse Proben bei Temperaturen oberhalb 700°C hängt mit einer erheblichen Nachverdichtung zusammen. Erste Ergebnisse aus Versuchen im BR 2 (Mol) deuten darauf hin, dass auch 93,5% TD-dichtes Mischoxid noch einen entsprechenden, aber geringeren Effekt zeigt. Zur Berechnung des maximalen Brennstoffschwelldruckes in Brennstäben mit porösem U0<sub>2</sub>-Pu0<sub>2</sub>-Brennstoff bei Temperaturen oberhalb 700°C sollten deshalb die Kriechdaten von hochdichtem U0<sub>2</sub>-Pu0<sub>2</sub> verwendet werden.

#### Veröffentlichungen

- D.Brucklacher, W.Dienst
   Creep and Densification of UO<sub>2</sub> under Irradiation
   Intern.Conference on Nuclear Fuel Performance, London,
   Oct. 15 19, 1973
- (2) D.Brucklacher

Creep of Fissile Ceramic Materials unter Neutron Irradiation Intern.Conference on Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements, Berkeley/U.K., Sept. 2 - 7, 1973.

#### 112-34

1122.4 BR 2 Na-Loop-Versuche\*

1. Bündelbestrahlung Mol-7B (H. Elbel, D. Freund, IMF)

Während der Bestrahlung des 18-Stabbündels Mol-7B im 500 kW-Na-Loop des ER 2, in welchem SNR-300-spezifische Brennstäbe unter Heißkanalbedingungen erprobt werden, konnte bei einem Abbrand von ca. 40 MWd/kg M infolge Aktivitätsfreisetzung ein Defekt nachgewiesen werden. Da das Bündel bis zu einem Abbrand von 80 MWd/kg M weiterbestrahlt werden soll (Abbrand im Berichtszeitraum ca. 70 MNd/kg M), wurden mit Hilfe der ProgrammeSATURN-1 /1/ und PAUK /2/ theoretische Untersuchungen zur Schadensursache durchgeführt. Unter der Annahme, daß der aufgetretene Schaden durch die Betriebsweise des Reaktors hervorgerufen wurde, wurden Rechnungen mit der Bestrahlungsgeschichte bis zum Defektzeitpunkt durchgeführt. Hierbei stellte es sich heraus, daß durch die z.T. recht scharfen Anfahrbedingungen sehr hohe Kontaktdrucke und erhebliche Hüllrohrverformungen auftreten, welche zu einem Stabversagen führen können . Um den Zielabbrand ohne weitere Schäden zu erreichen, wurden für den weiteren Betrieb Anfahrbedingungen festgelegt, welche ab einer Reaktorleistung von 60 % Leistungssteigerungen von 7 %/h vorschreiben. Um nach Ausbau des Bündels mittels einer gezielten Schadensanalyse die Schadensursache ableiten und die theoretsichen Aussagen überprüfen zu können, wird von einer im Anschluß an die normale Bestrahlungszeit durchzuführenden zusätzlichen verschärften zyklischen Belastung zur Untersuchung von Schadenspropagation und -mechanismen, welche das aktuelle Bild verfälschen können, abgeraten.

2. Bündelexperiment Mol-7D (D. Freund, IMF; E. Baumgärtner, H. Hoffmann, IRB)

Bei den bisher durchgeführten Bündelexperimenten kamen ausnahmslos Brennstäbe mit Glattrohren zum Einsatz, welche mittels Abstandshalter zu Bündeln zusammengefaßt wurden. Nach Abschluß der Bestrahlung von Mol-7B wird im ER 2-Na-Loop ein 19-Stab-Bündel bestrahlt, in welchem Brennstäbe mit Rippenrohren zum Einsatz kommen. Die Erprobung des Rippenrohrkonzeptes beginnt

/1/ H. Elbel, F. Depisch; Reaktortagung Hamburg (April 1972)
/2/ A. Gerken; pers. Mitteilung
\*BzFE-Nr. 464.1

mit dem 6-Rippenrohr, da hier der technische Stand im Hinblick auf Herstellung und Prüfung am weitesten fortgeschritten ist. Als zukünftige Variante hat das 3-Rippenrohr infolge günstiger Temperaturverteilung und Druckabfall das größere Potential /3/. In nachfolgender Tabelle 3 sind die wesentlichen Auslegungsdaten dieses Bündels zusammengefaßt. Im Berichtszeitraum wurden der Aufbau der Brennstäbe sowie des Bündels bearbeitet (Abb. 16) und die thermo- und fluiddynamischen Berechnungen des Bestrahlungseinsatzes durchgeführt.

Brennstoff	UO <sub>2</sub> /PuO <sub>2</sub> -Tabletten PuO <sub>2</sub> -Anteil U-235 im U-Anteil Tablettendichte Tablettendurchmesser Dishing gesamt O/M-Verhältnis	30 Gew% 83 % 86,5 % 5,05 mm 2 Vol-% (beidseitig) 1,98
Hülle	Werkstoff-Nr. Außendurchmesser Glattr. Innendurchmesser Wandstärke Rippenhöhe Rippenbreite Rippensteigung Kopfkreisdurchmesser	1.4988 6,0 mm 5,2 mm 0,4 mm 0,95 mm 0,60 mm 600 7,90 mm
Brennstab	Gesamtlänge Brennstoffsäule Obere Brutstoffsäule	1085 mm 500 mm 288 mm
Betriebsbedingungen	Kühlmitteleintritt $T_e$ Kühlmittelaustritt $T_a$ Stableistung $\chi_{max,nom}$ Abbrand $A_{max}$ Bestrahlungszeit	400 °C 580 °C 550 W/cm 80 MWd/kg M ca. 8000 h Vollast

Tabelle 3: Auslegungsdaten des Bündel-Experimentes Mol-7D

/3/ KFK 1843, Mai 1973



### 1123 Bestrahlungen im schnellen Neutronenfluß

#### 1. Zerstörungsfreie Nachuntersuchung der Rapsodie-Stäbe\*

(D. Geithoff, IMF)

Die 68 Brennstäbe aus den beiden Rapsodie-Bündeln Nr. 102 und 103 wurden nach einer kurzen Prüfung in Cadarache zur Nachuntersuchung nach Karlsruhe transportiert. Hier wurde die Nachuntersuchung in den Heißen Zellen mit der Vermessung der Stabaußendimensionen eingeleitet.

Der Vermessung ging eine sorgfältige Reinigung der Staboberflächen voraus, nachdem im vergangenen Experiment bei längeren Lagerzeiten eine Außenkorrosion durch noch anhaftendes Alkalihydroxid beobachtet worden war. Außerdem erschwerte ein dunkler Belag an den heißen Stabenden die Vermessung, der bei dem Reinigungsprozeß entfernt wurde.

Die Meßtechnik wurde im Verlaufe der Arbeiten geändert. Anstelle der ursprünglichen schraubenförmigen Durchmesser-Abtastung (Wendelschriebe) wurde eine mehrfache Abtastung entlang der Zylinder-Mantellinien (Mantelschriebe), verbunden mit einer mehrfachen Umfangslinien-Messung (Polarschriebe) gestellt. Die neue Art der Vermessung ist besser geeignet, lokal begrenzte Durchmesserschwankungen sichtbar und auswertbar zu machen.

Insgesamt wurden bisher 23 Stäbe vermessen, davon 5 aus dem Bündel Nr. 102 mit dem Hüllmaterial 1.4988 und 18 aus dem Bündel Nr. 103 mit dem Hüllmaterial 1.4970.

Die Durchmesservergrößerungen an den 1.4988-Stäben waren ungewöhnlich hoch. Sie erreichten im Maximum mehr als 6,5 % des Ursprungswertes (Abb.17). Um einen eventuellen Meßfehler auszuschließen, wurden die Durchmesser zum Teil mit Hilfe von Mikrometer-Schrauben nachvermessen, wobei sich eine gute Übereinstimmung beider Methoden ergab. An den 1.4970-Stäben lagen die maximalen Durchmesservergrößerungen um 0,5 %. Hier zeigte sich jedoch ein Effekt, der bereits in /1/ qualitativ beschrieben wurde, nämlich die Weghselwirkung des Spaltcäsiums mit dem Material des Brutstoffes. In Abb. 18 ist der Außendurchmesser eines typischen Stabes dieser Gruppe zusammen mit seinem Cäsium-Konzentrationsprofil – gemessen als Aktivitätsprofil der 662 keV γ-Linie des Cs/Ba-137 – dargestellt. Die Zonen

<sup>/1/</sup> KFK 1273/2, S. 112-75 \*BzFE-Nr. 463.1

der jeweils ersten Brutstofftabletten oberhalb und unterhalbder Brennstoffsäule zeichnen sich durch eine extrem hohe Cäsium-Konzentration aus. An diesen Positionen finden sich beim Durchmesserprofil lokale Aufweitungen bis zu 30  $\mu$ m über dem allgemeinen Untergrund. Sie dürften mit großer Wahrscheinlichkeit auf die Wechselwirkung des Spaltcäsiums mit dem Brutstoff zurückgeführt werden, zumal auch Röntgen-Aufnahmen diese Zone als geschädigt zeigen und Ansätze einer Cs-Schädigung schon beim Experiment DFR-350 zu sehen waren. Es ist allerdings erstaunlich, daß die Höhender Aufweitungen am kalten und heißen Brennstoffsäulenende etwa gleich sind. Eine Abhängigkeit von der Stöchiometrie des Brennstoffes läßt sich in der Art erkennen, daß bei niederstöchiometrischem Brennstoff (0/Me = 1,965) im Durchschnitt eine größere Aufweitung beobachtet wird als bei Stöchiometriewerten um 0/Me = 2,00.



Durchmesser-Vergrößerung bei Stab AM-16



Abb. 18 Stabaufweitung als Folge einer Cs-Anreicherung

2. U0<sub>2</sub>-Pu0<sub>2</sub>-Brennstab-Bestrahlung im Trefoil-Einsatz DFR 304. Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben\*(K.Ehrlich, O.Götzmann, H.Hoffmann, H.Kleykamp, H.Zimmermann und W.Dienst, IMF)

Im Bestrahlungsversuch DFR-304 wurden drei UO<sub>2</sub>-20% PuO<sub>2</sub>-Brennstäbe (Brennstofflänge 360 mm) in einem sogenannten Trefoil-Einsatz bestrahlt, in dem sie durch strömendes NaK gekühlt wurden. Die Bestrahlung erfolgte im schnellen Neutronenfluss des Versuchsreaktors DFR (Dounreay) bei Stableistungen zwischen etwa 380 W/cm (am Stabende) und 500 W/cm (im Neutronenflussmaximum) bis zu einem maximalen Abbrand von 6,3 At.-% (U+Pu). Die maximale Brennstofftemperatur (im Stableistungsmaximum) kann bei Bestrahlungsbeginn oberhalb 2800°C gelegen haben; nach Ausbildung des Zentralkanals lag sie bei etwa 2500°C. Die Hüllinnenwandtemperatur lag zwischen 320 und 700°C (am "kalten" bzw. heissen Brennstabende).

Die erzeugten Spaltgase wurden in drei Stufen als freies Spaltgas (hier nur am Stab G 3), als in grossen Blasen zurückgehaltenes Spaltgas sowie als 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 gefundenen Spaltgasmengen liessen auf eine relativ hohe Spaltgasausbeute von 0,32 Gasatomen je Spaltung schliessen. Die Auswertung der Verteilung des zurückgehaltenen Spaltgases über die Brennstablänge ergab eine starke Temperaturabhängigkeit der Spaltgasrückhaltung bei niedrigen Brennstofftemperaturen unterhalb 1300°C. Das war der Anlass für die Einführung einer Tieftemperaturzone mit T <1000°C in eine schon früher veröffentlichte Formel für die Spaltgasrückhaltung in drei Brennstofftemperaturzonen. Diese Formel wurde jetzt vor allem durch die höhere Spaltgasausbeute, aber auch durch höhere Spaltgasrückhaltung für T <1000°C korrigiert.

Bei der Gefügeuntersuchung an Brennstabquerschnitten wurde die Grenze der Stengelkornzone bei einer berechneten Brennstoffbestrahlungstemperatur von 1680-1760<sup>°</sup>C gefunden. Sie stimmte mit der Grenze für die Ausheilung radialer Risse überein. Die Grenze der Kornwachstumszone lag bei etwa 1300<sup>°</sup>C. Die Untersuchung der Leervolumenverteilung erfolgte durch Ermittlung von Spaltbreiten, Rissbreiten und Zentralkanaldurchmessern sowie durch Vermessung der Porosität mit einem elektronischen Gefügebildanalysator. Ein neues Schliffpräparationsverfahren mit wasserfreiem Polier-

**\***<sub>BzFE-Nr. 462.8</sub>

mittel erwies sich als geeignet für quantitative Porositätsmessungen. Die Zuverlässigkeit der Messungen wurde durch eine Leervolumenbilanz (vor und nach Bestrahlung) geprüft. Die Messergebnisse wurden mit Berechnungen nach dem Brennstabverhaltens-Modell-Code SATURN verglichen (Abb. 19).Die stärkste Abweichung ergab sich durch die Verminderung der Herstellungsporosität in der äusseren, relativ kühlen Brennstoffzone unter Bestrahlung bis auf eine Restporosität von nur 3 bis 4%. Diese Restporosität ist jedoch von Anhäufungen neu erzeugter Poren überlagert, die wahrscheinlich durch Ausheilung tangentialer Risse entstanden. Hiermit und auch mit einer gewissen Verbreiterung radialer Risse am Brennstoffrand traten neue Effekte auf (im Vergleich zu früheren Versuchsgruppen), die anscheinend durch das Haften des Brennstoffes an der Hülle und durch das Hüllschwellen im schnellen Neutronenfluss verursacht sind.

Mit der Elektronenstrahl-Mikrosonde wurden die Uran-Plutonium-Entmischung im Brennstoff, die Verteilung und Phasenbildung der Spaltprodukte und die Hüllinnen- und-aussenkorrosion untersucht. Die Uran-Plutonium-Entmischung im radialen Temperaturgradienten führt zu einer Plutonium-Anreicherung am Zentralkanal, die am heissen unteren Ende der Brennstoffzone Werte bis zu 22% PuO, gegenüber ursprünglich 20% PuO, erreicht. Am heissen Ende des Zentralkanals werden mehrphasige oxydische Ba-Mo-Nb-V-Ausscheidungen beobachtet. Die radiale Verteilung des im Brennstoff gelösten Spaltprodukts Molybdän wurde bestimmt. Die Konzentration liegt unter 0,3% Molybdän. Aus den Untersuchungen zur radialen Abhängigkeit der im gesamten Brennstoff auftretenden Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Ausscheidungen ergibt sich in Übereinstimmung mit den Gefügeaufnahmen und den  $\beta$ - $\gamma$ -Autoradiographien ein Maximum der Ausscheidungsdichte im kälteren Bereich der Stengelkristallzone. Die radiale Konzentrationsabhängigkeit der Elemente in diesen Ausscheidungen wurde untersucht. Die Molybdän-Konzentration liegt dabei zwischen 31 und 36%. Telluride, Jodide und palladiumhaltige Phasen mit flüchtigen Spaltprodukten (Sn, Sb, Te) treten vorzugsweise in der Porositätszone und im Spalt auf. Cs- und Ba-Molybdat werden im gesamten Bereich des Spalts beobachtet, während Cs-Chromate, -Uranate und -Plutonate nur im kälteren Teil des Stabes im Spalt und im Brennstoff in der Nähe der Oberfläche gebildet werden. Die chemische Reaktion mit der Brennstabhülle ist in der Umgebung des Überganges Brennstoff-Brutstoff am deutlichsten ausgeprägt, mög-



Abb. 19: Radiales Porositätsprofil in einem Brennstabquerschnitt, gemessen und für verschiedene Gasschwellraten berechnet. Abbrand etwa 5,5% (U+Pu)

licherweise durch verstärkten Sauerstofftransport aus dem Brennstoff-Zentralkanal. Die Elemente Cs, Mo, Pd und Te sowie eine Chrom-Anreicherung konnten in den Korngrenzen der Hülle nachgewiesen werden (Abb. 20). Eine Korrosion an der Aussenseite der Hülle durch das Na-K-Kühlmittel wurde nicht festgestellt.

Die mikroskopische Schliffbilduntersuchung der chemischen Reaktion zwischen Brennstoff und Hülle zeigte, dass sich erst bei Hüllinnentemperaturen oberhalb 550°C nennenswerte Eindringtiefen des Hüllangriffes ergeben hatten. Der stärkste Hüllangriff am heissen Brennstabende (in der Nähe des Übergangs Brennstoff/Brutstoff) erreichte eine Tiefe von 100 – 110 µm. Das Maximum lag jedoch nicht unmittelbar am Übergang Brennstoff/ Brutstoff. Daraus wurde geschlossen, dass die oxydischen Reaktionsprodukte möglicherweise bei sehr hoher Hüllinnentemperatur ( $\gtrsim700°$ C) instabil werden. Der Reaktionsmechanismus führte vorzugsweise zu einem Korngrenzenangriff, durch den die einzelnen Kristallite aus dem Gefüge des Hüllmaterials herausgelöst wurden. Die Hülltemperaturen, die bestimmten Hüllangriffstiefen zugeordnet waren, lagen um etwa 50°C höher als bei der früher untersuchten Versuchsgruppe Mol 7A.

Mit Hilfe der Durchstrahlungselektronenmikroskopie sowie von Durchmesserund Dichtemessungen wurde das Schwellverhalten des Hüllmaterials, eines 16 Cr-13 Ni-Nb stabilisierten Stahles der Werkstoffnummer 1.4988, studiert (Abb.21). Das Hüllmaterial wurde in einem Temperaturbereich von  $300 - 650^{\circ}$ C Neutronendosen von 3,3 bis 4,0x10<sup>22</sup> n/cm<sup>2</sup> (E >0.1 MeV) ausgesetzt. Porenbildung wurde bei Temperaturen zwischen 360 und 610°C beobachtet. Die Poren-Konzentrationen sind bei den niedrigeren Bestrahlungstemperaturen (<480°C) durchaus vergleichbar mit den in den nichtstabilisierten Stählen AISI 304 und 316 gefundenen Werten, nehmen bei höheren Temperaturen jedoch sehr viel stärker ab (Abb.22). Mittlere und maximale Porendurchmesser durchlaufen ein ausgeprägtes Maximum bei etwa 530<sup>0</sup>C. Die Abnahme der Durchmesser bei höheren Temperaturen kann erklärt werden durch die Ergebnisse von Ausheilversuchen. Sie zeigen, dass "Poren", wie sie z.B. bei 610°C beobachtet werden, sich eher wie durch Helium stabilisierte Bläschen verhalten. Das hier vorliegende Ergebnis deutet auf ein günstigeres Schwellverhalten des Stahls 1.4988 gegenüber dem AISI 316 bei hohen Einsatztemperaturen hin. Es ist allerdings nicht auszuschliessen,



Abb. 20: Konzentrationsprofil der Elemente über zwei senkrecht zur Hülloberfläche verlaufende Korngrenzen



Abb. 21: Vergleich der mit verschiedenen Methoden gemessenen Hüllrohr-Volumenzunahme unter Bestrahlung als Funktion der Hülltemperatur



Bestrahlungstemperatur (°C)

Abb. 22: Aus elektronenmikroskopischen Porositätsmessungen errechnete Schwellung der Stähle 1.4988 und AISI 316 bei gleichen Neutronendosen (entspr. DFR 304)

dass in diesem Temperaturbereich die Porenbildung erst bei höherer Neutronendosis einsetzt, so dass für eine endgültige Beurteilung erst Bestrahlungen mit sehr viel höheren Neutronendosen aussagekräftig sind. Im Bereich von T  $\geq 610^{\circ}$ C ist die gemessene Hüllrohraufweitung nicht durch Porenbildung erklärbar.

#### Veröffentlichung:

K.Ehrlich, O.Götzmann, H.Hoffmann, H.Kleykamp, H.Zimmermann und W.Dienst UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstab-Bestrahlung im Trefoil-Einsatz DFR-304. Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben. KFK 1864, Januar 1974. 112-48

1124 Brennstäbe mit karbidischem Brennstoff

1124.11 Herstellung im Labormaßstab

1.Karbid - Arbeitslinie <sup>9</sup>

(E. Günther, R. Hanselmann, J. Heger, IMF)

Der Aufbau der UC-PuC-Arbeitslinie wurde abgeschlossen. Sie besteht aus fünf Boxengruppen, die mit je einer Gasreinigungsanlage betrieben werden. In den hochdichten Edelstahlboxen wird bei einem geringen Unterdruck unter Schutzgas gearbeitet, um möglichst reine Karbide zu erhalten; denn die herzustellenden Pu-haltigen Brennstofftabletten sind während einiger Verfahrensschritte pyrophor und reagieren sehr leicht mit Sauerstoff und Wasser.

Die nach dem Umwälzverfahren arbeitenden Gasreinigungsanlagen entfernen mit Hilfe von Katalysatoren (für Sauerstoff) und Absorbern (für Wasser) die in der Inertgasatmosphäre der Handschuhkästen durch Leckagen auftretenden Verunreinigungen. Als Schutzgas kann wahlweise Argon oder Helium oder ein Gemisch aus beiden benutzt werden. Dieses wird kontinuierlich in jeder Box auf Wasser und Sauerstoff analysiert, und die Meßwerte werden registriert; gleichzeitig dient diese Überwachung der sofortigen Erkennung von Undichtigkeiten in den Boxen und dem Rohrleitungssystem.

Die Druckverhältnisse in den einzelnen Boxengruppen werden durch eine elektrische Druckregelung innerhalb eines bestimmten Unterdruckbereiches konstant gehalten. Bei Überschreitung der eingestellten Minimal- bzw. Maximalwerte wird durch eine Sicherheitsschaltung die jeweilige Anlage abgeschaltet und ein Alarm ausgelöst.

Unabhängig von ihrer Gasreinigungsanlage kann jede Boxengruppe durch eine sogenannte Hilfsspülung im Durchströmungsverfahren betrieben werden. Hierbei werden die Handschuhkästen kontinuierlich mit Schutzgas gespült, das von einer Gasversorgungseinheit kommt und in die Abluft geführt wird. Der Unterdruck in den Boxen wird bei dieser Betriebsart durch mechanische Regelventile in einem bestimmten Bereich aufrechterhalten. Für die Sicherheit sorgen eine elektrische und eine hilfsenergieunabhängige (Behälter mit Sperrflüssigkeit) Über-Unterdruckregelung.

1) Erster Bericht

Die fünf Boxengruppen bilden in sich abgeschlossene Einheiten, die hinsichtlich des Schutzgasbetriebes aus Sicherheitsgründen völlig voneinander abgetrennt werden können. Die erste Gruppe besteht aus Preß- und Meßbox; hierbei wurde das Werkzeuggrundgestell einer hydraulischen Pulverpresse in einen Handschuhkesten eingesetzt, so daß unter Schutzgas Brennstoffpulver-Graphit- Mischungen kompaktiert und Karbid-Pulver verpreßt werden können. Da man bestrebt ist, bindemittelfrei zu verdichten, wird mit einer automatischen Matrizenschmierung gearbeitet. Dabei ist es möglich, im Handbetrieb oder halbautomatisch zu pressen. Diese Box steht über ein Transportband mit Wagen mit der Meßbox in Verbindung. Darin befinden sich Analysenwaagen, Meßuhren und -Tische sowie weitere Hilfsmittel zur Bestimmung der Geometrie und Dichte von Preß- und Sinterkörpern. Außerdem besitzt diese Box eine evakuierbare Schleuse zum Einschleusen von nichtkontaminiertem Material für die gesamte Arbeitslinie.

Die zweite Boxengruppe setzt sich aus Pulver- und Ofenbox zusammen. In ersterer werden Brennstoffpulver-Kohlenstoffmischungen homogenisiert und die Karbidpulver auf verschiedene Teilchengrößen gebrochen, gemahlen und gesiebt. Sie enthält einen Mischer, eine Planetenmühle und eine Siebmaschine. In der Ofenbox werden die kompaktierten Oxidpulver-Graphit-Mischungen zum Karbid umgesetzt und die karbidischen Preßkörper in einem widerstandsbeheizten Hochtemperatur-Vakuum-Ofen bei Temperaturen um 1700 <sup>o</sup>C dicht gesintert. Der Ofen besitzt eine Programmregelung und kann wahlweise mit Graphit- oder Wolfram-Heizelementen ausgerüstet und betrieben werden.

Die nächste Boxengruppe besteht aus einer Brennstofflager- und Sortierbox und einer sich daran anschließenden inaktiven Füllbox. Hier werden von der Sortierbox aus über eine Füllvorrichtung die Brennstäbe mit den zu Säulen gelegten Tabletten bestückt.

Es schließt sich die Analytikgruppe an,die aus einer Wägebox und der Analysenbox selbst besteht. Hier wird der Kohlenstoffgehalt der karbidischen Brennstoffe coulometrisch bestimmt und in einem Heißextraktions-Elektrodenofen Wasserstoff, Sauerstoff und Stickstoff gaschromatografisch analysiert. Eine weitere Handschuhkastengruppe ist für die Herstellung der Natriumbindung zwischen Brennstoff und Hülle und zur Prüfung auf Verunreinigungen im Natrium installiert worden. Die gesamte Karbid-Arbeitslinie wurde funktionsmäßig erprobt und in Betrieb genommen. Schutzgasumwälzung, Hilfsspülung und Sicherheits- und Kontrolleinrichtungen arbeiten zufriedenstellend, ebenso Maschinen, Geräte und Apparaturen für die Brennstoffherstellung. Inzwischen konnte eine erste Serie von UC-Tabletten hergestellt werden.

# 2. Erste Versuche zur Abgabe von CO und CO<sub>2</sub> bei der Karboreduktion (W. Laub, D. Vollath, IMF)

Nach dem Abschluß der in /1/ und /2/ beschriebenen Vorversuche wurde die dort beschriebene Thermowaage in eine Plutonium-Box eingebaut. Der Einbau in die Plutonium-Box brachte keine allzu großen neuen Schwierigkeiten. Wesentlich erhöht hat sich die Anfälligkeit des Wägesystems gegenüber äußeren mechanischen Einflüssen, da der Handschuhkasten wie ein Membran Druckschwankungen in mechanische Schwingungen umwandelt. Dadurch hat sich die Genauigkeit des Systems von  $\pm$  4 µg auf etwa  $\pm$  15 µg verschlechtert. Dies hat keine nachteiligen Auswirkungen auf die Experimente, da eine so hohe Empfindlichkeit nicht notwendig ist.

Vor dem ersten Einschleusen von plutoniumhaltigem Material wurde noch ein Massenspektrometer eingebaut und getestet. Mit diesem Massenspektrometer soll die Abgabe von CO und  $CO_2$  während der Reaktion verfolgt werden. Die Abb. 23 zeigt die Umsatz-Temperaturkurve eines Versuches, bei dem mit einer Einwaage von 270 mg gearbeitet wurde. Die Aufheizgeschwindigkeit betrug 1,5 °C/min. Außer der Umsatzkurve sind noch die Kurven für den Verlauf des Totaldruckes sowie des CO- und  $CO_2$ -Partialdruckes dargestellt. Man sieht, daß bei der ersten Stufe der Reaktion zwischen 600 und 700 °C vorwiegend  $CO_2$  freigesetzt wird. Bei den weiteren Reaktionsstufen wird vorwiegend CO freigesetzt. Der  $CO_2$ -Anteil in dieser Stufe ist aber nicht vernachlässigbar. Dieses Verhalten muß man bei der Einwaage für die Karboreduktion berücksichtigen.

/1/ KFK 1273/2, S. 112-84 /2/ KFK 1273/3, S. 112-39



Abb. 23

Y.Sarikaya, IMF)

Als Schnell-Brüter Reaktorbrennstoff wird immer noch ein U,Pu-Mischoxid bevorzugt. Man weiss jedoch, dass die Verwendung dieses Brennstoffes wegen der schlechten Verträglichkeit mit der Hülle Probleme mit sich bringt. Für die schlechte Verträglichkeit beim Oxidstab sind die Spaltprodukte und die Sauerstofffreisetzung während der Bestrahlung verantwortlich. In den Reaktionszonen der Brennstabhüllen, bei denen ein stärkerer Angriff zu verzeichnen ist, werden neben den Komponenten der Hülle auch immer Spaltprodukte gefunden. In Simulationsversuchen out-of-pile hat sich gezeigt, dass besonders die Spaltprodukte Cs, J und Te sich als reaktiv mit der Hülle erweisen. Reaktionen in nennenswertem Umfang treten nur auf bei einem Sauerstoffpotential im Brennstab, das einem O/M-Verhältnis des Brennstoffs von 2,00 oder mehr entspricht [1].

Beim carbidischen Brennstoff ist die Situation in Bezug auf das Verträglichkeitsverhalten mit Stahlumhüllungen etwas anders. Die wenigen bisher gewonnenen Ergebnisse aus Nachbestrahlungsuntersuchungen von Carbidbrennstäben haben keinen durch Spaltprodukte verstärkten Hüllangriff erkennen lassen. Unsere Simulationsversuche mit carbidischem Brennstoff, dem Spaltprodukte zugemischt worden waren, haben deutlich gezeigt, dass die Spaltprodukte bei den chemischen Wechselwirkungen zwischen Brennstoff und Hülle in einem Carbidstab keine Rolle spielen. Cäsium, das in einem oxidischem Brennstab als das wohl gefährlichste Spaltprodukt im Hinblick auf den Hüllangriff angesehen werden kann, hat in Verbindung mit carbidischem Brennstoff keine Chance, da das Sauerstoffpotential für die Cs-Stahl-Reaktionen zu tief ist. Tellur und auch Jod, wenn es zusammen mit Cäsium eingesetzt wird, führen zu keinem Angriff der Umhüllungen von carbidischem Brennstoff. Demnach ist die Aufkohlung die einzige kritische chemische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle, die in einem Carbidstab zu erwarten ist [2,3].

<sup>[1]</sup> O. Götzmann, P. Hofmann, KFK 1619 (1972)

<sup>[2]</sup> s. "Veröffentlichung"

<sup>[3]</sup> P.Hofmann, O.Götzmann, KFK 1718 (1973)

Die Aufkohlung beeinflusst in starkem Masse die mechanischen Eigenschaften des Hüllmaterials. Aus diesem Grunde wurden Glühungen von Flachzerreissproben in Kontakt mit carbidischen Brennstoffen durchgeführt und die mechanischen Eigenschaften nach der Glühung gemessen. Die Messung der mechanischen Eigenschaften nach Unverträglichkeitsreaktionen ist sowohl eine empfindliche Methode zum Nachweis von chemischen Wechselwirkungen wie auch zur Darstellung des Einflusses, den diese Wechselwirkungen auf das Betriebsverhalten des Hüllmaterials haben.

Bei den Versuchen wurden als Hüllmaterialien verschiedene austenitische Stähle (Typ 1.4988, AISI 316 und 304) sowie Vanadinbasislegierungen eingesetzt. Als Brennstoffe wurden Urancarbid mit verschiedenen Kohlenstoffgehalten sowie Urancarbonitrid verwendet. Gasbindung (Argon) wie auch Metallbindung (Natrium) wurden angewendet. Nach der Glühung wurden die Proben bei Raumtemperatur und Glühtemperatur bis zum Bruch belastet.

Einen grossen Teil des Effekts, den die Aufkohlung auf die mechanischen Eigenschaften haben kann, wird schon nach einer relativ kurzen Zeit erreicht ( $\sim 200$  h). Am stärksten werden die mechanischen Eigenschaften beeinflusst, wenn die Glühung bei  $600^{\circ}$ C stattfindet. Bei höheren Temperaturen kommt es zu einer Agglomeration bzw. Auflösung der Ausscheidungen. Bei  $500^{\circ}$ C ist die Reaktionsgeschwindigkeit offensichtlich noch zu gering, um eine stärkere Aufkohlung zu verursachen. Die Abnahme der Duktilität ist beim Stahl vom Typ 1.4988 bei  $600^{\circ}$ C geringer als beim Stahl vom Typ 316. Für beide werden jedoch ähnliche Werte erreicht. Natriumbindung scheint nur bei höheren Temperaturen eine Bedeutung für die Aufkohlung der Hülle zu haben (Abb.24).

Auch bei höheren Prüftemperaturen ist die Abnahme der Duktilität beim 316-Stahl grösser als beim 1.4988-Stahl. Für beide Stähle wurden aber noch Bruchdehnungswerte von über 10% für die Glühung und Prüfung bei 600<sup>°</sup>C, der offensichtlich kritischsten Temperatur, gemessen. Im allgemeinen erhöhten sich die Festigkeitswerte nach Glühung in Kontakt mit UC. Besonders die merkliche Erhöhung der Dehngrenze sollte eher als positiver Effekt der chemischen Wechselwirkung mit dem Brennstoff betrachtet werden (Abb.25).

Der Kohlenstoffgehalt des Brennstoffes wirkt sich ebenfalls auf die mechanischen Eigenschaften der Hülle aus. Es konnte eine kontinuierliche Abnahme der Bruchdehnung mit steigendem Kohlenstoffgehalt des Brennstof-

Die Aufnahme an Kohlenstoff durch die Stähle nahm mit der Temperatur zu. Die Aufhärtung war nach Glühung bei 600<sup>°</sup>C jedoch am stärksten (Abb.27).

Auch für Vanadinbasislegierungen scheint 600<sup>°</sup>C die kritische Temperatur zu sein, sofern die Verträglichkeit mit dem carbidischen Brennstoff in Betracht gezogen wird. Nach der Glühung der beiden Legierungen VTi3Sil und VTi2Cr15 in Kontakt mit überstöchiometrischem Urancarbid konnte im Zerreissversuch bei Raumtemperatur praktisch keine bleibende Dehnung mehr gemessen werden. Die Festigkeitswerte waren jedoch noch hoch. Nach der Glühung bei 800<sup>°</sup>C ist zumindest für die Legierung VTi3Sil noch eine nennenswerte Dehnung gemessen worden. Die Hochtemperaturduktilität ist für beide Legierungen noch gut.

#### Veröffentlichungen

(1) P. Hofmann

Untersuchungen zum Reaktionsverhalten von austenitischen Stählen mit simulierten Spaltprodukten in Gegenwart von UC KFK 1832, Oktober 1973

(2) O. Götzmann, P. Hofmann, Y. Sarikaya Mechanical Properties of Cladding Materials after Annealing with Carbide Fuels Fuel and Materials Specialist Meeting of the Coordinating Group on

Gas Cooled Fast Reactor Development, Würenlingen, Okt. 24.-25,1973.



Abb. 24: Raumtemperatur-Eigenschaften von Stahl 1.4988 nach Glühung mit überstöchiometrischem UC



Abb. 25: Hochtemperatur-Eigenschaften von Stahl 1.4988 nach Glühung mit überstöchiometrischem UC





stoffaufnahme des Stahls

#### 1124.3 Bestrahlungsexperimente an Karbid-Brennstoffen

<u>Mikrosonden-Nachuntersuchungen an (U,Pu)Karbid-Prüflingen des Bestrahlungs-</u> experiments FR2-Loop 4a<sup>C</sup>

(H. Kleykamp, H.D. Gottschalg, IMF)

Die Mischkarbid-Bestrahlung der Versuchsgruppe Loop 4a stellt den ersten im Reaktor FR2 abgeschlossenen Karbid-Bestrahlungsversuch dar, der zum Verständnis des Anfahr- und Lastwechselverhaltens sowie des zeitlichen Temperaturverlaufs im Zentrum und im Spalt der acht Prüflinge in der ersten Abbrandphase beitragen soll /1/. Ein Teil der Nachuntersuchungen besteht aus der Elektronenstrahl-Mikrosondenanalyse des Prüflings L 4/6 mit dem abgeschirmten Gerät Cameca MS 46. Die ausgewählte Probe 2 ist ein Querschliff aus der Mitte dieses Prüflings in Höhe der ursprünglichen Thermoelementspitze.

Der Brennstoff U<sub>0,85</sub>Pu<sub>0,15</sub>C mit U-nat sowie etwa 2% (U,Pu)<sub>2</sub>C<sub>3</sub> und < 0,45% O hat einen Durchmesser von 8,65 mm und ist mit dem rostfreien Stahl 1.4988 umhüllt. Die Stableistung betrug maximal 1000 W/cm bei einem Abbrand bis zu 0,2% und einer gemessenen Hüllaußentemperatur von etwa 500 °C. Während des Anfahrvorgangs hatte die Thermoelementanzeige in diesem Prüfling ausgesetzt. Aus den keramographischen Untersuchungen folgt, daß das zentrale W-Re-Thermoelement mit dem Brennstoff reagiert und eine starke Uran-Plutonium-Entmischung stattgefunden hat. Das Thermoelement-Material W und Re hat mit dem Brennstoff eine komplexe Phase gebildet, das Reaktionsprodukt ist an der Berandung der zentralen Bohrung im Gefügebild (Abb. 28) als weiße Ausscheidung und in der  $\alpha$ -Autoradiographie (Abb. 29) als dunklerer Saum erkennbar. Die Mikrosondenanalyse ergibt: Die Ausscheidungen enthalten die Elemente U, Pu, W, Re und C; das U/Pu-Verhältnis in den Ausscheidungen ist mit 89/11 höher als in der Karbid-Matrix mit 85/15; die Kohlenstoff-Konzentration in den Ausscheidungen beträgt etwa 2%; in der Karbid-Matrix sind < 1% Re und bis zu 2,8% W gelöst, dieser Wert kommt der maximalen W-Löslichkeit von 3,2% W bei 2100 °C nahe.

/1/ P. Weimar, in KFK 1273/3, S. 112-42

 $(U,Pu)C + (W,Re) = (U,Pu) \cdot (W,Re)C_{2-x} + Schmelze$ 

aufgetreten, die im System U-Pu-W-C bei 2100<sup>°</sup>C beobachtet wird. Die Schmelze wandelt sich während der schnellen Abkühlung in (U,Pu)C, Uran-Plutonium und Wolfram-Rhenium um. Die flüssige (U,Pu)-Legierung muß dabei reicher an Plutonium als die (U,Pu)-Matrix sein, weil das ausgeschiedene Komplexcarbid uranhaltiger ist. Plutonium kondensiert infolge des höheren Dampfdrucks bevorzugt im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle, und zwar nahezu ohne Gegenwart von Uran, während dieses Element in der Nähe der ursprünglichen Brennstoffoberfläche mit fast 90 % Uran in der Mischcarbid-Matrix angereichert zurückbleibt (Abb.30). Es ist möglich, daß diese starke Uran-Plutonium-Entmischung erst während des Abkühlvorgangs eingetreten ist. Da das eingesetzte Mischcarbid überstöchiometrisch ist, kann sich auch unterhalb der Peritektikale ein Komplexcarbid durch Reduzierung des Mischcarbids zum Monocarbid bilden.

Die im Spalt abgeschiedene Phase ist vorwiegend plutoniumhaltig. Wie weit es sich um Carbid- oder Oxidcarbid-Phasen handelt, wurde nicht untersucht. Diese Phasen liegen an der Hülle dicht an. An der Hülloberfläche hat sich eine etwa 4 µm dicke Chrom-Anreicherung mit einer entsprechenden Eisen-Nickel-Verarmung gebildet. Diese Schicht hat offensichtlich oxidischen Charakter. Der Sauerstoff entstammt dem stark verunreinigten Brennstoff und wurde im Temperaturgradienten zur Hülle transportiert.

In Auslegungsrechnungen wurde für eine Stableistung von 1000 W/cm, Ar-Bindung, einen 125 µm Radialspalt und eine Wärmeübergangszahl von 0,3 W/cm·K eine Zentraltemperatur von 2110°C bestimmt. Diese Temperatur ist für den Betrieb zu hoch. Bei der Auslegung muß berücksichtigt werden, daß bereits bei etwa 2100°C eine peritektische Reaktion des Brennstoffs mit dem Thermoelement-Material auftritt und auch unterhalb dieser Temperatur überstöchiometrisches Mischcarbid mit W-Re zu einem Komplexcarbid reagieren kann.

Mikrosondenuntersuchungen s. auch unter 1123.2 (S.112-41).


Abb.29 α-Autoradiographie, die weiße Spur entspricht dem Profil in Abb.30 (Vergr. 5x)



Abb. 28 Gefüge des aufgeschmolzenen Prüflings (Vergr. 5x)



Abb.30 Radiales Uran- und Plutonium-Profil. Im zentralkanalnahen Bereich liegt eine (U,Pu)·(W,Re)C<sub>2-x</sub>-Phase vor, deren Pu-Konzentration etwa 5 % beträgt, im Spalt befindet sich fast uranfreie, stark plutoniumhaltige Phasen (Oxidcarbid), die an der Hülle direkt anliegen









#### 113 MATERIALUNTERSUCHUNG UND -ENTWICKLUNG

1131 Materialuntersuchungen an technischen Legierungen

# 1131.1 Mechanische und physikalische Eigenschaften von Hüllmaterial \* (L. Schäfer, M. Schirra, IMF)

An Rohrproben (6 x 0,38 mm) aus dem Stahl 1.4981 wurde in einachsigen Kriechversuchen bei 700°C der Einfluß der Kaltverformung auf das Zeitstand- und Kriechverhalten dieses Werkstoffes untersucht. Die Rohre (Charge 70 015) 1agen in den folgenden Zuständen vor:

a)	lösungsgeglüht		Chg.	70	015	
ь)	13%	kaltverformt			11	
c)	18%	_**_			87	

Die bisher ermittelten Standzeiten und Kriechgeschwindigkeiten sind in den Abb. la und b in Abhängigkeit von der jeweiligen Spannung aufgetragen. Erwartungsgemäß liegt die Zeitstandfestigkeit der kaltverformten Zustände über der des lösungsgeglühten Zustandes. Allerdings zeigt sich bei dem 13% k.v. Zustand ein stärkerer Abfall der Zeitstandfestigkeit mit zunehmender Versuchszeit, sodaß bei Zeiten > 5000 Std. die Werte für den lösungsgeglühten und kaltverformten Zustand praktisch gleich sind. Dagegen liegen die Zeitstandfestigkeitswerte des 18% kaltverformten Zustandes auch bei Zeiten > 5000 Stunden erheblich über denen der beiden anderen Zustände. Diese unterschiedliche Spannungsabhängigkeit kommt auch deutlich in den Werten für die sekundäre Kriechgeschwindigkeit  $\hat{\epsilon}$  zum Ausdruck (Abb. 1b).

Bei der Analyse der durch induktive Wegaufnehmer kontinuierlich registrierten Kriechkurven stellt man fest, daß die längeren Standzeiten des 18% k.v. Zustandes gegenüber dem 13% k.v. Zustand auf einen stärker ausgeprägten sekundären und vor allem tertiären Kriechbereich zurückzuführen sind. Die 0,5- und 1,0%-Zeitdehngrenzen liegen, wie die Abb. 2a und b zeigen, bei dem 18% k.v. Zustand etwas niedriger als bei dem 13% k.v. Zustand, was nach den obigen Ausführungen aber nicht im Widerspruch zu den Werten der Zeitstandfestigkeit steht.

BzFE-Nr. 221.1





Die Bruchdehnungswerte des lösungsgeglühten Zustandes fallen von ~28% (  $*10^2$  Std) auf ~ 14% (>10<sup>3</sup> Std) mit der Standzeit ab.Bei dem 13% k.v. Zustand liegen sie zwischen 2 und 4% und bei dem 18% k.v. Zustand zwischen 9 und 13%. Es wird z.Zt. untersucht, welches die Ursachen für das unerwartete Verhalten der 18% kaltverformten Rohre sind.

Es wurde der Einfluß einer Innenkorrosion durch simulierte Spaltprodukte (Cs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>) auf die Zeitstandeigenschaften von Rohren unter Innendruck geprüft. Die im KFK-Bericht Nr. 1273/2 (S. 112-34 bis 40)beschriebenen Rohre aus den Stählen 1.4970 (Chg. 8-29052) und 1.4981 (Chg. HV 139) wurden bei einer Prüftemperatur von 700°C und Innendrücken, die zu Standzeiten bis 500 h führten, eingesetzt. Die Zeitstandfestigkeit der Rohre wurde durch die Innenkorrosion in der Weise beeinträchtigt, daß der Teil der Rohrwand, der in der metallographischen Untersuchung an den Korngrenzen Korrosionsprodukte aufwies, keinen Beitrag mehr zur Festigkeit des Rohres liefert und demnach bei der Festigkeitsberechnung vollständig von der Rohrwanddicke abgezogen werden muß. Die Bruchdehnung war beim Stahl 1.4970 unverändert und beim Stahl 1.4981 stark erniedrigt.

#### 1131.3 R

Rohrprüfung und Brennstabprüfung<sup>\* 1)</sup> (0. Jacobi, R. Scherwinsky, IMF)

Für die Bestrahlungsexperimente Mol-8D, Mol-11/K3 und Mol-16 wurde bei der geometrischen Vermessung eine neue Methode der Stab-Kennzeichnung eingeführt, die vor und nach der Bestrahlung eine exakte Zuordnung von Meßdaten zuläßt. Der untere Endstopfen trägt eine punktförmige Markierung. Diese Markierung stellt für die Längen- und Winkelkoordinaten den Nullpunkt dar. Wenn man den Brennstab von unten betrachtet, ist die positive Winkelzählrichtung linksdrehend. Abb. 3 zeigt den Beginn des Außendurchmesserdiagramms des einseitig verschweißten Stabes Mol-16/C. Rechts neben den Eichmarken ist mit  $\Upsilon = 0^{\circ}$  und  $\mathcal{L} = 0$  mm der Beginn der Messung, welcher mit der punktförmigen Markierung identisch ist, zu sehen. Während die untere Schreibspur den Verlauf des Außendurchmessers wiedergibt (Wendelschrieb), zeigt die obere an, wann die Meßspindel und somit auch der Brennstab die 0°-Winkelposition wieder erreicht haben.

**\*** BzFE-Nr. 926.0 1)Zuletzt berichtet in KFK-Bericht 1273/2



Abb. 3 : Wendelschrieb: Hüllrohr einseitig verschweißt

#### 1131.4 Bestrahlungsversuche

# Mechanische Eigenschaften nach Bestrahlung (L. Schäfer, C. Wassilew, IMF)

Die Zeitstand- und Kriechuntersuchungen an Proben der Stähle 1.4970, 1.4981 und 1.4988 aus dem Bestrahlungsprogramm DFR 397 (max. Neutronenfluenz  $8,3 \times 10^{22} n/cm^2$ ) wurden in vollem Umfang weitergeführt. Da die Bestrahlungstemperatur für die meisten Proben um  $600^{\circ}$ C lag, erfolgen auch die Zeitstandversuche zum überwiegenden Teil bei  $600^{\circ}$ C. Die bei dieser Temperatur bestehende Überlagerung verschiedener Einflußgrößen (Helium, Poren, Versetzungsringe) in Verbindung mit werkstoffspezifischen Eigenschaften und Unsicherheiten in der Bestrahlungstemperatur erschwert die Interpretation der bisher vorliegenden Ergebnisse. Auffallend sind insbesondere die Unterschiede in den Nachbestrahlungseigenschaften von Proben eines und desselben Stahles aus verschiedenen Bestrahlungspositionen, obwohl Bestrahlungstemperatur und Neutronendosis nach den vorliegenden Rechnungen und Messungen etwa gleich sein sollten.

\* BzFE-Nr. 223.2, 225.1

Unter den vier verschiedenen Werkstoffzuständen, in denen der Stahl 1.4970 im DFR 397-Programm eingesetzt war, zeigt der Zustand lösungsgeglüht + ausgelagert + kaltverformt wie auch nach einer BR2-Bestrahlung (Mol 3 B/2) wieder die besten Nachbestrahlungseigenschaften. Die Tatsache, daß alle Werte des Stahles 1.4970 niedriger liegen als bei früheren Untersuchungen, ist vermutlich zumindest teilweise auf einen Chargeneinfluß zurückzuführen.

Im Berichtszeitraum wurde mit der Untersuchung der Proben aus dem Bestrahlungsprogramm Mol 3 B/5 begonnen, in dem die Stähle 1.4981 und 1.4988 im kaltverformten Zustand bei etwa  $640^{\circ}$ C bis zu Neutronenfluenzen von 8,9 x  $10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> (E > 0,1 MeV) bestrahlt wurden.

Im Rahmen der Nachbestrahlungsuntersuchungen von Stabbestrahlungsexperimenten wurden in Zeitstand- und Zugversuchen die mechanischen Eigenschaften von Brennstababschnitten aus dem Bestrahlungsexperiment DFR 350 weiter untersucht. Die Zeitstandversuche ergaben, daß die Brennstäbe am heißen Stabende infolge Innenkorrosion erheblich geschädigt sind, wobei die Zeitstandfestigkeit des Stahles 1.4988 höher ist als die des Stahles 1.4961.

#### 2. Mechanische Eigenschaften bei Bestrahlung\*

(K. D. Cloß, IMF)

Aus dem Projekt <u>Mol 2</u> ist die Bestrahlung der Einsätze 34 bis 37 abgeschlossen. In diesen Einsätzen wurde der Werkstoff Nr. 1.4981 (Ch. 70015) in den Zuständen lösungsgeglüht +  $\leq$  7% kaltverformt und lösungsgeglüht + 15% kaltverformt bei 615°C und 720°C bestrahlt. Dabei traten maximale Versuchszeiten von 1800 h auf, was einer Dosis schneller Neutronen (E > 0,1 MeV) von etwa 3 x 10<sup>21</sup> n/cm<sup>2</sup> entspricht. Die Nachuntersuchung der Einsätze 34 und 35 wurde bereits durchgeführt.

Bei dem nur schwach kaltverformten Material führt die Neutronenbestrahlung zu einer Abnahme der Standzeit um den Faktor 4 bei 615<sup>o</sup>C und um den Faktor 2,5 bis 3 bei 720<sup>o</sup>C. Die Bruchdehnungen der bestrahlten Proben liegen zwischen 1,1 und 1,5%, während für das unbestrahlte Material Bruchdehnungen um 8% bei 600<sup>o</sup>C und um 20% bei 700<sup>o</sup>C gemessen wurden. Diese Ergebnisse stehen in Einklang mit früheren Untersuchungen am Werkstoff Nr. 1.4981 aus

\* BzFE-Nr. 222.1

Die 15% kaltverformten Rohre zeigen eine bedeutend stärkere Abnahme der Zeitstandfestigkeit durch die Neutronenbestrahlung. Bei einer Bestrahlungstemperatur von 615°C wird die Standzeit um den Faktor 10 und bei 720°C um den Faktor 5 reduziert. Während bei den unbestrahlten Proben bei 600°C und 700°C Bruchdehnungen über 1% gemessen wurden, lagen die Werte für die bestrahlten Proben zwischen 0 und 0,2%. Bei 720°C und Standzeiten über 100 h steigt jedoch die Bruchdehnung auf Werte von 0,7% an, was unter Umständen auf eine Erholung oder Rekristallisation hindeutet. - Erste Versuchsergebnisse am kaltverformten 1.4981 aus den Bestrahlungsprojekten Mol 3 B/5 und Mol 5 B/6 stehen bezüglich der Zeitstandfestigkeit in Einklang mit den Mol 2-Ergebnissen.

In Abb. 4 sind die Ergebnisse zur in-pile Zeitstandfestigkeit für die beiden untersuchten Zustände wiedergegeben. Auffallend daran ist die Tatsache, daß bei beiden Bestrahlungstemperaturen die 15% kaltverformten Rohre eine geringere Zeitstandfestigkeit aufweisen als die schwach kaltverformten Rohre. Dieses Verhalten wurde auch bei den out-of-pile Versuchen beobachtet, allerdings bei einer Temperatur von 600°C erst bei Standzeiten über 1700 h und bei 700°C erst bei Zeiten größer 500 h.



Abb. 4 In-pile Zeitstandfestigkeit des Stahls 1.4981

#### 3. Schwellverhalten\*

(K. Ehrlich, W. Schneider, IMF)

Experimentell abgeschlossen wurden die Untersuchungen von Hüllrohrsegmenten des Stabes G 57 aus dem Bestrahlungsexperiment DFR 350. Der dafür verwendete Hüllwerkstoff 1.4961 unterscheidet sich von dem Stahl 1.4988 durch das Fehlen von Molybdän, Vanadium und Stickstoff. Beide Werkstoffe sind in diesem Experiment in vergleichbaren Werkstoffzuständen eingesetzt worden, soweit es die Versetzungskonzentrationen angeht, nämlich lösungsgeglüht. Eine Gegenüberstellung der aus elektronenmikroskopischen Untersuchungen gewonnenen Volumenzunahmen durch Porenbildung ist für beide Werkstoffe in Abb. 5 gegeben. Die Neutronendosen sind für beide Stäbe identisch, (maximal 4,3 x  $10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>), die Temperaturen sind als die zeitlich über die 4 Zyklen gemittelten Hüllmittentemperaturen zu verstehen. Eine Möglichkeit, das unterschiedliche Schwellverhalten beider Werkstoffe zu erklären, bestünde darin, daß das substitutionell eingelagerte Molybdän aufgrund seines von der Matrix abweichenden Atomradius als Rekombinationsfalle für die Punktdefekte wirksam wird. Zu diesen Überlegungen sind allerdings weitere Untersuchungen notwendig.



<u>Abb. 5</u> Vergleich der Schwelldaten der Hüllmaterialien 1.4988 und 1.4961 aus dem Experiment DFR 350

Die derzeit an den Brennelementhüllen der Bestrahlungsexperimente DFR 435 und Rapsodie-Pin durchgeführten Nachuntersuchungen des Stahles 1.4988 im lösungsgeglühten Zustand lassen zusammen mit Daten aus anderen Bestrah-

BzFE-Nr. 225.1

lungsexperimenten bezüglich der Dosisabhängigkeit im Bereich des Schwellmaximums die in Abb. 6 aufgetragenen Tendenzen erkennen:



<u>Abb. 6</u> Volumenzunahme des Stahls 1.4988 (1g) als Funktion der Neutronendosis aus Durchmesseraufweitungen und TEM-Daten

Die Durchmesseraufweitungen zeigen einen Dosisexponenten n  $\sim$  2,5 und sind vergleichbar mit den neuesten Daten amerikanischer Autoren für den lösungsgeglühten Stahl AISI 316. Allerdings liegen die durch Dichtemessungen und Elektronenmikroskopie (TEM) direkt bestimmten Schwellwerte niedriger als die aus den Durchmesseraufweitungen errechneten. Dies läßt auf eine teilweise plastische Verformung des Hüllrohres aufgrund der Wechselwirkung von Brennstoff und Hülle schließen, dessen Anteil als Funktion der Dosis erst nach Abschluß der Auswertung quantitativ erfaßt werden kann.

Aus den Nachuntersuchungen des Hüllmaterialexperimentes <u>DFR 397</u>, in dem die Stähle 1.4981, 1.4988 und 1.4970 in verschiedenen Materialvariationen eingesetzt waren, ergibt sich, daß bei Temperaturen T >  $600^{\circ}$ C Volumenzunahmen bis zu mehreren Prozent auftreten, wobei eine deutliche Temperaturabhängigkeit der Poren- bzw. Bläschenbildung zu beobachten ist. Die erreichten Neutronendosen liegen bei 8,3 x  $10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>. Der Frage, auf welche Weise Poren bzw. Bläschen zur Verfestigung der Werkstoffe beitragen, wird derzeit anhand kombinierter Festigkeits- und Ausscheidungsversuche nachgegangen. Die Analyse von Größenverteilungskurven bestrahlungsinduzierter Poren ist an Nachuntersuchungsergebnissen aus DFR 350 durchgeführt worden. Aus den Annahmen konstanter Oberflächenzunahme pro Zeiteinheit und einer zeitlich konstanten Keimbildungsrate (entsprechend des bei Reaktorbestrahlung kontinuierlich gebildeten Heliums) läßt sich eine Verteilungsfunktion N(r) =  $k_1(r-r_0) \cdot \exp(-k_2 \cdot r^2)$  herleiten. Die Nachuntersuchungsergebnisse des Experimentes DFR 350 dienten zum Test dieser Funktion, wobei  $k_1$  und  $k_2$ die Anpassungsparameter für Porenkonzentration und Wachstumsgeschwindigkeit waren. Es zeigte sich, daß die Form der Verteilungskurven im Bereich von 375 – 575°C befriedigend beschrieben werden kann, wobei darauf hinzuweisen ist, daß aus ihnen neben der Porengrößenverteilung auch die Porenkonzentration und das Volumenschwellen errechenbar sind. Das Modell wird an weiteren Experimenten getestet.

#### 4. Physikalische Untersuchungen und Strahlenschäden<sup>G</sup>

(K. Ehrlich, K. Herschbach, D. Kaletta, W. Schneider, H. Venker, IMF)

Die Untersuchungen des Schwellvæhaltens stabilisierter Stähle mittels Ni<sup>6+</sup> Ionenbeschuß am VEC-Harwell laufen weiter. Derzeit wird der Einfluß unterschiedlicher Heliumgehalte auf die Temperaturabhängigkeit der Porenbildung untersucht, und die Probenvorbereitung zum Studium der Dosisabhängigkeit ist im Gange.

Die bereits näher beschriebene Hochvakuum-Bestrahlungsbox für Schwerionen wurde in Darmstadt bei der GSI erstmals eingesetzt. Die Implantation erfolgte ausschließlich mit 240 keV-He<sup>+</sup> Ionen und hat den Zweck, die Hochtemperaturversprödung zu simulieren. Neben Reinstmaterialien (V, Ni) wurden die Legierungen V-20Ti und 1.4988 in einem Temperaturbereich von 0,3 - 0,5 T<sub>s</sub> bestrahlt. Die Dosis variierte von  $2 \cdot 10^{14}$ bis zu  $2 \cdot 10^{17}$  He-Ionen/cm<sup>2</sup>, was Heliummengen von 30-30.000 Atom-ppm entspricht. Abb. 7 zeigt erste elektronenmikroskopische Ergebnisse an Reinstvanadium.



<u>Abb.</u> 7 He<sup>+</sup>-Implantation (240 KeV) in Reinstvanadium a)  $T = 623^{\circ}C$ ; Dosis 2,4 x 10<sup>17</sup> cm<sup>-2</sup>; 80 000fach b)  $T = 705^{\circ}C$ ; Dosis 9 x 10<sup>16</sup> cm<sup>-2</sup>; 80 000fach

Basierend auf der Vorstellung, daß die Keimbildung interstitieller Versetzungsringe während der Bestrahlung durch äußere angelegte Spannung beeinflußt werden kann, wurde ein Formalismus entwickelt, mit dem das strahleninduzierte Kriechen für ein- und zweiachsige Spannungszustände berechnet werden kann. Als schwierigstes Problem erwies sich dabei, daß die Beiträge aller Nukleationsebenen({111}-Ebenen)für polykristalline Werkstoffe mit vorliegenden Texturen für eine gegebene Belastungsrichtung zu ermitteln sind. Für Druckröhrchenexperimente von Gilbert ergibt sich eine theoretische Kriechdehnung, die halb so groß ist wie die experimentell beobachtete.

Diese kleine Differenz kann dadurch eliminiert werden, daß man annimmt, daß mehr als nur drei Zwischengitteratome erst einen stabilen Keim für Versetzungsringe darstellen. Ferner wurde noch nicht berücksichtigt, daß auch das Wachstum einmal gebildeter Versetzungsringe von der von außen angelegten Spannung beschleunigt werden kann. Die so sich ergebende Dehnung ist sehr stark von der kristallinen Ausrichtung abhängig, was zu einem anisotropen "Schwellen" der einzelnen Körner in einer vielkristallinen Probe führt. Ein Beispiel für diese Richtungsabhängigkeit der Dehnung ist in Abb. 8 gegeben. Dargestellt sind drei Schnitte durch das Dehnungsellipsoid, wobei die prozentuale Zunahme der Dehnung gegenüber dem spannungslosen Zustand angegeben wird. Ob dieses differentielle Schwellen, analog zum sog. yielding creep, zum in-pile Kriechen beiträgt, konnte noch nicht festgestellt werden.



Abb. § Schnitte durch das Dehnungsellipsoid. Kristallorientierung  $\begin{bmatrix} 1,1,1 \end{bmatrix} || z$ -Achse;  $\begin{bmatrix} 1,1,2 \end{bmatrix} || x$ -Achse ( $\phi = 0^{\circ}$ ); Spannung:  $\sigma_{tang} || z$ -Achse; axial || y-Achse ( $\phi = 90^{\circ}$ ).  $\phi =$  Winkel zwischen x-Achse und Schnittebene.

Am Beispiel von Titan wurde die Möglichkeit untersucht, während des Abscheidens aus der Gasphase (nach van Arkel) durch den kathodischen He<sup>+</sup>-Ionenbeschuß einer Glimmentladung eine homogene Heliumkonzentration in einem größeren Volumen zu erzielen. Dabei erhitzen die im Kathodenfall einer anomalen Entladung auf ca. 1 keV beschleunigten He<sup>+</sup>-Ionen das Substrat auf die für die Zersetzung von TiJ4 nötige Temperatur von 1000<sup>°</sup> bis 1200<sup>°</sup>C und dringen gleichzeitig etwa 500 bis 1000 Å tief in die aufwachsende Schicht ein.

Die Analyse von 2 Proben ergab Heliumgehalte von 1,9 bzw. 3,1 appm.

#### Veröffentlichungen:

F. Polifka, L. Schäfer, H. Kempe Das Zeitstandverhalten von Rohren aus austenitischen Stählen und Nickelbasislegierungen bei Belastung durch Innendruck KFK-1882, Nov. 1973

K. Ehrlich, O. Götzmann et al. UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstabbestrahlung im Trefoil-Einsatz DFR-304.Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben; KFK-1864, im Druck

K. Ehrlich, R. Groß
Void formation in stabilized stainless steels
NEA-GCFR-Coordinating Group 1973 Meeting, Brugg-Windisch

#### .

and de de services de services a de la devenira de a devenira de la devenira de la devenira de la devenira de la devenira de a devenira de la devenira de la devenira de la devenira de la devenira de a devenira de la deve a devenira de la devenira devenira de

#### and the second second

a a service provide a service de la servi Service de la service de la

#### 114 KORROSIONSVERSUCHE UND KÜHLMITTELANALYSEN

#### 1141 <u>Natriumkühlung</u>

1141.1 Korrosionsverhalten von austenitischen Stählen
 (H.U. Borgstedt, Helga Schneider, IMF;
 G. Drechsler, G. Frees, IRB)

Die Versuchsserie über 5000 bzw. 10000 h im Natriumhochtemperaturprüfstand des IRB an Hüllrohrinnendruckproben hat das Ziel, für die Hüllrohre des SNR 300 Auslegungskennwerte hinsichtlich der Natriumkorrosion und der Beeinflussung der mechanischen Festigkeit zu gewinnen. Eine Expositionszeit von 4200 Stunden ist erreicht worden, Zwischenergebnisse über 3750 h Expositionszeit liegen vor.

Die Abtragungsraten lassen sich zu den gemessenen Sauerstoffgehalten im Natrium des Prüfstandes in Beziehung setzen (Tab. 1).

<u>Tab. 1:</u>	Abhängigkeit der Korrosionskonstanten K (mg/cm <sup>2</sup> )	1) von
	der Sauerstoffkonzentration im Natrium des HTP	

Werkstoff	Korrosi	onskonstante	K (mg/cm <sup>2</sup> h)	
	600 <sup>0</sup> C		700 <sup>0</sup>	C
	3,5 ppm 0	7,2 ppm 0	3,5 ppm 0	7,2 ppm 0
1.4970	0,38·10 <sup>-3</sup>	0,26.10-3	0,76.10 <sup>-3</sup>	1,36.10 <sup>-3</sup>
1.4981	0,19·10 <sup>-3</sup>	0,31.10-3	0,59·10 <sup>-3</sup>	1,45.10 <sup>-3</sup>
1.4988	0,18.10 <sup>-3</sup>	0,29.10 <sup>-3</sup>	0,60.10-3	1,63.10 <sup>-3</sup>

Diese Abhängigkeit der Korrosionsgeschwindigkeit von dem Sauerstoffgehalt des Natriums entspricht etwa den Literaturangaben.

Von den Proben konnten einige aus 1.4981 metallkundlich nachuntersucht werden. Die bei 700<sup>°</sup>C exponierten Proben wiesen ferritisierte Oberflächen auf, im Querschliff fanden wir Oberflächenschichten (Ferritschicht I) und Korngrenzenferrit (Ferritschicht II) bis zu einer Gesamttiefe von ca. 35 µm. Mit Hilfe des Bedampfungsverfahrens wurden die ferritisierten Anteile an zwei der Proben gemessen:

**₩**<sub>BzFE</sub>-Nr. 232.2

Probe:	Mat./Charge:	Exposition:	Ferrit I + Ferrit II:
1B15	1.4981/70015 lg	2500 h	35 µm
1C14	1.4981/70015 kv	3750 h	25 µm

Aus diesem Befund soll aber noch kein Schluß gezogen werden, da die Frage des Einflusses einer Kaltverformung auf die Ausbildung der Ferritschichten nach 5000 h Exposition an einer größeren Probenzahl überprüft werden kann.

Die Ferritanteile lassen sich auf dem mit Oxalsäure geätzten Schliff auch mit dem Rasterelektronenmikroskop sichtbar machen (Abb. <sup>1</sup>) und mit dem Röntgenspektrometer analysieren. Punktanalysen in einem randnahen Korn,



Abb. 1: Querschliff Probe 1B15 (s.o.) mit Oxalsäure geätzt im REM beobachtet. Korngrenzen und Oberflächenferrit erscheinen erhaben.

einem Matrixkorn und der ferritischen Korngrenze ergaben die in Tab. 2 angeführten berechneten Konzentrationen für die Hauptelemente. Die Analyse ergab auch einen qualitativen Hinweis auf einen Mn-Verlust im Korngrenzenbereich.

Die Korngrößenanalyse ergab keine Hinweise auf ein Kornwachstum infolge der Natriumexposition bis 3750 Stunden. Dagegen wurden außerhalb der von Natrium beeinflußten Zone  $\sigma$ -Phasenausscheidungen in den Proben nach beiden Versuchszeiten gefunden. Bei 600<sup>°</sup>C Reaktionstemperatur hatte sich nach 2500 h noch kein nachweisbarer Ferritanteil gebildet.

Tabelle 2: Konzentrationen von Fe, Cr und Ni nach Punktanalysen mit EDAX in Probe 1B15 (s. Abb. 1)

<u>Analys. Stelle</u>	<u>Gehalte in GewZ</u>		
	Cr	Ni	Fe
Matrix - Korn	16,7	16,7	64,3
Oberflächenkorn	17,1	16,3	64,2
ferr. Korngrenze	11,1	11,8	72,7

Die Ergebnisse der Kriechuntersuchung an den Innendruckproben sind in der Tabelle 3 in zusammenfassender Form mit den jeweiligen maximalen gefundenen Dehnungswerten als Grundlage zur Berechnung der Kriechgeschwindigkeit zusammengestellt. Danach sind bei 1.4970 und 1.4988 noch keine Abweichungen von Vergleichswerten (Quelle W. Dietz, INTERATOM) meßbar, wohl aber bei hohen Lasten bei Proben aus 1.4981 nach 3750 h.

Tabelle 3:	Ergebnisse	der Kriech	versuche an	Innendruckrohrp	roben
	im Natriumk	reislauf			

Werkstoff	Charge	σ <sub>t</sub>		$\varepsilon_{m}^{o}$ ( $\mathbb{Z} \cdot h^{-1}$ )	
		kp/mm <sup>2</sup>	Natr 2500 h	ium 3750 h	Vergleich
1.4970	8/29052	11,8	1,3.10-4	1,3.10-4	1,9.10-4
	78419	9,4	<u>&lt;</u> 0,8·10 <sup>-5</sup>	4,0.10-4	1,0.10-4
	8/21577	9,4	< 0,8·10 <sup>−5</sup>	0,5.10-4	0,5.10-4
1.4981	70703	7,0	1,6.10-4	1,2.10 <sup>-3</sup>	3,4.10-4
	70015 1g	3,5	3,2.10-5	2,7.10 <sup>-5</sup>	2,0.1055
	70015 kv	8,2	1,8.10-3	Bruch	1,7 • 10 3
		4,7	1,8.10-4	2,0.10-4	2,0.10-4
1.4988	25116	7,0	1,1.10-4	0,8.10-4	2,0.10-4
		4,7	< 0,8.10-5	3,2.10-5	6,0.10 <sup>-5</sup>
	70095	5,8	$< 0, 8 \cdot 10^{-5}$	<0,8.10-5	5,0.10-5

114-3

Im weiteren Verlauf des Versuchs sind bis 4200 Stunden vier weitere Proben zu Bruch gegangen.

#### 1141.2 Natriumkorrosionsuntersuchungen an verschleißfesten Werkstoffen\*

(H.U. Borgstedt, IMF; G.Drechsler, G.Frees, E.Wild, IRB)

Die Natriumexposition von Pflasterwerkstoffen für den Einsatz im SNR 300, Inconel 718 und Nimonic 90, mit dem Ziel, das Korrosions- und Massetransportverhalten dieser Werkstoffe kennenzulernen, hat inzwischen 4000 Std. erreicht.

Nach 3000 Stunden war für beide Werkstoffe die Korrosionsgeschwindigkeit gleich und praktisch linear. Sie entsprach bei den Versuchsparametern (Temp. 600°C, Strömung 1 m/s, Sauerstoffgehalt unter 10 ppm) einem jährlichen Abtrag von rund 10<sup>-4</sup> cm. Ein schwacher Downstream-Effekt in der Teststrecke ist feststellbar.

Die Oberflächengestalt der Proben veränderte sich durch die Natriumexposition deutlich, ebenso wurden Veränderungen der Konzentrationen der Hauptelemente gemessen (1141.3). Metallografische Untersuchungen deuteten an, daß bei Inconel 718 bis  $3 \cdot 10^{-3}$  cm tiefe Korngrenzeneffekte eingetreten waren, bei Nimonic 90 war eine weniger tiefe, aber stark verbreiternde Korngrenzenanätzung feststellbar (Abb. 2).



Abb. 2: Schliffbilder von Inconel 718 und Nimonic 90 vor und nach 3000h Na-Exposition

**★**<sub>BzFE-Nr. 233.3</sub>

In einer zweiten Teststrecke (ebenfalls bei 600 <sup>O</sup>C, Strömungsgeschwindigkeit 1 m/s, Sauerstoffgehalt unter 10 ppm) wurde eine Versuchsreihe mit dem Pflasterwerkstoff Stellit 6 B und dem Aufschweißwerkstoff Stellit 6 H begonnen. Der erste Lauf des Versuchs hat eine Zeit von 300 Stunden erreicht.

#### 1141.3 Reinheit und Reinheitskontrolle des Natriums

#### 1. Kreislauferprobung von Sauerstoffmeßsonden\*

(H.U. Borgstedt, IMF)

Die Kreislauferprobung der EMK-Festelektrolytsonden für die Sauerstoffmessung in Natrium von Gulf United Nuclear Fuels Corp., Elmsford, N.Y., USA, wurde abgeschlossen. Ein Bericht ist in Vorbereitung. Eine Sonde von Westinghouse Electric Corp., Baltimore, Md., USA, wurde geliefert und ist für Kalibrierungs- und Vorversuche vorbereitet worden.

Für den Verschleißprüfstand des IRB (1262.32) und den Mehrzweck-Natriumkreislauf des IRE wurden Sauerstoffmeßsonden mit der Konzentrationskette Luft, Gold//Festelektrolyt//Na,Na<sub>2</sub><sup>0</sup> gebaut und kalibriert. Sie sind zum Teil über 1000 Stunden mit Erfolg zu Messungen in diesen Kreisläufen eingesetzt worden.

## <u>Natriumanalytik und Nachuntersuchung von Korrosionsproben</u>\* (H. Schneider, IMF)

Auf dem Gebiet der Natrium-Analytik wurden Methoden für die Bestimmung von Fluorid und Silizium ausgearbeitet. Die Fluoridbestimmung wurde mit Hilfe einer ionensensitiven Elektrode durchgeführt. Die Nachweisgrenze der Fluoridbestimmung liegt bei 0,2 ppm. Bei der photometrischen Siliziumbestimmung liegt die Nachweisgrenze bei 0,1  $\mu$ g Si und die Reproduzierbarkeit bei z.B. 13 eingesetzten  $\mu$ g Si bei  $\pm$  0,25  $\mu$ g Si.

Außerdem wurden drei verschiedene Na-Metall-Qualitäten auf Verunreinigungen untersucht, und zwar Na-Metall p.a. Merck, Degussa technisch und Degussa Sonderqualität. In nachfolgender Zusammenstellung sind die Gehalte einiger Verunreinigungen, die in den verschiedenen Qualitäten in unterschiedlicher Höhe auftraten, zusammengefaßt:

\* BzFE-Nr. 622.3

Element	Merck p.a.	Degussa technisch	Degussa Sonderqualität
	ppm	ppm	ppm
Ca	20 - 70	190 - 230	0, 8 - 1, 1
K	25/26	84/87	67/66
Fe	<1	0,7 - 1,8	ca. 1
Ni	0,2	0,3 - 0,7	0,3
Zn	0,2 - 0,5	0, 6 - 1, 5	0,6 - 1,5
C1 '	5 - 7	12 - 15	9 - 11

Die Gehalte an den Metallen Cr, Mn, Co, Cu, Zr, V, Ti, Ba lagen <0,1 ppm, Nb, Ta, Mo <0,2 ppm, Ag, Sr, Pb, Al, Mg <0,5 ppm, Cd, Sn <1 ppm und Bi <2 ppm. Von den untersuchten Nichtmetallen lagen Bromid, Jodid und Fluorid <0,5 ppm. Si wurden in allen drei Qualitäten 0,3 ppm und Bor 0,1 ppm gefunden.

Die Reinheit des Covergases des HT-Loops wurde kontrolliert. Die Gehalte lagen nach Wiederaufnahme des HT 2-Versuchs im Dezember 1973 bei:  $H_2 = 5 - 20$  vpm,  $N_2 = 10 - 20$  vpm,  $CH_4 = 0,1$  vpm und  $O_2 < 0,1$  vpm. Im Rahmen der Nachuntersuchungen von Korrosionsproben wurden zwei Nickellegierungen, Nimonic 90 und Inconel 718 im Ausgangszustand, nach 1500 und 3000 Stunden Einsatz im NaMT3 bei 600°C mit Hilfe der Glimmentladungslampe spektralanalytisch auf Konzentrationsänderungen verschiedener Elemente in ca. 0,5 µm Tiefe im Vergleich zu den Matrixwerten analysiert:

Nimonic 90

Ausgar	ngszustand %	1500 h %	3000 h %	Matrix %
Cr	18,0	17,5	17,3	19,4
Ni	61,0	ca. 61,5	ca. 62	57,8
Со	ca.18	ca. 17	ca. 17,3	18,0
Ti	1,2	1,1	ca. 0,75	2,5
Fe	0.3	0.2	1,5-2,0	0,2

Bei dem Ausgangsmaterial waren die Matrixwerte in einer Tiefe von ca. 2 - 3  $\mu$ m, bei der Probe nach 1500 h in einer Tiefe von ca. 5 - 10  $\mu$ m und bei der Probe nach 3000 h nach ca. 10 - 20  $\mu$ m erreicht.

Zu beachten wäre, dass die Fe-Anreicherung nach 3000 h nur auf die äusserste Schicht begrenzt ist. In 1 µm Tiefe ist bereits der Matrixwert erreicht.

#### Inconel 718

Ausgang	szustand	1500 h	3000 h	Matrix
	7	<b>%</b>	2	Z
Cr	27,6	ca. 17,0	16,6-17,6	18,7
Ni	60,7	55-57	56 -57,5	52,5
Mo	2,8	2,8	2,8-	3,0

Bei dem Ausgangsmaterial waren die Matrixwerte in 1 - 2  $\mu$ m Tiefe erreicht, bei der Probe nach 1500 h Einsatz nach 3 - 6  $\mu$ m und nach 3000 h Einsatz nach ca. 5 - 10  $\mu$ m Abtrag.

Bemerkenswert ist der hohe Ni-Gehalt an der Oberfläche des Ausgangsmaterials.

## 1142 <u>Gaskühlung</u> G

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

#### 1. Wärmeübergangsteststrecken des HKW-Kreislaufs

Im Berichtszeitraum waren insgesamt 8 Incoloy 800-Überhitzerstäbe im geglühten, sandgestrahlten und ca. 20% kaltverformten Zustand im Hochdruckkreislauf eingesetzt. Davon entfielen drei Stäbe in geglühter Version auf die Wärmeübergangsteststrecke mit erhöhter Dampfgeschwindigkeit (32-50 m/s). Maximal wurden mit den Stäben in den verschiedenen Ausgangszuständen folgende Standzeiten erreicht:

1.1 Teststrecken mit üblicher Dampfgeschwindigkeit (16 - 24 m/sec):

sandgestrahlt:	639 Std.
geglüht:	370 Std.
20% kaltverformt:	384 Std.

1.2 Teststrecken mit erhöhter Dampfgeschwindigkeit (32 - 50 m/s):

geglüht:	1200	Std.
geglüht:	331	Std.
geglüht:	515	Std.

Die beiden letzteren Stäbe wurden intakt ausgebaut.

114-7

#### 2. Isotherme Teststrecken des HKW-Kreislaufs

In beiden isothermen Teststrecken waren insgesamt ca. 250 Proben der neun zu untersuchenden Materialien in verschiedenen Ausgangszuständen der Heißdampf-Korrosion unterworfen. Im IV. Quartal 1973 wurden 508 Stunden Testzeit gefahren. Damit erreichten einige Proben bis zum Zeitpunkt der Endabschaltung Expositionszeiten von 5000 Stunden.

Die Korrosionsversuch wurden beendet, der HKW-Kreislauf wurde stillgelegt, die Proben werden abschließend ausgewertet.

### 1142.3 Gas-Korrosion

(S. Leistikow, IMF)

Im Berichtszeitraum wurden die Korrosionsversuche in Helium (800  $^{\circ}$ C, 1,5 at) an den Werkstoffen Nr. 1.4970, 1.4981 und 1.4988 fortgesetzt, jedoch unter vor- und nachgeschalteter analytischer Kontrolle des Heliums. Als Analysator diente ein Gaschromatograph mit Spezialgaskreislauf, der die gleichzeitige Analyse von H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO und CO<sub>2</sub> in Anteilen von 0,1-100 vpm ermöglichte. Ihm war ein automatischer Probenwähler vorgeschaltet, so daß verschiedene Probenahmestellen ständig "abgefragt" werden konnten. Zur Feuchtigkeitsmessung dienten Meßfühler, die sich aus Aluminium und goldbedampften, eloxierten Aluminium-Platten aufbauten.

Die Versuche in nachgereinigtem Helium (2,7 vpm  $0_2$ , 5 vpm  $H_2^0$ , 3,4 vpm  $N_2^0$ ) ergaben die folgenden Gewichtszunahmen (mg/dm<sup>2</sup>):

Versuchszeit		Werkstoff Nr.			
(Std.)		1.4970	1.4981	1.4988	
75		12,5	5,6	3,7	
150		16,6	7,2	4,3	

Als nächster Schritt zur Verwirklichung technischer Bedingungen sind Versuche mit verschiedenen Feuchtigkeitsgehalten im Helium unter Zudosierung von Wasserdampf beabsichtigt.

- (1) S. Leistikow, R. Kraft
   Verbesserung der Heißdampf-Korrosionsbeständigkeit von Incoloy Alloy 800-Rohrmaterial durch verformende Oberflächenvorbehandlungen.
   Werkst. Korrosion (im Druck)
- (2) S. Leistikow, R. Kraft, D. Jennert und Ph. Berge Rohr-Innendruck-Zeitstanduntersuchungen bei überlagerter Heißdampf-Korrosion
  - 1. Versuchsaufbau, Methode und Prüfung von Rohrmaterial der Legierung Incoloy 800.
  - Z. Werkstofftechnik (im Druck)

and the second standard states of the second states and the second

(a) A set of the set of the set of the set of the general set of the set of the set of the general set of the set of

#### 115 ARBEITEN ZUM BRENNSTOFFZYKLUS

1151 Naßchemisches Extraktionsverfahren 🌤

1151.1 <u>Auflöseverhalten zerhackter Brennstäbe</u><sup>1</sup>
(W. Ochsenfeld, E. Hamburger, G. Höffle, W. Riffel, P. Schwab, IHCh)

Mit hochabgebrannten Brüterbrennstoffproben wurden in der Versuchsanlage MILLI Auflöseversuche durchgeführt. Das aus Dounreay erhaltene oxydische Material bestand aus zwei verschieden abgebrannten Chargen:

a) Mittlerer Abbrand 5%, Kühlzeit 8.6 Jahre
b) Mittlerer Abbrand 6.1%, Kühlzeit 7.6 Jahre.

Der größte Teil des Materials war pulverförmig, ein Teil (ca. 750 g) war in Hüllen aus SS 316. Die Stäbe wurden in den Heißen Zellen von RBT vor der Auflösung auf 15 mm Stücke geschnitten.

Der Brennstoff war durch Kopräzipitation des Urans und Plutoniums und durch Glühen hergestellt worden. Vor der Bestrahlung hatte der Brennstoff 15% PuO<sub>2</sub> und 85% UO<sub>2</sub> enthalten (60% des Urans war U-235).

Das pulverisierte Material wurde in 6 Chargen von je ca. 200 g und 2 Chargen von je ca. 390 g aufgelöst. Die ersten Auflöseversuche mit den kleinen Chargen wurden in einem Glasauflöser durchgeführt. Die späteren Auflösungen wurden in dem ursprünglichen Auflöser der Anlage aus Metall fortgesetzt. Die geschnittenen Stäbe wurden in einer Charge in diesem Auflöser gelöst.

Die Lösungen wurden chargenweise filtriert und in einem Zwischenbehälter aus Glas zur Beobachtung des Filtrats gesammelt.

Zuerst wurde über eine Filterkerze aus Sintermetall, Siperm R, mit einer Porenweite von 0-35  $\mu$  filtriert. Am Anfang der Filtration ging ein geringer Anteil der feinsten Rückstände durch das Filter. Nochmalige Filtration der Lösung brachte klare Lösungen. Die Filter verstopften aber schnell, so daß

**★**BzFE-Nr. 351.3, 351.4

1)Zuletzt berichtet in KFK 1272/4

115-1

die Filtrationsgeschwindigkeit sehr gering wurde. Deshalb wurde bei den späteren Chargen über ein Blauband-Filterpapier filtriert.

Die Analyse der unlöslichen Filterrückstände und der in den Hüllen verbliebenen Rückstände ist noch im Gange. Zur Zeit können nur aufgrund der Analysen der Lösungen folgende vorläufige Ergebnisse mitgeteilt werden.

Im 1. Versuch wurde das Pulvermaterial in 6 M  $HNO_3$  gelöst. Beim Kochen wurden in der Lösung nach 4 h 80% des errechneten U+Pu nachgewiesen. Auch nach 12 h Kochen in 5.5 - 6 M  $HNO_3$  wurde kein weiteres Material aufgelöst. Das Verhältnis Pu/U von 0.176 - 0.180 blieb in allen Proben während der Auflösung konstant, es findet demnach keine bevorzugte bzw. schnellere Auflösung des Urans statt.

Im 2. Versuch wurden bei ca. 7.5 M HNO<sub>3</sub> während der Auflösung nach 1 h 65%, 3 h 96%, 5 h 97%, 10 h 97% des errechneten U+Pu in der Lösung gefunden. Die Erhöhung der Säurekonzentration dieser Lösung auf 10 M und weiteres Kochen über 16 Stunden brachten keine weitere Änderung der gelösten Menge.

In den weiteren Versuchen war die Auflösung in kochender Salpetersäure von 8.5 - 8.9 M HNO<sub>3</sub> in 1 1/2 - 3 Stunden, in 10.8 M HNO<sub>3</sub> in etwa 1 1/2 Stunden beendet.

Das umhüllte Material löste sich in etwa 1 Stunde in 9 - 9.7 M HNO<sub>3</sub>. Nach 1 h waren 92% des errechneten U+Pu aus der Einwaage in der Lösung nachweisbar, diese Menge blieb auch nach 9-stündigem Kochen unverändert.

Die aus der Lösung bestimmten Werte sind mit den Fehlern der Einwaagen und der Bestimmung des Volumens der Lösungen behaftet. Genauere Angaben über den ungelösten Anteil des Urans und Plutoniums können erst nach Analyse der unlöslichen Rückstände der Filtration gemacht werden. Bisher wurden einige Filterrückstände durch Röntgenfluoreszenz analysiert.

In zwei der untersuchten Filterrückstände wurden in abnehmender Reihenfolge Mo, Ru, U, Zr, Pu, Pd, Sn gefunden.

Zusammenfassend kann schon jetzt festgestellt werden, daß der untersuchte hochabgebrannte oxidische Brüterbrennstoff mit 15% PuO<sub>2</sub>/85% UO<sub>2</sub> in siedender Salpetersäure von Konzentrationen über 7.5 M HNO<sub>3</sub> schnell und gut lösbar war. Auch die Auflösung des umhüllten Brennstoffes verlief genügend schnell. Die Auflösung des Urans und Plutoniums verlief parallel und gleichmäßig, ohne eine nennenswerte Pu-Anreicherung im unlöslichen Rückstand. Der Rückstand enthielt die Spaltprodukte Mo, Ru, Zr, Pd, Sn neben Uran und Plutonium.

### 1152 <u>Abbrandanalyse an Oxidbrennstabproben aus Bestrahlungen mit</u> thermischen und schnellen Neutronen\*

(H. Wertenbach, H. Bernhard, E. Bolz, H. Deutsch, E. Gantner, K. Matern, M. Mostafa, IRCh)

Im letzten Quartal des Jahres 1973 wurden die Untersuchungen an der FR2-Kapselversuchsgruppe 4b /l/ sowie an dem Brennstabbündel DFR-350 abgeschlossen. Über die Ergebnisse soll im folgenden berichtet werden.

#### FR2-Kapselversuchsgruppe 4b:

Eine kurze Beschreibung dieser Prüflinge sowie die Ergebnisse der Abbrandbestimmung über Ce-144, Nd-148 und über die Anreicherung des Plutoniums für die Kapselversuchseinsätze 47 und 48 wurde bereits gegeben /1/. In Tabelle 1 sind die Resultate für die restlichen Kapselversuchseinsätze dieser Gruppe zusammengestellt.

Betrachtet man die Abbrandwerte, so sieht man die gute Übereinstimmung zwischen den über Ce-144 und Nd-148 gefundenen Werten. Das Verhältnis Abbrand (Ce-144)/Abbrand (Nd-148) beträgt 0.9842 mit einer relativen Standardabweichung von 3.1 %. Der größte Fehler resultiert dabei sicherlich aus der langen Bestrahlungszeit (max. 2 1/2 Jahre). Daneben können auch noch Wanderungseffekte an den teilweise bis zum zentralen Schmelzen erhitzten Stäben von Einfluß sein.

Die Wanderung der Schweren Atome verursacht dagegen die zum Teil erheblichen Differenzen zwischen den über die Plutoniumabreicherung und den über Ce-144 bzw. Nd-148 gefundenen Abbrandwerten. Besonders auffällig sind diese Differenzen an den Prüflingen des KVE 55. Die Richtigkeit des gewichteten Mittelwerts des Abbrandes ist aus Abbildung 1 zu ersehen. Der Abbrand ist gegen das Verhältnis Nd-146/Nd-145 als Maß für die Fluenz aufgetragen. Man sieht, daß neben den Prüflingen des KVE 55 vor allem die Probe 4B11-6 stark herausfällt. Diese Probe sollte sowohl auf Grund ihrer Lage im Stab als auch auf Grund des Diagramms statt 11.28 einen Abbrand von etwa 12.4 Atom% haben.

[		Abbrand (Atom %)				
KVE	Prüfling	C <b>e-14</b> 4	Nd-148	Pu-Abr.	gew. Mittelwert	
	-3	13.16	13.54	13.61	13.43	
	4B10-5	12.29	13.16	13.92	13.00	
	-6	13.15	13.58	13.95	13.50	
49	4 <b>B</b> 12	12.60	12.54	13.27	12.68	
	-3	12.34	11.96	12.74	12.21	
	4 <b>B</b> 11-5	12.61	12.50	12.88	12.60	
	-6	11.32	11.26	(14.32)	11.28	
	tana ar					
	4B13	7.36	7.63	( 5.50)	7.52	
55	4B14	7.62	7.56	(8.41)	7.58	
	4B15	6.67	6.50	( 9.30)	6.57	
	4 <b>B</b> 16	6.67	6.84	7.07	6.82	
56	4B17	6.05	6.60	6.87	6.46	
	4B18	6.03	6.41	6.87	6.36	
	-3	9.52	9.81	10.20	9.78	
	4B19-5	8.28	। २२ <sup>-</sup> सॉस स — २२	(12.80)	8.30	
	-6	8.78	9.04	(11.40)	8.94	
57	4 <b>B</b> 20	9.41	9.55	10.00	9.58	
	-3	8.97	9.16	9.55	9.16	
	4 <b>B</b> 21-5	9.03	9.12	(11.40)	9.08	
	-6	8.83	9.09	10.00	9.16	
				an a	en an an star an star an star an star an star Na star	
	4B22	12.30	12.50	13.02	12.52	
58	4B23	12.32	12.06	12.35	12.20	
	4 <b>B</b> 24	12.03	11.75	12.41	11.96	

Tabelle 1:	Abbrandbestimmung	an	den	Prüflingen	der	Kapselversuchs-
	gruppe 4b				•.	

. . . .

115-4

Abb.1 Korrelation zwischen dem Abbrand und dem Nd-146/145 Verhältnis für die Prüflinge der Kapsel-Versuchsgruppe 4b



Der Schluß, daß die gewichteten Mittelwerte höchstens 5 % von den wahren Werten abweichen /1/, gilt für die gesamten Prüflinge der Versuchsgruppe 4b nur dann, wenn die über die Plutoniumabreicherung gefundenen Werte nicht mehr als 10 % von den gewichteten Mittelwerten abweichen. Der Fehler der Abbrandbestimmung über Nd-148 beträgt an ungestörten Proben 2.5 % (1).

Zur Umrechnung von Atom% in MWd/t gilt für die Prüflinge der Kapselversuchsgruppe 4b:

1 Atom = 9800 MWd/t (1).

#### Brennstabbündel DFR-350

Der Brennstoff bestand aus UO<sub>2</sub> - 20 Gew.% PuO<sub>2</sub>. Die Anreicherung des U-235 im Uran betrug 86.4 Gew.%. Die Stäbe hatten einen Durchmesser von 6.0 mm und eine Brennstofflänge von 290 mm. Die maximale Stableistung betrug 450 W/cm; der Zielabbrand 50000 MWd/t Metall /2/.

Die Ergebnisse der Abbrandbestimmung sind aus Tabelle 2 zu ersehen.

# Tabelle 2:Abbrandbestimmung an den Prüflingen des BrennstabbündelsDFR-350

Probe Nr.	Ce-144	Abbrand (Atom%) Nd-148 Mittelwert		
-2	3.60	3.57	3.59	
G 36 -7	5.72	5.79	5•75	
-10	5.59	5.63	5.61	
-2	4.11	4.16	4.13	
G 41 -8	5 <b>.9</b> 0	5.85	5 <b>.8</b> 8	
-11	5.70	5.65	5.67	
<b>-</b> 2	4.78	4.71	4.73	
<b>-</b> 3	5.49	5 <b>.3</b> 7	5.41	
G 61 -4	6.02	5 <b>.9</b> 5	5 <b>.9</b> 8	
<b>-</b> 5	5.65	5.69	5.68	

/2/ D. Geithoff, K. Kummerer Auslegung, Bestrahlung und zerstörungsfreie Nachuntersuchung des U02-Pu02-Brennstabbündels DFR-350 KFK 1377 (Mai 1972) An diesen Prüflingen konnte der Abbrand nur über Ce-144 und Nd-148 bestimmt werden. Das Verhältnis Abbrand (Ce-144)/Abbrand (Nd-148) beträgt hier 1.004 + 1.3% (1  $\sigma$ ).

Damit ist die Übereinstimmung wesentlich besser als bei der Kapselversuchsgruppe 4b. Die Bestrahlungszeit betrug beim DFR-350-Bündel allerdings nur etwa 1 Jahr /2/. Da auch die Stableistung wesentlich niedriger war als bei den Proben der Kapselversuchsgruppe 4b,wird eine erhebliche axiale Wanderung der Schweren Atome nicht stattgefunden haben.

#### Veröffentlichung:

(1) H. Hoffmann, H. Wertenbach
 Abbrandbestimmung an Kernbrennstoffprüflingen im FR2
 KFK 1704 (April 1973)

#### a set of the set of the set of the

#### 121 PHYSIKALISCHE EXPERIMENTE

#### 1211.1 Meßmethoden für Nulleistungsreaktoren

<u>Ratenmessungen an höheren Pu-Isotopen</u> G1)
 (W. Scholtyssek, R. Böhme, IASR)

Die Reaktionsraten der höheren Isotope des Pu sind ein wesentlicher Term in der Bilanz schneller Brutreaktoren. Der Beitrag von <sup>240</sup>Pu und <sup>241</sup>Pu zur Gesamtleistung erreicht 10%. Der Neutroneneinfang der Pu-Isotope erzeugt Aktiniden, die die inhärente Neutronenquelle der Reaktorkerne bei steigendem Abbrand vergrößern und die Handhabung und Wiederaufarbeitung von abgebranntem Brennstoff erschweren. Die Messung der integralen Spalt- und Einfangraten von Aktiniden mit A  $\geq$  240 in SNEAK-Anordnungen wird deshalb vorbereitet. Für die Messung von Spaltraten der Isotope <sup>240</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu, <sup>241</sup>Am und <sup>243</sup>Am werden Plattenspaltkammern von 12 mm Durchmesser und 6 mm Höhe angefertigt, die in präparierte Brennstoffplättchen eingesetzt werden können. Die Beläge der Spaltkammern wurden von dem Zentralbüro für Kernmessungen Geel bzw. dem TUI hergestellt. Die hohe  $\alpha$ -Aktivität wird die integrale Messung der <sup>241</sup>Am-Spaltrate in Spaltkammern erschweren. Die Spaltkammerbeläge werden vor dem Einbau in die Kammern durch  $\alpha$ -Zählung geeicht.

Informationen über die integralen Einfangraten von <sup>240</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu und <sup>241</sup>Am werden aus Materialwertmessungen mit großen Proben (~ 1g) erwartet.

Leider stehen vorerst noch keine Proben des wichtigen Isotops <sup>242</sup>Pu für Spalt- und Einfangratenmessungen zur Verfügung.

Die ersten Messungen der Spaltraten von Plutoniumisotopen wurden in Zusammenarbeit mit dem CEN Fontenay-aux-Roses im Reaktorkern SNEAK-9B und in einer vom Natrium entleerten zentralen Zone /1/ durchgeführt. Die Spaltratenverhältnisse in einem zentralen axialen Kanal von 12.7 mm Durchmesser wurden mit zylinderförmigen Spaltkammern von 4 mm Durchmesser bestimmt. Der Satz von Kammern war zuvor in einem thermischen Spektrum geeicht worden. Die Spektralindizes für Spaltung sind in Tabelle 1 aufgeführt.

/1/ G. Jourdan Geometrischer Aufbau und Meßprogramm von SNEAK-9B KFK-1272/1, S. 121-22

121-1

<sup>1)</sup> Erster Bericht

		Fehler		
I	9B		9B-Void	7
	СМ	CM + 10 mm	СМ	(≃ 2g)
$238_{U} +)$ $238_{U} ++)$ $239_{Pu}$ $240_{Pu}$ $241_{Pu}$	.0302 .0308 1.014 .2399 1.331	1.016 .2392 1.325	.0376 1.076 .2953 1.332	1.5 1.5 1.5 2.0 2.0
242 <sub>Pu</sub>	.1783	.1781	.2196	2.0

### Tab. 1 Spektralindizes im axialen Kanal in SNEAK-9B und SNEAK-9B-Void

+) gemessen mit Zylinderspaltkammern vom Typ FC4 bei axialen Traversen
 ++) Zellmittelwert aus Folienmessungen im Anschluß an Parallelplattenkammern

Die angegebenen Fehler berücksichtigen die statistischen Fehler der Messung, Fehler der thermischen Querschnittsverhältnisse und Fehler der Korrektur für den <sup>241</sup>Am-Gehalt der Kammern.

Beim Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit gerechneten Spektralindizes ist zu beachten, daß eine zusätzliche Korrektur bis zu 2% (entsprechend den angegebenen Werten  $\sigma_f^{238} U/\sigma_f^{235} U$ ) bei den Verhältnissen  $\sigma_f^{240} Pu/\sigma_f^{235} U$ und  $\sigma_f^{242} Pu/\sigma_f^{235} U$  angebracht werden muß, um die Feinstruktur und die Störung des Neutronenspektrums durch die Kammern selbst zu berücksichtigen.

Die Meßserie wird im Frühjahr 1974 in dem Core SNEAK-9C fortgesetzt, das speziell zum Studium des Einflusses der höheren Pu-Isotope auf die Reaktionsratenbilanz aufgebaut wurde.
## 2. Spaltspurdetektoren

# Untersuchung des Einflusses der Spurengröße auf die Computerauswertung von SSTR-Detektoren<sup>G</sup> 1)

(R. Papp, IASR)

Mit Spaltspurdetektoren können Spaltraten bis zu einer Genauigkeit von 1% gemessen werden, wenn entsprechend genaue Verfahren zur Auszählung der Spuren zur Verfügung stehen. Dies kann mit Zählverfahren erreicht werden, die die Möglichkeit beinhalten, Spurenüberlappungen aufzulösen und Untergrundspuren zu diskriminieren.

Das hier beschriebene Verfahren der Computerauswertung von Spaltspurdetektomn /1/ bedient sich zur Bilderfassung einer Fernsehkamera. Die Bildinformation wird schließlich in Form von 24-bit-Worten in den Kernspeicher eines 16K-Rechners und weiter auf Magnetband übertragen. Etwa 400 solcher Bilder mit einer Gesamtfläche von ca. 15 mm<sup>2</sup> lassen sich bei gegebener Mikroskopvergrößerung auf einem Magnetband speichern.

Mit Hilfe des FORTRAN-Programms COUNT wird die Auszählung der Bilder durchgeführt (Zählzeit pro Spur ca. 0.1 s auf IBM 360). Auf Grund der im Programm enthaltenen Logik ist man nun in der Lage, komplizierte Mehrfachüberlappungen, wie sie bei hohen Spurendichten auftreten, aufzulösen. Eingabegrößen für das Programm sind mittlere Dicke D und Länge L der Spuren; somit ist das Ergebnis der Computerzählung auch eine Funktion dieser Eingabedaten. Außerdem werden Teilchen nur dann gezählt, wenn sie mindestens eine Fläche der Größe D<sup>2</sup> aufweisen (zur Diskrimination gegen Untergrundspuren, die von Verunreinigungen und Beschädigungen der Detektorfläche stammen).

Doch selbst bei genauer Beachtung der Ätzvorschriften (6nKOH, 50  $^{\circ}$ C, 40 min.) können Schwankungen der mittleren Spurenfläche – diese wird auch vom Programm ermittelt – von <u>+</u> 15% auftreten, wodurch sich von der jeweiligen Ätzung abhängige Z**ä**hlfehler ergeben. Dies läßt sich durch

<sup>1)</sup>Letzter Bericht in KFK 1273/2

<sup>/1/</sup> E. Korthaus, B. Goel, G. Günther, W. Scholtyssek Reaktortagungsbericht Bonn 1971, Seite 50

Schwankungen in der Ätzrate erklären, die sich beispielsweise auf Grund der nicht homogenen Empfindlichkeit von Plastikdetektoren ergeben, wie dies auch von anderen Autoren bestätigt wird (/2/, /3/ und /4/).

Für eine allgemein gültige Eichung der durch die Ätzung bedingten Spurengrößenschwankungen wurde eine Serie von Makrofol-Detektoren mit <sup>252</sup>Cf verschieden lang bestrahlt und anschließend zur Erzielung unterschiedlicher Spurengrößen verschieden lang geätzt (Abb. 1). In der üblichen Darstellung einer Zählverlustkurve mit der mittleren Spurengröße als Parameter zeigt dies Abb. 2.

Das Ergebnis der Computerzählung bei niedrigen Spurendichten hängt somit nur in geringem Maße von der mittleren Spurengröße ab. Dagegen ergeben sich bei höheren Spurendichten beträchtliche Einflüsse: z.B. bei einer gezählten Spurendichte von 4000 Spuren/mm<sup>2</sup> 10% Änderung der wahren Spurendichte bei einer Änderung der mittleren Fläche von 20%. Die Zählverluste betragen bei der Computerzählung bei 5000 Spuren pro mm<sup>2</sup> und einer mittleren Spurengröße von 110 bits 10%. Die Zählzeit für 1000 Spuren beläuft sich auf etwa 15 min.

Die Anwendung dieser Korrekturmöglichkeit auf die Computerzählung ist am Beispiel der Abb. 3 (<sup>235</sup>U-Spaltraten-Traverse) dargestellt.

/2/ R. Gold, Ch. Cohn
Scientific Instruments 43, 1 (1972)

- /3/ H. Paretzke, T. Gruhn, E. Benton Nucl. Instr. Methods <u>107</u> (1973)





121-5

9600+







Fig. 3 SNEAK 9A-0 Axiale Spaltratentraverse U 235

## 1213 SNEAK

Aufbau und Meßprogramm der Anordnungen SNEAK-9C\*

### 1. Einleitung

Bei den Cores SNEAK-9B und 9A standen Fragen der Brutrate und der Kontrollstabeigenschaften des SNR im Vordergrund /1/, /2/. Mit SNEAK-9C sollen nun insbesondere die Daten vervollständigt werden, die zur Festlegung der Brennstoffanreicherung des SNR notwendig sind. Hierbei interessiert vor allem der Einfluß von Plutonium mit hohem (~20%) <sup>240</sup>Pu-Gehalt auf k<sub>eff</sub>, Absorbermaterialwerte, Na-Void und andere Coreparameter.

Weitere Schwerpunkte im SNEAK-9C-Programm sind die Messung der Reaktionsraten höherer Plutonium- und Americiumisotope sowie die Überprüfung der Substitutionsmethode.

Zur Lösung dieser Aufgaben wurden zwei Anordnungen entworfen. SNEAK-9C-1 ist ein Einzonenurancore, das durch schrittweise Sektorsubstitution in das Plutoniumcore 9C-2 übergeführt wird. Im Zentrum dieser Anordnung wird dann eine Plutoniumzone mit hohem<sup>240</sup>-Pu-Gehalt aufgebaut.

#### 2. SNEAK-9C-1

Abb. 4 zeigt den Querschnitt der kritischen Anordnung 9C-1. Der Zellaufbau wurde so gewählt, daß nach vollständiger Substitution ein Plutoniumcore mit nahezu gleicher Größe und einfachem Zellaufbau (1 Plutoniummischoxidplättchen, 1 Na-Plättchen, Abb. 5) entsteht. Die Höhe des Cores beträgt 60 cm, der Radius ~ 37.5 cm. Axiales und radiales Blanket aus abgereichertem Uran haben eine Dicke von ~ 30 cm.

**★** BzFE-Nr. 412.1

- /1/ G. Jourdan Geometrischer Aufbau und Meßprogramm von SNEAK-9B KFK-1272/1, S. 121-22
- /2/ M. Pinter Geometrischer Aufbau und Meßprogramm von SNEAK-9A KFK-1272/4, S. 121-6



- R: Referenzposition für Parallelplattenkammern
- S: SNEAK-Sicherheitsstab
- T: SNFAK-Trimmstab









9C-2

9C-1

Abb. 5: Zellaufbau von SNEAK-9C-1 und SNEAK-9C-2

Die Experimente in dieser Anordnung beschränken sich auf die Bestimmung der wichtigsten Coreparameter

> <sup>k</sup>eff, <sup>B<sup>2</sup></sup> m Reaktionsratenverteilung, Spektralindizes

Materialwerte,  $\beta_{eff}$ .

## 3. SNEAK-9C-2

Durch schrittweise Substitution von  $45^{\circ}$ -,  $90^{\circ}$ -,  $180^{\circ}$ - und  $270^{\circ}$ -Sektoren wird 9C-1 zum Plutoniumcore 9C-2 umgeladen. Diese vollständige Überführung eines Urancores in ein Plutoniumcore erlaubt die Überprüfung der Substitutionsmethode, insbesondere im Hinblick auf die Experimente der SNEAK-2 Serie und auf zukünftige Untersuchungen zum Großbrüter.

Mit 9C-2 wird erstmals ein Einzonen-Pu-Na-Core zur Verfügung stehen, an dem eine gute Überprüfung der Rechenmethoden und Querschnittssätze möglich ist. Experimentelle Schwerpunkte im sauberen Core 9C-2 sind

- Messung des Na-Void-Effekts. Sie soll zur Klärung der Frage beitragen, ob die gute Übereinstimmung von Rechnung und Experiment in 9B corespezifisch oder für die Rechenmethode typisch ist.
- Messung der Reaktionsraten und Materialwerte von Plutonium- und Americiumisotopen (siehe auch /3/).

Nachdem von der UKAEA eine Lieferungszusage über 85 kg Plutonium mit ca. 18% <sup>240</sup>Pu vorliegt, werden für ein Experiment mit einer zentralen Zone mit "schmutzigem" Plutonium in SNEAK insgesamt etwa 115 kg Pu zur Verfügung stehen.

Die wichtigsten Experimente in einer solchen Zone sind

- Messung von  $k_{eff}$ , evtl.  $B_m^2$  (bei genügend großer Zone)
- Untersuchung des Einflusses von <sup>240</sup>Pu auf Na-Void und Absorberwirksamkeit
- Messung von Reaktionsraten.

Die Experimente an den 9C-Anordnungen werden voraussichtlich im September 1974 abgeschlossen werden.

## Veröffentlichungen:

(1) P.E. McGrath

KAPER - Lattice Program for Heterogeneous Critical Facilities
(User's Guide)
KFK-1893 (November 1973)

Vorträge auf dem International Symposium on Physics of Fast Reactors, Tokyo, October 1973:

- (2) E.A. Fischer, F. Helm, G. Jourdan, P. McGrath, W.J. Oosterkamp An investigation of the heterogeneity effect in sodium void reactivity measurements
- /3/ W. Scholtyssek, R. Böhme
   Ratenmessungen an höheren Pu-Isotopen
   S. 121-1 des vorliegenden Berichtes

- (3) E. Wattecamps, N. Pieroni, F. Kappler, D. Rusch, A. Schmidt,
   H. Werle
   Measurements of fast neutron spectra in <sup>238</sup>U, Fe and Na assemblies
- (4) E.A. Fischer, H. Küsters The Fast Reactor Physics Program in the Federal Republic of Germany
- (5) E.A. Fischer, M. Pinter, W. Scholtyssek, IASR; M. Darrouzet, J.P. Chaudat, Cadarache (Frankreich); G. Ingram, J.E. Sanders, Winfrith (England)
   Standard unit k<sub>∞</sub> lattice in metallic uranium assemblies ZEBRA-8H, SNEAK-8, ERMINE and HARMONIE UK
- (6) F. Helm, R. Böhme, G. Durance<sup>1)</sup>, P. Fehsenfeld, M. Pinter, IASR;
   S. Pilate, Belgonucléaire; U. Wehmann, Interatom
   Control rod measurements in a uranium fueled mock-up of the fast
   breeder prototype SNR

1) Delegierter von der AAEC zum IASR

1215 WIRKUNGSQUERSCHNITTSMESSUNGEN

1215.1 <u>Van-de-Graaff-Beschleuniger</u> (H. Beer, A. Ernst, F. Käppeler, S. Liese, J. Nadasdy, D. Roller, R. Spencer, IAK)

### 1. Betrieb und Ausbau des Beschleunigers

Im Berichtszeitraum stand der Beschleuniger insgesamt 1280 Stunden für Experimente zur Verfügung. Davon wurden 82 % für das PSB genutzt. Die Entwicklungsarbeiten an dem 5 MHz-Chassis im Beschleunigerterminal (1), mit dem eine flexiblere Pulsung und eine wesentliche Erhöhung des Protonenstroms erreicht werden konnte, sind nach einer längeren Erprobungsphase nunmehr erfolgreich abgeschlossen.

### 2. Resonanzen mittelschwerer Kerne

Auf diesem Gebiet wurden detaillierte Analysen durchgeführt und zum überwiegenden Teil abgeschlossen. Dies gilt sowohl für die Meßdaten des totalen Querschnitts von  ${}^{63}$ Cu und  ${}^{65}$ Cu als auch für die Einfangquerschnitte der Isotope  ${}^{50,52,53}$ Cr,  ${}^{54,57}$ Fe und  ${}^{62,64}$ Ni. In beiden Fällen werden Veröffentlichungen vorbereitet. Die Resonanzparameter der Cu-Isotope  ${}^{63}$ Cu und  ${}^{65}$ Cu wurdem zusammengestellt. Die Ergebnisse der Einfangquerschnittsmessung an  ${}^{59}$ Co werden nach der endgültigen Auswertung in Kürze zur Verfügung stehen, nachdem über vorläufige Ergebnisse bereits berichtet wurde (2).

### 3. Standardguerschnitte

Da alle mit dem 800  $\ell$ -Szintillatortank bestimmten Einfangquerschnitte auf <sup>197</sup>Au normiert sind, bestand ein unmittelbares Interesse daran, dieses Isotop, dessen Einfangquerschnitt allgemein als Standard benutzt wird, in die Absolutbestimmung des Einfangquerschnitts von <sup>238</sup>U einzubeziehen. Bis jetzt liegen Meßdaten über den Energieverlauf des Verhältnisses  $\sigma_{v}^{-197}$ Au/ $\sigma_{f}^{-235}$ U im Bereich von 10 - 600 keV vor.

Nachzutragen ist hier auch die Fertigstellung der Analyse einer Messung des totalen Querschnitts von  ${}^{10}$ B /1/. Diese Arseit, die gemäß einer Absprache im EANDC im Energiebereich von 90 - 420 keV ausgeführt wurde, ist ebenfalls ein Beitrag zur Verbesserung der Kerndatenstandards.

<sup>/1/</sup> R.R. Spencer, H. Beer, F.H. Fröhner The Total Neutron Cross Section of Boron-10 between 90 and 420 keV. KFK-1516, EANDC(E)14)'AL'

# 4. Spaltquerschnitte

Die Absolutmessung des Spaltquerschnitts von  $^{239}$ Pu relativ zum Wasserstoffstreuquerschnitt wurde abgeschlossen. Der Energiebereich zwischen 500 und 1200 keV wurde in Schritten von ca. 50 keV untersucht. Die Auswertung dieser Messung wird voraussichtlich 3 Monate dauern, die erreichbare Genauigkeit von  $\sigma_f$  dürfte bei 4-5 % liegen.

## 5. $\gamma$ -Produktionsquerschnitte

Das Experiment zur Untersuchung von hochenergetischen  $\gamma$ -Übergängen beim Einfang von keV-Neutronen wurde aufgebaut und in Betrieb genommen. Vorläufige Messungen an Al, Fe und Ni zur Verbesserung der experimentellen Anordnung (Abschirmung von Streuneutronen, Reduzierung des  $\gamma$ -Untergrunds) ergaben, daß unter den vorliegenden Bedingungen im Vergleich zu früheren Arbeiten relativ geringe Probenmengen ausreichen. Der endgültige Ausbau des Experiments sowie die Eichung der Ansprechwahrscheinlichkeit des Ge(Li)-Detektors sind für das erste Quartal 1974 vorgesehen.

### Veröffentlichungen zu 1215.1:

(1) S. LIESE and D. ROLLER

A New 5-MHz Pulser for the Karlsruhe 3 MV Van-de-Graaff-Accelerator. Nucl. Instr. Meth. 112/3 (1973) 551-554.

(2) R.R. SPENCER, H. BEER Capture Cross Section Measurements on Reactor Structural Materials with a Large Liquid Scintillator; Recent Changes in the Detector and a Capture Measurement on <sup>59</sup>Co with Improved Time Resolution. Linac and Van-de-Graaff Working Group Meeting, Harwell, England, Sept. 24-26, 1973.

ت مرتبعه بالمحاجبة الرئيس تنظيم المرتبة المرجع محمد المحاجبة من المرتبع محمد على والمحاجبة متعارضة المحاجبة ال 1999 - قالم المحاجبة الرئيس محمد المحاجبة المحمد المحاجبة المحمد محمولات المحاجبة المحاجبة المحاجبة المحاجبة ال 1999 - محمد المحاجبة المحاجبة المحمد المحاجبة المحمد المحاجبة المحمد المحاجبة المحاجبة المحاجبة المحاجبة المحاج 1999 - محمد محمد المحاجبة المحاجبة المحمد المحمد المحمد المحمد المحمد المحمد المحمد المحاجبة المحاجبة المحاجبة ا

1215.2 Kerndatenmessungen am Zyklotron<sup>1)</sup>

1. <u>Spaltquerschnitte von</u> <sup>235</sup>U und <sup>238</sup>U

(P. Brotz, D. Gröschel, S. Cierjacks, D. Erbe, C.M. Newstead, G. Schmalz, I. Schouky, R. Töpke, F. Voß, IAK)

Die Auswertung der Spaltquerschnittsdaten wurde abgeschlossen. Damit liegen nunmehr endgültige Werte für das Spaltquerschnittsverhältnis  $\sigma_f(8)/\sigma_f(5)$ (Tab. 1) und vorläufige Ergebnisse für die Einzelquerschnitte relativ zum Wasserstoff (n,p)-Querschnitt im Energiebereich zwischen 1-20 MeV vor.

Da die Massenbelegung der verwendeten Spaltfolien nicht genau genug bestimmt werden konnte, sind die Daten für das Wirkungsquerschnittsverhältnis auf den gut bekannten Wert von 0.53 bei 14 MeV /1/ normiert. Die Karlsruher Ergebnisse sind über den gesamten Energiebereich von 1-20 MeV in guter Übereinstimmung mit den neuesten Harwell-Resultaten /2/. Im Gebiet zwischen 2-5 MeV liegen unsere Daten jedoch um ca. 5% niedriger als die Querschnitte von Meadows /3/, welche an die Absolutwerte von Pönitz /4/ angepaßt sind. Die Normierung der Karlsruher Ergebnisse und der Werte von Harwell an die Absolutwerte von Pönitz bei 2 MeV würde einen bei weitem zu großen Wert bei 14 MeV von 0.55 liefern, und stünde außerdem in Widerspruch zu den Ergebnissen verschiedener integraler Messungen /5/.

Die Spaltquerschnitte von <sup>235</sup>U und <sup>238</sup>U relativ zum Wasserstoff (n,p)-Querschnitt sind bis auf die Korrektur für die experimentelle Schwelle der verwendeten Flußdetektoren ausgewertet. Sie haben noch vorläufigen Charakter. Bei ihnen ist aufgrund der fehlenden Schwellwert-Korrekturen noch mit Änderungen der Einzeldaten zwischen 10-15% zu rechnen. Experimente und Berechnungen zur Bestimmung des Ansprechverhaltens der Flußdetektoren im Bereich der Schwellen sind noch im Gange.

Aus den Ergebnissen der Relativmessungen für beide Spaltquerschnitte konnten die Barrieren für die Spaltung nach vorheriger Emission von einem bzw. zwei Neutronen (second and third-chance fission) ermittelt worden. Diese ergaben sich bei <sup>235</sup>U zu 6,6 MeV und 13,4 MeV, bei <sup>238</sup>U zu 6,38 und 14,51 MeV.

1)Zuletzt berichtet in KFK 1272/3

# <sup>2</sup>. Hochaufgelöste differentielle elastische Streuquerschnitte

(R. Töpke, S. Cierjacks, D. Erbe, C.M. Newstead, G. Schmalz, I. Schouky, F. Voß, IAK)

Die 2-Parameter Streuanordnung für Messungen oberhalb der inelastischen Schwelle wurde fertiggestellt und erstmals während einer mehrwöchigen Meßzeit am Zyklotron eingesetzt. Die derzeitige Streuanordnung, die zunächst am 60 m Flugweg aufgebaut wurde, bietet die Möglichkeit, die Energieabhängigkeit der differentiellen Wirkungsquerschnitte für zehn Winkelpositionen gleichzeitig mit einer Winkelauflösung von v 7° zu messen. Mit der bisher erreichten Energieauflösung in den Rückstoßprotonenspektren von 8-16 % ist eine gute Trennung der elastischen von den inelastischen Streuprozessen bis zum 3-fachen Wert der Energiedifferenz zwischen Grundzustand und 1. angeregten Niveau des Restkerns möglich. Mit der neuen Apparatur wurden Messungen an den Kernen C und Ca für insgesamt 10 Streuwinkel im Energiebereich zwischen 500 keV und 10 MeV durchgeführt. Die Auswertung der Daten steht weitgehend vor dem Abschluß. Ein vorläufiges Ergebnis des differentiellen elastischen Querschnitts von Ca unter 20° ist in Abb. 1 dargestellt. Diese Daten sind bereits für das Ansprechvermögen der Detektoren welches mit Hilfe eines Monte-Carlo Programms bestimmt wurde, korrigiert. Dagegen fehlen hier noch die Korrekturen für Mehrfachstreuung, mit deren Berechnung begonnen wurde.

Neben den Auswertungen der gemessenen Daten laufen z.Zt. Vorbereitungen für weitere Querschnittsbestimmungen an den Elementen O, Si, Fe und Pb. Da bei diesen Materialien die Schwellen für inelastische Neutronenstreuung relativ niedrig liegen, sind Arbeiten eingeleitet worden, um die Energieauflösung der Rückstoßprotonenzähler zu verbessern. Aufgrund von Optimierungen der Detektorparameter erscheint eine Verbesserung des Energieauflösungsvermögens um den Faktor 2 möglich.

## 3. γ-Produktionsquerschnitte der inelastischen Neutronenstreuung an Cr und Ni

(F. Voß, S. Cierjacks, D. Erbe, C.M. Newstead, G. Schmalz, I. Schouky, IAK)

Mit der modifizierten γ-Spektrometer-Anordnung wurden am 60 m-Flugweg die γ-Produktionsquerschnitte von Cr und Ni gemessen. Unter Verwendung des neuen Ge(Li)-Detektorsystems mit einer Energieauflösung von 2.1 keV konnten die Anregungsfunktionen für die Produktion von vier  $\gamma$ -Linien in <sup>58</sup>Ni und vier  $\gamma$ -Linien in <sup>60</sup>Ni, sowie neun  $\gamma$ -Linien in <sup>52</sup>Cr und je eine  $\gamma$ -Linie in <sup>50</sup>Cr und <sup>53</sup>Cr untersucht werden. Mit der Auswertung der Meßdaten wurde begonnen.

# 4. Inelastische Neutronenstreuung an <sup>290</sup>U

(F. Voß, S. Cierjacks, D. Erbe, C.M. Newstead, G. Schmalz, I. Schouky, IAK)

Bei der Untersuchung der inelastischen Streuung an  $^{238}$ U mit der Methode der assoziierten  $\gamma$ -Strahlung erwies sich das neue Ge-(Li)-Detektorsystem als besonders vorteilhaft. Die beiden wichtigsten Komponenten dabei waren die verbesserte Energieauflösung von 2.1 keV und das höhere Photopeak-zu-Compton Verhältnis von 27:1. Diese Anordnung erlaubte die Beobachtung von fünf  $\gamma$ -Linien des Urans von 600-1200 keV. Wegen des hohen  $\gamma$ -Untergrunds aus der Eigenaktivität der Probe und konkurrierenden neutroneninduzierten Prozessen werden erst die jetzt beginnenden Auswertungen zeigen, ob sich der erfaßbare Meßbereich beträchtlich über die Spaltschwelle bei 1.2 MeV ausdehnen läßt.

# 5. Hochaufgelöste totale Wirkungsquerschnitte

(G. Schmalz, R. Töpke, S. Cierjacks, F. Voß, D. Erbe, C.M. Newstead, I. Schouky, IAK)

Am 190 m Flugweg wurden zusätzliche Transmissionsmessungen an 0 und Al mit einer Spektrometerauflösung von 0.015 ns/m ausgeführt. Hauptziel dieser Untersuchungen war die genauere Bestimmung der Wirkungsquerschnittsminima mit Hilfe sehr dicker Proben. Insbesondere die niedrigen s-Wellen Minima besitzen besondere Bedeutung bei Abschirmproblemen. Die Messungen an diesen Substanzen mit stark verbesserter Auflösung geht auf Absprachen in den internationalen Kerndatengremien zurück. Hier wurde die Meinung vertreten, daß solche Messungen spezifisch für die Karlsruher Einrichtung seien, und an dieser ausgeführt werden sollten. Die Auswertung dieser Daten sowie der früheren Meßergebnisse für Fe und Mn sind im Gange. Z.Zt. werden umfangreiche Monte-Carlo-Rechnungen zur Ermittlung der energieabhängigen Totzeitkorrekturen ausgeführt. Die Auswertungen für Fe und Mn stehen kurz vor dem Abschluß. Ein Teilergebnis für die Eisenmessung mit einer dicken Probe von 0.4 At/b ist in Abb. 2 wiedergegeben.

### Literatur:

- /1/ W. Hart United Kingdom Atomic Energy Authority Report, AHSB (S) R 169, 1969 /2/ M.S. Coates et al. private Mitteilung
- /3/ J.W. Meadows Nucl. Sci. Eng. <u>49</u> (1972) 310
- /4/ W.P. Pönitz, R.J. Armani Journ. Nucl. Energy <u>26</u> (1972) 483
- /5/ M.G. Sowerby, B.H. Patrick, D.S. Mather Interner Report, AERE-R 7273

na o esta esta por ester arte cara esta de las presentas com entro de arte cara meser esta de las entros da presententa da 1930 de las completos consultas en la esta de las consectes de la conducta en este este esta de esta de termo, incleteros partes de ester arte esta construcción en la constructiva de las constructivas de la

> a na 1997. Il superior de la construcción de la construcción de la construcción de la construcción de la const La construcción de la construcción d

(a) The second system is the second of the second s second s second s second s second s second s second se second seco

# 121-19

# Tab. 1: Wirkungsquerschnittsverhältnis $\sigma_{f}(U8) / \sigma_{f}(U5)$

Energie (MeV)	σ <sub>f</sub> 238 σ <sub>f</sub> 235	Fehler (%)	∆E (keV)	Energie (MeV)	σ <sub>f</sub> 238 σ <sub>f</sub> 235	Fehler (%)	∆E (keV)
30.413	0.772	5.5	979	10.331	0.560	3.5	191
29.601	0.810	5.2	939	10.172	0.543	3.6	187
28.820	0.759	4.9	902	10.015	0.556	3.7	183
28.071	0.772	4.6	866	9.863	0.552	3.7	179
27.351	0.752	4.4	833	9.714	0,550	3.8	175
26.659	0.729	4.1	801	9.568	0.522	3.9	171
25 003	0.776	38	771	9 426	0.531	39	167
25 352	0.752	J.U 3 5	7/10	0 287	0.554	2.0	163
	0.770	J•J z z	[ <u>7</u> 2	9.201	0.557	- + • O	160
24.195	0.112	2.2	(1)	9.100	0.502	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	100
24.140	0.704	2.1	009 661	9.017	0.525	4.2	150
23.500	0.755	2.9	004	0.00/	0.540	4.1	152
23.014	0.755	2.7	641	8.760	0.519	4.2	149
22.480	0.733	2.6	619	8.635	0.569	4.2	146
21.965	0.731	2.6	597	8.513	0.524	4.5	143
21.468	0.752	2.5	577	8.393	0.553	4.5	140
20.988	0.730	2.4	558	8.276	0.518	4.6	137
20.524	0.730	2.4	539	8.162	0.526	4.7	134
20.075	0.706	2.3	521	8.050	0.567	4.8	132
19.641	0.693	2.3	504	7.940	0.558	4.9	129
19.221	0.668	2.2	488	7.832	0.538	4.9	126
18.814	0.654	2.2	473	7.727	0.533	5.1	124
18,420	0.634	2.2	458	7.623	0.524	5.2	121
18.039	0.614	2.1	443	7.522	0.563	5.2	119
17 670	0.614	2.1	430	7.423	0.539	5.3	117
17 311	0.621	21	山 山 丁 丁	7 326	0.546	54	114
16061	0.021	2.1	10/L	7 230	0.564	J•1 5 5	110
16.507	0.597	2.1	707	7 137	0.550	56	110
16 301	0.014	2.1	792		0.559	5.8	108
10.001	0.024	2.1	<i>5</i> 01 760	6 055	0.5/9	5.0	100
12.983	0.005	2.1	209	0.905	0.595	5.0	100
15.675	0.591	2.1	259	0.00/	0.507	5.9	104
15.376	0.586	2.1	348	6.780	0.600	6.1	102
15.086	0.574	2.2	339	6.695	0.596	6.2	100
14.803	0.556	2.2	329	6.612	0.583	6.4	98
14.529	0.533	2.3	320	6.530	0.614	6.6	96
14.262	0.542	2.3	311	6.450	0.552	6.9	94
14.003	0.543	2.4	303	6.371	0.591	7.1	93
13.750	0.523	2.4	294	6.294	0.558	7.4	91
13.505	0.543	2.5	287	6.218	0.511	7.6	89
13.266	0.527	2.6	279	6.143	0.519	7.6	88
13.033	0.528	2.6	272	6.070	0.604	7.7	86
12.807	0.506	2.7	265	6.013	0.541	7.5	98
12.586	0.525	2.8	258	5.914	0.490	6.7	121
12.371	0.535	2.9	251	5.804	0.494	7.5	105
12,161	0.563	2.9	245	5.710	0.452	7.1	115
11 957	0.567	3.0	239	5.605	0.510	7.6	100
11 758	0 563	3.1	233	5 516	0.483	7.2	109
	0.507	ノ・エ ス 1	200	J・J1-Q 5 上1-7	0 520	7 0	106
11 375		ノ・ユ ス 1	201	5 300	0.173	6.8	114
11 100	0.5/4	2.1	221		0.47	7 5	100
11.190	0.570	J.2 77	210	<b>J.21</b> 5 117	0.472 0.km	(•)	100
11.010	0.557	2.2	211	5.112	0.454	γ.Ο	105
10.834	0.557	2.2	206	5.015	0.40	1.1	105
10.663	0.547	<b>3.4</b>	201	4.917	0.470	0.0	115
10.495	0.583	3.4	196	4.813	0.459	6.5	108

Energie (MeV)	σ <sub>f</sub> 238 σ <sub>f</sub> 235	Fehler (%)	∆E (keV)
4.712	0.434	6.6	105
4.614	0.509	6.5	102
4.510	0.456	6.2	107
4.410	0.475	6.4	104
4.313	0.491	6.3	100
4.219	0.451	6.1	105
4.112	0.470	5.8	109
4.009	0.460	5.8	105
3.910	0.434	5.9	101
3.814	0.432	5.6	105
3.715	0.477	5.0	101
3.613	0.472	5.4	103
3.515	0.442	5.3	105
<i>5</i> .415	0.405	5.2	101
2.014 7.017	0.401	2.2	102
<i>3.211</i>	0.419		105
2.112 7.014	0.410	4.9	205
2.014	0.422	4.9	103
2.910	0.407	4.0 J	103
2.01/	0.421	・ サ•ク - ル ル	101
2.11)	0.402	-тт 12 Ц	100
2 518	0 403	ц ц	102
2.417	0.389	4.1	103
2.315	0.383	4.0	100
2.216	0,390	3.9	100
2.117	0.399	3.8	103
1.973	0.390	5.3	50
1.923	0.372	5.3	53
1.872	0.402	5.2	51
1.821	0.386	5.2	51
1.773	0.369	5.3	49
1.723	0.327	5.3	51
1.674	0.343	5.3	51
1.623	0.344	5.3	51
1.574	0.321	5.4	51
1.524	0.291	5.4	52
1.472	0.259	5.6	51
1.424	0.204	6.2	50
1.374	0.131	7.2	51
1.324	0.079	8.5	- 51



Abb. 1 Differentieller elastischer Wirkungsquerschnitt von Calcium unter 20<sup>0</sup>





## 122 REAKTORTHEORIE

1222 Rechenverfahren und Berechnung der Eigenschaften von Reaktoren

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

### SNOW, ein zweidimensionales Transportprogramm

(C. Günther, INR)

Der Transportcode SNOW löst die zweidimensionale Neutronentransportgleichung für ebene und zylindrische (r,z)- und  $(r,\theta)$ -Geometrie im Multigruppenmodell ab. Diesem Code liegen die S<sub>N</sub>-Differenzengleichungen von CARLSØN und LATHROP /1/ zu Grunde. Die Anzahl der maximal möglichen diskreten Winkelrichtungen zur Beschreibung des winkelabhängigen Neutronenflusses ist auf ein vernünftiges Maß beschränkt (S<sub>8</sub> = 60 Richtungen pro halbe Einheits-Kugel), kann jedoch im Bedarfsfall vergrößert werden. Beliebige Abwärtsstreuung, auch anisotrop, ist zugelassen. Für die Anzahl der Gruppen, Mischungen, Zonen und Maschenpunkte gibt es keine Einschränkung. Neben k<sub>eff</sub>-Berechnungen ist auch die Behandlung von Fremdquellproblemen möglich; auch das adjungierte Problem kann gelöst werden. Die meisten Standard-Randbedingungen können verarbeitet werden.

1)

Die jetzt vorliegende Version des Codes, dokumentiert in /2/, gibt die Möglichkeit, zweidimensionale Neutronenverteilungen in Transportnäherung mit erträglichem Aufwand zu berechnen. Eine Erfassung der nichtberücksichtigten Ortsdimension in (x,y) und (r, $\theta$ )-Geometrie durch eine Vielzahl verschiedener Buckling-Options ist möglich. Zu den üblichen Ausgabegrößen kommt zusätzlich auch eine Möglichkeit, transportkonsistente Bucklings für eindimensionale Transportrechnungen zu erzeugen.

1) Erster Bericht

- /1/ B. Carlson, K. Lathrop: J. Comp. Phys. 2 (1967), pp. 173-197
- /2/ C. Günther, W. Kinnebrock: KFK 1826 (1973)

Ein Ansatz zur sinnvollen Verarbeitung der bei Großprogrammen wie SNOW anfallenden, riesigen Datenmengen wurde dadurch unternommen, daß eine Möglichkeit geschaffen wurde, graphische Darstellungen von Höhenlinien des Neutronenflusses zu erhalten, welche über den Plotter oder über den Bildschirm des TCP-Systems ausgegeben werden können. Dies wurde durch den Einbau einer Version des Programmes LEVLOC /3/ realisiert.

Es ist vorgesehen, in einer weiteren Ausbaustufe, während SNOW in das Programmsystem KAPROS /4/ eingebaut wird, mischungsabhängige Spaltspektren verarbeiten zu können.

Im Zusammenhang mit der Berücksichtigung der anisotropen Streuung ergibt sich auch die Aufgabe der Überprüfung der benützten diskreten Richtungen und der zugehörigen Berechnungsformel für den Skalarfluß und die Flußmomente höherer Ordnung. Diese Probleme stehen in unmittelbarem Zusammenhang mit Fragen der mehrdimensionalen numerischen Integration.

# 1222.2 <u>Untersuchung des Quelliterationsschemas für den Monte-Carlo-Code</u> <u>KAMCCO</u><sup>G</sup>

(H. Borgwaldt, M. Lalović, INR)

Reaktorberechnungen mit dem Monte-Carlo-Verfahren erfordern ein Quelliterationsschema, welches aus den im Zufallswanderungsprozeß anfallenden Stoß- und Flugwegdaten der Neutronen für jede Generation eine Stichprobe von N Spaltneutronen-Quellpunkten erzeugt. Dabei ist N eine durch die Dateneingabe bestimmte Größe der Neutronenpopulation jeder Generation. Für ein solches Quelliterationsschema muß man folgendes fordern:

- Die Gesamtheit aller Quellpunkte (aller Generationen) muß eine erwartungstreue Stichprobe der echten Quellverteilung sein. Andernfalls ergeben sich systematische Fehler.
- (2) Quellneutronen aufeinanderfolgender Generationen dürfen bezüglich ihrer Einflußfunktion nicht positiv korreliert sein. Andernfalls vergrößern sich die statistischen Fehler, und diese können zudem schlechter geschätzt werden.

<sup>/3/</sup> C. Günther: INR-Arbeitsbericht Nr. 497 (1973)

<sup>/4/</sup> S. Kleinheins et al.: KFK-Bericht in Vorbereitung

- (3) Die N Quellneutronen jeder einzelnen Generation sollen f
  ür sich eine repr
  äsentative Stichprobe der Gesamt-Quellverteilung sein. Dies reduziert erheblich die statistischen Fehler.
- (4) Wegen des häufigen Aufrufs müssen die verwendeten Algorithmen extrem einfach sein.

Das in KAMCCO implementierte Quelliterationsschema der "fractionally generated fission neutrons" /1/ wurde gewählt, weil es den Forderungen (2) und (3) einigermaßen entspricht. Jedoch stoßen die strenge Erfüllung und/oder Prüfung dieser Bedingungen auf große Schwierigkeiten wegen des erforderlichen numerischen Aufwands. Verbesserungen des Quelliterationsschemas in dieser Richtung, mit erheblichen Rechenzeitgewinnen bei großen Systemen, werden für die Zukunft angestrebt. Das bisher in KAMCCO implementierte Schema bezeichnen wir mit S/D. Es folgt der Rief'schen Arbeit /1/. Eine Quellgewichtssumme G<sub>s</sub> wird zu Beginn =0 gesetzt und bei jedem Stoß nach G'<sub>s</sub> = G<sub>s</sub> + G·vE<sub>f</sub>/E<sub>t</sub> (S) verändert (G = Neutronengewicht, v = Spaltneutronenanzahl, E<sub>f</sub>, E<sub>f</sub> = makroskopischer Spalt- und totaler Querschnitt).

G wird verglichen mit einer Folge von Marken

$$W_{o} = 0, \quad W_{n+1} = W_{n} + k_{eff}^{(n)} \quad (n = 0, 1, ...)$$
 (D)

Dabei ist  $k_{eff}^{(n)}$  eine aktuelle Schätzung von  $k_{eff}$ . Wenn bei einem Stoß die Marke W<sub>n</sub> von G<sub>s</sub> überschritten wird, wird dieser Stoßpunkt als n-ter Quellpunkt gewählt. Notwendige Verfeinerungen, für mehrere spaltbare Isotope, sollen hier nicht weiter erläutert werden.

Nach Rief /2/ bestehen jedoch Zweifel, ob dieses Schema die vorrangige Bedingung (1) der Erwartungstreue erfüllt oder aber die Quellpunkte schwach korreliert sind. Da theoretische Untersuchungen hierüber sehr aufwendig sind, wurden Alternativen zum Schema S/D gesucht, bei denen die Erwartungstreue gewährleistet ist. Als 1. Alternative ergab sich dabei das Schema S/E, bei dem die determinierten Zuwächse der W<sub>n</sub> nach (D) ersetzt werden durch exponentiell-verteilte Zuwächse nach

/2/ H. Rief, Persönliche Mitteilung (1973)

<sup>/1/</sup> H. Rief, H. Kschwendt: Nucl. Science and Eng. <u>30</u>, 395 (1967)

$$W_{o} = 0, W_{n+1} = W_{n} + x_{n} \cdot k_{eff}^{(n)}$$
 (n = 0,1,...) (E)

Dabei sind die  $x_n$  exponentiell-verteilt mit dem Erwartungswert 1. Durch die bekannte Markow-Eigenschaft der Exponentialverteilung sind die  $W_n$ unkorreliert und können auch bei der Auswahl der Quellpunkte keine Korrelation verursachen. Beachten muß man jedoch, daß die Funktion  $G_s$  gelegentlich bei einem Stoß zwei oder mehr Marken  $W_n$  überschreiten kann und dieser Stoßpunkt dann ein mehrfacher Quellpunkt wird. Dies ist nicht im Einklang mit der Forderung (3).

Als 2. Alternative wurde daher das Schema F/E untersucht; wir verwenden statt der Stoßbeziehung (S) eine Flugwegbeziehung

$$G_{c}^{\dagger} = G_{c}^{\dagger} + G_{\bullet} \nu \Sigma_{f}^{\bullet} D,$$

mit D = Länge des Flugweges in einem Bereich. Wenn auf einem Flugweg die Funktion G eine Marke W nach (E) überschreitet, wird als einfacher Quellpunkt der Punkt des Flugwegs gewählt, an dem das Überschreiten geschieht.

(F)

Für die Schemata S/E und F/E wurden eine Reihe von Vergleichsrechnungen durchgeführt, für ausgewählte Fälle wurde auch das alte Schema S/D überprüft. Als nukleare Daten wurde der Datensatz INR.LAL.ISOTA benutzt, der z.Zt. die beste Anpassung an das aktuelle KEDAK ist. Die Ergebnisse für jeden Reaktor sind statistisch unabhängig, da jedem Schema ein eigener Zufallswanderungsprozeß entspricht. Ein Vergleich der Ergebnisse läßt in keinem Fall systematische Abweichungen erkennen, auch nicht für das Schema S/D (siehe Tabelle).

Da das Quelliterationsschema F/E gegenüber den anderen Schemata theoretische Vorteile aufweist, wurde KAMCCO auf dieses Schema umgestellt.

			S/E		F/E		S/D		
Anordnung	Rechenzeit /370 - 165 (min)	Datensatz	k	δk(%)	k	δk (%)	k	δk (%)	
GODIVA (U-Kugel unrefl.)	8		0.9975	0.19	0.9947	0.19			
TOPSY (U-Kugel refl.)	8		0.9773	0.57	0.9895	0.61			
JEZEBEL (Pu-Kugel unrefl.)	8	TA	0.9821	0.16	0.9816	0.15	0.9835	0.16	
POPSY (Pu-Kugel refl.)	8	LAL.ISO	0.9707	0.64	0.9709	0.64	0.9661	0.57	
SUAK U1B (20 % U)	8	INR.	0.8401	0.47	0.8350	0.45	0.8353	0.42	
SNEAK 3A1	8		0.9592	0.81	0.9590	0.99	0.9602	0,81	
ZPR III-48	17		0.9766	0.82	0.9660	0.73			
SUAK UH1B	8		0.8882	0.53	0.8902	0.53			

# Tabelle: Monte-Carlo-Testrechnungen

								¢						
		1.42												
											2			
													,	
			i.											
		est e p												
											1			
	-													
			÷.											
				ан н. Т			•							
			1. 1.											
											2			
													1	
		1												
		,												
													-	
													-	
									•					
										*				
											<b>'</b>			

### 123 SICHERHEIT SCHNELLER REAKTOREN

## 1232 Spannungs- und Verformungsanalyse von Reaktorbauteilen

1232.4 <u>Verformung eines Brennelements durch äußere statische/dynamische</u> <u>Querlasten - Experimente und einfache Theorie</u> (R. Liebe, R. Alexas, IRE)

## 1. Experimente mit Brennelementmodellen

Die Auswertung erster statischer Abplattungsversuche an verschiedenen BE-Modellen ergab typisch nichtlineare Verformungscharakteristika und erste Anhaltspunkte für das Energieaufnahmevermögen des Systems Kasten-Bündel-Abstandshalter (Abb. 1). Solche Resultate werden einer Beurteilung der detaillierten 2D-Rechenmodelle und Hypothesen dienen (vgl. Punkt 3); andererseits stellen die Verformungscharakteristika eine wichtige Eingabeinformation für vorhandene ID-Rechenprogramme dar /1/. Schließlich ergab eine vergleichende Prüfung früherer starr-plastischer Berechnungen ausreichende Kraftund Energiereserven der in Abb. 2 dargestellten Belastungsvorrichtung für statische und dynamische Versuche an kompletten BE-Modellen. Die Anlage befindet sich in der Fertigungsphase, während für ca. 70 BE-Modelle (8 Typen mit unterschiedlicher Länge, Wandstärke, Werkstoffart) ein Beschaffungsauftrag erteilt wurde.

## 2. Dynamische Materialversuche

Im Rahmen des begleitenden Versuchsprogramms "Materialversuche unter hohen Dehnungsgeschwindigkeiten" (GfK-Auftrag an ISPRA) liegen vorläufige Resultate von 20 Zugproben vor. Im Bereich  $\dot{\epsilon} = 150$ . bis 300. sec<sup>-1</sup> zeigt sich eine deutliche Erhöhung der Streckgrenze gegenüber dem statischen Wert.

### 3. Modelltheorie zum Einzelbrennelement

Neben 1D Feder/Dämpfer/Masse-Modellen zur Beschreibung der nichtlinearen, transienten BE-Verformung unter vorgegebenen Lastpulsen wurde mit der Entwicklung eines 2D-Modells zur detaillierten Analyse der Querschnittsabplattung begonnen. Zur numerischen Behandlung wurden die Bewegungs- und

\* BzFE-Nr. 537.0
/1/ Vg1. KFK 1273/2, S. 123-7 ff.

SNR-TYPISCHES BRENNELEMENTMODELL (1:1) Werkstoff : St 35 Kaltgezogen Außenschlüsselweite; S = 110. mm Wandstärke : d з. mm = Bündel: 169 pins (St Vollmaterial 6 mm  $\phi$ ) Mit Bündel u. AH 30.  $\left[\frac{kp}{mm}\right]$ F BELASTUNG Ę <u>F</u> Δs **d** . 20. ΔD  $\frac{\Delta s}{S}$  $\frac{\Delta D}{D}$ 10. Leerer Kasten 5. 0.40 [---] 0.50 0.10 0.20 0.30 0. VERFORMUNG



Abb. I



Abb. 2

Verträglichkeits-Dgln. der diskretisierten Kastenwand in allgemeiner Differenzenform formuliert. Ein entsprechendes Rechenprogramm befindet sich in der Programmierungsphase.

### 1233 Untersuchung von Kühlungsstörungen

# 1233.1 <u>Untersuchungen zur Strömungs- und Temperaturverteilung hinter</u> <u>lokalen Störungen</u>\*

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

Nach der Ermittlung der Temperaturverteilungen hinter undurchlässigen Blockaden, von denen die eine 15% des Strömungsquerschnitts in zentraler, symmetrischer Lage blockierte /1/ während die zweite 47% des Strömungsquerschnitts in einer Ecke des Brennelementkastens blockierte, wurde inzwischen die Temperaturverteilung hinter einer weiteren, ebenfalls undurchlässigen Blockade untersucht, die 41% des Strömungsquerschnitts in zentraler, symmetrischer Lage einnahm. Die aus den Meßergebnissen berechneten Temperaturen für eine entsprechende Kühlkanalblockade in einem SNR-Brennelement sind in Abb. 3 angegeben, wobei angenommen ist, daß die Blockade in einem Brennelement am Innenrand der zweiten Zone, also an der Stelle des radialen Leistungsmaximums, und axial in Coremitte auftritt. Die für diese Umrechnung notwendigen Auslegungsdaten wurden aus /2/ entnommen. Die Zulässigkeit dieser Umrechnung wurde bereits früher diskutiert (/1/, /3/).

Für die Beurteilung der Detektierbarkeit der untersuchten Blockaden fehlte bisher eine genaue Messung des durch die Blockade verursachten zusätzlichen Druckverlustes, aus dem die Durchsatzreduktion in einem Brennelement mit lokaler Kühlkanalblockade berechnet werden kann. Diese Durchsatzreduktion kann entweder unmittelbar mit Durchflußmessern oder mittelbar mit Thermoelementen am Austritt des Brennelementes detektiert werden. In einer unbeheizten Teststrecke wurde der Druckverlust für die unblockierte Teststrecke und für mehrere verschiedene Blockaden gemessen. Als Ergebnis zeigt Abb. 4 den mit

- Letzter Bericht in KFK 1273/2
- /1/ KFK-Bericht 1273/2, S. 123-12
- /2/ KFK-Bericht 660
- /3/ KFK-Bericht 1794

**<sup>\*</sup>** BzFE-Nr. 531.2

dem Staudruck im ungestörten Teil der Teststrecke dimensionslos gemachten Druckverlust in Abhängigkeit von der Reynoldszahl. Die Kurve für die unblockierte Teststrecke zeigt die bekannte Abhängigkeit des Reibungsdruckverlustes von der Reynoldszahl. Der zusätzliche Druckverlust durch die Blockade ist dagegen, wie erwartet, unabhängig von der Reynoldszahl, was aus der Parallelität aller Kurven hervorgeht.

Der Widerstandsbeiwert der untersuchten Blockaden  $c_{WB}^{}$ , der die Höhe des zusätzlichen Druckverlustes durch die Blockade in Vielfachen des Staudrucks angibt, kann aus Abb. 4 unmittelbar abgelesen werden. Kennt man nun den Druckverlust  $\Delta p = c_{WO} \rho u_0^{-2/2}$  und die Geschwindigkeit  $u_0$  im unblockierten Brennelement, dann läßt sich die Geschwindigkeits- (und damit die Durchsatz-) Reduktion  $\Delta u/u_0$  aus  $c_{WB}^{}$  einfach berechnen. Aus dem für die Verhältnisse des SNR aufgestellten Nomogramm (Abb. 5) läßt sich  $\Delta u/u_0$  für die untersuchten Blockaden für unterschiedliche Parameter  $\Delta p$  und  $u_0$  ablesen.

### Veröffentlichung zu 1233.1:

(1) D. Kirsch

The Temperature Distribution in the Recirculating How Downstream of Local Coolant Blockages in Rod Bundle Subassemblies. International Meeting on Reactor Heat Transfer,

Karlsruhe, October 9-11, 1973





Abb. 4: Druckverlust für verschiedene Blockaden



### 123-8

# 1233.2 Experimentelle Untersuchungen zum Na-Sieden \*\*

### Siedeversuche im Siebenstabbündel

(W. Peppler, K. Schleisieck, K. Mattes, IRE)

Der Umbau des Natriumkreislaufs (NSK) zur Anpassung an die Versuche mit einem Siebenstabbündel wurde abgeschlossen. Das erste mit Heizstäben der Entwicklungsstufe I (d.h. max. Leistungsdichte 170 W/cm<sup>2</sup>, max. Betriebstemperatur 950 <sup>O</sup>C) bestückte Siebenstabbündel wurde assembliert, instrumentiert und in den NSK eingebaut. Mit den Siedeversuchen wird Mitte Januar 1974 begonnen werden.

Im Rahmen der für Bündelversuche erforderlichen Heizstäbe der Entwicklungsstufe II (d.h. max. Leistungsdichte 250 W/cm<sup>2</sup>, max. Betriebstemperatur 1050 <sup>o</sup>C) wurden im NSK zwei der drei von der Firma Watlow gelieferten Heizstäbe getestet. Hierbei handelt es sich um einen mit drei Thermoelementen instrumentierten und einen uninstrumentierten Heizstab. Das Hüllrohr der Heizstäbe bestand aus dem Werkstoff 316 SS, die Drahtwendel aus Molybdän und die elektrische Isolation aus Bornitrit.

Der erste Heizstab fiel infolge Durchschlags der Spannung während des Hochfahrens zu Beginn des Tests aus. Der Durchschlag befand sich im unbeheizten Bereich anschlußseitig und wurde mit großer Wahrscheinlichkeit durch eines der drei an der Innenwand des Hüllrohres herausgeführten Thermoelemente verursacht.

Der zweite Heizstab fiel nach einer Siedezeit von 12,5 min bei einer Siedetemperatur von 950 °C und einer mittleren Leistungsdichte von ca. 140 W/cm<sup>2</sup> aus. In diesem Fall befand sich der Durchschlag am Ende der beheizten Länge. Aus dem Röntgenbild war zu erkennen, daß die Heizwendel an mehreren Stellen in diesem Bereich durchgeschmolzen war, was auf einen Wärmestau infolge mangelnder Bornitritdichte schließen ließ.

Die Tests zeigten, daß die von der Firma Watlow gelieferten Heizstäbe bei dem augenblicklichen Stand der Entwicklung die an sie gestellten Bedingungen nicht erfüllten.

\* BzFE-Nr. 531.3 Letzter Bericht in KFK 1273/2 1233.3 Brennelementverhalten unter Siedeverzug\*

(M. Cramer, B. Dorr, IRE)

Die Versuche der 2. Versuchsserie wurden im Winter 72/73 wie vorgesehen durchgeführt und danach ausgewertet. Die dabei verwendete zusätzliche Instrumentierung /1/ erwies sich als sehr nützlich.

In dem folgenden, letzten Beitrag über die <u>BEVUS</u>-Versuche werden die Aufgabenstellung und die erzielten Ergebnisse zusammenfassend dargestellt.

Mit der Einführung des Natriums als Kühlmittel in die Reaktortechnik entstanden bekanntlich neuartige Sicherheitsfragen. Ein Problem war die Unkenntnis über die Größenordnung des Siedeverzuges und somit der Siede- und Kondensationsstöße bei Siedevorgängen, die bei Kühlmittelstörungen, z.B. durch Blockaden, im Reaktorkern auftreten können. Offen war insbesondere die Frage, ob durch die hierdurch hervorgerufenen Belastungen am jeweiligen Brennelement und an den Nachbarelementen unzulässige Deformationen verursacht werden können. Diese Situation gab seinerzeit Veranlassung, die BEVUS-Versuche, d.h. Experimente mit einem beheizten Stabbündel in Originalgeometrie des SNR, durchzuführen. Zielsetzung dieser Versuche war demnach:

Ermittlung der Höhe der Siede- und Kondensationsstöße, Beschreibung des Wiedereinfallens der Natriumsäule nach einer vorangegangenen Ejektion und schließlich eine Antwort auf die Frage, ob bei diesen Beanspruchungen Deformationen an den Brennelementkästen auftreten.

Dabei wurde davon ausgegangen, daß die großte Gefährdung bei einer Totalblockade in einem Element auftritt.

Die Experimente wurden in einem Versuchsbehälter mit 0,6 m Durchmesser und 8,3 m Höhe durchgeführt. Im unteren Teil des Versuchsbehälters war das Testelement angeordnet /2/. Die Versuchseinrichtung erlaubte es, den Siedevorgang auf zwei Arten einzuleiten:

- durch Aufheizen unter konst. Druck bis zum Einsetzen des Siedens,

- durch schnelle Druckabsenkung nach Aufheizung auf eine vorgegebene Temperatur unter Überdruck.

\* BzFE-Nr. 532.1
Letzter Bericht in KFK 1272/4, S. 123-17
/1/ KFK-Bericht 1271/1
/2/ KFK-Bericht 1270/2

Zusätzlich wurde bei einigen Versuchen Inertgas eingespeist, um zu untersuchen, ob dadurch die Höhe der Kondensationsstöße herabgesetzt werden konnte.

In der Anlage wurden mit 2 Bündelelementen insgesamt 48 Versuche durchgeführt. Über die Versuche mit dem 1. Bündelelement und deren Ergebnisse wurde in /3/ bereits berichtet.

Mit der vorgesehenen Instrumentierung und der gewählten Abfragefrequenz konnten die Vorgänge im Brennelement verhältnismäßig detailliert erfaßt werden. Das Experiment bot deshalb die Gelegenheit, auch die physikalischen Vorgänge im Brennelement während des Siedens und Kondensierens verhältnismäßig genau zu beobachten. Hierunter ist insbesondere die Blasendynamik und das Pulsieren der Blase mit dem dabei verbundenen Temperatur- und Druckwechsel innerhalb der Blase zu verstehen.

Neben der Messung der Siede- und Kondensationsstöße wurde die vorhandene Versuchsapparatur während des 2. Versuchsabschnittes auch dazu verwendet, verschiedene Meßverfahren und Meßapparaturen, die für natriumgekühlte Brutreaktoren von Interesse sind, zu erproben. So wurde der Prototyp eines Durchflußmessers der Fa. Interatom eingesetzt. Er hat sich sehr gut bewährt, so daß die Meßdaten auch für die Interpretation der Siedeabläufe verwendet werden konnten.

Ein typischer Siedeablauf bei konst. Druck ist auf Abb. 6 dargestellt.

Charakteristisch an allen Kurven ist die Wiedergabe der Pulsationsfrequenz der Blase von 0,7 Hz. Das Sieden begann bei diesem Versuch ohne nennenswerten Siedeverzug. Am Anfang ist die Blase noch so instabil, daß sie noch mehrmals kollabiert. Das Kollabieren ist an der Druckkurve, den Temperaturkurven 18 und 5 und am Geschwindigkeitsverlauf erkennbar. Die Druckfühler registrieren, verursacht durch den Kollabierungsstoß, Druckschwingungen, und die Temperaturkurven zeigen zum Zeitpunkt des Kollabierens einen abrupten Übergang von der Kondensationsphase zur Ausdampfphase. Der Durchflußmesser registriert vor jedem Kollabierungsstoß eine erhöhte Einfallgeschwindigkeit. Der durch Integration der Durchflußkurve gewonnene Blasenweg wird bei jedem Kollabierungsstoß gleich Null.

Aufgrund der weiterhin zugeführten Leistung bleibt später die Blase erhalten. In diesem Zeitbereich entspricht der Sättigungsdruck mit sehr guter Genauigkeit der Siedetemperatur in der Blase (Meßstelle 23, 31). Die räumliche Lage einer

<sup>/3/</sup> M. Cramer, B. Dorr Natrium-Siedeexperimente in einem Brennelementmodell KFK-Bericht 1541


Meßstelle zur Blase bestimmt deren Temperaturverlauf während der Pulsation infolge der radialen und axialen Temperaturprofile im Versuchselement. So zeigen z.B. die Meßstellen 5 und 18 den typischen Verlauf einer im axialen Blasenausdehnungsbereich liegenden Meßstelle. Ihre Verläufe sind 180<sup>°</sup> phasenverschoben zu den Meßstellen in der Blase. Der auftretende Temperaturunterschied während einer Pulsation beträgt an der der Blase näher liegenden Meßstelle 18 120 °C.

Beim Vorhandensein von großen Temperaturgradienten im Element kann das Entstehen von Zweitblasen besonders gut an den Temperaturverläufen erkannt werden. Ein Beispiel dafür ist die Meßstelle 18, deren Temperaturverlauf von Spitzen überlagert ist, die auf örtliche Natriumverschiebungen zurückzuführen sind. Diese Zweitblasenbildungen sind immer dann zu beobachten, wenn der Druck im Element infolge der Blasenausdehnung sinkt. Andererseits sieht man an der Druckkurve, daß bei Druckzunahme diese von Blasenkollabierungen überlagert ist.

Die Blasengröße kann durch Integration des Durchflusses und aus den Anzeigen der Temperaturmeßstellen, die die Siedetemperatur registrierten, angegeben werden. Sie betrug bei diesem Versuch zum Zeitpunkt der größten Ausdehnung ca. 8 cm Durchmesser und 55 cm Höhe.

Nach Abschalten der elektr. Leistung entfällt der zur Aufrechterhaltung der Blase notwendige Dampfstrom von den Heizern zu den obenliegenden Bereichen der Blasenoberfläche. Dies führt zunächst zu einer Verkleinerung der Blase unter Beibehaltung der Pulsation ohne Kollabierungsstöße. Erst wenn die Blase sehr klein ist, durchschlägt die einfallende Natriumsäule die Blase, und es treten Kollabierungsstöße auf. Dies läßt sich auch an den Anzeigen der über dem Elementvolumen verteilten Temperaturmeßstellen gut verfolgen.

Die Siededrücke und Kollabierungsstöße wurden bei den Versuchennicht als Druckspitzen, sondern als Schwingungen registriert. Dies machte es erforderlich, die verwendeten Druckmeßsysteme dynamisch zu analysieren und den Erregerdruck für die gemessenen Schwingungen, der dem im Na aufgetretenen Druck entspricht, zu errechnen.

Die Auswertung ergab Erregerdrücke um 1,5 at, die zwischen 20 und 40 msec entstanden.

Die gemessenen Kondensationsstöße von ca. 1,5 at liegen unterhalb der Auslegungsdrücke der Elementkästen. Die Versuche zeigten damit, daß Drücke, die den Elementkasten schädigen können, nicht zu erwarten sind. Auch die durch Siedeverzüge hervorgerufenen Siededruckstöße liegen in der genannten Größenordnung,

123-11

wenn ein Siedeverzug von 100 <sup>o</sup>C (ein Wert, der heute allgemein als oberer Grenzwert angesehen wird) nicht überschritten wird. Bei den vorliegenden Versuchen wurde ein Siedeverzug von max. 70 <sup>o</sup>C erreicht.

Die früher diskutierten hohen Druckspitzen bei den Kollabierungsstößen resultierten aus der Annahme, daß der Impuls der zurückfallenden Natriumsäule durch relativ ebene aufeinanderprallende Flächen in einen kurzzeitigen hohen Druckanstieg umgesetzt wird. Bereits die früher mit einer Ersatzflüssigkeit durchgeführten Versuche /4/ zeigten jedoch, daß die aufeinanderfallenden Flächen zerklüftet sind. Sie ließen vermuten, daß ein geringerer Druckaufbau über eine längere Zeit erfolgt. Diese Vermutung wurde durch die beim BEVUS-Experiment gemessenen Drücke und Anstehzeiten bestätigt. Bei allen überprüften Kollabierungsstößen lag die Anstehzeit der Drücke zwischen 20 und 40 msec.

Der Vergleich des gemessenen Impulses mit dem aus der zurückfallenden Säule errechneten Impuls, wobei die Geschwindigkeit als Meßwert bekannt war, zeigt stets eine sehr gute Übereinstimmung.

Eine weitere Belastung für das Strukturmaterial des Brennelementes stellen die mit der Pulsation verbundenen örtlichen Temperaturänderungen dar.

Die größten gemessenen Temperaturänderungen betrugen im Bündel 130 <sup>O</sup>C und am Elementkasten 70 <sup>O</sup>C bei Frequenzen zwischen 0,7 und 10 Hz. Diese Thermoschockbelastung läuft oszillierend bei der Pulsation als Front axial durch das Brennelement.

Außerdem stellt sich beim Aufheizen sowie während des Siedeablaufes in der Kastenwand ein Temperaturgradient ein, der im Bereich der beheizten Zone während des Siedens 150 <sup>O</sup>C, bezogen auf die Wanddicke von 2,5 mm, betrug.

Die Brennelementkästen wurden vor und nach den Versuchen geometrisch vermessen. Hierdurch sollte festgestellt werden, ob die während der Versuche auftretenden Belastungen zu bleibenden Verformungen geführt haben. Die Vermessung ergab nach den Versuchen eine geringfügige Verbiegung in Längsrichtung und eine Torsion um die Längsachse. Diese Verformungen können auf die nichtsymmetrische Temperaturbelastung durch Ausfall von Heizern zurückgeführt werden. Verformungen, die auf Beanspruchung durch Innendruck zurückgeführt werden können, wurden nicht festgestellt.

/4/ P. Fette Simulationsexperimente zum Rückströmen und Rekondensationsvorgang im Na 2-Brennelement Externer Bericht 8/69-4 Zur Blasendynamik und zu den Siede- und Kondensationsvorgängen im Brennelement können noch folgende qualitativen Aussagen gemacht werden:

Hohe Siedeverzüge um ca. 150 <sup>O</sup>C, wie sie bei den Druckentlastungsversuchen nachgebildet wurden, hatten beim Ausdampfen des Elementes örtliche Überhitzungen an den Heizstäben zur Folge.

Die Entstehung weiterer Blasen im Element neben der erstentstandenen Blase konnte sowohl bei den Versuchen mit konst. Druck als auch bei den Druckentlastungsversuchen beobachtet werden.

Ein Aufsteigen von Dampfblasen wurde nicht beobachtet, d.h. die Blase blieb in der beheizten Zone; lediglich der obere Teil der Blase pulsierte bis in den oberen unbeheizten Brennelementbereich hinein.

Die innerhalb der Blase liegenden Temperaturmeßfühler erlaubten es, Rückschlüsse auf die in der Blase vorhandenen Druckdifferenzen und die dadurch hervorgerufene Dampfströmung vom heißem siedenden zum kälteren kondensierenden Bereich zu ziehen.

Mit der axialen Bewegung der oberen Blasengrenze treten gleichzeitig radiale Bewegungen der seitlichen Blasengrenzen als Folge des Druckausgleiches und der Druckumkehr innerhalb der Blase auf, solange die Blase nicht den gesamten Elementquerschnitt einnimmt.

Bei Anwesenheit von Inertgas im Natrium entfallen die Siedestöße, da kein Siedeverzug entsteht, sowie die kurzzeitigen Kollabierungsstöße.

Inertgas im Natrium kann beim Sieden zu einer unkontrollierten Ansammlung an einem Ort führen. Die damit verbundene schlechtere Kühlung der Heizstäbe kann örtliche Überhitzungen hervorrufen.

Die ausführliche Versuchsbeschreibung und die Ergebnisse der BEVUS-Versuche sind in (1) zusammengefaßt.

#### Veröffenlichung zu 1233.3:

M. Cramer, B. Dorr
 Na-Siedeexperimente in einem Brennelementmodell
 KFK-Bericht 1906

## 1233.4 <u>Untersuchungen zum lokalen Sieden in großen Bündeln und SNR-</u> <u>Bündelausschnitten</u>

(F. Huber, H. Brüggemann, I. Kornelson, IRE)

Zur Durchführung der Untersuchungen wird in Ergänzung der bereits vorhandenen Natriumanlage (NABEA) ein Natrium-Siedekreislauf (KNS) errichtet. Die wichtigsten Aufträge hierfür wurden Anfang 1973 an die Industrie vergeben. Die erforderliche Hallenerweiterung zur Unterbringung der Stromversorgung und Instrumentierung ist abgeschlossen. Notwendige Änderungen im Bereich der NABEA sind weitgehend durchgeführt.

Die Komponenten für die Stromversorgung und Meßwarte sind angeliefert. Mit den Montagearbeiten wurde im Berichtszeitraum begonnen.

Die Teststrecke zur Durchführung der Experimente befindet sich in der Planung. Zur Überwachung der einzelnen Heizer wurde eine Schnellabschaltung entwickelt, mit der die Stromversorgung des betreffenden Heizers beim Auftreten einer nadelförmigen Stromerhöhung innerhalb von einigen Millisekunden abgeschaltet werden kann. Hierdurch soll ein Durchbrennen der Hüllwand weitgehend verhindert werden. Die Einrichtung wird bereits beim 7-Stabbündel (s. 1233.2) eingesetzt.

#### 1234 Störfallverhalten von Brennstäben

1234.4 <u>Bestätigende Kühlmittel-Blockade-Experimente im BR 2 (Mol-7C)</u> \*2)
 (W. Kramer, K. Doetschmann, K. Gast, T. Malmberg, H.A. Rohrbacher, IRE; L. Schmidt, S. Groß, IMF)

Als Ersatz für die ursprünglich im Rahmen des SEFOR-Follow on-Programms vorgesehenen LOF-Experimente ist geplant, im Reaktor BR 2 in Mol an einem Brennstabbündel unter möglichst realistischen SNR-Bedingungen Sicherheits-Performance-Experimente durchzuführen.

- 1) Letzter Bericht in KFK 1273/1
- **★** BzFE-Nr. 538.0
- 2) Erster Bericht

<sup>\*</sup> BzFE-Nr. 532.3

Zweck des Vorhabens ist es, vertiefte Kenntnisse über die Vorgänge zu gewinnen, die im Verlauf einer Kühlungsstörung bzw. eines Schadens in einem Brennelement ablaufen können. Die zu den einzelnen Phänomenen im Verlauf einer Schadensausbreitung (Propagation) laufenden experimentellen und theoretischen Untersuchungen sollen durch in-pile Experimente mit Brennstabbündeln qualitativ und möglichst weitgehend quantitativ bestätigt werden. Darüber hinaus sollen bei den Versuchen spezielle Meßmethoden auf ihre Eignung zur Detektion einer Störung in ihren verschiedenen Stadien getestet werden.

Zunächst werden in einer Durchführbarkeitsstudie die Bedingungen und Möglichkeiten für die Verwirklichung der geplanten Experimente im BR 2 untersucht. Diese Studie wird gemeinsam zwischen dem SCK/CEN, Mol, und der Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe, ausgearbeitet und steht kurz vor ihrem Abschluß.

Die Studie umfaßt unter anderem die Auslegungsgesichtspunkte für das dem Vorhaben zugrunde gelegte vorläufige experimentelle Programm, eine Beschreibung der Versuchseinrichtung und Überlegungen zum Sicherheitsnachweis für das Loop-Druckrohr.

Bei einer positiven Entscheidung für die Durchführung des Vorhabens sind zunächst zwei Experimente mit frischem Brennstoff und ein Experiment mit einem vorbestrahlten Stabbündel vorgesehen. Die geringe Anzahl von Experimenten ist insbesondere durch den für das Vorhaben vorgegebenen Zeitraum bedingt.

Als Versuchseinrichtung ist im Prinzip das im BR 2 bereits erprobte Natriumloop vom Typ Mol-7B mit entsprechenden Modifikationen vorgesehen, das durch einen im Reaktoreinsatz voll integrierten Primär-Kühlkreislauf charakterisiert ist.

Die geometrischen und die Leistungs-Verhältnisse des Loops erlauben es, entweder ein 19er oder ein 37er Brennstabbündel einzusetzen, wobei allerdings im Falle der größeren Stabzahl eine Längenreduktion der Brennstoffzone auf 400 mm in Kauf genommen werden muß.

Bei in-pile-Experimenten ist die Sicherstellung der Informationen über die während der transienten Vorgänge ablaufenden Ereignisse von entscheidender Bedeutung. Die Studie befaßt sich deshalb ausführlich mit Fragen der Teststrecken-Instrumentierung. U.a. sollen folgende Meßgrößen erfaßt werden: Kühlmitteltemperaturen und -durchsatz am Bündel-Ein- und Austritt, Druckverläufe und Siedegeräusche an verschiedenen Positionen, sowie Temperaturen im Bereich der lokalen Störung. Während die Signale aus der eigentlichen Betriebsinstrumentierung keine besonderen Ansprüche an den Dynamikumfang und an die Bandbreite der Datenerfassung stellen, müssen für einen Großteil der Meßwerte aus der Versuchsinstrumentierung hohe Bandbreiten berücksichtigt werden, wobei ausreichende Signale-Störabstände und eine gute Linearität bei der zu erwartenden Signal-Dynamik vorauszusetzen sind.

Für den stationären Loopbetrieb wurden Anwendungsrechnungen mit Hilfe des Thermohydraulik-Moduls THESYS aus dem Kernauslegungssystem THECA /1/ zur Bestimmung der hydraulischen und thermischen Verhältnisse im Testbündel durchgeführt. Im einzelnen können damit die Temperaturfelder des Kühlmittels, der Hüllrohre, des Brennstoffs und der Kastenwand ermittelt werden, ebenso wie die Durchsatzverteilung und der Druckverlauf des Kühlmittels.

Die Durchführbarkeitsstudie befaßt sich weiterhin mit Sicherheitsbetrachtungen für das Loop-Druckrohr beim Belastungsfall einer evtl. Brennstoff-Natrium-Wechselwirkung im Bereich des Versuchsbündels. Das einer möglichen Reaktion zugrunde gelegte theoretische Modell wird diskutiert und bei dem daraus resultierenden Druckverlauf der Festigkeitsnachweis für das Druckrohr durchgeführt.

Die Durchführbarkeitsstudie wird Anfang 1974 vorliegen und dann als Entscheidungsgrundlage für das weitere Vorgehen dienen. Eine weitere notwendige Voraussetzung für die Entscheidung ist erfüllt: Ende Dezember 1973 hat das Sicherheitskomitee des BR 2 in der ersten Phase der Durchführung des Vorhabens grundsätzlich zugestimmt (1<sup>st</sup> stage approval).

/1 / Reaktortagung 1972, Hamburg, Compactband, S. 208 ff.

- 1236 Untersuchungen zur Brennstoff-Natrium-Reaktion (BNR)
- 1236.1 Theoretische Untersuchungen \*
- 1. <u>Verbesserte Version des Programms BRENDY</u><sup>1)</sup> (H. Jacobs, K. Thurnay, INR)

Die verbesserte Version des Programmes BRENDY wurde fertiggestellt. In einem Beitrag zum 'Second Specialist Meeting on Sodium Fuel Interaction in Fast Reactors' (1) wurde das Programm beschrieben und mit seiner Hilfe die Gültigkeit einiger verschiedentlich benutzter Modellannahmen nachgeprüft.

Dieses Programm steht jetzt für Rechnungen zu Brüter-Sicherheitsfragen zur Verfügung. Gegenüber den meisten herkömmlichen Programmen bietet es dabei eine Reihe Vorteile:

- a) Der Wärmeübergang vom Brennstoff auf das Natrium wird auch im Natrium vollnumerisch berechnet. Die Wärmeleitfähigkeit des Natriums wird also nicht mehr als unendlich hoch angenommen. Dies führt zu einer Verringerung der übertragenen Wärme und der freigesetzten Arbeit.
- b) Die Schmelzwärme des Brennstoffs wird korrekt behandelt.
- c) Im Zweiphasengebiet wird die Wärmeleitfähigkeit des Natriums aus den Leitfähigkeiten des flüssigen Natriums und des Dampfes, sowie aus ihren jeweiligen Volumenanteilen berechnet, so daß die Wärmeübertragung durch den Dampf behindert wird.
- d) Thermischer Kontakt des aufgeheizten Natriums zur überstehenden Natriumsäule kann beschrieben werden. Dies kann bei der Nachrechnung von Experimenten mit sehr flachen Mischzonen bedeutsam sein.
- e) Das Programm verwendet konsistente Daten für die thermodynamischen Eigenschaften (Zustandsgleichungen) des Natriums.

#### <u>Veröffentlichung</u>:

(1) H. Jacobs

The calculation of the consequences of sodium/fuel interactions with allowance for temperature gradients in the sodium Second Specialist Meeting on Sodium Fuel Interaction in Fast Reactors,

Ispra, 21st - 23rd November 1973

1)Letzter Bericht in KFK 1273/1

BzFE-Nr. 534.2

2. Berücksichtigung der Variabilität der reagierenden Massen bei der BNR \* (L. Caldarola, G. Koutsouvelis, A. Wickenhäuser, IASR)

Nach dem entwickelten theoretischen Modell /1/ wurde die Phase A der BNR vollständig durchgerechnet (Phase A erstreckt sich bis zum Beginn der Natriumverdampfung). Dieses Modell berücksichtigt neben der Anwesenheit von Spaltgas die unterschiedliche Größe der an der Reaktion teilnehmenden Brennstoffpartikeln (log.-normal angenommene Verteilung der Partikelradien  $R_f$ ), ferner die an der Reaktion teilnehmenden Massen  $M_f$  bzw.  $M_N$  von Brennstoff und Na als beliebige Funktionen der Zeit.

Es wurden Rechnungen für folgende Fälle durchgeführt ( $M_{f_{\infty}}$  und  $M_{Na_{\infty}}$  bezeichnen die Endmassen der Reaktion):

a)  $M_f = M_{f_{\infty}} \left(\frac{t}{\tau_f}\right)^{\mu}$ ;  $M_{Na} = M_{Na_{\infty}} \left(\frac{t}{\tau_{Na}}\right)^{\nu}$ b)  $M_f = M_{f_{\infty}} \left(1 - e^{-t/\tau_f}\right)$ ;  $M_{Na} = M_{Na_{\infty}} \left(1 - e^{-t/\tau_{Na}}\right)$ 

 $\tau_{f}$  und  $\tau_{Na}$  bedeuten Zeitkonstanten des Wachstums der reagierenden Massen.

Das hier angewandte theoretische Modell für die Phase A unterscheidet sich von dem parametrischen ANL-Modell nach Cho, Ivins und Wright in den folgenden Punkten:

- 1. Die in dem ANL-Modell verwendete Gleichung für den Wärmetransport bei einer endlichen Geschwindigkeit der Fragmentation und Vermischung des Brennstoffs mit dem Na beschreibt keinen besonderen Mechanismus für den Fragmentations- und Mischungsprozeß. Es handelt sich dabei lediglich um einen praktischen Ausdruck, der bequem anwendbar ist. - Im Gegensatz dazu wird in unserem Modell die Geschichte jeder Bremistoffpartikel betrachtet, angefangen von dem Zeitpunkt, bei welchem die Partikel in Kontakt mit dem Kühlmittel kommt.
- Im ANL-Modell sind, bezüglich des Wärmetransports vom Brennstoff an das Kühlmittel, zwei approximative Lösungen angegeben (eine obere bzw. eine untere, "transiente Wärmeleitung" bzw. "quasistationärer Wärmetransport").
   In unserem Modell wurde die exakte Lösung verwendet.

\* BzFE-Nr. 534.2

Letzter Bericht in KFK 1273/2

<sup>/1/</sup> L. Caldarola: A theoretical model for the molten fuel-sodium interaction in a nuclear fast reactor. Nuclear Engineering and Design, Vol. 22, No.2, October 1972

 Soweit uns bekannt, ist im ANL-Modell die Verteilung der Größe der Brennstoffpartikeln als ein maßgebendes Merkmal nicht einbezogen worden.
 Unser Modell beinhaltet diese Verteilung als ein maßgebendes Merkmal.

Rechnungen wurden für den Fall von Cho, Ivins und Wright durchgeführt, wobei folgende Hauptdaten verwendet wurden:

Anfangstemperatur des Brennstoffes  $T_0 = 2900 \,^{\circ}K$ Anfangstemperatur des Natriums  $\theta = 1100 \,^{\circ}K$ Mittl. Brennstoffradius  $\overline{R}_f = 1.17 \cdot 10^{-2} \, \text{cm}$ Gesamthöhe der Na-Säule  $L_0 = 120 \, \text{cm}$ Höhe des Reaktionsvolumens  $Z_{\infty} = 17.5 \, \text{cm} \, (\text{mit } M_{f_{\infty}} \, \text{und } M_{Na_{\infty}}; \, \frac{M_{f_{\infty}}}{M_{Na_{\infty}}} = 8.3)$ Außendruck  $P_{ext} = 2 \, \text{atm}$ .

Hierbei wurde die reagierende Brennstoffmasse M<sub>f</sub> als lineare Zeitfunktion angenommen:

 $\frac{Abb. 7:}{M_{f_{co}}}$ 

Die reagierende Na-Masse  $M_{Na}$  wurde in einer ersten Rechnung als konstant angenommen, in einer zweiten wurde das Verhältnis  $M_f/M_Na$  konstant = 8.3 gesetzt.

In den folgenden Abbildungen wird der Einfluß von  $\tau_f$ ,  $\sigma$  und  $\phi$  analysiert ( $\sigma^2$  = Varianz von R<sub>f</sub>,  $\phi$  = anfängl. Volumenverhältnis zwischen Spaltgas und Brennstoff).

Die wichtigsten Ergebnisse sind:

1. Das Druckmaximum P und die spezifische Arbeit nehmen mit wachsendem  $\tau_f$  erheblich ab.

Für  $M_{Na}$  = konst.,  $\sigma$  = 1.36 und  $\phi$  = 0.0 ist  $P_{max} \approx 5000$  atm bei  $\tau_f$  = 0.0 msec und  $P_{max} \approx 275$  atm bei  $\tau_f$  = 5.0 msec (Abb. 8).

Der Reduktionsfaktor beträgt also = 20.

Die spezifische Arbeit sinkt dabei von 27 Joule/g Brennstoff auf 2.9 Joule/g, d.h. um den Faktor = 9 (Abb. 10).

Im Falle  $M_{Na}$  = variabel betragen die Reduktionsfaktoren jeweils ~27 bzw. ~25 (Abb. 9 bzw. 11).

- 2. Der Einfluß von  $\sigma$  ist wesentlich nur bei sehr kleinen  $\tau_f$ -Werten. Für Werte von  $\tau_f$  in der Größenordnung von 5 msec ist der Unterschied in den Ergebnissen zwischen den Fällen  $\sigma = 0.0$  und  $\sigma = 1.36$  sehr gering (Abb. 8-11).
- 3. Der Einfluß von  $\phi$  ist wesentlich bei niedrigen  $\tau_{f}$ -Werten. Bei höheren Werten von  $\tau_{f}$  dagegen ist er nicht von großer Bedeutung (Abb. 8-11).
- 4. In den Fällen mit konstanter Na-Masse liegen die Rechenergebnisse bezüglich der spezifischen Arbeit etwas höher als in den Fällen mit variabler Na-Masse (Abb. 12, 13).

Das Verhalten unter Punkt 4. kann man folgendermaßen erklären:

Bei einem bestimmten Zeitgesetz für M<sub>f</sub>(t) führen niedrige M<sub>Na</sub>-Werte zu einem kleinen Druckanstieg, bzw. zu niedrigen Werten von P<sub>max</sub> und der spezifischen Arbeit, weil die Volumenänderung von M<sub>Na</sub> klein ist wegen der geringen Na-Menge, die an der Reaktion teilnimmt.

Bei einem großen Na-Volumen ist seine Änderung ebenfalls klein, weil in diesem Fall die Änderung der Na-Temperatur klein ist.

Es ist also klar, daß für ein bestimmtes Zeitgesetz  $M_f(t)$  eine Funktion der Zeit  $M_{Na}(t)$  existiert, die Maximalwerte für die obengenannten Größen zur Folge hat.

나는 나는 가는 가는 가는 것이 가지 않는 것이 가 한 것이 가 한 것이 가 한 것이 한 것이 있었다. 한 것이 가지 않는 것이 있었다. 한 것이 있었다. 이 가 가 있었다. 이 가 가 있었다. 이 가 이 가 한 것이 있는 것이 가 한 것이 같은 것이 있었다. 가 가 있는 것이 있는 것이 같은 것이 있다. 이 가 있다. 이 가 있다. - 저 나는 것이 가 가 가 있다. 한 것이 같은 것이 있다.





Cho and Wright Case - M<sub>f</sub> Linear Function of Time Phase A - Peak Pressure as a Function of Fuel Mixing Time Constant



Cho and Wright Case Phase A - Specific Work as a Function of Fuel Mixing Time Constant

123-23



**Time Constant** 

Ferner befindet sich der Fall M<sub>Na</sub> = konstant außerhalb der oberen Grenze für die möglichen Zeitfunktionen für M<sub>Na</sub>, weil die Wärme im Na mit einer begrenzten Geschwindigkeit sich ausbreitet.

#### Veröffentlichung:

L. Caldarola, G. Koutsouvelis

The Karlsruhe variable masses model for the description of the fuelcoolant interaction.

O.E.C.D. Second Specialist Meeting on "Sodium fuel interaction in fast reactors", Ispra 21st - 23rd November 1973

#### 1236.2 Experimentelle Untersuchungen zu Brennstoff-Natrium-Reaktionen\*

### 1. <u>Meßeinrichtung für den BNR-Versuchsstand</u> (St. Müller, G. Thun, IRB)

In den letzten Vierteljahresberichten wurden die Versuche zur Detektion der mit Messing simulierten Brennstoff-Natrium-Agglomerate unterschiedlicher Größe in einem dickwandigen Reaktionsrohr beschrieben. Aufgrund der Untersuchungen wurde eine für die Messung geeignete Spule entwickelt und ausgelegt. Entsprechend diesem Prototyp wurden für die eigentlichen BNR-Versuche sechs Meßspulensysteme bei der Industrie in Auftrag gegeben.

Als interessante Variante der Oxzillatormethode wurde ein Meßgerät entwickelt, das am BNR-Versuchsstand sowie an Na-Kreisläufen als Höhenstandsmelder eingesetzt werden kann.

Das Meßgerät arbeitet nach folgendem Prinzip:

Die Amplitude des eine Spule mit Eisenkern antreibenden L-C Oszillators wird durch Wirbelströme gedämpft, sobald ein Metall zwischen die Pole gebracht wird. Dies ist z.B. der Fall, wenn in einem Stahlrohr flüssiges Natrium aufsteigt. Es können zwei stabile Zustände eingestellt werden:

- a) Geringe Dämpfung (z.B. Edelstahlrohr) Oszillator schwingt
- b) Große Dämpfung (z.B. Na in dem Edelstahlrohr)
  Oszillator schwingt nicht.

\* BzFE-Nr. 535.1

Dieser "Ein-Aus"-Zustand des FET-Schwingers schaltet eine Leuchtdiode und ein Reed-Relais, dessen Kontakte für beliebige Steuer- oder Signalzwecke eingesetzt werden können. Dieses Meßgerät besitzt gegenüber anderen Höhenstandsfühlern folgende Vorteile:

- <u>berührungslose Messung</u>: Das Gerät kann nachträglich angebracht werden. Dicke Rohrwandungen mit Begleitheizungen und ca. 20 mm thermische Isolation sind nicht störend.
- keine Korrosion: Dies garantiert eine große Lebensdauer.
- <u>Relais-Ausgang</u>: Dieser kann für beliebige Signal- oder Steuerzwecke verwendet werden.
- <u>Batteriebetrieb möglich</u>: Die Meßeinrichtung kann als Handgerät z.B. zum Aufsuchen von Na-Verstopfungen in Rohrleitungen eingesetzt werden usw.
   Abb. 14 zeigt das Gerät im Einsatz vor Ort am NW 80 Na-Kreislauf des IRB.



Agan an an th Shina tha Shi

n an seath an Saoine an s Saoine Anns an s

Abb. 14

# 2. Experimentelle Untersuchungen zur Brennstoff-Natrium-Reaktion in dickwandigen Rohren<sup>1)</sup>

(H. Beutel, IRE)

Zur Optimierung und Detailauslegung der Versuchseinrichtung, insbesondere der Steuerung und der Vorrichtung zur Natrium-Injektion, wurden Modellversuche mit Wasser begonnen, bei denen der zeitliche Ablauf der aufeinanderfolgenden Ereignisse simuliert wird und Parametervariationen zur Optimierung der Düssenquerschnitte und Formen des Reaktionsrohrs und des Na-Injektors vorgenommen werden.

Die Modellteststrecke wurde im Technikum aufgebaut und in Betrieb genommen. Die Optimierungsversuche für den unteren Na-Injektor sind abgeschlossen. Diese Injektionseinrichtung besteht im wesentlichen aus einem mit Natrium gefüllten Faltenbalg und einem damit verbundenen Hohldorn, der beim Aufprall des in das Reaktionsrohr fallenden Tiegels mit der UO<sub>2</sub>-Schmelze den Tiegelboden durchdringt, wobei ein Teil der Fallenergie absorbiert wird. Durch die restliche Energie wird das Natrium in dem Faltenbalg unter Druck gesetzt, so daß eine kleine Menge Natrium mit hohem Druck in das UO<sub>2</sub> injiziert wird und dort eine Startreaktion auslöst. Im Modellversuch wurde der Boden des Wolframtiegels durch Blei, das Natrium durch Wasser simuliert.

Nach Lieferung des Na-Vorratstanks und der Na-Einspeisung werden die Modellversuche im Frühjahr 1974 fortgesetzt.

Die Konstruktion der Versuchsapparatur für Natriumexperimente ist soweit abgeschlossen, daß in den nächsten Tagen mit der Ausarbeitung im Detail begonnen werden kann (Schema der Versuchsapparatur siehe Abb. 15).

Zur Zeit wird parallel hierzu am Entwurf einer Versuchseinrichtung gearbeitet, die es gestattet, das von oben in den Reaktionsraum eintretende Natrium bis zum Reaktionsbeginn als geschlossene Flüssigkeitssäule aufrecht zu erhalten. Im Vergleich dazu tritt bei der ersten Versuchsvariante das Natrium in Form einer 2-Phasen- bzw. 2-Komponentenströmung (vermischt mit Schutzgas) in den Reaktionsraum ein.

1)Letzter Bericht in KFK 1272/4

123-28



3. Untersuchungen zur thermischen Wechselwirkung zwischen geschmolzenen Metallen und Flüssigkeit<sup>1)</sup> (H. Will, W. Żyszkowski<sup>+)</sup>, IRE)

Bei der Analyse hypothetischer Störfälle in einem Reaktor wird u.a. der Fall betrachtet, daß geschmolzener Brennstoff mit Kühlmittel in Kontakt tritt. Durch raschen Wärmeübergang von fein verteiltem Brennstoff an das Kühlmittel kann es zu einer plötzlichen Kühlmittelverdampfung und damit zu einem Druckaufbau kommen. Denkbare Folge solcher Druckpulse sind mechanische

Deformationen der Corestruktur und Propagation des Störfalls.

Mit den im folgenden beschriebenen Laborversuchen soll ein Beitrag zum phänomenologischen Verständnis der bei der thermischen Wechselwirkung ablaufenden Vorgänge geleistet werden.

In einer Vielzahl von Experimenten wurde die Wechselwirkung zwischen einzelnen Partikeln geschmolzenen Metalls mit Flüssigkeit untersucht. Die Versuche erstreckten sich bisher auf folgende Materialien: Ag, Au, Cu, Pb, Sn, Zn und Wasser, Natrium. Die Experimente wurden durchgeführt in einer speziellen Apparatur, die es im Vergleich mit anderen bekannten Experimenten gestattet, die Temperaturverläufe während der Versuche zu erfassen. Die Partikel hatten einen Durchmesser von etwa 5 mm und wurden in einer Levitation-Induktionsspule auf die gewünschte Versuchstemperatur gebracht, bevor sie aus einer Höhe von 50 mm in den Behälter mit 10 bis 30 cm<sup>3</sup> Flüssigkeit fielen. Der Versuchsbehälter war aus Plexiglas (bei den Versuchen mit Wasser) gefertigt und mit einem Keramikboden ausgerüstet, der die Thermoelemente für die Temperaturmessungen enthielt. Die Versuche wurden mit einer Hochgeschwindigkeits-Kamera gefilmt.

- 1) Erster Bericht
- <sup>+)</sup> Institut für Kernforschung, Swierk, Polen Stipendiat der Humboldt-Stiftung

1.) "Normaler Vorgang"

Der flüssige Metallpartikel kühlt sich auf dem Boden des Versuchsbehälters ab, wobei die Phasen Blasensieden, Filmsieden und freie Konvektion durchlaufen werden (einen typischen Verlauf der Temperatur des Partikels zeigt Abb. 16).





Als Ergebnis dieser Versuche ist festzuhalten, daß der Leidenfrostpunkt – d.h. die Temperatur, bei der Filmsieden in Blasensieden übergeht – in einem weiten Temperaturbereich variiert. Es wurden Leidenfrosttemperaturen ab etwa 200 °C bis weit über die kritische Temperatur des Wassers gemessen. Die Abbildungen 17 (Cu/H<sub>2</sub>O) und 18 (Ag/ H<sub>2</sub>O) zeigen Partikel nach dem Versuch.



Abb.17



Abb. 18

2.) "Explosionsartiger Vorgang"

Bei bestimmten Versuchsparametern kommt es zu einer explosiven Freisetzung der thermischen Energie. Dies sind z.B. Menge und Temperatur der Flüssigkeit, Größe und Form des Versuchsgefäßes, Fallhöhe, Material und Temperatur des Partikels. Wenn man sämtliche Versuchsparameter konstant hält und nur die Temperatur des Partikels variiert, läßt sich für die Kombination Kupfer/Wasser das folgende Schema (Abb.19) aufzeichnen.



<u>Abb.19</u>: Abhängigkeit der verschiedenen Versuchsabläufe von der Temperatur für die Kombination Kupfer/Wasser

Die explosionsartige Wechselwirkung von geschmolzenen Partikeln mit Flüssigkeit läßt sich in 2 Situationen beobachten:

- Kurz nach Eintritt des Partikels in die Flüssigkeit
- Auf dem Boden des Versuchsgefäßes während des Filmsiedens (Abb. 20 zeigt den Temperaturverlauf des Partikels vor und während der Explosion).



Bei der Auswertung der Hochgeschwindigkeitsfilme zeigte sich in beiden Situationen ein Initial-Ereignis 1 bis 5 msec vor der thermischen Explosion. Die thermische Explosion läuft in zwei Phasen ab: Fragmentation des Partikels und Dampfexplosion der Flüssigkeit. Es scheint, daß Fragmentation dann auftritt, wenn die beiden Flüssigkeiten in direkten Kontakt kommen und bei der schnellen Abkühlung die Erstarrungstemperatur durchlaufen wird. Nach dieser Phase erfolgt die Dampfexplosion in der überhitzten Flüssigkeit, wie z.B. bei den Versuchen mit Kupfer und Wasser (die Abbildungen 21 und 22 zeigen die Produkte nach einer heftigen und einer schwachen thermischen Explosion). Bei Experimenten mit z.B. Zinn und Wasser (s. Abb. 23) oder Kupfer und Natrium (s. Abb. 24) wurde nur Fragmentation, jedoch keine Dampfexplosion beobachtet.



Abb.21: Produkte einer schwachen Explosion von Kupfer in Wasser



Abb.<sup>22</sup>: Produkte einer heftigen Explosion von Kupfer in Wasser



Abb.23: Fragmentationsprodukte von Test mit flüssigem Zinn in Wasser



Abb. 24: Fragmentationsprodukte von Test mit flüssigem Kupfer in Natrium

Veröffentlichungen:

W. Zyszkowski Thermal Interaction of Molten Copper with Water International Journal of Heat and Mass Transfer Zur Veröffentlichung eingereicht

W. Zyszkowski

On the Mechanism of Heat Transfer at a Strong Accident in the Reactor Core.

Vortrag "International Meeting on Reactor Heat Transfer", Karlsruhe Oct. 9-11, 1973

W. Zyszkowski

Experimental-Theoretical Investigation of the Thermal Explosion. Vortrag "Second Specialist Meeting on Sodium Fuel Interaction in Fast Reactors", Ispra Nov. 21-23, 1973

#### 1238 Sicherheitstechnische Verfolgung der SNR-Entwurfsstudien

#### 1238.3 Modellversuche zum Notkühlsystem SNR 300

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

Nachdem im 1. Quartal 1973 der Versuchsaufbau von der Abteilung RBT fertiggestellt worden war, konnten die Versuche termingerecht im 2. Quartal 1973 abgeschlossen werden. Es wurden insgesamt 21 Einzelversuche mit einer breiten Parametervariation durchgeführt. Die Versuchsdaten wurden zunächst auf Band gespeichert und später im 3. Quartal vom IRE geschlossen ausgewertet.

Die Ergebnisse werden im folgenden in einer abschließenden Übersicht dargestellt. Ein umfassender Bericht befindet sich in Vorbereitung (1).

#### Problemstellung

Der im Rahmen dieser Arbeit betrachtete Störfall des SNR 300 ist ein Rohrbruch am Pumpendruckstutzen mit Versagen der Pumpenabschaltung, d.h. also, es erfolgt ein Leersaugen des Reaktortanks auf Notspiegelhöhe und damit eine Trennung von den Primärkreisläufen. Die Notkühlkonzeption basiert in diesem

\*BzFE-Nr. 851.3 Letzter Bericht in KFK 1273/1 Fall auf einem tankinternen Naturumlauf, erzeugt durch eine Wärmezufuhr im Kern und durch eine Wärmesenke mittels an der Behälterinnenseite angebrachter sog. Tauchkühler (TK). Die Rückführung des Kühlmittels zum Kerneintritt erfolgt zwangsweise auf einem Umweg durch die Brutelemente, wie in Abb. 24 dargestellt. Für den so zustandekommenden tankinternen Kühlkreislauf hat die Firma Interatom ein Rechenprogramm (NOTUNG) für ein theoretisches Modell erstellt, welches das thermodynamische Verhalten des Kreislaufs beschreibt. Zur Unterstützung der analytischen Berechnungen für einen derart komplizierten thermohydraulischen Vorgang wurden von den Genehmigungsbehörden geeignete Modellversuche gefordert.

#### Versuchsaufbau und -durchführung

Die wesentlichen Merkmale des Versuchsaufbaues sind (vgl. Abb. 24):

- weitgehende Nachbildung des Reaktortanks mit Einbauten im Längsmaßstab 1:3, Wasser als Kühlmittel;
- 120<sup>0</sup>-Ausschnitt mit teilweise durchsichtigen Schnittflächen, bei bestimmten Versuchen wärmeisoliert;
- elektrisch beheizter Kern mit 6 radialen Gruppen, davon 2 im Core- und 4 im Brutmantelbereich, jedoch konstante Leistung über die beheizte Länge;
- Leistungstransient der Zerfallswärme durch Treppenfunktion angenähert, Umschaltpunkte bei 10<sup>2</sup>, 10<sup>3</sup> und 10<sup>4</sup> sec, max. Heizleistung ca. 1 W/cm<sup>2</sup> entsprechend 60 kW Gesamtleistung;
- Stabbündel mit 7 Heizstäben pro Coreelement, 8,5 mm Stabdurchmesser;
- 2 Tauchkühler, sekundärseits durch Leitungswasser gekühlt;
- Variable Widerstandsbeiwerte an verschiedenen Engstellen;
- Anfangszustand: Gleiche Temperatur im gesamten Versuchsaufbau, Kühlmittel in Ruhe;
- Elektronische Meßwerterfassung mit I Hz bzw. 0,1 Hz für folgende Kanäle:
  87 Thermoelemente, 4 Durchflußmesser, Leistungsmessung; außerdem Farbeinspritzung mit fotographischer Bildaufzeichnung.

#### Versuchsergebnisse

#### 1. Beobachtete Phänomene

Der Naturumlauf setzt wenige Sekunden nach dem Einschalten der Heizleistung ( $\tau = 0$ ) in der erwarteten Weise (Abb. 24) ein, wobei der Kerndurchsatz und die Kernaustrittstemperatur schnell ansteigen. Der Kerndurchsatz schwenkt kurz nach der ersten Leistungsreduzierung bei  $\tau = 100$  sec auf ein Plateau ein, während die Austrittstemperatur ein erstes Maximum durchläuft und dann bis zur zweiten Leistungsabsenkung (bei  $\tau$  = 1000 sec) nochmals leicht ansteigt. Anschließend verringern sich die genannten Meßgrößen, und die für den Reaktor kritische Phase ist, wenn die Vorgänge dort ebenso ablaufen, beendet.

In den gegenüber den Brennelementen (BE) schwach beheizten Brutelementen (BU) setzt anfangs ebenfalls eine Aufwärtsströmung ein, die sich aber nach ca. 150 sec wegen des hohen Kühlmitteldurchsatzes im Kernbereich umkehrt. Die dabei auftretende Aufwärmspanne in den BU ist deutlich kleiner als in den BE. Das Eintreten von Kühlmittel aus dem Oberplenum (OP) in die BU-Köpfe konnte nur in geringem Maße während der ersten 300 sec beobachtet werden. Anschließend stellt sich im OP ein deutlich höheres Temperaturniveau ein, so daß die Auftriebskräfte diesen Strom unterbinden, und der Zufluß zu den BU ausschließlich durch die Kernmantelperforation erfolgt. Neben dem in Abb. 24 eingezeichneten Kühlmittelstrom setzt ein merklicher parasitärer Kühlstrom in den Spalten zwischen den Elementen (Element-Bypass) ein und zwar im Brutmantel abwärts, dann radial nach innen und im Kernbereich wieder aufwärts. Nach Wärmebilanzrechnungen führt er bis zu ca. 30% der Heizleistung ab.

#### 2. Parameteruntersuchungen

Um den Vergleich zwischen Rechnung und Experiment für mehrere Systemzustände zu ermöglichen und andererseits auch die Antwort des Systems auf bestimmte Veränderungen direkt zu messen, wurden folgende Versuchsparameter variiert: Heizleistung, Tauchkühlerkapazität, Heizleistungstransient, Brutmantelleistung, mehrere Querschnittsverengungen, Füllstand und Anfangstemperatur. Die Veränderung des Füllstandes auf die sog. Betriebsspiegelhöhe hatte dabei neben der genaueren Untersuchung der Vorgänge im Oberplenum die Aufgabe, eine Anknüpfung an einen zweiten, hier nicht näher diskutierten Störfall zu erbringen. Die Ergebnisse aus den Untersuchungen lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Die größte Aufheizspanne im Kern ist im untersuchten Bereich etwa proportional zu der im Kern erzeugten Leistung Q<sub>Kern</sub>
- Die Tauchkühlerkapazität hat während der ersten 1000 sec keinen nennenswerten Einfluß auf die Kühlvorgänge im Kern. Auch beim Abschalten eines der beiden Tauchkühler findet ein nahezu vollständiger Temperaturausgleich in Umfangsrichtung statt.

- Auf eine sprungförmige Erhöhung der Heizleistung verhält sich die simulierte Notkühlung wie ein gut gedämpftes System, ohne überzuschwingen.
- Die größte Aufheizspanne im Kern ist im untersuchten Bereich unabhängig von der Brutmantelleistung Q<sub>BU</sub>. Der Kerndurchsatz ist im stationären Zustand etwa proportional der Größe (Q<sub>Kern</sub>-Q<sub>BU</sub>)<sup>1/2</sup>. Der Zeitpunkt der Strömungsumkehr in den BU ist unabhängig von Q<sub>BU</sub>.
- Die Veränderung verschiedener Drosselquerschnitte, wie z.B. in der Umlenkplatte, im Schildtank und an den Vordrosseln, hat nur einen geringen Einfluß auf den zeitlichen Verlauf der Meßgrößen.
- Bei erhöhtem Füllstand verändert sich die Strömungsform im OP qualitativ nicht gegenüber der Notspiegelhöhe. Die Aufheizspanne ist im ersten Fall etwas niedriger.
- Die Anfangstemperatur hat keinen nennenswerten Einfluß auf das zeitliche Verhalten des Naturumlaufes im Kern. Die Tauchkühler werden wegen der höheren Grädigkeit mit zunehmender Anfangstemperatur schneller wirksam.

#### 3. Vergleich zwischen Rechnung und Experiment

Der Vergleich wurde an drei Fällen durchgeführt, für die die Fa. Interatom Vorausberechnungen erstellt hat, nämlich am Referenzversuch (Nr. 3), am Versuch 16 mit erhöhtem Füllstand und am Versuch 19, bei dem die Brutmantelleistung früher eingeschaltet wurde als die Kernleistung, so daß sich hier die anfängliche Aufwärtsströmung in den BU mit Sicherheit ausbilden konnte. Die wesentlichen Ergebnisse sind:

- Die zeitlichen Verläufe der in den Tauchkühlern abgeführten Wärmemenge zeigen eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Rechnung und Experiment. Das Rechenprogramm liefert bis zu ca. 5% kleinere Werte.
- Die Temperatur an den Vordrosseln, die in etwa gleich der Kerneintrittstemperatur ist, zeigt für Rechnung und Experiment, abgesehen von den etwas unterschiedlichen Startbedingungen, einen fast identischen Verlauf.
- Der zeitliche Verlauf des Kerndurchsatzes wird durch die Rechnung gut beschrieben, jedoch sind die Absolutwerte um 10 bis 20% höher als im Experiment. Dies wird hauptsächlich auf den Element-Bypass zurückgeführt, der im Rechenmodell nicht berücksichtigt ist, im Reaktor aber auch auftreten wird.

an garanta an

- Die räumlich gemittelte Aufheizspanne im Kern liegt bei der Rechnung um 3 bis 6 <sup>o</sup>C höher als im Experiment, das entspricht ca. 15-40% der experimentell bestimmten Werte. Im Versuch 16 ist die Abweichung in der Anfangsphase noch größer. Diese relativ großen Abweichungen sind ebenfalls im wesentlichen durch den Element-Bypass zu erklären, der besonders stark in der Übergangszone zwischen Kern und Brutmantel wirksam ist. Die Maximaltemperaturen hingegen, die im Experiment in den Elementreihen 3 bis 7 erreicht wurden, decken sich gut mit der Rechnung.

Insgesamt kann man feststellen, daß das verwendete Rechenprogramm das dynamische Verhalten des Systems gut wiedergibt. Dort, wo Abweichungen in den Absolutwerten auftreten, liegt das Programm von der verwendeten Modellvorstellung her auf der sicheren Seite.

#### Bemerkungen zur Übertragbarkeit auf Reaktorverhältnisse

Die Untersuchung des Problems der Übertragbarkeit führte im Rahmen einer Durchführbarkeitsstudie zu dem Ergebnis, daß sie aus der Ähnlichkeitstheorie sich ergebenden, für das Problem bestimmenden Kennzahlen bei diesen mit Wasser durchgeführten Modellversuchen um Größenordnungen verschieden sind von denen im Reaktor SNR 300. Eine unmittelbare Übertragbarkeit im Sinne der Ähnlichkeitstheorie ist also nicht möglich. Dennoch haben die Versuche wertvolle Aufschlüsse gegeben in zweifacher Hinsicht: 1) Es wurde demonstriert, daß die Wärmeabfuhr durch freie Konvektion bei einer derart komplizierten Strömungsführung möglich ist; 2) wegen der guten Wiedergabe des globalen Systemverhaltens durch das Rechenprogramm werden Argumente für die Schlußfolgerung gegeben, daß das Rechenprogramm auch die Verhältnisse beim Notkühlvorgang im Reaktor richtig darstellt.

#### Veröffentlichung zu 1238.3:

(1) K. Hain, F. Hofmann, D. Kirsch, K. Kleefeldt, W. Kramer, R. Meyder: Modellversuche zum tankinternen Notkühlsystem des Prototyp-Reaktors SNR-300

KFK-Bericht 1895

Modellversuche zum Notkühlsystem SNR 300 Abb. 24 GfK Modellbehälter



h Ó BETRIEBSSPIEGEL 1-1-1-1 ~ þ 0 0 h 0 b 0 0 0 Ó Ò 0 TAUCHKÜHLER () h 0 D Ö ģ 0 0 5 S SCHILDTANK OBERPLENUM 3 KERNMANTEL () NOTSPIEGEL KERNMANTEL- (9) PERFORATION (15) KÜHLERKONSOLE BRUTELEMENTE 10 BRENNELEMENTE 0

MODELLBEHÄLTER SNR 300 - NOTKÜHLVERSUCHE

### 124 ENTWICKLUNG DER INSTRUMENTIERUNG UND SIGNALVERARBEITUNG ZUR KERNÜBERWACHUNG

1241 <u>Nachweis von Durchflußstörungen am Brennelement</u> 🛠

## 1241.3 <u>Messung der Temperatur- und Durchsatzfluktuation am elektrisch</u> <u>beheizten Brennelement und an der KNK</u> (L. Krebs, G. Weinkötz, IRB)

Infolge des Übertragungsverhaltens von Thermoelementen wird bei den Messungen an der KNK und am Natrium-Versuchskreislauf NW 80 des IRB ein Teil der in den Temperatur-Rauschsignalen vorhandenen Information unterdrückt. Im Berichtszeitraum wurde daher versucht, durch ein geeignetes Signalaufbereitungssystem die Signalfrequenzen oberhalb der Grenzfrequenz der Thermoelemente anzuheben.

Da Thermoelemente näherungsweise als Verzögerungsglieder 2. Ordnung angesehen werden können, wurde eine zweistufige Filteranordnung entwickelt, die über einen größeren Frequenzbereich einen zum Thermoelement inversen Frequenzgang besitzt. Mit dieser Einrichtung wurden zunächst von auf Magnetband aufgezeichneten Temperatur-Rauschsignalen die Leistungsdichtespektren erstellt. Diese weisen gegenüber den bisher ausgewerteten Spektren den doppelten Frequenzumfang auf.

Durch Anpassung der neu entwickelten Anordnung an die bisherige Aufnahmeelektronik wird versucht, bereits bei den Aufnahmen eine scheinbare Erhöhung der Thermoelement-Grenzfrequenz zu erreichen. Dies hat den Vorteil, daß nur die entsprechenden Frequenzen des eigentlichen Temperatursignals, nicht aber das Störrauschen zusätzlicher Verstärker und des Magnetbandes angehoben werden.

# 1242 Hüllenüberwachung an Brennelementen<sup>1)</sup>

# Experimente am HSD-Loop \*\*

(S. Jacobi, G. Schmitz, IRE)

Die Versuche mit dem Monitor für verzögerte Neutronen am Hüllenschadendampfkreislauf (HSD) des FR 2 wurden fortgeführt. Der in der FR 2-Betriebsphase H 72 eingesetzte Natururanprüfling "N 72" mit einer Schadensfläche

<sup>\*</sup>BzFE-Nr. 634.1, 634.3 \*\*BzFE-Nr. 642.4

<sup>1)</sup>Letzter Bericht in KFK 1272/4, vgl. auch Beitrag 1254 des vorliegenden Berichtes

von 90 mm<sup>2</sup> wurde für insgesamt fünf FR 2-Betriebsphasen im Kreislauf belassen. Den zeitlichen Verlauf der Aktivitätsfreisetzungsrate AFR und des Zerklüftungsfaktors k<sup>+)</sup>, welchem nach /1/ die gemessene Neutronenaktivitätskonzentration zugeordnet werden kann, zeigt <u>Tab. 1</u>:

	Datum	AFR /µCi/sec/	<b>k</b>
Beginn FR 2-Phase H 72:	20.12.72	4,5	5,3
Dann kontinuierlicher Anstieg bis:	1. 1.73	8,8	10,4
Danach kontinuierlicher Rückgang während des Restes der Phase H 72 bis auf:	26. 1.73	4,5	5,3
Nach Reaktorstart der Phase A 73 erreichen eines Maxi- malwertes	7. 2.73	9,3	10,9
Dann Rückgang innerhalb von zwei Stunden auf:	7.2.73	4,8	5,6 <sup>21</sup>
Weiterer Rückgang bis auf die geringsten gemessenen Werte:	10. 2.73	0,9	1,0
Danach wieder kontinuier- licher Anstieg während des Restes der Phase A 73 bis auf:	4	Δ. 5	and an
DIG GUI •	101 3173	<b>رو ד</b> י	<b>ن و ن</b>

Innerhalb der ersten zwei Wochen der FR 2-Reaktorphase B 73 stieg AFR von zunächst 13  $\mu$ Ci/sec auf 46  $\mu$ Ci/sec an. Mit Schwankungen von  $\pm$  10% wurde dieser Wert für den Rest dieser Phase beibehalten. Zu Beginn der Phase C 73 stellte sich ein Wert von 61  $\mu$ Ci/sec ein, welcher während dieser Phase stetig auf 31  $\mu$ Ci/sec zurückging. Während der Reaktorphase D 73 lagen die gemessenen Werte zwischen 47 und 51  $\mu$ Ci/sec.

Da der nach Abschluß der FR 2-Phase D 73 ausgebaute Prüfling eine Schadensvergrößerung zeigte und deren Beginn mit Beginn der Phase B 73 anzunehmen ist, ist es nicht sinnvoll, ab diesem Zeitpunkt einen k-Faktor anzugeben, da die jeweilige Größe der Schadensfläche nicht mehr bekannt ist.

t) Zarklijfturgefektor k -	Testfläche bei Einbeziehung der Ober- flächenvergrößerung durch Rauhigkeit				en <sup>en e</sup> rste so
+) Zerkruitungstaktor k -	Größe des Testle	ecks in der	r Hülle	<b>e</b> <u>a de la com</u> eta de la com	
/1/ S. Jacobi, G. Schmitz			1. A. A.	a an the generative	a poste do a
Hüllenüberwachung an n verzögerter Neutronen	natriumgekühlten	Reaktoren	durch	Nachweis	
GfK-Externer Bericht 2	22/71-1				1. A.

124-2

### 1244.1 Ultraschall-Meßtechnik in Natrium

Ein im IRE entwickelter und gefertigter Ultraschall-Sensor für den Direkteinsatz in Natrium bei hohen Temperaturen wurde in Natrium getestet. Der mit einem Lithium-Niobat-Kristall arbeitende Prüfkopf arbeitete bis zu einer Temperatur von 400 °C zufriedenstellend. Die Kontaktierung des Wandlers auf dem Diaphragma zeigte keine Änderung über mehrere Tage bei wechselnden Temperaturen. Bedingt durch eine Undichtigkeit am Montageflansch mußten die Arbeiten unterbrochen werden. Weitere, verbesserte Ultraschallprüfköpfe stehen zum Jahresbeginn 1974 für einen erneuten Natrium-Einsatz zur Verfügung.

## 1244.3 Akustische Meßtechnik in Natrium-Systemen \*\*

Die in den Jahren 1972 und 1973 an der KNK durchgeführten Schallaufzeichnungen des Störuntergrunds und der Pumpen sind nunmehr ausgewertet. Es zeigt sich, daß das Pumpenspektrum bis in den 150 kHz-Bereich reicht, so daß die vorhandenen Vorverstärker modifiziert und das bisher benutzte Magnetbandgerät auf Wideband-I bzw. Direktkanalbetrieb umgerüstet werden müssen. Im Hinblick auf die im Frühjahr 1974 anstehenden Versuche an der KNK mit einer Schallkoppelstange wurden spezielle, für die akustischen Sensoren ausgelegte Breitband-Verstärker bereitgestellt und getestet. Erste Lithium-Niobat-Mikrofone für den Hochtemperatureinsatz wurden entwickelt und stehen vor der Erprobung.

Im Rahmen des Vorhabens Mol-7C (vgl. 1234.4) wurden die Testinstrumentierung und die Datenerfassung konzipiert. Hierin sind Schall- und schnelle dynamische Druckmessungen berücksichtigt; für die Aufnehmer sind ein out-of-pile Testprogramm sowie die Entwicklung eigener Breitband-HT-Mikrofone vorgesehen.

\*BzFE-Nr. 625.4 \*\* BzFE-Nr. 633.5

## 1247 <u>Erprobung von In-Core-Neutronenflußdetektoren</u><sup>F</sup> (P. Hoppé, F. Mitzel, INR)

Testmessungen zur Vorerprobung der In-Core-Neutronenflußdetektoren, welche in der thermischen Säule des FR2 zunächst bei der normalen Umgebungstemperatur ( $\approx 30^{\circ}$ C) durchgeführt wurden /3/, konnten inzwischen mit Hilfe eines speziellen Heizeinsatzes für die thermische Säule mit Detektortemperaturen von 450 °C und 550 °C und Neutronenflüssen  $\Phi = 10^7$  bis 8·10<sup>10</sup> Neutr./cm<sup>2</sup>s wiederholt werden.

Eine vorläufige Analyse der Meßdaten zeigte, daß bei 550  $^{\circ}$ C zuverlässige Neutronenflußmessungen erst für  $\Phi > 10^{10}$  Neutr./cm<sup>2</sup>s möglich sind.

### 1249 <u>Rauschmessungen an der KNK</u> (P. Hoppé, F. Mitzel, INR)

Nachdem ein genereller Einblick in die Anregungsmechanismen für das Neutronenrauschen und das Schwingungsverhalten der Anlage gewonnen wurde /1/, erfolgten zur quantitativen Fortsetzung der Analysen ergänzende Messungen und Vergleiche zwischen theoretischen und experimentellen Ergebnissen.

Die ergänzenden Messungen bezogen sich in erster Linie auf die Anregung von Tankschwingungen durch Kühlmitteldurchsatzschwankungen und durch mechanische Vibrationen der Pumpen. Diese Untersuchungen ließen sich vorteilhaft am abgeschalteten Reaktor durchführen, da in diesem Fall in einem großen Bereich die Pumpendrehzahl bzw. der Kühlmitteldurchsatz in beiden Primärkreisläufen unabhängig voneinander variiert werden und der Einfluß dieser Parameter auf das Schwingungsverhalten des Tanks studiert werden konnte. Außerdem wurde die gegenseitige Wechselwirkung beider Primärkreisläufe durch Abschaltung der Pumpe von jeweils einem der beiden untersucht.

Als wichtige Ursache für statistische Leistungsfluktuationen an der KNK kommen auch thermohydraulische Effekte in Frage. Um aus den gemessenen Rauschspektren allgemeine Aussagen im Sinne der Zielsetzung der Untersuchungen zu erhalten, wurden die experimentellen Daten mit theoretischen Berechnungen

/1/ KFK 1273/1, S. 124-8 KFK 1273/3, S. 124-18 verglichen. Zu diesem Zweck wurden mit einem neuen thermohydraulischen Modell /2/ die Übertragungsfunktionen von Kühlmitteleintrittstemperatur  $\theta_1$ , Kühlmitteldurchfluß  $\mu$  sowie Reaktivität  $\rho$  auf die Kühlmittelaustrittstemperatur  $\theta_2$  bzw. den Neutronenfluß  $\Phi$  berechnet. Abb. 1 zeigt als Beispiel die Übertragungsfunktion zwischen  $\rho$  und  $\Phi$  bei einer Leistung von 33 MW<sub>th</sub> (G ( $\omega$ ) bzw. bei Nulleistung K ( $\omega$ ) ). Der Vergleich beider Funktionen ergibt, daß Leistungsrückkoppelungseffekte, bedingt durch die Zeitkonstanten für den Wärmeübergang, nur für Kreisfrequenzen  $\omega < 1$  Hz eine Rolle spielen. Demnach ist die Überprüfung von Rückkoppelungseffekten nur im Frequenzbereich  $0<\omega<1$  Hz sinnvoll. Berechnete Übertragungsfunktionen und die während des normalen Betriebs gemessenen Autospektralen Leistungsdichten (APSD) für  $\theta_1$  und  $\mu$ , nämlich  $\psi_{\theta}(\omega)$  und $\psi_{\mu}(\omega)$ , zeigen folgendes: Während  $\psi_{\Theta}(\omega)$  am Neutronenflußdetektor keinen meßbaren Effekt erzeugt, sollte  $\psi_{\mu}(\omega)$  in den Frequenzspektren von  $\Phi$ und  $\theta_2$  nachweisbar sein.

In den Abb. 2 und 3 werden die gemessenen spektralen Kreuzleistungsdichten (CPSD) zwischen  $\mu$  und  $\Phi$  bzw. zwischen  $\mu$  und  $\Theta_2$ , nämlich  $\psi_{\mu,\phi}(\omega)$  bzw.  $\psi_{\mu,\theta}(\omega)$  mit entsprechenden Werten verglichen, welche durch Multiplikation der experimentell ermittelten Funktion  $\psi_{\mu}(\omega)$  mit den entsprechenden berechneten Übertragungsfunktionen bestimmt wurden. Trotz der ungünstigen Lage der Meßaufnehmer und der großen Zeitkonstanten der Thermoelemente zeigt der Vergleich der experimentellen und der theoretischen Ergebnisse, insbesondere für  $\omega < 1$  Hz, eine gute Übereinstimmung.

Damit wurde an der KNK die prinzipielle Möglichkeit demonstriert, unter Verwendung einer praktisch normalen Betriebsinstrumentierung die thermohydraulische Funktionsweise eines Reaktors ohne Eingriffe in dessen normale Betriebsweise ständig mit theoretischen Modellen vergleichen zu können. Durch Parameterstudien mit Modellrechnungen können diese Ergebnisse innerhalb abschätzbarer Grenzen verallgemeinert und auf andere Reaktoren übertragen werden. Solche Rechnungen können nämlich allgemein zeigen, welche Parameter bei einem speziellen Reaktor die interessierenden Übertragungsfunktionen besonders stark beeinflussen und daher mit der gezeigten Methode zu überprüfen sind.

<sup>/2/</sup> L. Caldarola, P. Ferranti, F. Mitzel Transfer Functions for Fast Reactors including the Nonlinearities of the Heat Transfer Process; wird als KFK-Bericht veröffentlicht





125 AUSWIRKUNGEN AUF DIE UMWELT; AKTIVITÄTSFREISETZUNG

1254 <u>Kontamination von Reaktorkühlkreisläufen</u> (H. Stamm, IRCh)

# 1254.1 Kontamination von Dampfkreisläufen 1)G

Im Heißdampf-Versuchskreislauf des FR 2 war von Anfang der Betriebsphase H/72 bis Ende der Phase D/73 ein  $U_{nat}^{0}$ -Brennstab ("N72") eingesetzt /1/. In seine Incoloy-Hülle waren neun Nuten (10x1 mm) eingefräst (drei um je 120<sup>°</sup> versetzte Dreiergruppen), die eine freie Brennstoffoberfläche von 90 mm<sup>2</sup> dem Heißdampf im Reaktoreinsatz exponierten. Abb. 1 zeigt drei der Schlitze im noch unbestrahlten Brennstab.

In den fünf Betriebsphasen wurde der Kreislauf mit unterschiedlichen, aber über die Betriebsphase konstanten Dampfbedingungen betrieben, die aus Tab. 1 zu ersehen sind. Art und Menge der auf den Materialproben in Kammer-II deponierten Radionuklide sollen in Kombination mit den eingestellten Dampfzuständen zu Aussagen über den Einfluß von Druck und Temperatur auf den Stofftransport in Heißdampf führen. Messungen und Auswertungen sind noch nicht abgeschlossen.

Abb. 2 zeigt den Experimentier-Brennstab nach einer Einsatzdauer von 197 Tagen unter Vollast. Deutlich ist eine Aufweitung und ein Weiterreißen der Schlitze zu erkennen. Die damit verbundene Querschnittsvergrößerung des Stabes führte zu einem Ansteigen des Druckverlustes über den Reaktoreinsatz, sodaß aus Sicherheitsgründen auf eine ursprünglich vorgesehene sechste Betriebsphase mit diesem Prüfling verzichtet wurde.

Die restlichen drei Betriebsphasen wurden mit Experimentier-Brennstäben gefahren, die UO<sub>2</sub>-Tabletten mit auf 35% angereichertem U-235 als Brennstoff enthielten. Der Stab "U48" (Phase E/73) war nicht vorbestrahlt und hatte als "Schaden" eine 1 mm<sup>2</sup>-Bohrung in der Höhe des Spaltgasplenums; der Stab "U61" (Phase F/73) war auf ca. 46000 MWd/t<sub>met</sub> vorbestrahlt worden und

1)Letzter Bericht in KFK 1272/4

/1/ Vgl. Beitrag 1242 des vorliegenden Berichtes

125-1

Betriebs-Phase	H/72	A/73	B/73	C/73	D/73	
Vollast-Betriebsdauer (h)	905	982	977	936	926	
Dampfzustand in Kammer-II					······································	
Durchsatz (kg/h)	100	100	100	100	100	
Druck (kp/cm <sup>2</sup> )	70	70	120	100	160	
Temperatur ( <sup>O</sup> C)	435	363	435	365	430	
Anzahl der Materialproben						
im Hochdruck-Heißdampf (K-II)	40	46	46	40	46	
vor dem Kondensator (K-V)	18	6	· 9.*	.e. 9	6 × 6	
im Rohkondensat (K-III)	16	16	16	24	16	

Tab.	1:	Dampfzus	tände	und	Materialproben-Beladung	beim	Kreislaufbetrieb
		mit dem 1	Brenns	tab	"N72"		

hatte eine 1 mm<sup>2</sup>-Bohrung in der Brennstoffregion seiner Hülle. Beim nichtvorbestrahlten "U49" (Phase H/73) betrug die "freie Leckfläche" 15 mm<sup>2</sup> (drei Schlitze à 5x1 mm). Die Dampfzustände im Hochdruckteil des Kreislaufs wurden während der letzten drei Betriebsphasen nach einem vorgegebenen Plan variiert. Mit der Phase H/73 wurde der Experimentierbetrieb des Loops für PSB beendet, der Kreislauf wurde am 21.1.1974 abgeschältet.

In der Heißdampf-Probenkammer-II waren 1973 insgesamt 353 Materialproben aus verschiedenen Stählen und Nickelbasislegierungen eingesetzt, in Kammer-V vor dem Kondensator 81 Coupons und in der Kondensat-Kammer-III insgesamt 152 Proben aus verschiedenen Werkstoffen mit wechselnder Oberflächen-Vorbehandlung.


Abb.1 Brennstab "N72" mit gefrästen Schlitzen in der Incoloy-800-Hülle



Abb.2 Brennstab "N72" nach einer Expositionsdauer von 197 Tagen unter Vollast

## 1254.2 Kontamination von Materialproben\*

Die Kontaminationsproben im Loop "MOL-7B" befanden sich während des Jahres 1973 im kontaminierten Natrium dieses Kreislaufs. Nach Beendigung des Loop-Betriebs im Februar 1974 werden die ausgebauten Metallcoupons Mitte des Jahres in Karlsruhe erwartet. Materialproben für den Nachfolgeversuch "MOL-7D" befinden sich in Vorbereitung. Die Probenhalter für Depositionsuntersuchungen in KNK-I wurden mit dem Einsatz erster Coupons aus den Stählen W.Nr. 1.6770, 1.4961 und AISI-316 erfolgreich getestet.

## 1254.3 Kontamination von Natriumkreisläufen\*\*

Der Schwerpunkt der Arbeiten lag im Berichtszeitraum auf der Bestimmung von Radionukliden im Primärnatrium der KNK. Da der Reaktor bisher ohne Auftreten von Brennelement-Hüllrohrschäden betrieben werden konnte, dominierten die Aktivitäten von Aktivierungsprodukten im Natrium. Als der Reaktor im Mai für ein halbes Jahr außer Betrieb genommen wurde, blieb das Primärnatrium weiterhin bei etwa 200 <sup>O</sup>C im Kreislauf. Deshalb war es möglich, auch in dieser Phase Na-Proben zu ziehen und analytisch einigen prinzipiellen Fragen nachzugehen. Wichtigste Ziele dabei waren die Auswahl eines optimalen Tiegelmaterials für die Probenahme und der Test von Versuchseinsätzen mit Depositionsproben. Messungen der Restaktivität an Tiegeln, aus denen der Natrium-Inhalt mit Methanol und Wasser herausgelöst worden war, ergaben bei den bisher üblichen Nickel-Tiegeln eine besonders hohe Adsorption von Radionukliden (vgl. Abb. 3).

# 1254.4 <u>Schutzgas-Analys</u>en

Gaschromatografisch waren im KNK-Primärschutzgas außer wechselnden Mengen Methan keine anderen Kohlenwasserstoffe nachweisbar. Aktivitätsmessungen im Schutzgas waren erst wieder nach dem Anfahren der Anlage im Dezember 1973 sinnvoll. Neben Ar-41 als dominanter Aktivität wurden die Gammalinien von

\* BzFE-Nr. 913.8
\* \* BzFE-Nr. 614.3
Letzter Bericht in KFK 1273/2
\*\*\*BzFE-Nr. 615.2
Erster Bericht



## Abb.3 Gammaspektren entleerter KNK-Probenahmetiegel

Kr-85m, Kr-87, Kr-88 und Xe-135 gefunden, nach Abklingen der kürzerlebigen Gase auch Xe-133 und Xe-133m. Xe-138 und Xe-135m waren bisher trotz wiederholter Versuche nicht nachweisbar; offenbar ist die Aufenthaltsdauer dieser Spaltgase im Natrium so lang, daß Nuklide mit Halbwertszeiten von 14,1 bzw. 15,6 min. bis zum Übergang in das Schutzgas unter ihrer Nachweisgrenze abgeklungen sind. (Am BOR-60 wurde eine mittlere Verweilzeit der Spaltgase im Primärnatrium von acht Stunden gemessen.) Abb. 4 zeigt ein typisches Gammaspektrum von KNK-Schutzgas 20 Stunden nach der Probenahme.





## Gammaspektrum von KNK-Schutzgas



NATRIUM-TECHNOLOGIE-VERSUCHE

126

1262 Untersuchungen von Reaktorbauteilen

1262.2 <u>Betriebsverhalten von Wälzlagern</u><sup>F</sup> (K. Kleefeldt, IRE)

Die Serie der Standardversuche der 1. Versuchsphase /1/, in der Kugellager aus fünf verschiedenen Werkstofftypen auf ihr Reibungs- und Verschleißverhalten in Natrium verglichen wurden, wurde im Berichtszeitraum durch die beiden Versuche 5 und 6 mit den Werkstoffkombinationen I (DMo5) und IV (Wolframcarbid) ergänzt. Insgesamt sind in dieser Phase 11 Standardversuche mit den in /1/ angegebenen Werkstoffkombinationen und Betriebsbedingungen vorgesehen.

Ergebnisse der bisherigen Nachuntersuchungen der beiden letzten Versuch: Der Versuch 5 stellt eine Wiederholung des Versuches 3 dar. Er bestätigt die in /l/ getroffenen Feststellungen hinsichtlich des unregelmäßigen Verschleißes an den Einzelteilen sowie des Reibmomentes und der integralen Axialverschiebung (d.h. der Summe der axialen Verschiebungen beider Innenringe relativ zu den Außenringen infolge Verschleißes). Die wichtigsten Daten sind in Tab. 1 zusammengestellt. Nicht beobachtet wurde in diesem Versuch die Bildung von Auflaufspuren auf den Kugeln sowie Gewichtszunahmen. Die Kugeln befanden sich vielmehr in einem sehr guten Zustand.

Im Versuch 6 wurden erstmals Kugellager aus Wolframcarbid getestet. Der Gesamtverschleiß des Lagerpaares ist hierbei gegenüber dem Werkstoff DMo5 mehr als eine Größenordnung und gegenüber BG 42 um mehr als 2 Größenordnungen niedriger (vgl. Tab. 1). Die Kugeln zeigten nach dem Versuch eine spiægelnde Oberfläche, und die Laufrillen ließen mit bloßem Auge keine oder nur sehr schwache Laufspuren erkennen. Eine genaue Auswertung hierzu folgt. Wegen der geringen Beschädigungen blieb auch das Reibmoment mit 10 bis 12 kpcm bis zum Versuchsende relativ niedrig, wenngleich auch dieser Wert das zu Beginn des Versuches gemessene Reibmoment um den Faktor 10 übersteigt. Eine integrale Axialverschiebung konnte nicht festgestellt werden. Dieser Versuch deutet an, daß der beste Werkstoff wohl nicht im Bereich der Werkzeugstähle Dmo5 und BG 42 liegen wird.

/1/ KFK-Bericht 1273/2, S. 126-1

Es sei noch bemerkt, daß während der wegen eines Umbaues der NABEA notwendigen Versuchspause im 3.Quartal 1973 die Meßtechnik verbessert wurde. Besonders bewährt hat sich in den beiden letzten Versuchen die hydraulische Schwingungsdämpfung des Reibmomentmeßstabes durch einen doppelwirkenden Zylinder im Natrium. Dadurch kann jetzt das Moment kontinuierlich aufgezeichnet werden. Auch die integrale Axialverschiebung wird jetzt laufend geschrieben. Ferner wurde die Verwendung der bei den Verschweißversuchen benutzten Probeentnahme-Vorrichtung für die Oxidgehaltmessung mit Erfolg erprobt. Der Sauerstoffgehalt lag danach am Ende des Versuches 5 bei ca. 5 ppm.

Vers. Nr.	Lager_ Werkst.	Lager- Position	Vers OR	schleiß   IR	gew.(mg)   Kugeln	Integr. Axial- Verschiebg. (mm)	Reibmom. f.Lager- paar (kpcm)
3	DMo5	oben unten	39 4	52 13	182 8	0,09	35-60
5	DMo5	oben unten	1 50	19 <u>39</u>	3	0,12	25-65
6	GT 20 GT 10	oben unten	1 0,3	0,7 -0,1	1,5 2,2	0,00	10-12

Tab. 1: Verschleiß und Reibmoment bei den Versuchen 3, 5 und 6

1262.3 Versuche zur Werkstoffpaarung unter Natrium

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

Mit den seit dem letzten Bericht durchgeführten Verschweißversuchen wurden im wesentlichen folgende Ziele verfolgt:

- Erprobung der neuen Versuchsvorrichtungen

(Auseinanderreißen bei Versuchstemperatur)

- Untersuchungen zum Materialübertrag bei selbstverschweißten Paarungen aus dem ferritischen Stahl 1.6770
- Entwicklung einer selbstverschweißresistenten Beschichtung
- Ermittlung des Selbstverschweißverhaltens der Paarung Stellit 6/Hastelloy C.

Um eine Verfälschung von Haftkräften bei Paarungen aus zwei verschiedenen Werkstoffen durch unterschiedliches Schrumpfen beim Abkühlen auszuschalten, wurden neue Vorrichtungen gebaut. Diese Vorrichtungen ermöglichen ein Auseinanderreißen selbstverschweißter Paarungen im Natrium bei Versuchstemperatur. Zur Erprobung der Vorrichtungen wurde der gut selbstverschweißende Werkstoff 1.6770 eingesetzt.

Da dieser Werkstoff beim KNK an der Kontaktstelle zwischen Tankwand und Schockschürze verwendet wurde und hier eine Materialübertragung durch mehrmaliges Verschweißen und Losbrechen befürchtet wurde, sollte dieser Effekt bei 700 <sup>O</sup>C untersucht werden.

Die neuen Vorrichtungen arbeiteten einwandfrei. Es wurden relativ hohe Haftkräfte ( $F_{hm}$  = 1600 kp) mit einer Genauigkeit von <u>+</u> 10 kp gemessen. Der Materialübertrag an den Proben betrug 0,02 bis 0,05 mm, sinngemäß von der Noppe auf die Tankwand.

Für die Pflaster der SNR-BE-Kästen sollte eine möglichst verschleiß- und selbstverschweißresistente Werkstoffpaarung gefunden werden. Es wurden daher Proben mit Stellit 6-, Colmonoy 4-, Wolframcarbid-, Zirkon- sowie Zirkonund Aluminiumoxid-Beschichtung eingesetzt. Als eine das Selbstverschweißen unterdrückende Beschichtung hat sich bisher nur die durch Bedampfen aufgebrachte Zirkonschicht bewährt. Weitere Versuche mit Chromcarbid-, Zirkonoxidund Wolframcarbidschichten sind geplant.

Letzter Bericht in KFK 1273/2

<sup>\*</sup> BzFE-Nr. 212.4

Für viele Na-Ventile des SNR ist an der Abdichtstelle die Werkstoffpaarung Stellit 6/Hastelloy C (Kegel/Sitz) vorgesehen. Anhand der bei 700 und 600 <sup>o</sup>C durchgeführten Versuche konnte eine relativ hohe Neigung dieser Paarung zum Selbstverschweißen festgestellt werden. Ein Versuch bei niedrigerer Temperatur (550 <sup>o</sup>C) wird noch durchgeführt.

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

### Untersuchung des Gleitverhaltens von Nickelbasislegierungen

Im Rahmen der Ermittlung geeigneter Pflasterwerkstoffe für die Brennelementkästen des SNR 300 wurde neben einer Reihe anderer Werkstoffe die Nickelbasislegierung Inconel 718 bereits untersucht. Die Ergebnisse entsprachen nicht ganz den Erwartungen. Der Einsatz einer Nickelbasislegierung erscheint jedoch aus technologischen Gründen wünschenswert. Es wurden daher die Werkstoffe

Hastelloy C und Nimonic 90

unter folgenden konstanten Bedingungen auf ihr Gleitverhalten getestet:

Belastung	$16,7 \text{ kp} = 0,8 \text{ kp/mm}^2$
Gleitgeschwindigkeit	13,5 cm/min
Bewegungsart	oszillierend ( <u>+</u> 5 mm)
Oxidgehalt im Na	= 10 ppm

Als Versuchsparameter wurde die Natriumtemperatur zwischen 250 und 600 <sup>o</sup>C variiert. Die Temperaturänderungen erfolgten so, daß sich zwischen jedem Versuchslauf eine Verweilzeit der Proben unter Last von ca. 15 h ergab. Zum Vergleich mit den normalerweise flachen Proben wurden in einem Versuch mit Nimonic 90 die zylindrischen Proben mit balligen Enden ausgeführt. Die Ergebnisse zeigen:

- Bei <u>Hastelloy C</u> (Abb. 1) wurde - mit einer Ausnahme - in allen Temperaturbereichen ein kinetischer Reibkoeffizient  $\mu_k$  <0,5 gemessen. Erst in der letzten Versuchsphase bei 600 °C nach einem Gleitweg von ca. 105 m wurde dieser maximal zulässige Wert geringfügig überschritten.

**\*** BzFE-Nr. 212.7



Abb.1

- Für <u>Nimonic 90</u> (Abb. 2) liegen die Reibkoeffizienten sowohl bei 250 als auch bei 600 <sup>O</sup>C z.T. deutlich höher. Bei dem mit kugelförmigen Proben durchgeführten Versuch war der Abtrag der Oxidschicht bis ca. 2 m Gleitweg zu erkennen, und die balligen Proben waren nach ca. 25 m Gleitweg abgeflacht, was den erhöhten Reibkoeffizient erklärt.
- Eine erhöhte Startreibung  $\mu_s$  konnte bei Hastelloy in keinem Falle, bei Nimonic 90 nur beim jeweils ersten Start bei 400 <sup>o</sup>C (2 mal) bzw. bei 600 <sup>o</sup>C (1 mal) nachgewiesen werden.

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

1263.1 <u>Temperatur- und Geschwindigkeitsfelder in Brennstabbündeln</u>\* (H.H. Frey, H. Miller, IRB)

Über die mit den beiden Codes MISTRAL II und HERA-1A berechneten Temperaturfelder wurde in /1/ berichtet. Diese Untersuchungen wurden auf Geschwindigkeitsfelder ausgedehnt, um den Einfluß temperaturabhängiger Stoffdaten (in HERA vernachlässigt) und des Impulsaustausches zwischen Unterkanälen (in MISTRAL vernachlässigt) zu erfassen. Aus Abb. 3, worin ein Schieflastfall mit den in /1/ beschriebenen Betriebsbedingungen dargestellt ist, wird folgendes deutlich:

- Durch den Impulsaustausch wird die Geschwindigkeit der Eckkanäle um 12% erhöht, die der Wandkanäle um 6,5% vermindert. Drei Stabreihen von der Kastenwand entfernt ist keine Auswirkung des Impulsaustausches mehr zu bemerken.
- Wird zur Ermittlung der Stoffwerte nicht der Mittelwert des Bündels, sondern die lokal wirksame Temperatur herangezogen, so liegen die Fluidgeschwindigkeiten am Austritt ca. 2,5% höher. Das Geschwindigkeitsprofil wird im Sinne der aufgebrachten Schieflast modifiziert.

Beide Einflüsse ergeben jedoch für das Temperaturprofil Abweichungen unter 2 <sup>O</sup>C, was auf die Aufheizspanne des Kühlmediums bezogen eine Unsicherheit von etwa 1% bedeutet.

\*BzFE-Nr. 451.7 /1/ KFK-Bericht 1273/2



Abb.2

Kühlmittel: Natrium Wendeldrahtabstandshalter h = 100 mm Steigung  $\mu = 30 \% / cm$ Mischrate 11,4 11,2 W [m/S] 11,0 10,8 10,6 10,4 10,2 10,0 9,8 9,6 94 9,2 9,0 Ecktraverse Hera ohne Jmpuls-Austausch Hera mit Jmpuls-Austausch Mistral

Abb. 3 :Geschwindigkeitsverteilung am Austritt eines 169 Stab-Bündels

## 1263.2 <u>Untersuchungen im exzentrischen Ringraum</u> (P. Donath, D. Weinberg, IRB)

Zur Bestimmung der örtlichen Geschwindigkeitsfelder im exzentrischen Ringraum wird eine Teststrecke ohne Abstandshalter für das Kernrohr verwendet, um einen möglichst großen störungsfreien hydrodynamischen Einlauf bei gleichzeitig beliebiger exzentrischer Lage des Kernrohres zu erhalten. Dazu muß das Innenrohr während der Versuche vorgespannt werden. Die Exzentrizität wird über das mit Heißfilm-Anemometer bestückte Außenrohr mit Hilfe von Kreuzstützen eingestellt. Die Verstelleinrichtungen erlauben eine Genauigkeit der Einstellung der Meßsonden bis auf 0,01 mm.

Die gemessenen zweidimensionalen Geschwindigkeitsfelder finden Verwendung bei der Ermittlung der richtungsabhängigen turbulenten Energieaustauschgröße /l/. Für die z.Z. im Natrium eingesetzte Ringraum-Geometrie (Radienverhältnis  $r_1/r_2 = 0,25$ ) wurden die ersten Geschwindigkeitsmessungen im Wasser durchgeführt und mit dem erstellten Rechenprogramm ANEMON ausgewertet.

1263.3 Lokale Wärmeübergangsmessungen an Bündelgeometrien \*\*
 (M. Kolodziej, R. Möller, D. Schlindwein, H. Tschöke, IRB)

Für die Phase 1 (p/d = 1,3, ungestörte und gestörte Stabgeometrie, Gitterverschiebung) wurde ein Versuchsprogramm erstellt.

Mit der Anpassung eines 2-dimensionalen Rechenprogramms zur Temperaturfeldbestimmung auf einen 30<sup>0</sup>-Sektor im 19-Stabbündel wurde begonnen.

Nachdem die für 6 mm  $\emptyset$ -Stäbe bewährte Stabherstellungsmethode für die 9 mm  $\emptyset$ -Stäbe nicht erfolgreich war, wurden nach einer modifizierten Fertigungsmethode 2 Probestäbe gefertigt und geprüft. Das Ergebnis ist zufriedenstellend, so daß mit der Bündelfertigung begonnen werden kann, sobald das erforderliche Bornitrid angeliefert wird.

Da die an der Teststrecke angreifenden Rohrleitungskräfte nicht zuverlässig genug ermittelt werden konnten, wurde eine Verstärkung des Teststreckengerüstes vorgenommen.

**\***BzFE-Nr. 451.8

/1/ KFK-Bericht 1273/3

<sup>\*\*</sup>BzFE-Nr. 451.1

Für die Durchflußmessereichung wurde der Ausdehnungsbehälter eingerichtet und eine Fehlerabschätzung durchgeführt.

Zur Durchführung der vorgesehenen Untersuchungen wurden die Prüfstandsplanung abgeschlossen und die noch ausstehenden Bestellungen ausgeführt. Mit dem Umbau eines vorhandenen Natriumprüfstandes wurde begonnen. Der für die Reinigung des Natriums vorhandene Reinigungskreis wurde neu elektrisch installiert und isoliert.

## 1263.4 <u>Untersuchungen zur Kühlmittelquervermischung in Na-durchströmten</u> Brennelementen\*

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

#### Es wurden zwei Probleme verfolgt:

- In Ergänzung zu den in /1/ und /2/ berichteten Ergebnissen aus Untersuchungen am 61-Stabbündel mit Röhrchenabstandshaltern sollte sowohl der Einfluß der Distanz zwischen den letzten Abstandshaltern und der Meßebene, als auch die Abstützlänge der Stäbe im Bündel (Entfernung Abstandshalter - Abstandshalter) auf die Mischrate ermittelt werden.
- Gemessene und rechnerisch ermittelte Temperaturprofile bei getrennter Beheizung von Zentral- und Wandstab sollten im Hinblick auf ihre Superposition mit jenen Temperaturverläufen verglichen werden, welche aus der gleichzeitigen Beheizung von Zentral- und Wandstab resultieren. Dies sollte für die bisher untersuchten Bündeln mit gitterförmigen (Röhrchengitter) und wendelförmigen (Wendeldraht, Wendelrippen) Abstandshaltern geschehen.

Die Ergebnisse dieser Untersuchungen können wie folgt zusammengefaßt werden:

- Die Mischrate des Bündels mit Röhrchengittern ändert sich nicht durch Variation der Distanz Abstandshalter-Meßgitter ∆h im untersuchten Bereich 60 < h < 160 (Abb.4).</li>
- Die Größe der Mischrate bleibt gegenüber den in /1/ und /2/ für eine Abstützlänge H = 150 mm berichteten Werten auch für die hier betrachtete Größe H = 200 unverändert.

**\***BzFE-Nr. 451.5

/1/ KFK-Bericht 1273/2

/2/ H. Hoffmann, E. Baumgärtner: Experimental Investigations of the Thermodynamic Behavior of Fast Reactor Fuel Elements with Different Spacer Types. IAEA/SM-172/IV-20; Brüssel 1973





Abstandshaltertyp :

Anzahl der Abstandshalter : 7 Abstand benachbarter Abstandshalter : H= 200 mm

Abb. 4: Die Mischrate als Funktion der Reynoldszahl für Bündel mit Röhrchen-Abstandshaltern (H = 200 mm, p/d=1,32) — Einfluß des Abstandes Abstandshalter – Meßebene — - Die Superposition der gemessenen oder berechneten Temperaturprofile für getrennte und gleichzeitige Beheizung von Zentral- und Wandstab ist möglich. Die Werte stimmen für die betrachteten Abstandshalter gut überein (Abb. 5).

## 1263.5 Entwicklung elektrischer Heizelemente\*

#### 1. Heizstäbe der Entwicklungsstufe I

(V. Casal, E. Graf, W. Hartmann, H.M. Politzky, K. Rust, IRB)

Zur experimentellen Untersuchung des lokalen und integralen Natriumsiedens müssen diese Heizstäbe u.a. folgenden Anforderungen genügen:

- hohe Leistungsdichte von 170  $W/cm^2$  bei Hüllrohrtemperaturen von ca. 950  $^{\circ}C_{,}$
- weitgehende Übereinstimmung der azimutalen Variation von Temperatur und Wärmestrom bei gleicher Kühlkanalgeometrie,
- tolerierbare Abweichung des örtlichen Wärmestromes kleiner als + 5%.

Es wurde ein zweites Siebenstabbündel für die geplanten Experimente gefertigt. In Zukunft sollen die Heizelemente in der Hauptwerkstatt hergestellt werden. Die Verlagerung der Fertigung wurde eingeleitet.

Zur Klärung der Frage, welche örtlichen Abweichungen des Wärmestromes am Stabumfang gegenüber den entsprechenden Mittelwerten durch fertigungstechnische Toleranzen und konstruktive Eigenheiten der Heizstäbe verursacht werden, wurde das Temperaturfeld in den Heizstäben und im natriumdurchströmten Kühlkanal bei gleichbleibender Kanalgeometrie berechnet /1/, /2/, /3/. Ebenso wurde die Leistungsverteilung bei instationärer Aufheizung der Stäbe unter Verzicht auf eine äußere Kühlung theoretisch ermittelt. Durch den Vergleich des thermischen Verhaltens der indirekt elektrisch beheizten Stäbe mit und ohne Kühlung ist es möglich, aus Temperaturfeldmessungen am instationär beheizten Stab Aussagen über die spätere Leistungsverteilung des Heizstabes im Natrium zu gewinnen.

Erste Temperaturfeldmessungen an einem instationär beheizten Stab durch photographische Ermittlung von Helligkeitsunterschieden stimmen mit den rechnerisch bestimmten Daten gut überein.

- /1/ KFK-Bericht 1272/4, S. 126-13
- /2/ KFK-Bericht 1273/2, S. 126-16

**BzFE-Nr. 933.2** 

<sup>/3/</sup> KFK-Bericht 1273/3, S. 126-11



Abb.5: Coolant Temperatures  $\Delta = t_{out} t_{in}$  at the Outlet Cross Section of a Sodium Cooled 61-Rod Bundle Heated by Center and Edge Rods. Comparison Theory - Experiment.

### 2. Prüfung von Heizstäben

(0. Jacobi, R. Scherwinsky, IMF)

Zur Prüfung von Heizstäben wurden zunächst Routine-Untersuchungen am Rohrmaterial ausgeführt. Der Außen- und Innendurchmesser sowie die Wanddicke wurden kontinuierlich gemessen. Eine Ultraschall- und eine Wirbelstromprüfung auf Materialfehler ergänzen die Methoden der Qualitätskontrolle. Die Prüfung des Heizbandes auf Breite, Dicke und Materialfehler erfolgt auf einer von der Hauptwerkstatt entwickelten und gebauten Vorrichtung. Dabei wird das Heizband mit konstanter Geschwindigkeit von einer Spule auf die andere umgespult, wobei es die drei Meßstationen (Dicke, Breite und Materialfehlerprüfung) durchläuft. Der fertige Heizstab wird kontinuierlich auf seinen Durchmesser und auf Materialfehler geprüft. Die Entwicklung eines Meßverfahrens zur Bestimmung der Zentrizität steht vor dem Abschluß. Über die gefundenen Meßwerte wird später zusammenfassend berichtet.

## 1264 Hydraulische Untersuchungen am SNR-300-Absorber **\***

(K. Marten, IRB)

Die Experimente zur Erhöhung des Bündeldurchsatzanteils durch Abdrosselung des Ringspaltes mittels radial unbeweglicher Labyrinthdrossel werden in /1/ vorgestellt. Den dominierenden Anteil des Druckabfalls im Ringraum bewirkte dabei die Drossel.

Ergänzend zu diesen Experimenten wurde in 2 Referenzversuchen der Einfluß der radialen Lage des Bündels im Führungsrohr auf die Durchsatzverteilung und den Gesamtdruckverlust mit der im Führungsrohr radial unbeweglich eingebauten Drossel untersucht. Hierzu wurden der Gesamtdruckverlust  $\Delta p_{ges}$  und der Bündeldurchsatzanteil  $V_B/V_{ges}$  bei folgenden Parametern gemessen: - In axialer Bündelposition 5 (Absorber-Hub = 0 mm) bei konzentrischer und

extrem schiefer Lage des Bündels im Führungsrohr.

- In axialer Bündelposition 4 (Absorber-Hub = 500 mm) bei konzentrischer und extrem exzentrischer Lage des Bündels im Führungsrohr.

**★**<sub>BzFE-Nr. 455.2</sub>

/1/ KFK-Bericht 1273/3, S. 126-12

Die extrem exzentrische Lage des Bündels wird durch den Drosselspalt bestimmt und beträgt 1mm. Die Versuche wurden bei 80 <sup>O</sup>C Wassertemperatur durchgeführt. Die max. Durchsatzmenge des Wassers von 3,4 1/s liegt bei 80 <sup>O</sup>C unmittelbar unterhalb jener Menge, bei welcher das Bündel ohne Kupplung und Teilgestänge aufschwimmt. Die Meßergebnisse zeigen:

- In Bündelposition 5 verringert sich der Gesamtdruckverlust  $\Delta p_{ges}$  in der schiefen gegenüber der konzentrischen Bündellage im Mittel um 13%, der Bündeldurchsatzanteil  $v_B^{V}/v_{ges}$  nimmt im Mittel um 4% ab (Abb. 6).
- In Bündelposition 4 verringert sich der Gesamtdruckverlust  $\Delta p_{ges}$  in der exzentrischen gegenüber der konzentrischen Bündellage um 7%, der Bündeldurchsatzanteil  $V_{B}^{/V}$  nimmt um 1,5% ab (Abb. 7).

Der Einfluß schiefer und exzentrischer Bündellagen auf den Gesamtdruckverlust und die Durchsatzverteilung bei Verwendung einer Labyrinthdrossel ist demnach gering.

Da die Labyrinthdrossel das Bündel im Führungsrohr in seiner radialen Beweglichkeit stark einschränkt, wurde mit Hilfe eines Faltenbalges die Drossel radial beweglich im Führungsrohr befestigt. Die Berührungen von Drossel und Bündel sowie Bündel und Führungsrohr wurden akustisch ermittelt. Die Versuche wurden bei einer Wassertemperatur von 40 <sup>o</sup>C durchgeführt. Die Wassermenge wurde im Bereich von 1,5 - 3 1/s, der Bündelhub im Bereich von 0-700 mm variiert.

Bei den Experimenten wurde folgendes festgestellt:

- Die radial bewegliche Drossel nahm während der Versuche in keiner axialen Bündelposition eine stabile Lage zum Bündel ein. Die hörbaren Klopfgeräusche durch die Berührung von Drossel und Bündel nahmen mit steigendem Durchsatz zu. Die ermittelte Frequenz von ca. 30 Hz entsprach der Eigenfrequenz der durch den Faltenbalg federnd befestigten Drossel. Durch Steigung der Durchsatzmenge wurden die Berührungsgeräusche verstärkt.
- Es kam bei allen axialen Bündelpositionen zu azyklischen Berührungen des Bündels mit dem Führungsrohr. Die Intensität der Berührungsgeräusche war weit geringer als die von Drossel und Bündel.
- Aufgrund dieser Ergebnisse wurde angeregt, eine durch hydrodynamische Kräfte sich selbstzentrierende Drossel zu bauen. Diese vermeidet im Betrieb den Kontakt von Bündel und Drossel und die noch vorhandene geringfügige Änderung der Durchsatzverteilung des Gesamtdruckverlustes bei unterschiedlicher radialer Länge des Bündels.







Abb.7 Gesamtdruckverlust △p<sub>ges.</sub> ∪. Bündel-Durchsatzanteil Vges. in Abhängigkeit vom Gesamtdurchsatz (Wassertemp. 80 °C)

a series and the series of the

127 THERMO- UND FLUIDDYNAMISCHE VERSUCHE IN GAS

Beiträge hierzu erscheinen voraussichtlich wieder im nächsten PSB-Vierteljahresbericht.

a ser a ser a a ser a ser a ser a ser a an a transforma a la gran ser en entre da transforma da la cala da la c La cala da ser a transforma

## 1281 <u>Studien zu gasgekühlten Schnellen Reaktoren</u><sup>G</sup>

Gesichtspunkte zum Entwurf eines Core-Catchers für einen gasgekühlten Schnellen Brutreaktor

(L. Barleon, S. Dorner, INR)

## 1. Ausgangsproblematik

Wird der Kern eines Reaktors ungenügend gekühlt, so kann dies zu seinem Niederschmelzen führen. Falls man keine geeignete Vorrichtung zum Auffangen dieser Kernschmelze - Core-Catcher - vorsieht, kann diese durch unkontrolliertes Durchschmelzen des Druck- und Sicherheitsbehälters ins Freie gelangen. Bislang wurden bei den Überlegungen zur Auslegung von Reaktoren Unfälle, die ein Niederschmelzen des Reaktorkerns zur Folge haben, als so unglaubhaft angesehen, daß man sie nicht als Auslegungsunfall betrachtet hat. Um auch die mit einem solchen hypothetischen Unfall verbundenen Restrisiken abzudecken, ist man in jüngster Zeit dazu übergegangen, auch diese Unfallmöglichkeit in die Überlegungen mit einzubeziehen.

## 2. Verhältnisse im Core-Catcher bei einem Gasbrüter

Infolge der geringen Wärmekapazität und der schlechten Wärmeleitfähigkeit des Kühlmittels wird es bei einem Gasbrüter zu keiner Fragmentation der Kernschmelze und Granulatbildung kommen. Dies gilt auch für den Fall eines tropfenweise Abschmelzens des Kerns, wobei ebenfalls eine zusammenhängende Schmelze am Boden entsteht. Verursacht durch die geringe Wärmeabfuhr an der Oberseite einer solchen Schicht und infolge der geringen thermisch-kritischen Schichtdicke des schlecht wärmeleitenden volumenbeheizten oxidischen Brennstoffs, wird eine rasche Verteilung der Schmelze über den Boden des CoreCatchers bewirkt. Damit wird die Bildung einer kritischen Masse und daraus folgend eine nukleare Exkursion verhindert. Im ungünstigsten Fall wird man bei einem Gasbrüter nach Beendigung des Unfalls mit einer Schmelze im Core-Catcher zu rechnen haben, die sich in der Nähe ihres Siedepunktes befindet.

Wie Experimente von Fischer und anderen /1/ zeigen, ist der oxidische Brennstoff und das metallische Strukturmaterial stets getrennt, nicht nur während der Abschmelzphase, sondern auch im Core-Catcher, was eine Zweischichtanordnung im Core-Catcher bedeutet. Damit werden auch die Spaltprodukte entsprechend ihrem chemischen Verhalten auf diese beiden Schichten verteilt sein, was einer Aufteilung der Nachwärme von 50% in der oxidischen, 30% in der metallischen Phase und 20% der Nachwärme im Gasraum entspricht.

#### 3. Temperatur- und Wärmeflußverteilung in der Schmelze

Bei diesen Überlegungen wird eine flache Wanne mit ebenem Boden als Core-Catcher (Abb.1) zugrunde gelegt, über die die Brennstoffschmelze mit konstanter Schichtdicke ausgebreitet ist. Um die Temperatur- und Wärmeflußverteilung in der Schmelze zu untersuchen, wurde das Problem in drei Bereiche aufgegliedert:

3.1 Die kurzzeitigen transienten Vorgänge (<20s), d.h. die Vorgänge kurz nach dem Einbringen der ca. 3500°K heißen Schmelze in den Core-Catcher. Hierbei wird vorausgestezt, daß die Naturkonvektion in der Schmelze noch nicht in Gang gekommen ist und daher der Wärmetransport in der Schmelze nur durch Konduktion erfolgt, daß bei der Kurzzeitbetrachtung der Einfluß der Volumenwärmequellen auf die instationäre Temperaturverteilung vernachlässigt werden kann und daß die Brennstoffschicht bzw. der Boden des Core-Catchers jeweils als unendliche Halbräume angesehen werden können, die zum Zeitpunkt t=0 über den Querschnitt die konstanten Temperaturen T, bzw.  $T_{\rm p}$  besitzen. Mit diesen Annahmen lassen sich nach Carslaw und Jaeger /2/ und Epstein /3/ exakte Lösungen für das instationäre Temperaturfeld angeben. Die in Abb.2 dargestellten Ergebnisse für Stahl und Graphit als Tiegelmaterial zeigen, daß infolge des großen Unterschieds der Temperaturleitfähigkeiten im oxidischen Brennstoff und im Tiegelwerkstoff die Trennflächentemperatur Brennstoff-Tiegel niedrig liegt und rasch eine Schicht festen Brennstoffs gebildet wird.

3.2 Zur Berechnung der stationären Temperatur- und Wärmeflußverteilung liegen Modelle nach /4/ und /5/ vor. Bei der integralen Betrachtungsweise /4/ wird angenommen, daß die Naturkonvektion in der flüssigen Schmelze voll angelaufen ist und daß sich eine stationäre Temperaturverteilung ausgebildet hat. Die Berechnung der Temperaturverteilung basiert auf einem Modell, bei welchem auf eine erstarrte Brennstoffschicht auf dem Boden des von unten gekühlten Core-Catchers eine stagnierende flüssige Brennstoffschicht folgt, an deren Oberseite die maximale Temperatur der Schmelze erreicht wird. Diese Linie der maximalen Temperatur stellt gleichzeitig die Wärmeflußscheide dar. Über dieser Schicht folgt eine weitere Schicht geschmolzenen Brennstoffs, in der die Wärme durch Naturkonvektion transportiert wird. Diese Konvektion besteht aus vielen kleinen Wirbeln, welche ein hexagonales Strömungsmuster bilden (Benard-Zelle). Für eine solche Strömung können die Temperaturdifferenzen der Schichtgrenzen nach Fiedler und Wille /6/ mit folgender Beziehung ermittelt werden:

 $Nu = 0.177 \cdot Ra^{0.295}$ 

Ferner ist in diesem Modell angenommen, daß über der Brennstoffschicht die flüssige Stahlschmelzschicht folgt, die an ihrer Oberseite je nach Größe der Nachwärme erstarrt ist. Die Wärme wird von dieser Oberfläche durch Strahlung an die Umgebung abgegeben. Die Ergebnisse dieser Rechnungen sind in den Abbildungen 3 bis 6 für verschiedene Leistungsdichten dargestellt. Bei Ausbildung von Naturkonvektion in der Schmelze wird der größte Teil der Wärme nach oben abgegeben. Bei richtiger Auslegung kann die Temperatur an der Oberfläche der Wanne niedrig gehalten werden. Zur Zeit werden die hiermit gewonnenen Ergebnisse mit denen nach dem Modell von Peckover /5/ berechneten Werten verglichen.

3.3 Die langzeitlichen instationären Vorgänge:

Bei geeigneter Wahl des Werkstoffes und der Dicke der Wanne wird diese nicht angeschmolzen. In diesem Fall können die langzeitlichen instationären Vorgänge, verursacht durch das Abklingen der Nachwärme, gut quasistationär behandelt werden, wobei die Temperaturprofile bei verschiedenen Leistungsdichten berechnet wurden (siehe Abb.4).

## 4. Konzepte für die Kühlung der Schmelze und Materialfragen

Vom niedergeschmolzenen Kern kann die Wärme im Prinzip entweder ohne Einbringen eines zusätzlichen Kühlmittels auf die Coreschmelze -sog. Trockenkühlung- oder durch Zufuhr eines Kühlmittels -Naßkühlung- abgeführt werden.

4.1. Trockenkühlung: Bei der Trockenkühlung wird die Wärme zum geringeren Teil durch Wärmeableitung über den Core-Catcher, zum größeren Teil durch Wärmeabstrahlung abgeführt. Durch diese Wärmestrahlung würden die Reaktoreinbauten bis zum Abschmelzen erhitzt. Daher wird es notwendig, diese Reaktoreinbauten entweder direkt zu kühlen oder sie durch eine Abdeckung über der Schmelzwanne vor der Wärmestrahlung zu schützen, die wiederum zu kühlen wäre. Die Wechselwirkung der verschiedenen Materialien ist auf den Werkstoff der Auffangwanne und die oxidische bzw. metallische Phase beschränkt. Die vorliegenden Rechnungen zeigen, daß sich an der Grenzschicht Auffangwanne-Schmelze je nach den thermodynamischen Eigenschaften des Wannenmaterials eine Temperatur von nur 1385 bis 1470<sup>O</sup>K einstellt. Bei diesen Temperaturen ist mit einer Reaktion zwischen Kernschmelze und Graphit- bzw. Stahlwanne nicht zu rechnen.

4.2. Naßkühlung: Als Kühlmittel für die Coreschmelze können Wasser, Flüssigmetall oder geschmolzene Salze in Betracht gezogen werden. Die Problematik des Wassereinspritzens wurde bereits von K.W.Klein, C.A.Goetzmann /7/ diskutiert. Zur Verminderung der chemischen Reaktion des Wassers mit der metallischen Phase der Schmelze läßt sich durch Verdünnung der Oxidschmelze die Dichte soweit erniedrigen, daß die oxidische Schmelze über die Metallphase zu liegen kommt. Damit kann eine weitere Wasserstofffreisetzung vermieden werden. Die Bildung von gefährlichen Explosivgemischen mit Wasserstoff wird durch Rekombination verhindert. Da ein Wassereinbruch bei einem Störunfall nicht auszuschließen ist, erscheint eine Wasserkühlung besonders sinnvoll.

#### <u>Literatur</u>

- /1/ J.Fischer, J.D.Schilb und M.G.Chasanov: ANL-7864(1971)
- /2/ H.S.Carslaw und J.C.Jaeger: Conduction of Heat in Solids, Clarendon Press, Oxford (1959)
- /3/ M.Epstein: Nucl.Sc.Eng. <u>51</u>, 84-87 (1973)
- /4/ L.Barleon, M.Dalle Donne, S.Dorner: KFK 1755 (1972)
- /5/ R.S.Peckover: CLM-P 357 (1973)
- /6/ H.E.Fiedler und R.Wille: Heat Transfer Vol.IV (1970)
- /7/ K.W.Klein, C.A.Goetzmann: Siemens AG, Erlangen, pers.Mitteilung

and a state of the state of the

128-5





Abb.6. Abhängigkeit der Wärmeflüsse von der Gesamtnachwärme

a second a second s Second second

#### 129 ENTWURFSSTUDIEN FÜR GROSSE NATRIUMBRÜTER

## 1296 <u>Multipool-Entwürfe<sup>F</sup></u> (R.A. Müller, IRE)<sup>1)</sup>

Für natriumgekühlte Brutreaktoren mit großen Leistungen von der Größenordnung 2000 MWe sind einige Fragen des Anlagenkonzeptes und der sicherheitstechnischen Auslegung neu zu überdenken. Es ist daher vorgesehen, parallel zu der von der Industrie bearbeiteten Entwurfsstudie für einen Demonstrationsbrüter nach der Loop-Bauweise ein Alternativkonzept auf der Basis des Multipooltyps auszuarbeiten. Beide Entwürfe werden dann (voraussichtlich 1975) in einem mit der Industrie gemeinsam durchzuführenden Systemvergleich gegenübergestellt.

Die Arbeiten wurden in der zweiten Jahreshälfte 1973 in engem Kontakt mit der Fa. Interatom begonnen. Zunächst wurden die bereits vorhandenen Multipool-Entwürfe der Fa. Interatom und der GfK in ihren Grundzügen miteinander verglichen und die Vor- und Nachteile dieser Konzepte bei Anlagen sehr großer Leistungen herausgearbeitet. Bewertungskriterien waren hierbei neben der großtechnischen Realisierbarkeit, dem erforderlichen Bauaufwand und den sicherheitstechnischen Eigenschaften vor allem auch die Wartungs- und Reparaturfähigkeit derartiger Anlagen. In diesem Zusammenhang wurden deshalb auch erste detailliertere Untersuchungen zur Dimensionierung der Primärkreis-Abschirmung ausgeführt.

1) Erster Bericht

·