

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

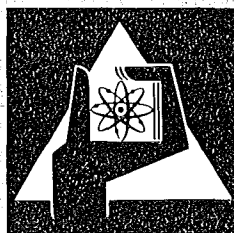
September 1974

KFK 1999

Institut für Material- und Festkörperforschung  
Projekt Schneller Brüter

Arbeiten zur Brennelement-Entwicklung für den  
Schnellen Brutreaktor SNR-300

H. Böhm, W. Dienst, K. Kummerer



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

**KARLSRUHE**

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

Institut für Material- und Festkörperforschung

Projekt Schneller Brüter

ARBEITEN ZUR BRENNELEMENT-ENTWICKLUNG FÜR DEN  
SCHNELLEN BRUTREAKTOR SNR-300

zusammengestellt von

H. Böhm, W. Dienst, K. Kummerer

mit Beiträgen von

H. Böhm	K. Keller
E. Bojarsky	H. Kleykamp
H. Borgstedt	K. Kummerer
D. Brucklacher	H. Lehning
K. Closs	G. Ondracek
H. Deckers	H. Reiser
W. Dienst	L. Schäfer
K. Ehrlich	M. Schirra
H. Elbel	L. Schmidt
D. Freund	W. Schneider
D. Geithoff	B. Schulz
O. Götzmann	F. Thümmel
H. Häfner	D. Vollath
K. Herschbach	Ch. Wassilew
P. Hofmann	H. Wedemeyer
O. Jacobi	H. Zimmermann



## V O R B E M E R K U N G

Das Institut für Material- und Festkörperforschung (IMF) des Kernforschungszentrums Karlsruhe widmete in den letzten 4 Jahren den größten Teil seiner Kapazität der Brennelement-Entwicklung für schnelle Na-gekühlte Brutreaktoren. Im ersten Halbjahr 1974 wurde ein Seminar abgehalten, in dem das IMF alle seine Beiträge im Rahmen des bauzugehörigen Programmes für die Oxidbrennelemente des seit 1973 im Bau stehenden Prototypkernkraftwerkes SNR-300 zusammenfassend darstellte und erläuterte. Diese vom Projekt Schneller Brüter (PSB) koordinierten Arbeiten umfassen theoretische und experimentelle Beiträge für Brennstoff, Hülle und Brennstab. Brennpunkte der vielfältigen Studien sind zahlreiche Bestrahlungsexperimente, die unter der wissenschaftlichen Federführung des IMF für das PSB ausgelegt, durchgeführt und ausgewertet wurden.

Dieser Bericht bringt die Vorträge des Seminars in schriftlich ausgearbeiteter und teilweise ergänzter Form. Er wird zu einem Zeitpunkt vorgelegt, an dem für die endgültige Auslegung der SNR-300-Erstkern-Brennelemente wichtige Entscheidungen zu fällen sind. Der Bericht umfaßt 19 Einzelbeiträge, an denen viele Autoren beteiligt sind. Neben diesen Autoren haben zahlreiche weitere Mitarbeiter des IMF und insbesondere auch aus der Abteilung Heiße Zellen der GfK an der Erarbeitung der Ergebnisse maßgeblich mitgewirkt. Wesentlich waren hierbei auch die Anregungen der Projektleitung PSB und der Gedankenaustausch mit den Partnern des Industriekonsortiums SNR, vor allem mit den Fachkollegen der Firma INTERATOM in Bensberg. Ihnen allen sowie Frau B. Hauth, die die redaktionelle Fertigstellung des ganzen Berichtes besorgte, sei für die gute Zusammenarbeit sehr gedankt.

H. Böhm, W. Dienst, K. Kummerer

VERZEICHNIS DER BEITRÄGE

	Seite
I. Anforderungen und Randbedingungen für SNR-300-Brennelemente (K. Kummerer)	1
II. Gesichtspunkte und Probleme für die Brennstoffauslegung (W. Dienst)	27
III. Der Einfluß abbrandbedingter Phänomene auf die Zentraltemperatur (G. Ondracek, B. Schulz)	43
IV. Die mechanische Belastung der Hülle durch den Brennstoff (D. Brucklacher, W. Dienst, H. Zimmermann)	59
V. Chemische Wechselwirkung zwischen Brennstoff, Spaltprodukten und der Hülle (O. Götzmann, P. Hofmann, H. Kleykamp)	81
VI. Folgerungen für die Brennstoff- und Brennstabauslegung (W. Dienst)	111
VII. Einfluß der Bestrahlung auf die Festigkeitseigenschaften von Hüllwerkstoffen (K.D. Closs, L. Schäfer, M. Schirra, Ch. Wassilew)	119
VIII. Schwellen und Kriechen von Hüllwerkstoffen unter Bestrahlung (K. Ehrlich, K. Herschbach, W. Schneider)	149
IX. Korrosionsverhalten von Hüllwerkstoffen (H.U. Borgstedt)	173
X. Zusammenfassende Beurteilung der für SNR-300-Brennstäbe in Betracht kommenden Hüllwerkstoffe (H. Böhm)	191
XI. Modelltheoretische Behandlung des Brennstabverhaltens (H. Elbel)	203
XII. Modelltheoretische Beschreibung der Brennstabmechanik von SATURN-3 (K. Keller)	221
XIII. Brennstabspezifikationen und ihre Bewertung (D. Freund)	233
XIV. Oxid-Probenherstellung für das PSB-Bestrahlungsprogramm (H. Wedemeyer)	243
XV. Qualitätskontrolle an Brennstoffen, Hüllrohren und Brennstäben (D. Vollath, O. Jacobi)	251
XVI. Die wesentlichen Brennstab- und Bündelexperimente (D. Freund)	271
XVII. Bestrahlungseinrichtungen (E.Bojarsky, H.Deckers, H.Häfner, H.Lehning, H.Reiser, L.Schmidt)	283
XVIII. Zerstörungsfreie Nachuntersuchung (D. Geithoff)	307
XIX. Der Beitrag des IMF zur Brüter-Brennelemententwicklung (F. Thümmeler)	327

## K U R Z F A S S U N G

Dieser Bericht setzt sich aus 19 Einzelbeiträgen verschiedener Autoren zusammen. Nach einer einleitenden Darstellung der Brennelementkonzepte für den SNR-300 und der Gesichtspunkte für die Brennstoffauslegung befassen sich mehrere Beiträge mit Mischoxid-Brennstoff, seinem Gefüge und seinen mechanischen und chemischen Eigenschaften in Wechselwirkung mit der Brennstabhülle. Der zweite Schwerpunkt der Themenreihe ist das Verhalten der Edelstahl-Hüllwerkstoffe unter SNR-300-typischen Bedingungen, wobei die Behandlung der Festigkeitseigenschaften, des neutroneninduzierten Schwellens sowie des Korrosionsverhaltens zu einer Gesamtbeurteilung der für den SNR-300 in Betracht kommenden Hüllwerkstoffe führt. Hierauf rücken Brennstabprobleme ins Blickfeld, insbesondere die modelltheoretische Behandlung eines Brennstabes und seine Spezifikationen. Den Abschluß bilden mehr technologische Beiträge, welche die Herstellung und Qualitätskontrolle von Brennstabproben sowie die Vorbereitung, Durchführung und Nachuntersuchung von Stab-Bestrahlungsexperimenten behandeln. Der ganze Bericht endet mit einer zusammenfassenden übergreifenden Wertung aller IMF-Beiträge zur Schnellbrüter-Brennelemententwicklung und stellt so eine breite Wissens- und Erfahrungsbasis für die anstehenden Grundsatzentscheidungen hinsichtlich der SNR-300-Brennelemente zur Verfügung.

## A B S T R A C T

### Contribution to the Fuel Element Development for the Fast Breeder Reactor SNR-300

---

This report comprises 19 single contributions of different authors. The introductory presentation of the SNR-300 fuel element concepts and fuel design criteria is followed by some papers dealing with mixed oxide fuel, its structure, and its mechanical and chemical properties in contact with the cladding of a fuel pin. The second main topic in the series of contributions is the behaviour of stainless steel cladding materials under typical SNR-300 conditions. In this context the mechanical properties, the neutron induced swelling and the corrosion phenomena lead to an overall judgement of the different types of stainless steel being envisaged for SNR-300 pin cladding. Thereafter, problems of the fuel pin are considered, mainly the theoretical treatment by pin modeling calculations and the pin specifications. Finally some contributions of a more technological nature deal with the fabrication and quality control of fuel pin specimens as well as the preparation, performance and examination of pin irradiation experiments. The last contribution in the report presents a general conclusive judgement of all the investigations carried out by IMF for the fast breeder fuel element development. In this way a comprehensive basis of knowledge and experience is made available for the forthcoming decisions concerning the SNR-300 fuel pins.



## I. ANFORDERUNGEN UND RANDBEDINGUNGEN FÜR SNR-300-BRENNELEMENTE

von  
K. Kummerer

### Inhalt:

1. Das SNR-300-Prototyp-Kernkraftwerk
2. Der Reaktorkern
3. Die Brennelemente und Brennstäbe
4. Beanspruchung der Brennstäbe
5. Kriterien für die Brennstabauslegung
6. Brennstabvergleiche

## 1. Das SNR-300-Prototyp-Kernkraftwerk

Dieses Kernkraftwerk mit einem schnellen natriumgekühlten Brutreaktor wird in der Nähe von Kalkar am Niederrhein errichtet, siehe Standort und Umgebung in Abb. 1<sup>+)</sup> . Der genauere Lageplan aller Kraftwerkseinrichtungen - insbesondere auch das Reaktorgebäude - ist aus Abb. 2 ersichtlich. Der Baubeginn des Kraftwerkes war im Frühjahr 1973. Die Fertigstellung und Inbetriebnahme ist für die Jahre 1978/79 geplant.

Der schnelle Reaktor SNR-300 soll eine thermische Leistung von 730 MWth haben, was dann zu einer elektrischen Leistung von etwa 300 MWe führt. Als Brennstoff ist U-Pu-Mischoxid vorgesehen, als Brutstoff abgereichertes Uranoxid. Die Brutrate wurde im Sicherheitsbericht von 1971 mit 1,16 angegeben. Die neueren Kernkonzepte mit ihrem stark verkleinerten radialen Brutmantel haben jedoch eine deutlich reduzierte Brutrate zur Folge /2/.

Diese allgemeinen Angaben einschließlich der für unsere weiteren Überlegungen wichtigen Natrium-Eintritts- und Austrittstemperaturen sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

## 2. Der Reaktorkern

Der zylindrische Kern des schnellen Reaktors SNR-300 mit einem Durchmesser von etwa 2700 mm und einer Höhe von 1750 mm umfaßt die eigentliche Spaltzone und die beiden axialen Brutmäntel sowie den radialen Brutmantel. Der Reaktorquerschnitt in Abb. 3 sowie der Längsschnitt in Abb. 4 geben die Anordnung in der Kernhalterung innerhalb des Reaktor-Doppeltanks wieder.

Eine genauere Einteilung des Reaktorkerns geht aus Abb. 5 hervor. Die Spaltzone ist aufgeteilt in einen inneren Bereich und einen äußeren Bereich, welcher zum Zwecke der Abflachung des radialen Flußgradienten

---

<sup>+)</sup>  Viele der hier folgenden Angaben und Abbildungen sind aus dem SNR-300-Sicherheitsbericht, Stand 30.5.1971 /1/ entnommen.

eine etwas höhere Pu-Anreicherung aufweist. Unterhalb des unteren axialen Brutmantels befindet sich der Bereich des Spaltgasraumes der Brennstäbe. Der Spaltgasraum ist also am Eintritt des Kühlmittels in den Kern und somit in der Zone niedrigerer Temperatur angeordnet.

Im Laufe der vorbereitenden Studien zum SNR-300 wurden mehrere Konfigurationen des Reaktorkerns näher studiert. Der Reaktorkern MARK-I war das Referenzkonzept, welches dem ersten Sicherheitsbericht /1/ zugrunde lag. Wirtschaftliche Überlegungen über den Betrieb des Prototypkernkraftwerkes führten im Jahre 1973 zu der Entscheidung, den Durchmesser der Brennstäbe zu erhöhen. Um die gleiche Reaktorleistung zu erhalten, mußte hierbei die bisherige innere Bündelreihe des radialen Brutmantels zu diesem neuen MARK-II-Kern hinzugefügt werden. MARK-II soll aber erst bei der zweiten Kernladung realisiert werden. Allerdings soll die Verteilung der Kernplätze bereits bei der ersten Kernladung dieser neuen Überlegung angepaßt werden. Dies führte zu dem neuen Konzept MARK-Ia für die erste Kernladung. In den Tabellen 2 und 3 sind diese verschiedenen Kernkonzepte charakterisiert und die Verteilung der Kernplätze angegeben. Aus der Tabelle 3 geht auch hervor, daß in den Konzepten MARK-Ia und MARK-II die äußeren Reihen des radialen Brutmantels durch Reflektorelemente ersetzt werden. Zwar wird dadurch die Brutrate des Reaktors verringert. Die Lage des Pu-Marktes wird aber in den nächsten Jahren durch große Mengen von Pu-Überschüssen aus Leichtwasser-Reaktoren gekennzeichnet sein, so daß es im ersten Jahrzehnt des SNR-300-Betriebes keinerlei wirtschaftlichen Anreiz für eine voll ausgeschöpfte Pu-Erzeugung geben wird.

In den Abbildungen 6 und 7 sind die Kernquerschnitte MARK-I und MARK-Ia mit all ihren Bündelplätzen schematisch dargestellt /1,4/. In den ersten Betriebszyklen entspricht die Spaltstoffzusammensetzung nicht der Gleichgewichtsverteilung, weshalb Blindelemente vorgesehen sind. Der MARK-Ia-Kern im ersten Betriebszyklus z.B. enthält 12 Blindelemente, im zweiten Zyklus 9 Blindelemente, siehe Abb. 7.

### 3. Die Brennelemente und Brennstäbe

Der hexagonale Querschnitt der Brennelementbündel mit einer Teilungsschlüsselweite von 115 mm enthält 169 Stabplätze für 6 mm-Stäbe bzw. 127 Plätze für Stäbe mit 7,6 mm Durchmesser. Der Aufbau eines MARK-Ia-Bündels ist in Abb. 8 wiedergegeben. Eine Datenzusammenstellung in Tabelle 4 bringt die Einzelheiten für die Bündel der 3 Kernkonzepte MARK-I, MARK-Ia und MARK-II. Die äußere Geometrie ist identisch. Beim MARK-I-Bündel gab es zwei Entwürfe mit 169 bzw. 163 Brennstäben. Im zweiten Entwurf nahmen 6 Stützstäbe Stabplätze ein. Das nun zur Ausführung gelangende MARK-Ia-Bündel hat 3 Stützstäbe, die einen im Brennelementkasten freistehenden Stabverband halten.

Die Stäbe sind durch Abstandshalter innerhalb des Bündels positioniert. Man unterscheidet grundsätzlich folgende Abstandshalter-Typen:

- Gitterabstandshalter in den 3 unterschiedlichen Konstruktionen:
  - punktgeschweißte Waben-Abstandshalter
  - gelötete Röhrrchen-Abstandshalter
  - funkenerodierte Abstandshalter
  
- Wendelabstandshalter in den 2 Ausführungen:
  - Wendeldraht
  - Hüllrohr mit Wendelrippen

Für die MARK-Ia-Bündel werden punktgeschweißte Wabenabstandshalter genommen. Für das MARK-II-Konzept ist als technische Weiterentwicklung ein funkenerodierter Gitterabstandshalter vorgesehen. Der Stützabstand in der Spaltzone ist bei allen Konzepten 150 mm.

Der Brennstabaufbau des MARK-Ia-Stabes ist aus der Abb. 9 ersichtlich. Die Längeneinteilung der Stäbe ist bei allen Bündelkonzepten nahezu identisch. Tabelle 5 schließlich bringt diese geometrischen Daten sowie einige Angaben über den Brennstoff. Daraus ist zu entnehmen, daß auch die einmal gewählte Brennstoffdichte beibehalten wird.

#### 4. Die Beanspruchung der Brennstäbe

Die leistungsmäßige Beanspruchung der Brennstäbe ergibt sich aus der Leistungsverteilung im Reaktorkern. Für den Kern MARK-Ia sind noch keine Rechenergebnisse veröffentlicht. Für eine grobe Abschätzung greifen wir auf Daten des Kernes MARK-I zurück /1/ und passen diese der neuen Querschnittseinteilung des MARK-Ia-Kernes an. Dabei wird vorausgesetzt, daß die radiale und axiale Flußverteilung bei beiden Kernen geometrisch ähnlich ist. Für die radiale Verteilung der Spaltrate in der Kernmittelebene zu Beginn des 1. Spaltzonenzyklus ergibt sich dann etwa ein Verlauf gemäß Abb. 10. Die axiale Verteilung ist in Abb. 11 aufgezeichnet.

Beim Übergang von der inneren zur äußeren Spaltzone tritt eine Neutronenflußspitze auf, deren Wert dem maximalen Neutronenfluß in der Kernachse nahe kommt. Da im Bereich dieser Flußspitze bereits Brennelement-Bündel der äußeren Spaltzone mit ihrem höheren Spaltstoffgehalt stehen, kommt es hier zu den lokal höchsten Stableistungen des ganzen Reaktorkernes. Als Beispiel zeigt Abb. 12 einen Sektor aus dem Querschnitt des MARK-I-Kernes mit Leistungsangaben für jedes Bündel. Daraus ergeben sich als extremale Werte der Stableistung

- in der inneren Spaltzone: minimal 349 W/cm, maximal 451 W/cm
- in der äußeren Spaltzone: minimal 289 W/cm, maximal 461 W/cm.

Auch diese paar Zahlenangaben bestätigen ebenso wie der Flußverlauf in Abb. 10, daß der radiale Leistungsgradient in der äußeren Spaltzone besonders groß ist. Dies äußert sich auch in einem spürbaren Leistungsgradienten über den Querschnitt eines einzelnen Bündels. Das (rechenmäßig) maximal belastete Brennelement Nr. 616 des MARK-I-Kernes beispielsweise zeigt in den Kühlmittelaustrittstemperaturen der Kühlkanäle zwischen den Brennstäben Werte zwischen  $574^{\circ}\text{C}$  und  $596^{\circ}\text{C}$ , siehe die Darstellung der Kühlmittelisothermen in Abb. 13. Der axiale Temperaturverlauf ist dementsprechend unterschiedlich, siehe Abb. 14.

Die wichtigsten Beanspruchungswerte für die Brennstäbe sind in Tabelle 6 zusammengestellt. Der Nominalwert der maximalen Stableistung im MARK-I-Kern lag bei 460 W/cm. Im MARK-Ia-Kern ist dieser Wert auf 370 W/cm gesenkt. Unter Anwendung eines Heißkanalfaktors von 1,23 wird dieser maximale Nominalwert erhöht auf 455 W/cm. Im späteren MARK-II-Kern soll die Stableistung dann wieder etwa die Werte des ursprünglichen Konzeptes erreichen.

Der maximale lokale Abbrand im MARK-Ia-Kern soll 90.000 MWd/t M betragen. Dazu ist eine Standzeit von 440 Vollasttagen erforderlich. Diese Standzeit ist in 3 Zyklen aufgeteilt, woraus sich eine Zykluszeit von ca. 147 Vollasttagen ergibt.

Der schnelle Neutronenfluß ist beim MARK-Ia-Kern wohl etwas niedriger als beim MARK-I-Kern. Wegen der höheren Standzeit erhalten die Brennelemente MARK-Ia trotzdem eine deutlich höhere schnelle Neutronendosis. Die Dosiswerte für MARK-II-Elemente werden dann über  $2 \cdot 10^{23}$  schnelle Neutronen/cm<sup>2</sup> liegen.

Die Natrium-Eintrittstemperatur in die Brennelementbündel ist bei allen Konzepten gleich angenommen zu 380°C. Dazu kommt eine Aufheizzone von nominell 200°C sowie ein Temperatursprung vom Natrium zur Hüllwandmitte von 30°C. Wenn man noch berücksichtigt, daß unter der Berührungsstelle zum Abstandshalter eine Übertemperatur um ca. 10°C herrschen kann, kommt man zu einer maximalen nominellen Hüllwandmittentemperatur von 620°C. Bei Berücksichtigung eines Heißkanalfaktors von 1,26 für die Aufheizspanne ergibt sich ein zusätzlich möglicher Temperaturanstieg von ca. 50°C. Der maximal mögliche Wert in der Hüllwandmitte wird somit zu 670°C. Daraus ergibt sich eine maximal mögliche Temperatur an der Hüllinnenwand von ca. 690°C.

Der Außendruck durch das Kühlmittel ist für die mechanische Festigkeit unbedeutend; er beträgt maximal ca. 5 bar.

## 5. Kriterien für die Brennstabauslegung

Um zu generellen Kriterien für die Auslegung von Brüter-Brennstäben zu kommen, müssen einige Forderungen hinsichtlich der Betriebssicherheit präzisiert werden:

- Die nukleare Auslegung des Reaktorkerns geht von einer geometrisch stabilen Materialanordnung aus. Alle Ortsveränderungen des Brennstoffes beeinflussen die Reaktivität und sind daher betriebsmäßig unzulässig.
- Die Hülle des Brennstoffes stellt die erste Barriere für die Zurückhaltung des Pu-haltigen Brennstoffes und der Spaltprodukte dar. Hüllrohrschäden sind daher unzulässig.

- Die Kühlung der Brennstäbe erfolgt innerhalb des Bündelverbandes. Jede Veränderung der "inneren Bündelgeometrie", insbesondere eine Verengung der Kühlkanalquerschnitte gefährdet die Wärmeabführung.
- Die Brennstäbe eines Stabbündels sitzen in einem Brennelement-Kasten mit hexagonalem Querschnitt. Die Kästen stützen sich mit ihren äußeren Distanznoppen gegenseitig ab und bilden so den Kernverband. Die äußere Geometrie der Kästen darf sich nicht wesentlich verändern, da sonst die Funktion der Sicherheitseinrichtungen (Trimm- und Regelstäbe) gefährdet werden könnte. Außerdem würde der Brennelementwechsel beeinträchtigt.

Diese Forderungen führen zu einigen einfachen Kriterien für die Auslegung der Brennstäbe, welche folgendes besagen:

- A. Unter normalen Betriebsbedingungen darf es zu keiner makroskopischen Verschiebung oder Umverteilung des Brennstoffes längs des Stabes kommen.
- B. Bis zum Entladeabbrand muß die Brennstabhülle dicht bleiben.
- C. Die äußere Geometrie des Brennstabes muß (innerhalb gewisser Toleranzen) spannungsfrei erhalten bleiben.

Aus diesen Forderungen und Kriterien ergeben sich als Konsequenzen für die Auslegung des Brennstoffes und des Brennstabes:

- Es darf betriebsmäßig während der ganzen Einsatzzeit eines Brennelementes in keinem Brennstab der Oxidbrennstoff zum Schmelzen kommen. Das bedeutet, daß die Brennstofftemperaturen immer und überall unterhalb von etwa 2750°C bleiben müssen.
- Es darf kein Hüllrohrbruch auftreten. Daher muß einmal der Korrosionsangriff von außen und innen gering bleiben. Eine Hüllwandschwächung um größenordnungsmäßig 100 µm darf nicht überschritten werden. Weiterhin muß der Festkörperdruck des schwellenden Brennstoffes und der Gasdruck des Spaltgases begrenzt bleiben und durch eine entsprechende mechanische Festigkeit der Hülle aufgefangen werden. Wegen der sehr erhöhten Sprödigkeit des Hüllwerkstoffes nach Bestrahlung mit schnellen

Neutronen ist die mechanische Auslegung des Stabes so vorzunehmen, daß weder die elastische Dehnung der Hülle noch die Kriechdehnung einen Wert von jeweils etwa 0,2 % überschreitet.

- Unter der hohen schnellen Neutronendosis kommt es zum Schwellen des Hüllwerkstoffes. Die Schwellbeträge müssen bis zum Ende der Lebensdauer unterhalb etwa 5 % bleiben, da sonst die Geometrie und Funktion des Bündelverbandes wesentlich beeinträchtigt werden. Neben dem absoluten Schwellbetrag kommt es hier auch besonders auf das sog. differentielle Schwellen an. Eine entsprechend starke Abhängigkeit dieses neutroneninduzierten Materialschwellens von Neutronenfluß, Neutronendosis und Temperatur würde zu starken Biegespannungen im Bündel führen.

Der hier geschilderte Zusammenhang nach dem Schema

Forderungen - Kriterien - Konsequenzen - Auslegungsgrenzen  
ist in Tabelle 7 stichwortartig zusammengestellt.

## 6. Brennstabvergleiche

In diesem abschließenden Kapitel werden die Auslegungs- und Beanspruchungsdaten der SNR-300-Brennstäbe mit den Brennstäben anderer schneller Prototyp- und Kraftwerksreaktoren verglichen. Die Darstellung hier geht von einem früher schon einmal gebrachten Vergleich aus /3/ und ergänzt bzw. korrigiert ihn durch inzwischen verfügbare neuere und zusätzliche Angaben.

In den Vergleich mit einbezogen sind nunmehr außer den früher bereits angeführten Reaktoren SNR-300, BN-350, BN-600, PHENIX, PFR, FFTF und MONJU folgende mittlerweile in konkrete Planung genommene Kraftwerksreaktoren:

- SNR-2 für ein Kraftwerk mit 2000 MWe, Standort in der BR Deutschland, Baubeginn etwa 1980 /7/.
- SUPER-PHENIX für ein Kraftwerk mit 1200 MWe, Standort Creys-Malville bei Lyon in Frankreich, Baubeginn etwa 1975 /11/.



- CFR (Ceramic Fast Reactor) ist der Name für eine Schnellbrüter-Kraftwerksreihe in Großbritannien, die auf den PFR folgt. Für CFR-1 mit etwa 1300 MWe soll der Bau im Jahre 1976 beginnen /14/.
- CRBRP ist die Abkürzung für Clinch River Breeder Reactor Plant, Standort in Tennessee, USA. Dieses erste US-Demonstrationskraftwerk mit schnellem Brutreaktor soll eine Leistung von 380 MWe haben, Baubeginn 1974 /15/.

Die Brennstabdaten sind (soweit bekannt) in der umfassenden Tabelle 8 einander gegenübergestellt. Auch sind dort für jeden Brennstabtyp die neueren Literaturquellen verzeichnet. Die Abmessungen der Stäbe sowie ihre Längeneinteilung sind in Abb. 15 schematisch dargestellt.

Die seit der früheren Übersicht /3/ nunmehr zusätzlich ins Blickfeld gerückten Brennstäbe der Folgeentwicklungen SNR-2, SUPER-PHENIX, CFR und CRBRF bilden in vielen Details der Auslegung und Beanspruchung eine möglichst wenig veränderte Neuauflage ihrer vorhergehenden Prototyp-Brennstäbe. Die auf die Prototyp-Reaktoren folgenden Demonstrationskraftwerke bringen keine neuen Brennstäbe, sie sollen vielmehr die Eignung, Betriebssicherheit und Wirtschaftlichkeit der "alten" Stab- und Bündelkonstruktionen endgültig unter Beweis stellen.

#### Literatur:

- /1/ KONSORTIUM SNR:  
SNR-300 MWe Prototypkernkraftwerk mit Schnellem Natriumgekühlten Reaktor, Sicherheitsbericht, Band 1-3, INTAT 84a (1971)
- /2/ K. Traube:  
Stand der industriellen Arbeiten zum SNR-300, Projekt Schneller Brüter Statusbericht 1974, KFK 2003
- /3/ K. Kummerer:  
Brennstäbe der Schnellbrüter-Prototypreaktoren, Atomwirtschaft 17 (1972), 574
- /4/ J. Höchel et al.:  
The Status of the Fuel Elements for SNR 300 with Consideration of the Technical and Economical Aspects, Proc. London Conference 1974 +)

- /5/ K. Traube:  
Der SNR-300 und die internationale Situation der Schnellbrüterentwicklung, Atomwirtschaft 18 (1973), 411
- /6/ J. Höchel:  
persönliche Mitteilungen
- /7/ K. Traube:  
Plans for SNR 2, Proc. London Conference 1974<sup>+</sup>)
- /8/ I.S. Golovnin et al.:  
The Main Problems in the Development of Fast Power Reactor Fuel Elements, Proc. London Conference 1974<sup>+</sup>)
- /9/ H. Bailly et al.:  
La Fabrication en France de Coeurs de Reacteurs Rapides a Base de Plutonium et d'Uranium Enrichi, IAEA Symp. on Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors, Brüssel, Juli 1973
- /10/ M. Estavoyer et al.:  
The Phenix Core, Description and First Observations Made during Power Set-up, Proc. London Conference 1974<sup>+</sup>)
- /11/ R. Carle et al.:  
Future programmes and plans for prototype and prospects for CFR's, Proc. London Conference 1974<sup>+</sup>)
- /12/ J.F.W. Bishop:  
Performance development of the PFR fuel and the use of PFR as a fuel development facility, Proc. London Conference 1974<sup>+</sup>)
- /13/ K.G. Eickhoff et al.:  
Theoretical and experimental studies supporting the design of fast reactor fuel elements, IAEA Symposium on Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors, Brüssel, Juli 1973
- /14/ W. Macrae, J. Moore:  
UK Fast Reactor Development after PFR, Proc. London Conference 1974<sup>+</sup>)
- /15/ W.B. Behnke:  
United States LMFBR Demonstration Plant Activities, Proc. London Conference 1974<sup>+</sup>)
- /16/ R. Milli et al.:  
Brief description of planned prototype FBR MONJU of Japan, Proc. London Conference 1974<sup>+</sup>)
- /17/ Y. Suzuki et al.:  
Nuclear performance of MONJU, Proc. London Conference 1974<sup>+</sup>)

---

<sup>+</sup>) Proceedings of the British Nuclear Energy Society  
International Conference on Fast Reactor Power Stations, London, 11-14  
March 1974

Tabelle 1 Kernkraftwerk SNR-300, allgemeine Angaben

Reaktortyp Bauart	Schneller natriumgekühlter Brutreaktor Loop-System mit 3 Kreisläufen
Thermische Leistung Elektrische Leistung Nettowirkungsgrad	730 MW 295 MW 40,4 % im Gleichgewichtszustand des Erstkerns
Spaltstoff Brutstoff Brutrate	U-Pu-Mischoxid abgereichertes U-Oxid 1,16 (bei Reaktorkern MARK-I)
Na-Eintrittstemperatur Aufwärmspanne Na-Austrittstemperatur	377 °C 169 °C 546 °C

Tabelle 2 Kernkonzepte für den SNR-300

Reaktorkern	Anzahl der Bündelplätze	Brennstab-durchmesser	Maximale nominelle Stableistung	Einsatzplan
MARK-I	169	6 mm	460 W/cm	Erstes Konzept, kommt nicht zum Einsatz
MARK-Ia	217	6 mm	370 W/cm	Neues Konzept für die erste Kernladung
MARK-II	217	7,6 mm	440 W/cm	Zweite Kernladung

Tabelle 3 Verteilung der Kernplätze

SNR-300 Kern Brennstabdurchmesser	MARK-I 6 mm	MARK-Ia 6 mm	MARK-II 7,6 mm
Kernplätze	499	499	499
Spaltzone	169	217	217
Brutzone	330	282	282
Brennelemente insgesamt	151	193/196/199	205
BE in der inneren Zone	73	103/106/109	115
BE in der äußeren Zone	78	90	90
Regeltrimmelemente	12	9	9
Erstabschaltsystem	3	-	-
Zweitabschaltsystem	3	3	3
Blindelemente	-	12/9/6	-
Brutelemente	330	96	96
Reflektorelemente	-	186	186

Tabelle 5 Aufbau der Brennstäbe

SNR-300 Kern Brennstabdurchmesser	MARK-I 6 mm	MARK-Ia 6 mm	MARK-II 7,6 mm
Stablänge	2475 mm		
Oberer Brutmantel	400 mm		
Spaltzone	950 mm		
Unterer Brutmantel	400 mm		
Spaltgasplenum	650 mm		
Pu-Gehalt in der inneren Zone	29 %	25 %	~ 24 %
in der äußeren Zone	41 %	36 %	~ 35 %
Brennstoffdichte	86,5 % th.D.	86,5 % th.D.	86,5 % th.D.
Hüllwandstärke	0,38	0,38	0,50

Tabelle 4 Aufbau der Brennelemente

SNR-300 Kern		MARK-I	MARK-Ia	MARK-II
Brennstabdurchmesser		6 mm	6 mm	7,6 mm
Länge des Bündels		3500 mm		
Bündelquerschnitt		hexagonal		
Teilungsschlüsselweite		115 mm		
Schlüsselweite des Kastens		110 mm		
Stabplätze		169	169	127
Anzahl der Brennstäbe		169/163	166	127
Anzahl der Stützstäbe		0/6	3	0
Gitterteilung		7,9 mm	7,9 mm	8,8 mm
P/D-Verhältnis		1,32	1,32	1,16
Abstands- halter	Art		punktgeschweißte Wabengitter	funkenerodierte AH oder Drahtwendel
	Gesamtzahl/Spaltzone	15/6		
	Stützabstand in der Spaltzone	150 mm		

Tabelle 6 Beanspruchung der Brennstäbe

SNR-300 Kern Brennstabdurchmesser	MARK-I 6 mm	MARK-Ia 6 mm	MARK-II 7,6 mm
Max. Stableistung, Nominalwert (W/cm)	460	370	440
Max. Stableistung, Heißkanal (W/cm)	565	455	540
Max. lokaler Abbrand (MWd/t M)	90000	90000	> 100000
Standzeit (Vollasttage)	351	440	520
Zykluszeit (Vollasttage)	117	147	173
Max. Neutronenfluß > 0,1 MeV (n/cm <sup>2</sup> sec)	$5 \cdot 10^{15}$	$4,5 \cdot 10^{15}$	$> 5 \cdot 10^{15}$
Max. Neutronendosis > 0,1 MeV (n/cm <sup>2</sup> )	$1,5 \cdot 10^{23}$	$1,7 \cdot 10^{23}$	$> 2 \cdot 10^{23}$
Natrium-Eintrittstemperatur (°C)	380		
Aufheizspanne, Nominalwert (°C)	200		
Max. Hüllwandmittentemp., Nominalwert (°C)	620		
Max. Hüllwandmittentemp., Heißkanal (°C)	670		
Max. Hüllinnentemperatur, Heißkanal (°C)	690		

Tabelle 7 Kriterien für die Brennstabauslegung

Forderungen	Kriterien	Konsequenzen	Auslegungsgrenzen
Geometrisch stabile Materialanordnung im Reaktorkern	Makroskopische Umverteilung des Brennstoffes	kein Oxidschmelzen	Brennstofftemperatur < 2750 °C
Hülle ist 1. Barriere für Plutonium und Spaltprodukte	Dichtheit und Festigkeit der Hülle	Hüllwandschwächung durch Innen- und Außenkorrosion begrenzt	Hüllwandkorrosion < 100 µm
		kleiner Festkörperdruck auf die Hülle	Elastische Dehnung < 0,2 %
		begrenzter Spaltgasdruck auf die Hülle	Kriechdehnung < 0,2 %
Stabile innere Bündelgeometrie	Geometrie des Brennstabes	neutroneninduziertes Schwellen des Hüllwerkstoffes begrenzt	Schwellbeträge < 5 %
Stabile äußere Bündelgeometrie			

Tabelle 8 Vergleich der Brennstäbe von schnellen Kraftwerksreaktoren

	Deutschland (Debenelux)		U S S R		Frankreich		Großbritannien		U S A		Japan	
	SNR-300		SNR-2	BN-350	BN-600	PHENIX	SUPER PHENIX	PFR	CFR-1	FFTF	CRBRP	MONJU
	MARK-Ia	MARK-II										
Brennstab, Durchmesser (mm)	6,0	7,6	7,6	6,1	6,9	6,55	8,65	5,84	5,84	5,84	5,84	6,5
Länge (mm)	2475	2475		1140	2445	1793		2260	2112	2380	2911	2740
Brennstoff, Länge (mm)	950	950		1060	750	850		914	1000	914	914	900
Tabl.-Durchm. (mm)	5,09			4,82	5,9	5,50				4,80		5,4
Tablettenform	2x Einsenk.			Ringtabletten	Ringtabletten	Volltabletten		Ringtabl.		1x Einsenk.		
Materialdichte (Z th.D.)	86,5	86,5		95,8	95,2	85				90,4		85
Schmierdichte (Z th.D.)	80,0	80,0		73,0				80		85,5		
Hülle Material	1.4970	1.4970		Typ 316	Typ 316	316 L		M 316		316	316	316
Wandstärke (mm)	0,38	0,50	0,50	0,35		0,45		0,38		0,38	0,38	0,45
Stableistung, max. <sup>1)</sup> (W/cm)	370/455	440/540	452/	440/500	530/690	430/	450/	450/		425/	475/	457/
Hülltemperatur, max. <sup>1,2)</sup> (°C)	620/670	620/670			/690	640/690	620/	/700	/700	613/750	640/	
Abbrand, max. lokal (MWD/kg M)	90	90	115	50	100	60		75	100	80	150	80 (Mittel)
Stäbe pro Bündel	169	127	271	169	127	217	271	325	325	217	217	169
P/D-Verhältnis	1,32	1,16	1,16					1,26	1,26		1,25	
Abstandshalter	Gitter	Gitter(Draht)		Draht	Draht	Draht		Gitter	Gitter	Draht	Draht(Gitter)	
Referenzen	/3,4/	/4,5,6/	/6,7/	/3/	/3,8/	/3,9,10/	/11/	/3,12,13/	/13,14/	/3/	/15/	/3,16,17/

1) Nominalwert/unter Heißkanalbedingungen

2) meist Hüllwandmittentemperatur, Angaben nicht immer eindeutig



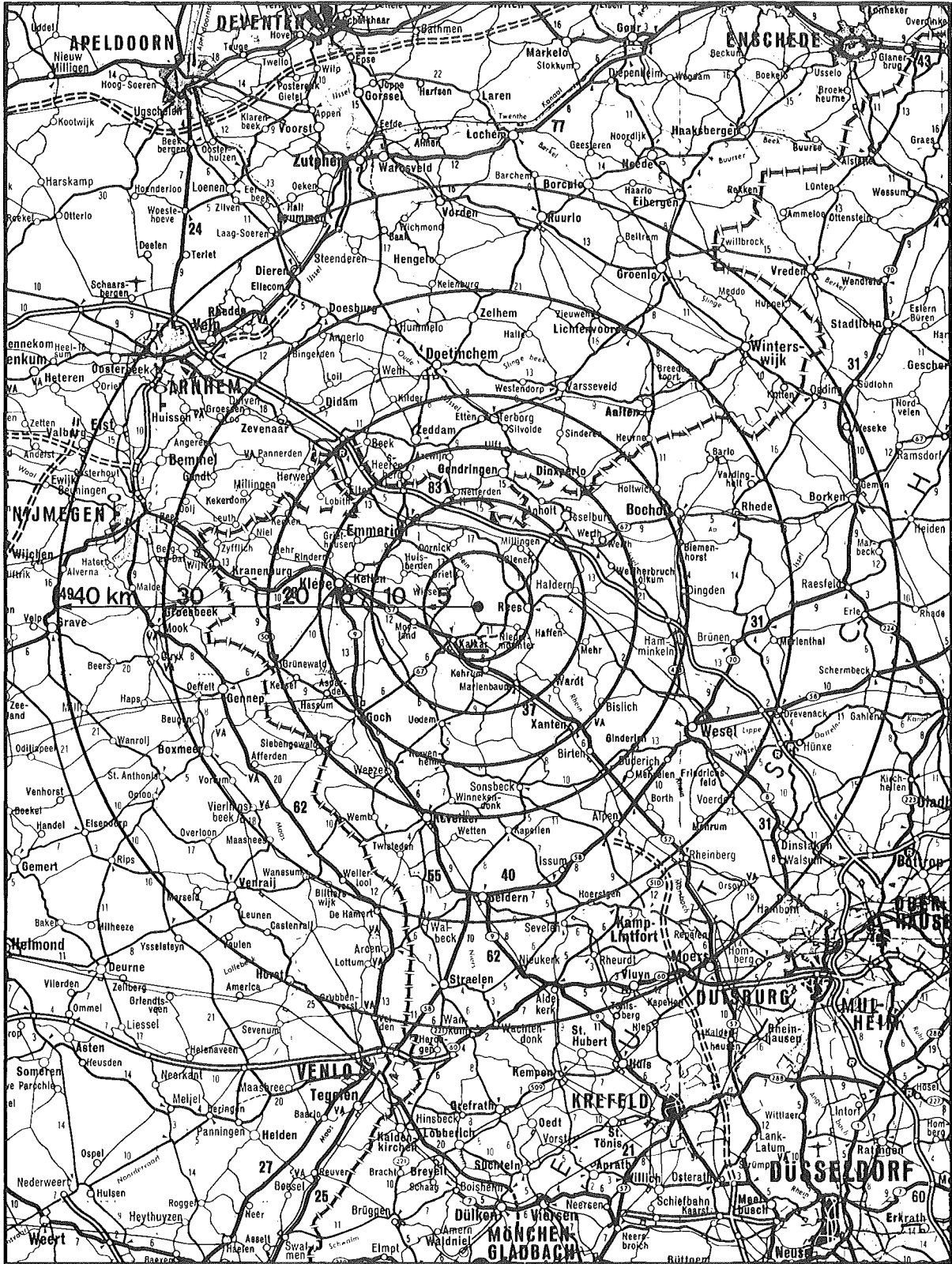


Abb. 1 Kraftwerksstandort SNR-300

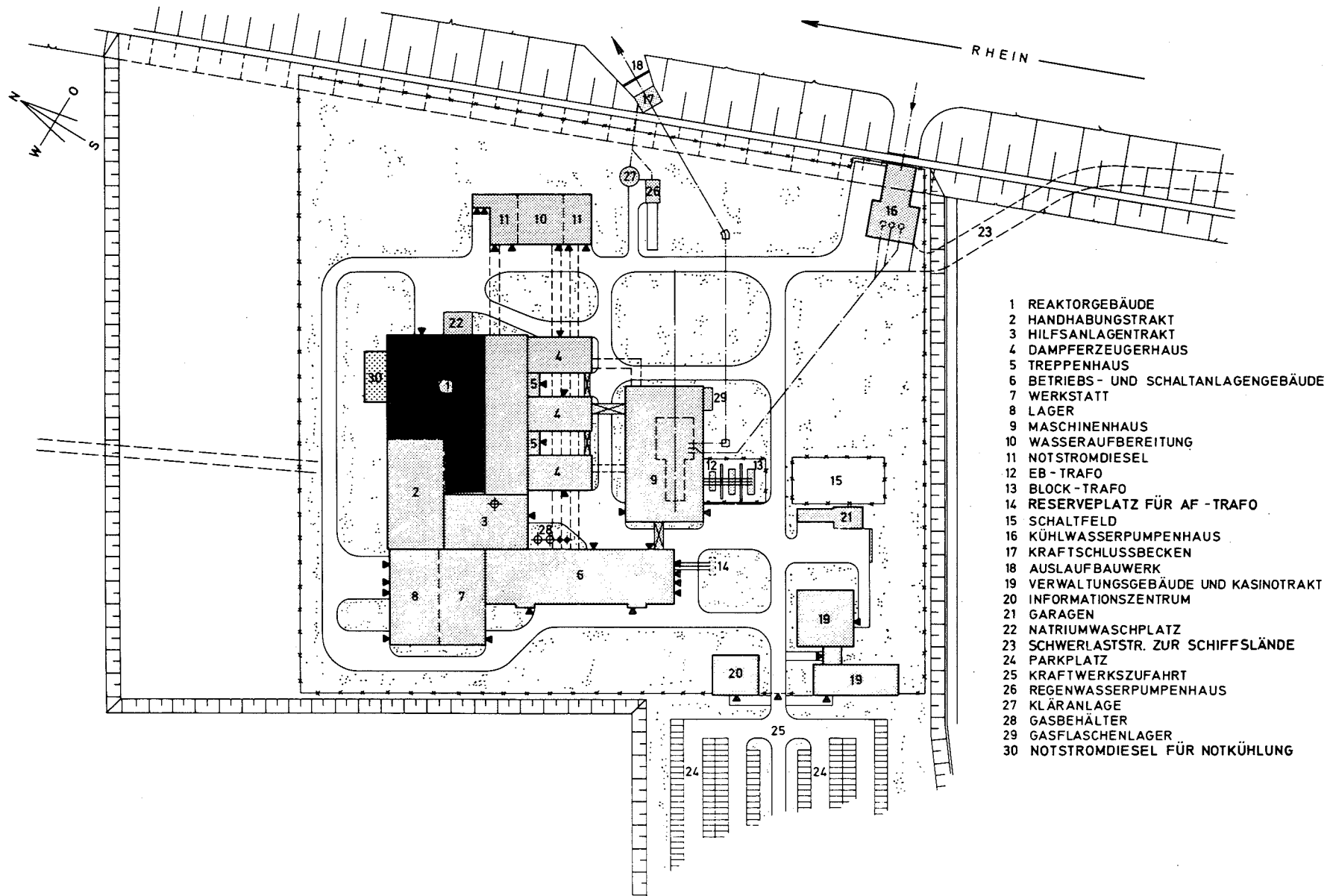


Abb. 2 Kernkraftwerk SNR-300, Lageplan

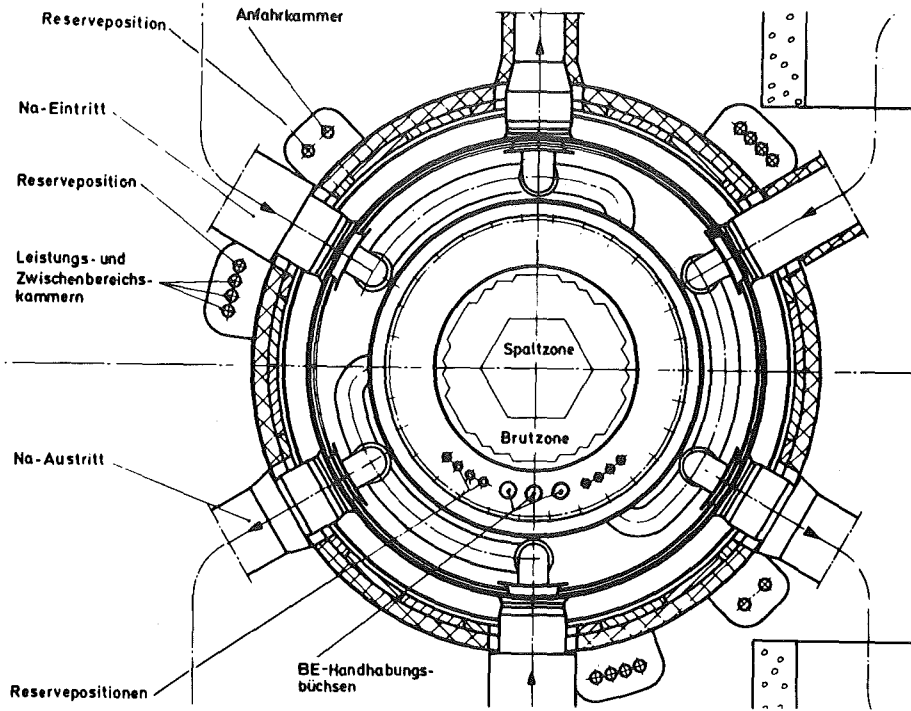


Abb. 3 SNR-300 Reaktorquerschnitt

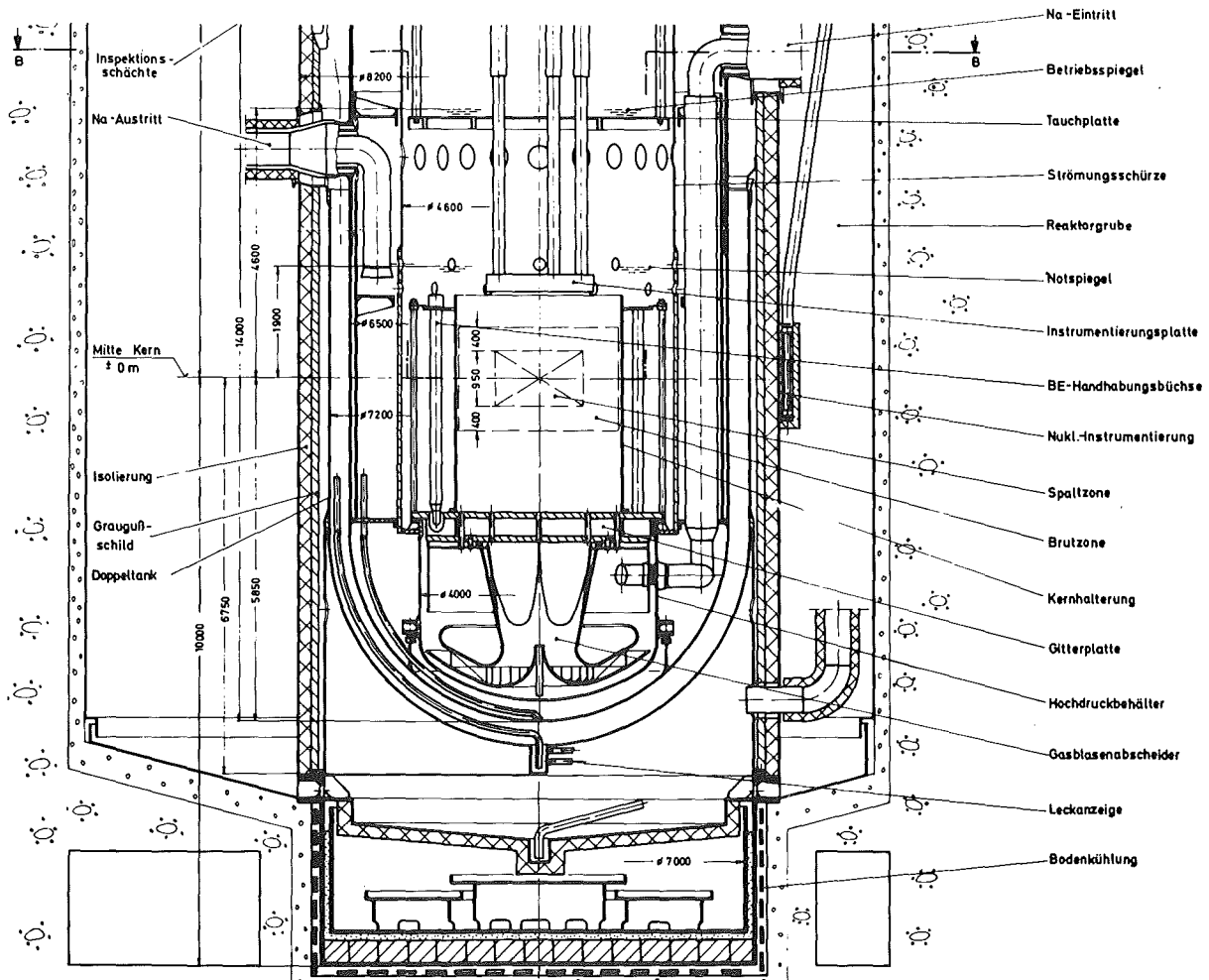
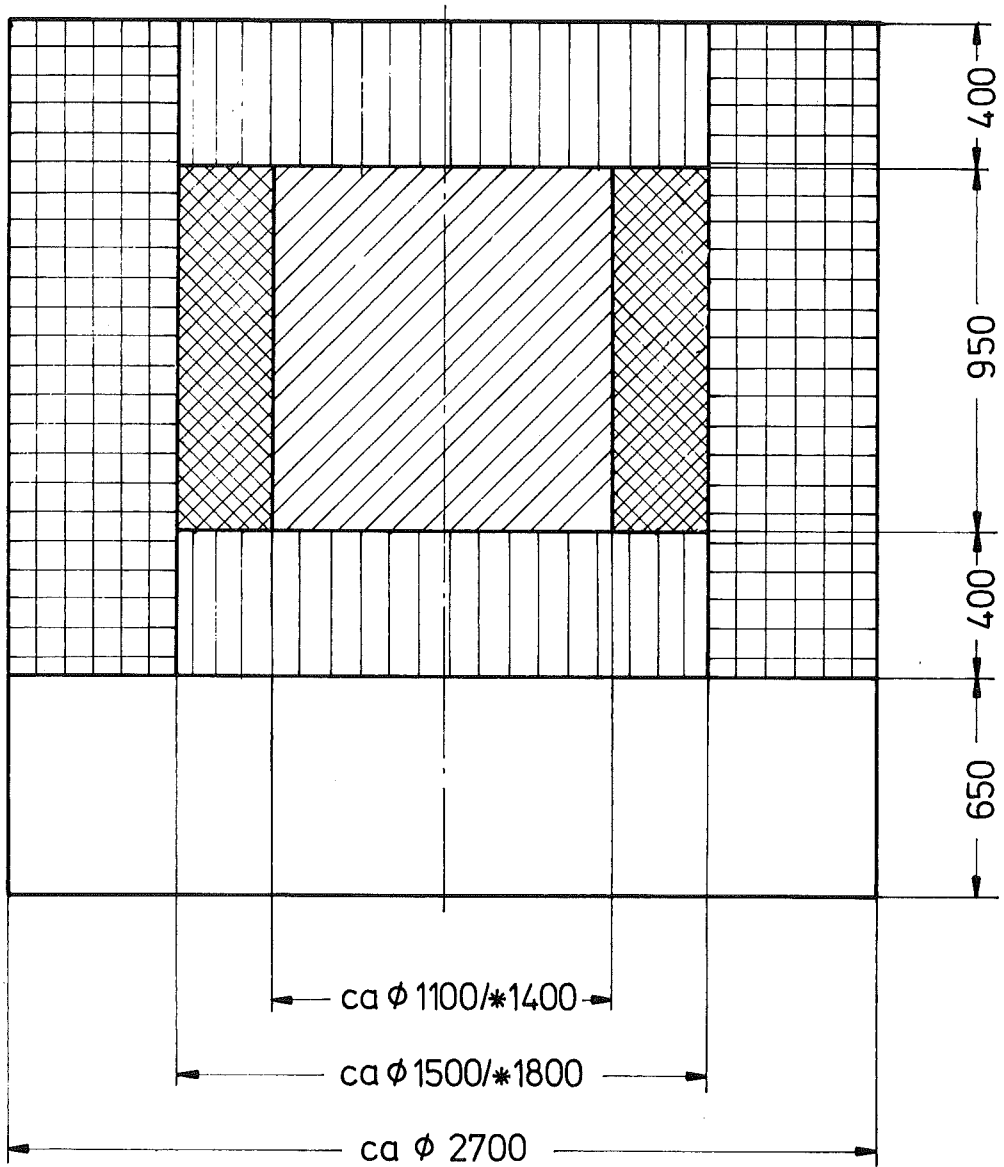


Abb. 4 SNR-300 Reaktorlängsschnitt








- |  |   |
|--|---|
|  Innere Spaltzone |  Axiale Brutzone |
|  Äußere Spaltzone |  Spaltgasraum    |
|  Radiale Brutzone |   |

Abb. 5 Längsschnitt der SNR-300-Kerne  
MARK-I/\*MARK-Ia/\*MARK-II

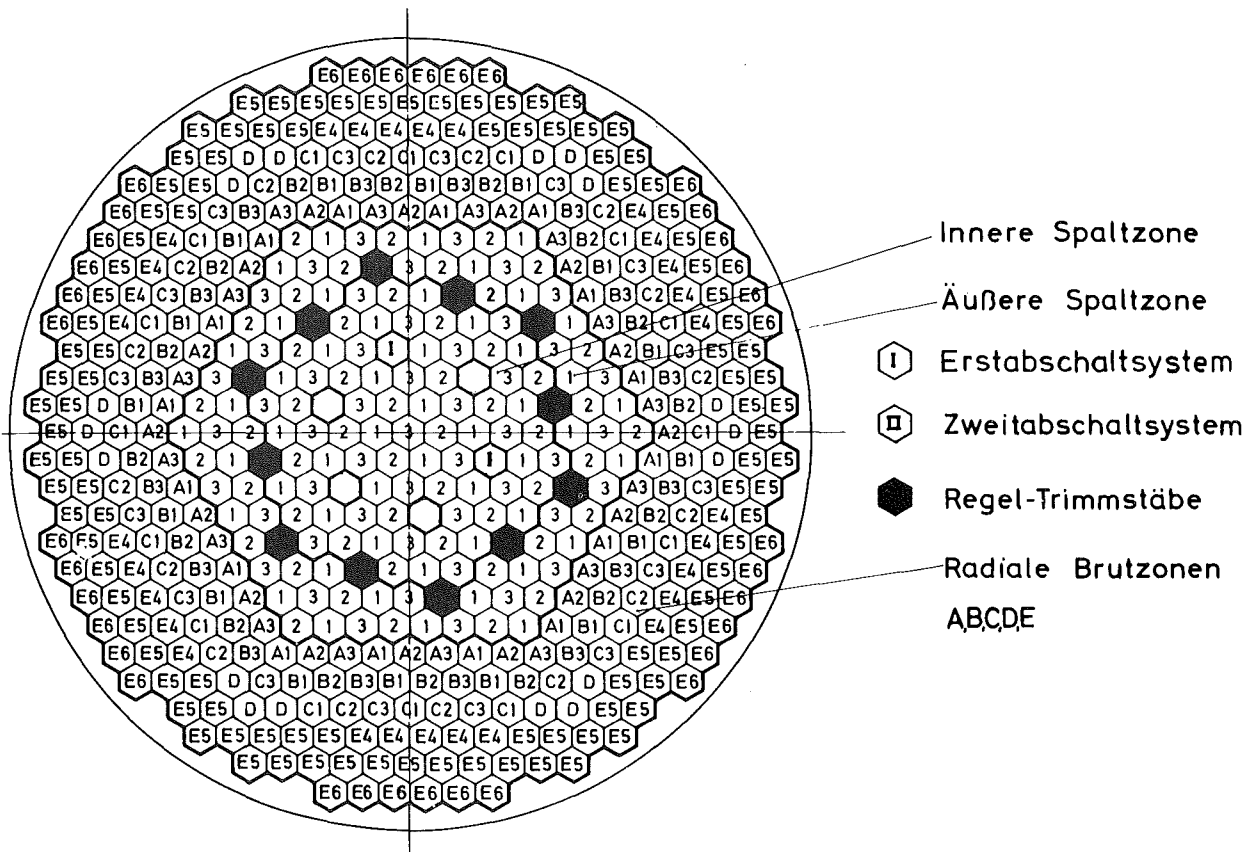
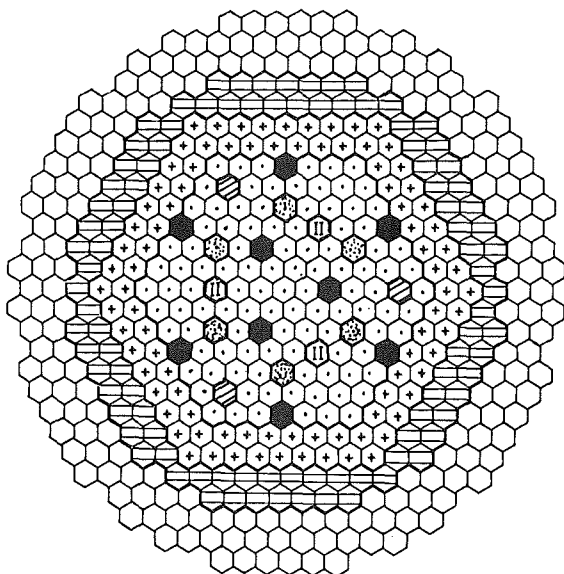


Abb. 6 SNR-300 Kernquerschnitt MARK-I



- ⬡ Brennelement (Innere Zone)
- ⬢ Brennelement (Äußere Zone)
- ⬤ Regeltrimmelement
- ⬣ B<sub>4</sub>C Diluent
- ⬠ Zweitabschaltelement
- ⬡ Brutelement
- ⬡ Stahlreflektoren
- ⬠ Na Diluent

Abb. 7

Querschnitt des SNR-300 mit MARK-Ia-Kern (2. Zyklus)

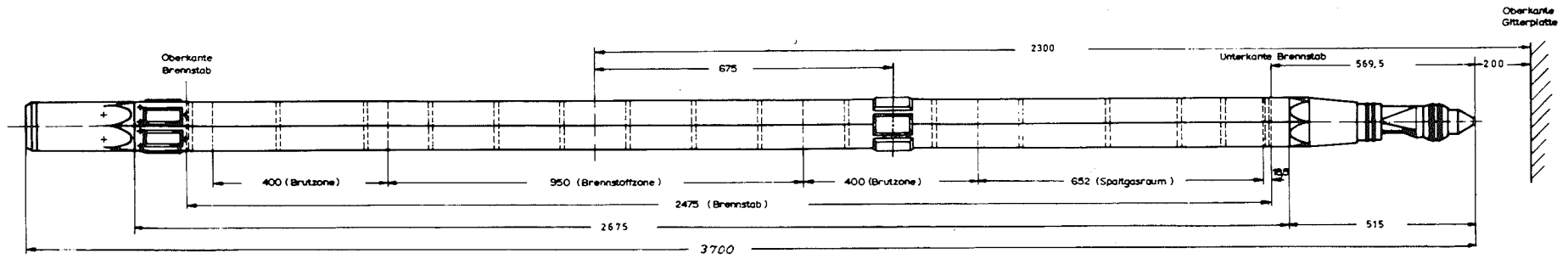


Abb. 8 SNR-300, MARK-Ia-Brennelement

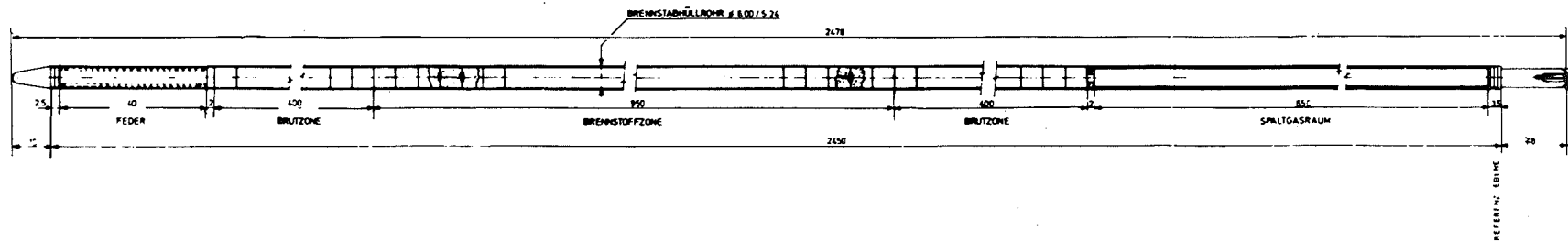


Abb. 9 SNR-300, MARK-Ia-Brennstab

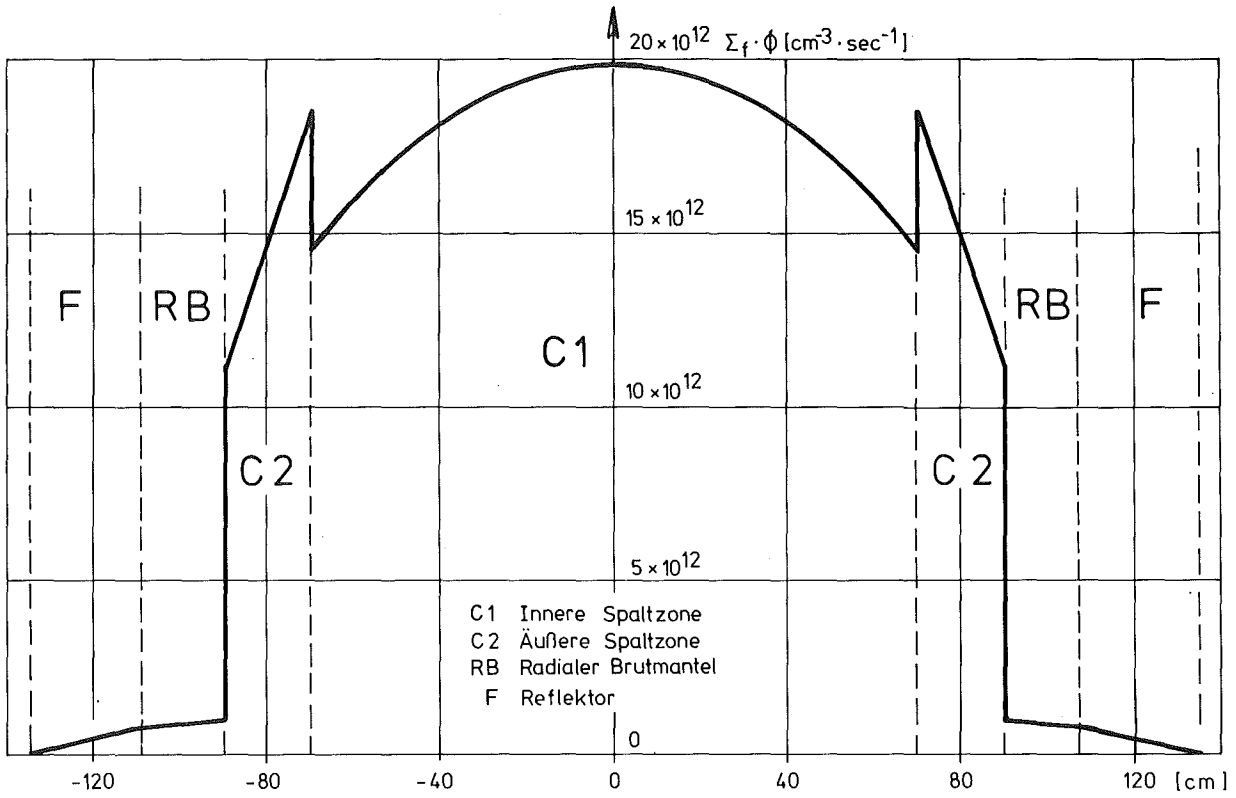


Abb. 10 Radiale Spaltratenverteilung in der Kernmittelebene zu Beginn des 1. Spaltzonenzklus

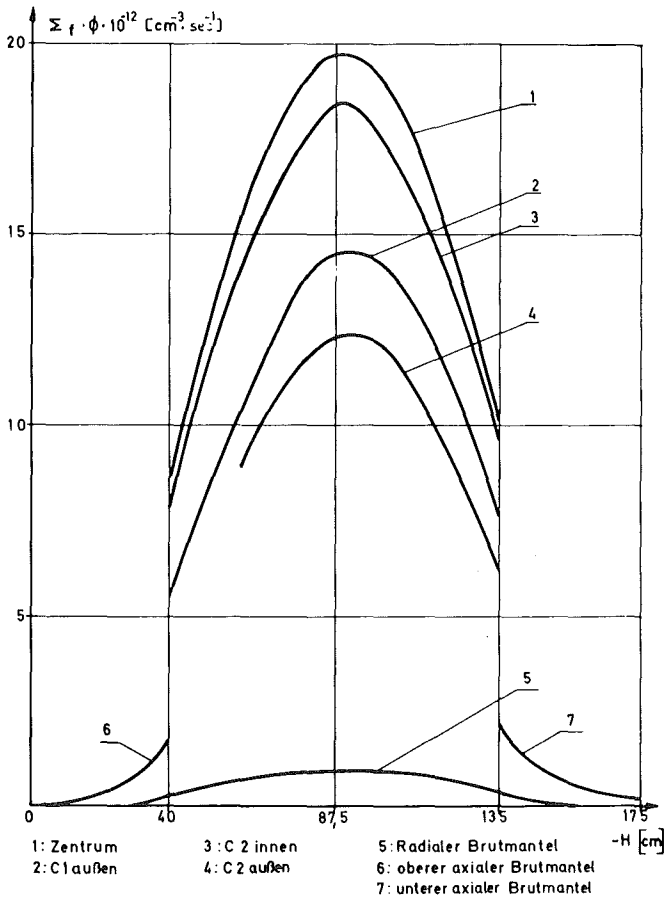


Abb. 11

Axiale Spaltratenverteilung an verschiedenen radialen Positionen zu Beginn des 1. Spaltzonenzklus

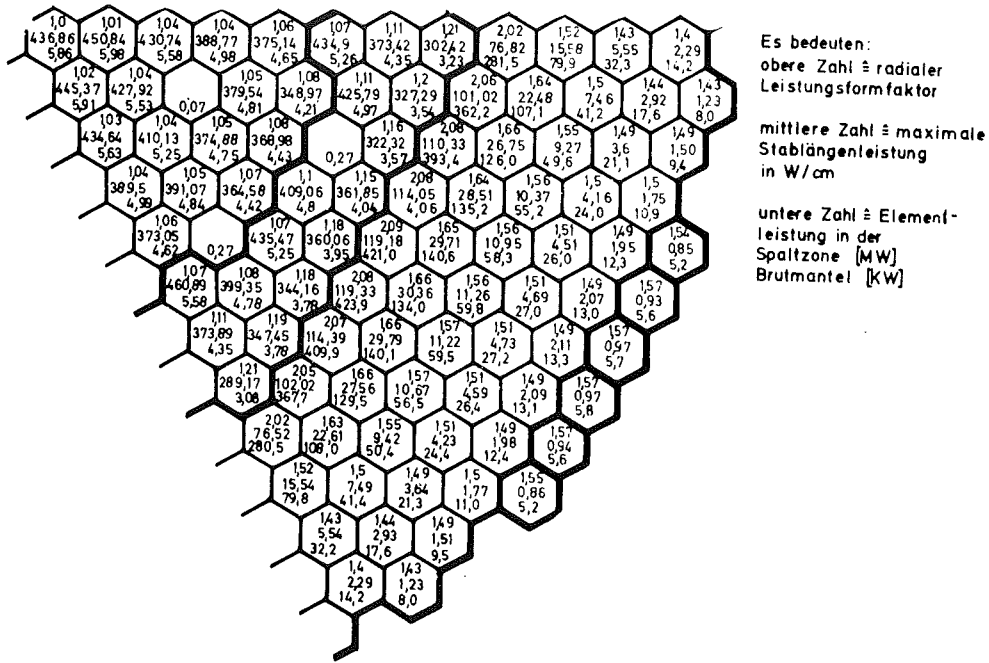


Abb. 12 Sektor des MARK-I-Reaktorkernes mit Leistungsdaten im 1. Spaltzonenzyklus

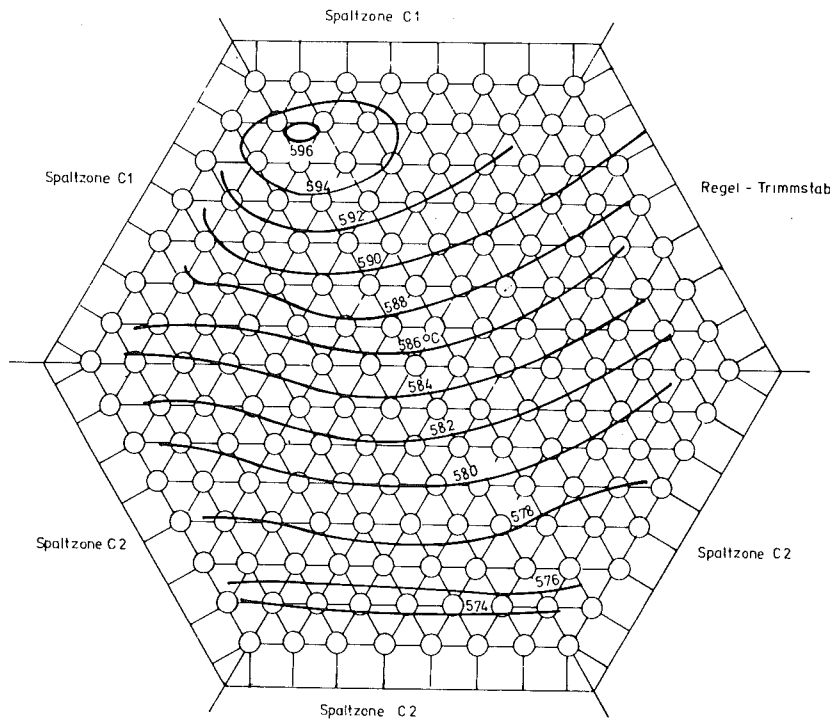


Abb. 13 Kühlmittelisothermen in den Zentralkanälen des MARK-I-Brennelementes Nr. 616 an der Spaltzonenoberkante



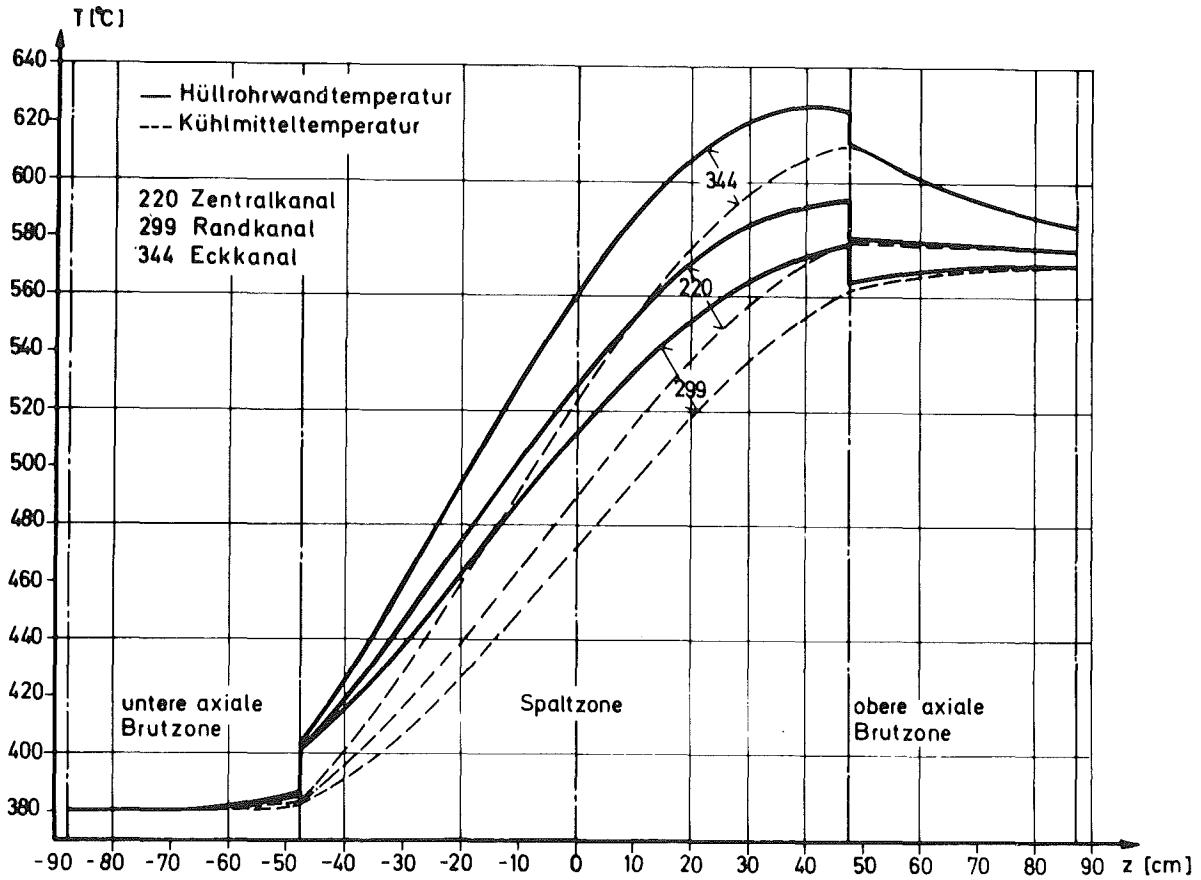


Abb. 14 Axialer Temperaturverlauf im MARK-I-Brennelement Nr. 616

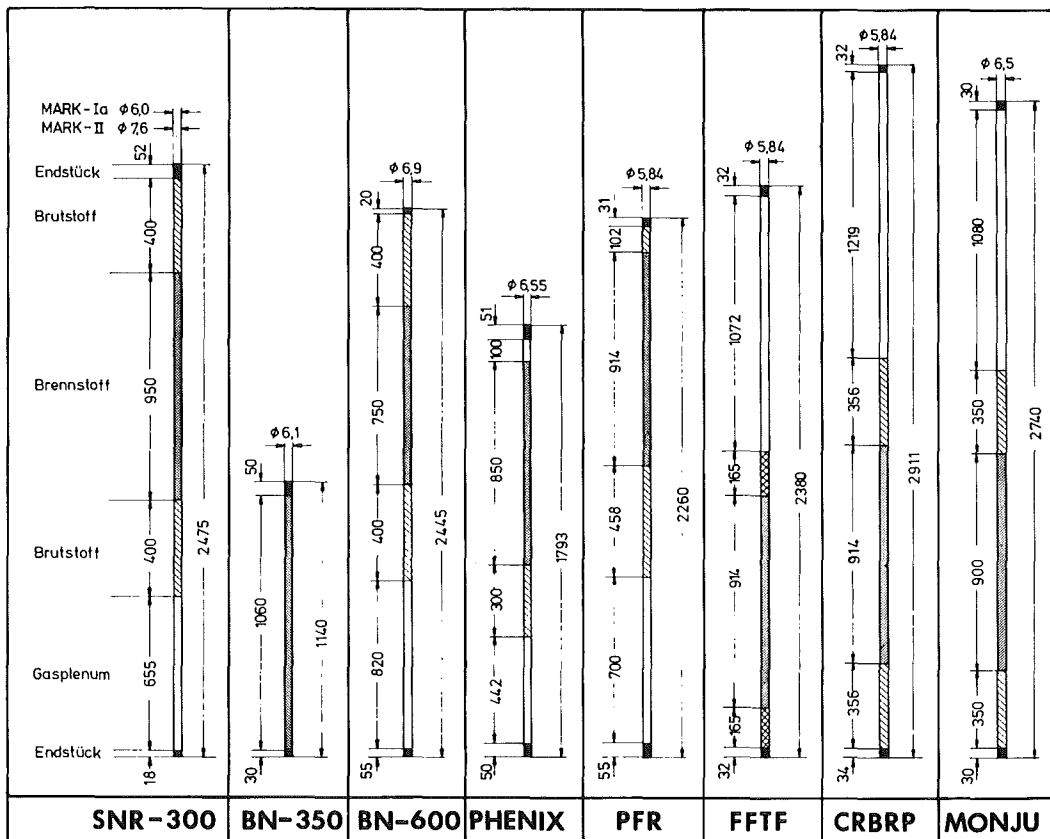


Abb. 15 Vergleich der Brennstababmessungen  
(Zahlen in mm, einige Angaben näherungsweise)



## II. GESICHTSPUNKTE UND PROBLEME FÜR DIE BRENNSTOFFAUSLEGUNG

von  
W.Dienst

### Inhalt:

1. Vorgänge, die für Hüllschäden Bedeutung haben
2. Vorgänge, die für das Schmelzen des Brennstoffes  
Bedeutung haben
3. Parameterabhängigkeit der betrachteten Vorgänge im Brennstab
4. Probleme des Brennstoffverhaltens

Die Brennstoffauslegung ist ein Teilgebiet der Brennstabauslegung, die neben den physikalischen, thermohydraulischen und ökonomischen Grundanforderungen für den Betrieb eines Schnellen Brüters die folgenden Bedingungen erfüllen soll:

1. Vermeidung von Hüllschäden durch chemische Reaktionen zwischen Brennstoff (mit Spaltprodukten) und Hüllmaterial, durch den inneren Spaltgasdruck oder durch mechanische Wechselwirkungen zwischen Brennstoff und Hüllrohr.
2. Vermeidung von Reaktivitäts- und Leistungsdichteverchiebungen (sekundär auch von Hüllschäden) durch Schmelzen des Brennstoffes im zentralen Bereich.

Die folgenden Ausführungen zur Brennstoffauslegung beziehen sich nur auf die Erfüllung der Bedingungen 1 und 2 und zielen dabei auf die Bestätigung, Präzisierung oder Abänderung der bereits vorgegebenen Brennstab-Grundausslegung, die hier nicht zu diskutieren ist.

Zunächst soll eine Zusammenstellung aller Vorgänge im Brennstab gegeben werden, die für das Entstehen von Hüllschäden oder für das Schmelzen des Brennstoffes von Bedeutung sind. Diese Vorgänge sind keineswegs in allen Fällen selbstverständlich, sondern zum Teil erst im Verlauf der Untersuchungen an bestrahlten Brennstäben nachgewiesen worden.

## 1. Vorgänge, die für Hüllschäden Bedeutung haben

### 1.1 Heisskorrosion der Hülle von innen

Das Brennstabhüllrohr könnte grundsätzlich auch ohne starke mechanische Belastung allein durch eine chemische Reaktion mit Brennstoff und Spaltprodukten von innen durchbrochen werden. Abb.1 zeigt, dass tatsächlich ein starker Hüllangriff auftritt, besonders im Bereich der Korngrenzen des Hüllmaterials. Es handelt sich um eine durch das Spaltprodukt Cäsium geförderte Hochtemperatur-Oxydation. Eine ähnliche, durch Verunreinigungen der Zuluft und des Brennstoffes begünstigte Hochtemperatur-Oxydation tritt in Verbrennungskraftmaschinen auf und wird dort als Heisskorrosion bezeichnet. Für den technischen Gebrauch, d.h. auch für die Brennstabauslegung, wird der komplexe Korrosionsvorgang üblicherweise integral erfasst, im vorliegenden Fall durch Messung der maximalen Angriffstiefe (MAT).

## 1.2 Spaltgasfreigabe aus dem Brennstoff

Die im Brennstab erzeugten gasförmigen Spaltprodukte (überwiegend Xenon) werden nur zu einem geringen Teil im Brennstoff zurückgehalten. Das aus dem Brennstoff freigegebene Spaltgas ergibt einen Druckaufbau im Brennstab, der zum Hüllriss führen könnte. Für den technischen Gebrauch werden die verschiedenen Mechanismen der Spaltgasfreigabe (Diffusion, Blasenbildung, -wanderung, -vereinigung, Porenwanderung, Korngrenzenrissbildung) als einheitlicher Vorgang bezeichnet und integral durch Messung der anteiligen Freigabe (F, in % der erzeugten Spaltgasmenge) erfasst.

## 1.3 Mechanische Wechselwirkung des Brennstoffes mit der Hülle

### 1.3.1 Unterschiedliche thermische Ausdehnung

Da die Brennstofftemperatur viel höher liegt als die Hülltemperatur, kann bei einer Leistungserhöhung des Brennstabes das Hüllrohr durch die größere thermische Ausdehnung des Brennstoffes plastisch gedehnt werden. Falls dabei (aufgrund schon vorangegangener Verformungen) die Bruchdehnung des Hüllrohres überschritten wird, kommt es zur Einleitung eines Hüllrisses.

### 1.3.2 Brennstoffrissbildung

Durch die hohen thermischen Spannungen im Brennstoff entstehen zahlreiche Risse (Abb.2), deren Länge und Verteilung von der Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$ , dem Ausdehnungskoeffizienten  $\alpha$ , dem Elastizitätsmodul E und der Zugfestigkeit  $\sigma_B$  des Brennstoffes sowie (bezüglich der Rissausheilung) von der Brennstofftemperatur abhängen. Diese Risse sind von beträchtlicher Bedeutung für die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle. Abb. 2 zeigt z.B. dass die äussere Brennstoffzone durch typische breite, keilförmige Risse unterbrochen ist, so dass sich die auf die Hülle drückenden Brennstoffteile auf einen weiter innen liegenden (viel heisseren) geschlossenen Brennstoffring abstützen müssen. Die schmalen Abkühlungsrisse im inneren Bereich waren unter Bestrahlung geschlossen.

### 1.3.3 Brennstoffschwellung

Die Einlagerung der Spaltprodukte im Brennstoff führt zu einer Volumenzunahme, die dann besonders stark wird, wenn sich die Spaltgase in Blasen ausscheiden (Abb. 3). Diese Brennstoffvolumenzunahme wird durch eine auf den Abbrand bezogene Schwellrate  $dS/dA$  ( $S$  = Schwellung in Vol.-%) beschrieben. Sie führt nach einer gewissen Bestrahlungsdauer zu einem inneren Druck auf die Brennstabhülle.

### 1.3.4 Brennstoffkriechen

Wenn zwischen Brennstoff und Hülle ein Druck entsteht, z.B. durch die Brennstoffschwellung, verhält sich der Brennstoff nicht starr, sondern kann sich durch Kriechen verformen. Dadurch wird die Hülle entlastet. Unter Bestrahlung zeigt der Brennstoff zusätzlich zu der thermisch bedingten Kriechgeschwindigkeit  $\dot{\epsilon}_{\text{therm.}}$  noch ein bestrahlungsbedingtes Kriechen  $\dot{\epsilon}_{\text{Bestr.}}$ , das die Verformbarkeit der kühleren Aussenzone des Brennstoffes stark erhöht (Abb. 4). Soweit die Verformung des porösen Brennstoffes durch Verminderung der eigenen Porosität erfolgt, lässt sie sich als Heisspressvorgang einer Volumenänderungsgeschwindigkeit  $\delta\dot{V}_{\text{HP}}$  beschreiben.

### 1.3.5 Thermisches Rasten (thermal ratcheting)

Eine Brennstoffvolumenzunahme kann sich auch durch einen speziellen Typ des thermischen Rastens ergeben. In diesem Fall heilen Brennstoffrisse, die sich durch thermische Spannungen gebildet haben, unter Bestrahlung teilweise aus, so dass sie sich nicht wieder schliessen können. Das in den Rissen befindliche Leervolumen wird dann zu neuer Porosität ( $\Delta P_{\text{TR}}$ ) im Brennstoff eingeformt (Abb. 5). Die entsprechende Brennstoffvolumenzunahme kann bei Leistungsänderungen des Brennstabes eine Kurzzeitverformung des Hüllrohres zur Folge haben. Ein ähnlicher Effekt ergibt sich bei Aufzehrung eines unter Bestrahlung vorhandenen Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle durch freie (evtl. beschleunigte) Schwellung des Brennstoffes in das Leervolumen des Spaltes.

### 1.3.6 Spaltprodukt-Anhäufung

Die nichtgasförmigen Spaltprodukte sind bei den hohen Bestrahlungstemperaturen im Brennstoff zum Teil leicht flüchtig. Die flüchtigen Spaltprodukte (überwiegend Cäsium) neigen dazu, sich durch Verdampfungs-Kondensations-Transport in den kühleren Brennstabbereichen anzuhäufen, d.h. an der Hüllinnenseite und dort besonders am "kalten" Brennstoffsäulenende (Abb. 6). Dadurch kommt es zu lokalen Volumenzunahmen ( $\Delta V_{SP}$ ), die zu einer lokal erhöhten Hülldehnung führen können. Sie können noch durch eine chemische Reaktion des Spaltproduktes mit dem Brennstoff oder dem Brutstoff verstärkt werden. Ein ähnlicher Effekt könnte sich durch Ansammlung geschmolzener Spaltprodukte am unteren Brennstabende ergeben.

## 2. Vorgänge, die für das Schmelzen des Brennstoffes Bedeutung haben

### 2.1 Wärmeübergang und Wärmeleitung

Die maximale Brennstofftemperatur hängt (bei bestimmter Stableistung) selbstverständlich von dem Wärmeübergangskoeffizienten ( $h$ ) für den Spalt zwischen Hülle und Brennstoff und von der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs ( $\lambda$ ) ab. Da der Brennstoff mit beträchtlicher Porosität eingesetzt wird, kommt hier der Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitung im Brennstoff besondere Bedeutung zu.

### 2.2 Leervolumenumverteilung

Die ursprünglich vorhandene Leervolumenumverteilung im Brennstab (Brennstoff/Hülle-Spalt  $d$  und Brennstoffporosität  $P$ ) wird unter Bestrahlung stark verändert. Die Änderungen ergeben sich durch Nachsinterung des Brennstoffes unter Bestrahlung, durch Brennstoffschwellung, durch Porenwanderung im Brennstofftemperaturgradienten, durch Rissbildung und -ausheilung sowie durch Verdampfungs-Kondensations-Transport von Brennstoff und Spaltprodukten. Die hervorstechende Änderung ist die Bildung eines zentralen Hohlraumes im Brennstoff ("Zentralkanal" mit Radius  $r_{ZK}$ , Abb. 2). In der äusseren Brennstoffzone ist die Porositätsänderung durch bestrahlungsbedingte Nachsinterung ( $\Delta P_{BNS}$ ), durch partielle Rissausheilung ( $\Delta P_{TR}$ , s. 1.3.5) und evtl. auch durch bestrahlungsbedingtes Heisspressen ( $\delta \dot{V}_{HP}$ , s. 1.3.4) bestimmt. Durch die Leervolumenumverteilung

treten Umverteilungen der spezifischen Leistung im Brennstab unter Bestrahlung, Änderungen der Spaltbreite und damit des Wärmeüberganges zwischen Brennstoff und Hülle sowie Änderungen der Porosität und damit der Wärmeleitung im Brennstoff auf, die zur Erhöhung der maximalen Brennstofftemperatur führen können.

### 2.3 Plutonium/Uran-Entmischung

Durch das steile Temperaturgefälle unter Bestrahlung tritt im  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstoff eine beträchtliche Pu/U-Entmischung auf, die eine lokale Pu-Anreicherung ( $\Delta c_{\text{Pu}}$ ) zur Folge hat (Abb. 7). Da das Pu den spaltbaren Anteil im Schnellbrüter-Brennstoff darstellt, ergibt sich gleichzeitig eine Konzentration der spezifischen Leistung, die zur Erhöhung der maximalen Brennstofftemperatur führen kann.

### 2.4 Schmelzpunkterniedrigung

Die Änderung der Brennstoffzusammensetzung unter Bestrahlung (im besonderen in der Umgebung des Zentralkanals) durch Pu/U-Entmischung, durch Verschiebung des O/M-Verhältnisses und durch Einlagerung von Spaltprodukten führt möglicherweise zu einer Herabsetzung des Schmelzpunktes ( $\Delta T_m$ ).

## 3. Parameterabhängigkeit der betrachteten Vorgänge im Brennstab

### 3.1 Zusammenstellung aller Beziehungen

Die unter 1. und 2. erwähnten Vorgänge im Brennstab und Brennstoffeigenschaften können von den folgenden Parametern der Brennstoff- und Brennstabauslegung sowie des Brennstabbetriebes abhängen: Pu/U-Verhältnis, Pu-Verteilung, O/M-Verhältnis und Porosität  $P$  des Brennstoffes, Spaltbreite  $d$ , radiale Position  $r$  und axiale Position  $l$  im Brennstab, Stableistung  $\chi$  (bzw. Spaltungsrate  $R_{\text{Sp}}$ ), Temperatur  $T$ , Abbrand  $A$ , Bestrahlungsdauer  $t$ , entstehende Spannungen  $\sigma$  und Druck  $p$  im Brennstab unter Bestrahlung sowie bei Leistungszyklen auftretende Stableistungsänderungen  $\Delta\chi$ , Temperaturänderungen  $\Delta T$  und Zyklusdauer  $t_{\text{Zykl}}$ . Die einzelnen auftretenden Beziehungen sind in Tabelle 1 unter Bezugnahme auf die vorangegangenen Abschnitte zusammengestellt, in denen die ent-



sprechenden Vorgänge im Brennstab behandelt wurden. In der Tabelle sind diejenigen Beziehungen gesondert angeordnet, die durch GfK/IMF selbst untersucht werden.

### 3.2 Bedeutung der Brennstoffauslegungs-Parameter

Es ist ein spezielles Ziel dieses Berichtes, zur Empfehlung von Daten im Bereich der Brennstoffherstellungsparameter zu gelangen. Daher soll hier der Einfluss dieser Parameter auf das Brennstoffverhalten in bestrahlten Brennstäben besonders hervorgehoben werden.

Pu/U-Verhältnis: Dieses Verhältnis ist durch die physikalische Auslegung des natriumgekühlten Schnellen Brütters und durch Wirtschaftlichkeitserwägungen für den Brennstoffeinsatz und -kreislauf vorgegeben. Es kommt für eine Änderung aufgrund unbefriedigenden Brennstabverhaltens kaum in Frage und kann daher an dieser Stelle ausser Betracht bleiben.

Pu-Verteilung: Im Gegensatz zu  $(U,Pu)O_2$ -Brennstoff, der durch Kopräzipitation hergestellt worden ist, zeigt mechanisch gemischter  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstoff bei Bestrahlungstemperaturen  $\approx 1600^\circ C$  eine inhomogene Pu-Verteilung. Diese Inhomogenität beeinflusst das bestrahlungsbedingte Kriechen, die Schwellung (Abb. 8) und wahrscheinlich auch die bestrahlungsbedingte Nachsinterung des Brennstoffes.

O/M-Verhältnis: Das Sauerstoff/Metall-Verhältnis im Brennstoff beeinflusst die Kriechfestigkeit und die Wärmeleitfähigkeit sowie die Vorgänge der Pu/U-Entmischung (über die Dampfdrucke der Pu- und U-Oxide), der Spaltprodukt-Anhäufung (über das Verhältnis oxydisch gebundener/metallischen flüchtigen Spaltprodukten) und der Heisskorrosion der Hülle (über das Sauerstoffangebot). Für die Folgereaktionen der Spaltprodukt-Anhäufung (s. 1.3.6) und für die Heisskorrosion der Hülle in der Umgebung der Grenze zwischen Brennstoff und Brutstoff im Brennstab ist auch das O/M-Verhältnis des Brutstoffes von Bedeutung.

Porosität: Die durch die ursprüngliche Sinterdichte des Brennstoffes gegebene Porosität (evtl. auch die Porenform) beeinflusst die Wärmeleitfähigkeit sowie die Vorgänge der bestrahlungsbedingten Nachsinterung, der Pu-U-Entmischung (über die Porenwanderung im Temperaturgradienten), des bestrahlungsbedingten Kriechens und wahrscheinlich auch den Vorgang des

thermischen Rastens. Die Brennstoff- und die Brutstoffporosität (diese in der Umgebung der Brennstoff/Brutstoff-Grenze) ist evtl. auch von Bedeutung für die lokale Volumenzunahme durch Spaltprodukt-Anhäufung.

Spaltbreite: Der ursprüngliche Spalt zwischen Brennstoff und Hülle (d.h. bei vorgegebenen Hüllmassen der Brennstoffdurchmesser) beeinflusst den Wärmeübergang zur Hülle und ist möglicherweise von Bedeutung für die Betriebsdauer bis zum Beginn der mechanischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle.

Es darf jedoch nicht übersehen werden, dass neben der Brennstoffauslegung auch die Hüllauslegung und die Brennstabbetriebsbedingungen für das Verhalten des Brennstoffes unter Bestrahlung von Bedeutung sind. Daher werden die Folgerungen aus Brennstoffuntersuchungen oft über den Bereich der Brennstoffauslegungs-Parameter hinausgehen.

#### 4. Probleme des Brennstoffverhaltens

Die Beurteilung bzw. Empfehlung bestimmter Brennstoffauslegungsdaten wird dadurch erschwert, dass einige der in den Abschnitten 1 und 2 zusammengestellten Vorgänge problematisch sind, weil für ihre in Tabelle 1 angegebenen Parameterabhängigkeiten überhaupt noch keine quantitativen Ansätze bekannt sind. Die folgenden Hinweise auf die entsprechenden Probleme bezeichnen gleichzeitig Untersuchungsgebiete, denen künftig erhöhte Aufmerksamkeit zugewendet werden sollte.

Thermisches Rasten (s. 1.3.5): Zu diesem Vorgang gibt es bisher nur eine grobe, halbquantitative Erfassung seiner Auswirkung durch plastische Hülldehnung. Es existieren qualitative Vorschläge für mögliche Mechanismen, aber noch kein allgemein bekanntes, für Berechnungen anwendbares Modell. Die Parameterabhängigkeit erscheint noch weitgehend offen.

Spaltprodukt-Anhäufung (s. 1.3.6): Hierzu liegt nur der qualitative Nachweis in mikroskopischen Gefügebildern und durch lokale Hüllaufweichtungen vor. Es existieren überhaupt noch keine Modellvorschläge für den zugrundeliegenden Spaltprodukttransport.

Bestrahlungsbedingte Nachsinterung (s. 2.2): Für diesen Vorgang existiert zwar noch kein allgemein bekanntes Modell, das Problem erscheint

aber durch Einführung eines einfachen, empirisch abgestützten Näherungsansatzes für die Parameterabhängigkeit lösbar.

Plutonium/Uran-Entmischung (s. 2.3): Hier liegt das Problem in der Unkenntnis über die Entmischung von Plutonium und Natururan. In schnellen Versuchsreaktoren wurden bisher nur  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstäbe mit hochangereichertem Uran eingesetzt. In diesem Fall führt eine Pu-Anreicherung zu einer viel geringeren Konzentration der spezifischen Leistung, als in "echtem" Schnellbrüterbrennstoff, in dem nur Pu als Spaltstoff wirkt. Bei  $\text{U}_{\text{nat.}}\text{O}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstab-Bestrahlungen im FR 2 wurden gelegentlich "anormale" Pu/U-Entmischungen beobachtet (Abb. 9). Es erhebt sich die Frage, ob sie nur auf Überhitzung des Brennstoffes oder auf eine besondere Selbstverstärkung der Pu-Anreicherung zurückzuführen sind.

Plutonium-Verteilung (s. 3.2): Ein ähnliches allgemeines Problem ergibt sich bezüglich eines möglichen Einflusses der inhomogenen Pu-Verteilung in mechanisch gemischtem  $\text{U}_{\text{nat.}}\text{O}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstoff auf die Vorgänge im Brennstab. Er wurde bisher selten bedacht.

Tabelle 1. Parameterabhängigkeit der Vorgänge im Brennstab

Vorgang	Untersuchung bei GfK	nicht bei GfK
1.1	MAT = f(O/M, T, A)	
1.2	F = f(T, A)	
1.3.1		$\alpha$ = f(T), E=f(T)
1.3.2		$\sigma_B$ = f(P, T, A)
1.3.3	dS/dA = f(T, p, A)	dS/dA = f(Pu-Vert. ?)
1.3.4	$\dot{\epsilon}_{\text{Bestr}}$ = f(P, Pu-Vert, $R_{\text{Sp}}$ , $\sigma$ , T, t, A)	
	$\dot{\epsilon}_{\text{therm}}$ = f(Pu/U, $\sigma$ , T, t)	$\dot{\epsilon}_{\text{therm}}$ = f(P, O/M)
		$\delta V_{\text{HP}}$ = f(P, p, T)
1.3.5	$\Delta P_{\text{TR}}$ = f(P, $\sigma$ , A, $\Delta\chi$ , $\Delta T$ , $t_{\text{Zykl}}$ )	
1.3.6	$\Delta V_{\text{SP}}$ = f(O/M, $\sigma$ , 1)	$\Delta V_{\text{SP}}$ = f(P, $\chi$ )
2.1	h = f(d, A)	
	$\lambda$ = f(P, A)	$\lambda$ = f(Pu/U, O/M, T)
2.2	P = f( $P_o$ , r[T], A)	
	$r_{\text{ZK}}$ = f( $P_o$ , $\chi$ , 1)	
	$\Delta P_{\text{BNS}}$ = f( $P_o$ , $R_{\text{Sp}}$ , T, t)	$\Delta P_{\text{BNS}}$ = f(Pu-Vert. ?)
2.3	$\Delta c_{\text{Pu}}$ = f(P, O/M, r[T], 1)	
2.4		$T_m$ = f(Pu/U, O/M, A)

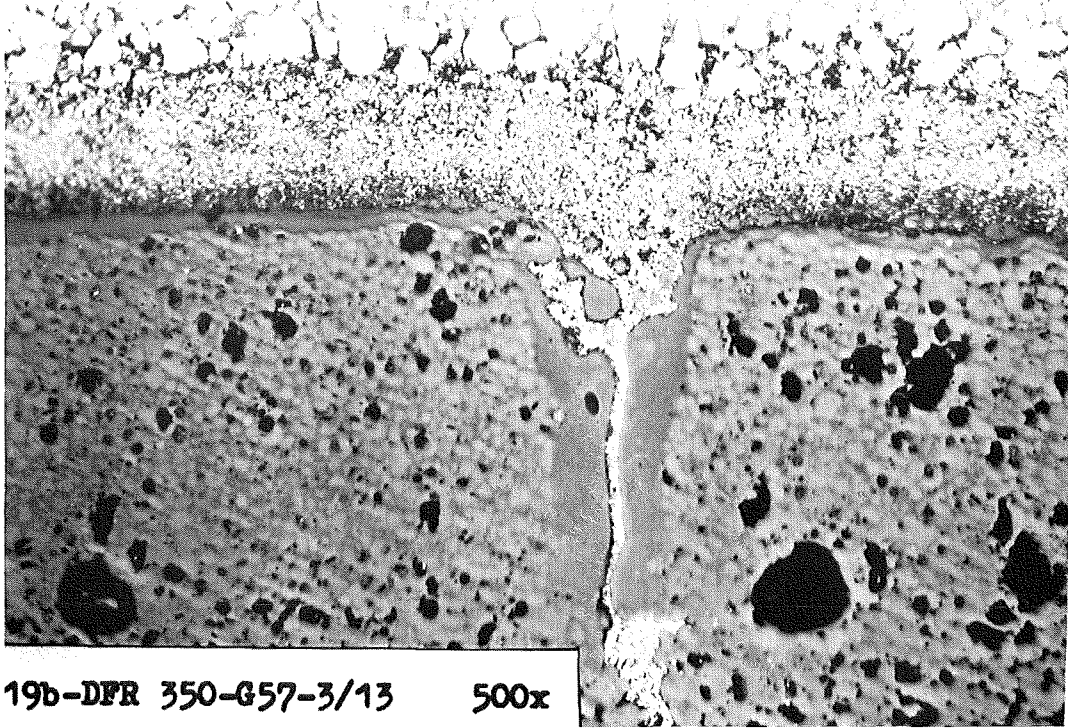


Abb. 1: Typischer Hüllangriff in einem  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstab nach etwa 5% Abbrand bei einer Hüllinnenwandtemperatur von  $625^\circ\text{C}$ . Hüllmaterial 1.4961.

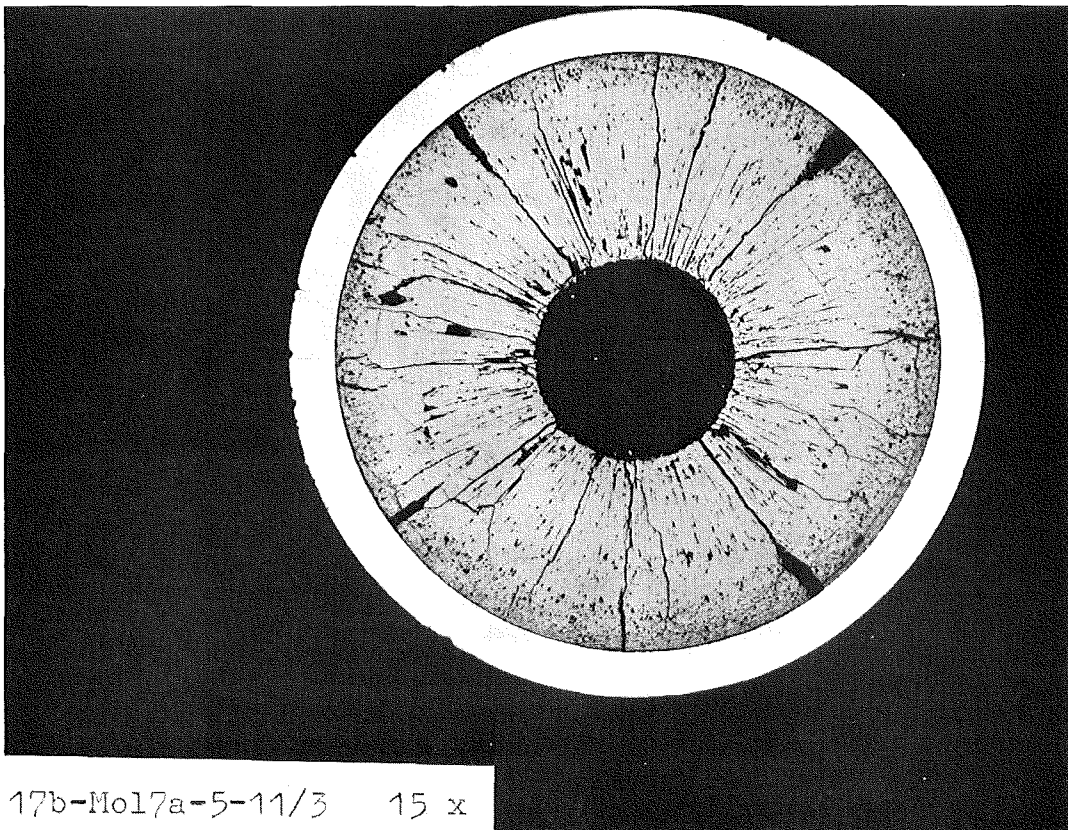


Abb. 2: Brennstoffriss-Struktur in einem  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstab nach 5% Abbrand bei einer Stableistung von etwa  $500 \text{ W/cm}$



17b-Mol7a-3-15/11 100 x

Abb. 3: Spaltgasblasen in  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstoff

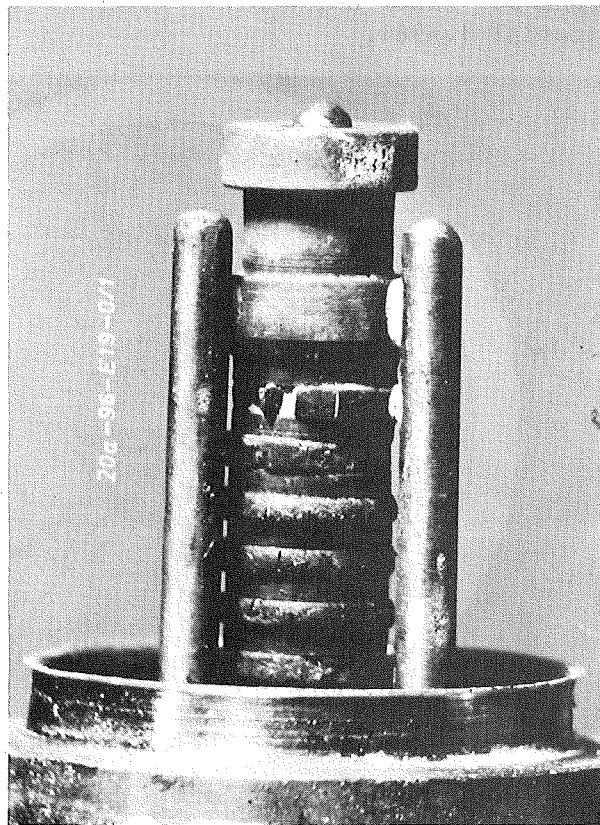
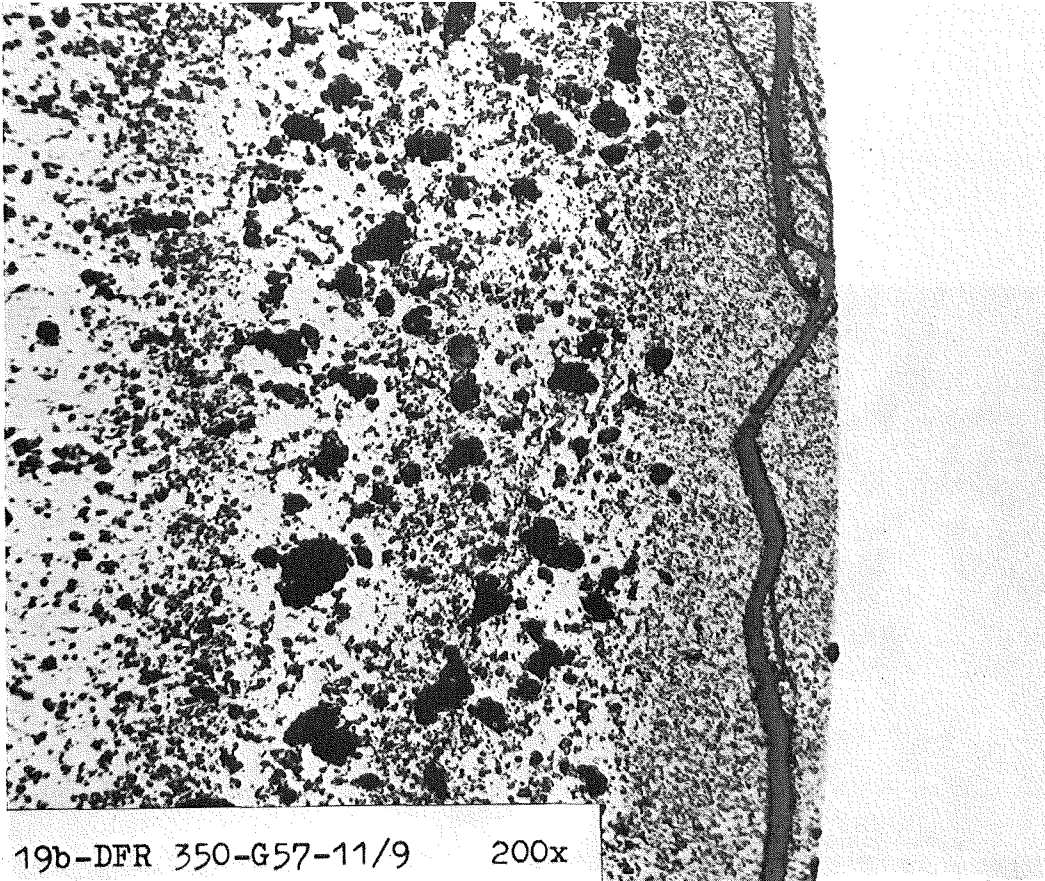
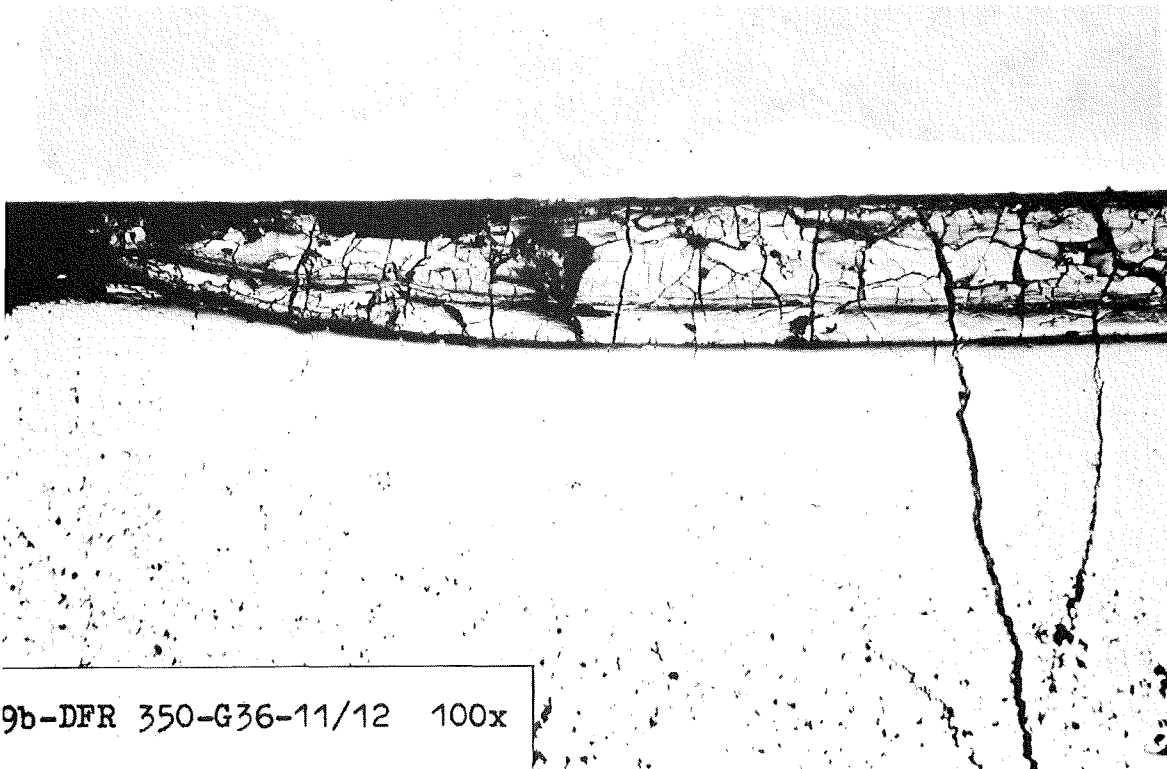


Abb. 4: Durch bestrahlungsbedingtes Kriechen bei  $600^{\circ}C$  verformte  $UO_2$ -15%  $PuO_2$ -Tabletten (zwischen Molybdänringen, unter axialem Druck)



19b-DFR 350-G57-11/9 200x

Abb. 5: Grobe Brennstoffporosität durch Ausheilung von Rissen in Umfangsrichtung



9b-DFR 350-G36-11/12 100x

Abb. 6: Einlagerung neuer Phasen mit hohem Gehalt an flüchtigen Spaltprodukten zwischen der ersten Brutstofftablette und dem Hüllrohr

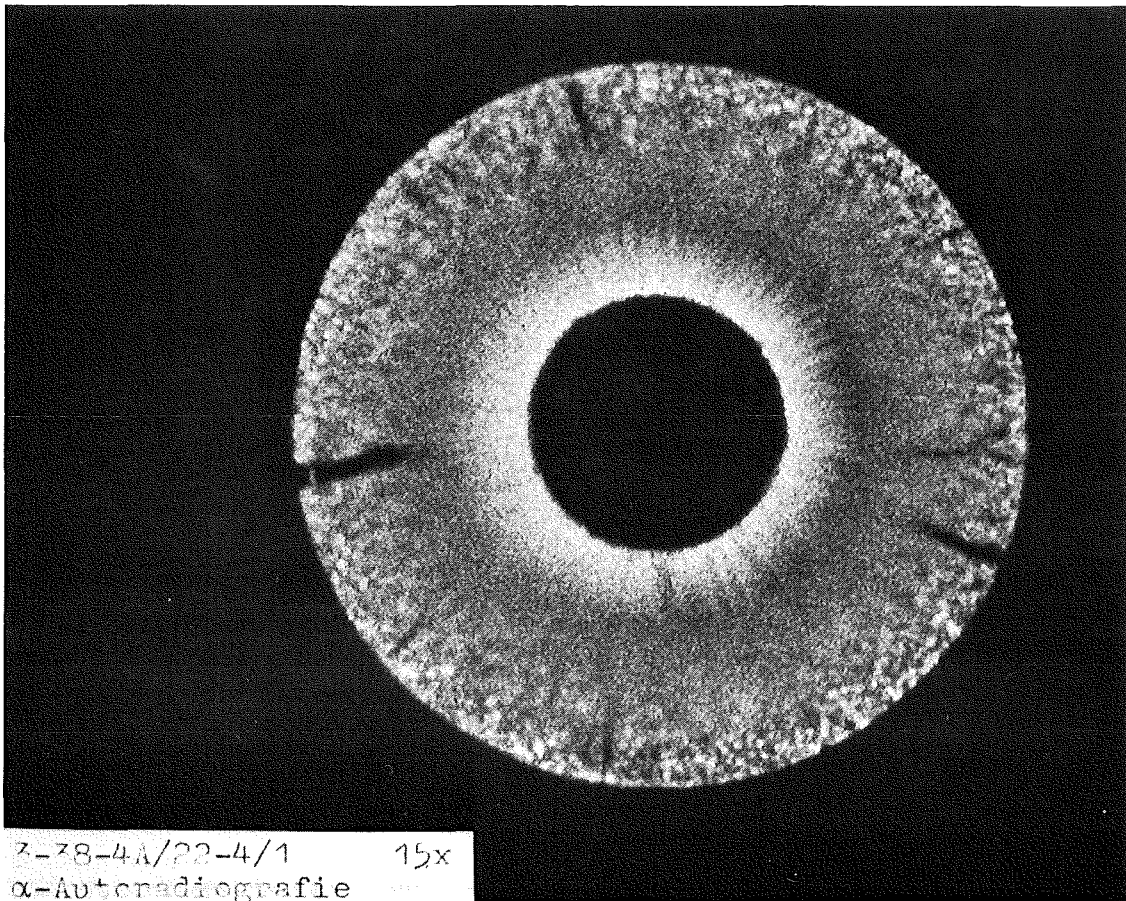
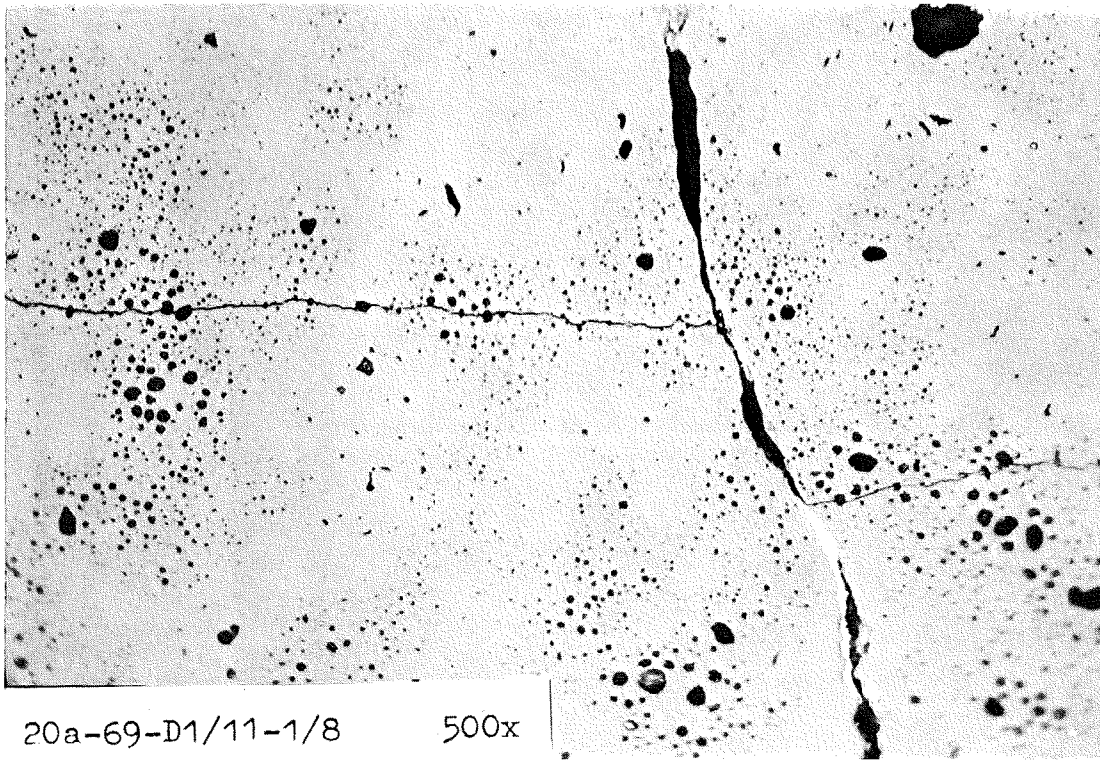
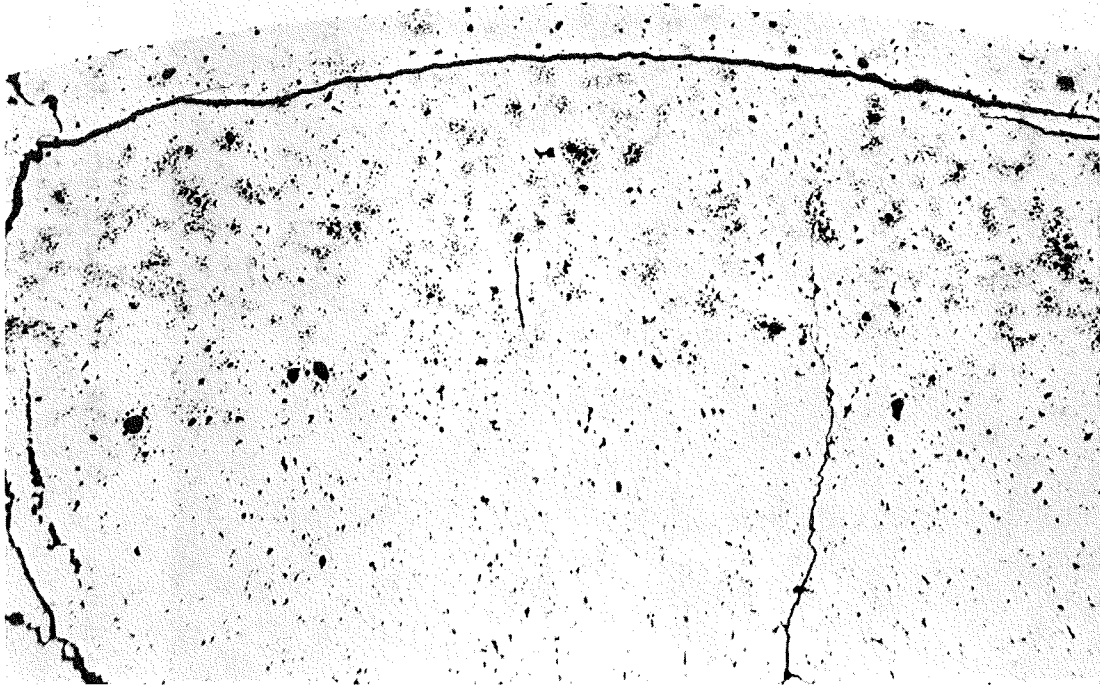


Abb. 7: α-Autoradiographie der Pu-Verteilung in einem bestrahlten  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstab.



20-63.D4-12-1/4 100 x



20a-69-D1/11-1/8 500x

Abb. 8: Inhomogene Spaltgasschwellung in  $U_{\text{nat}}O_2$ -15%  $PuO_2$  nach  
4 - 5% Abbrand. Hülltemperatur 450°C

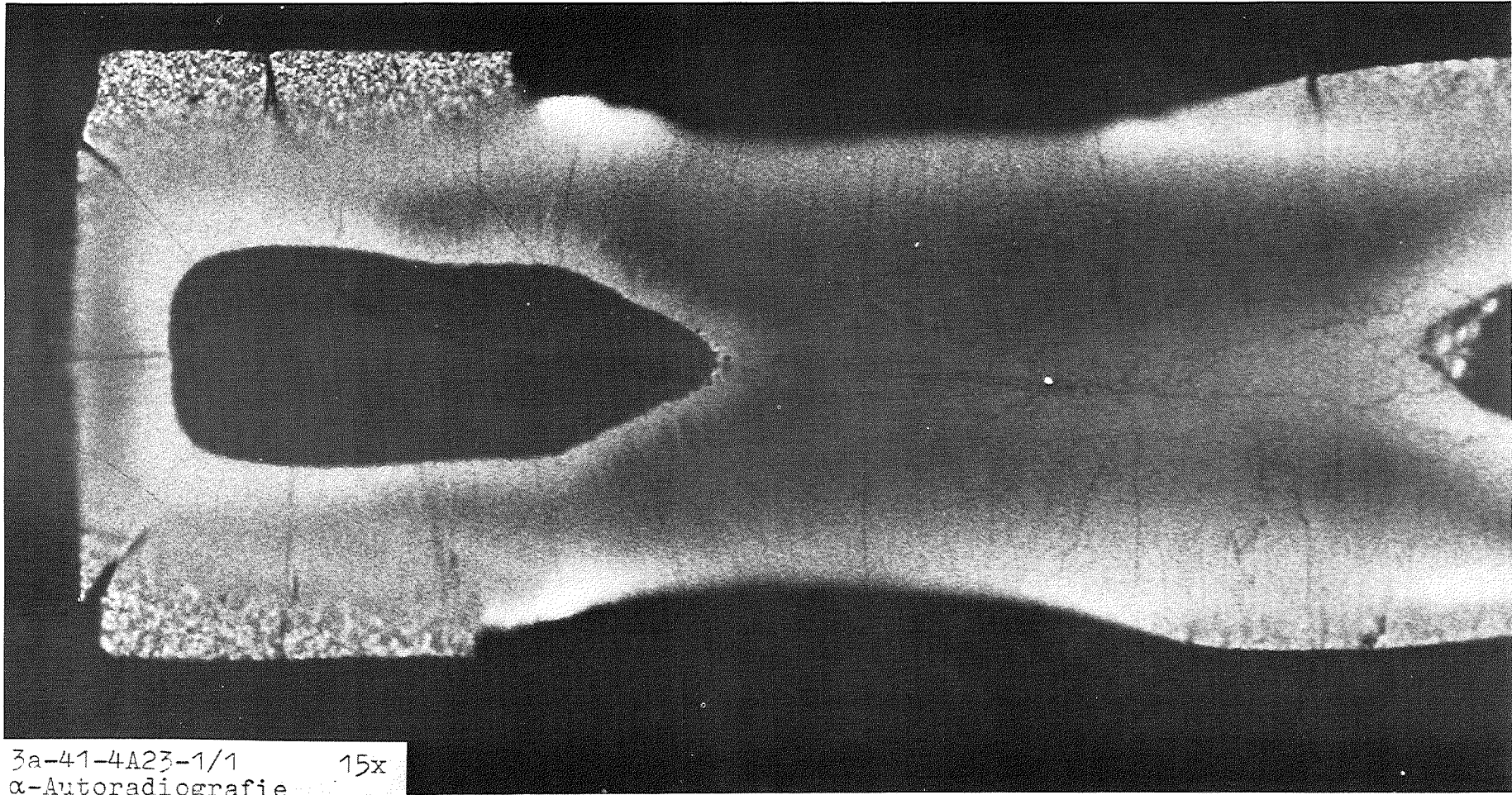


Abb. 9: Starke Änderung des lokalen Pu/U-Verhältnisses in einem  $U_{nat}O_2$ - $PuO_2$ -Brennstab unter Bestrahlung. α-Autoradiographie der Pu-Verteilung in einem Längsschnitt am Stabende (auch in der Brennstoff-"Taille" befindet sich Material, aber mit sehr niedrigem Pu-Gehalt)

### III. DER EINFLUSS ABBRANDBEDINGTER PHÄNOMENE AUF DIE ZENTRALTEMPERATUR

von

G. Ondracek, B. Schulz

#### Inhalt:

1. Einleitung
2. Gesicherte Phänomene im bestrahlten Brennstoff
3. Die Zentraltemperatur
4. Zusammenfassung

## 1. Einleitung

Zu den Auslegungskriterien des Schnellbrüterbrennstabes gehört die Zentraltemperatur. Als maximale Zentraltemperatur wird bislang die Schmelztemperatur des stöchiometrischen  $U_{0.8}Pu_{0.2}O_2$  von 3033 K zugelassen, obwohl, wie Tab. 1 zeigt, die Schmelztemperatur bereits des Mischoxids mit 30 Gew. % Pu niedriger liegt und Stäbe mit diesem Anreicherungsgrad im ersten Core des SNR 300 vorgesehen sind. Ferner wurden mögliche Schmelzpunkterniedrigungen über Veränderungen des O/M-Verhältnisses und gelöste Spaltprodukte bei der Spezifikation bisher nicht berücksichtigt. Der genannte Wert von 3033 K stellt für die folgenden Betrachtungen die kritische Grösse dar.

Im vorliegenden Bericht wird versucht, aufgrund des derzeitigen Kenntnisstandes den Einfluss der verschiedenen unter Bestrahlung auftretenden Veränderungen im Brennstoff auf die Zentraltemperatur bei einem Zielabbrand von 100000 MWd/t Metall abzuschätzen. Betrachtet werden dabei nur diejenigen Vorgänge, von denen bekannt ist, dass sie unter Bestrahlung immer ablaufen. Sie müssen bei einer Prognose bezüglich der Zentraltemperatur in Rechnung gestellt werden.

Die Betrachtungen gelten für den stationären Betrieb, mathematische Lösungen von Differentialgleichungen für den zylindergeometrischen Fall mit rein radialer Abhängigkeit. Wo zur Integration keine analytischen Zusammenhänge benutzt werden konnten, wurde graphisch integriert.

## 2. Gesicherte Phänomene im bestrahlten Brennstoff

Als solche werden betrachtet die Porositäts- und Plutoniumumverteilung, die Änderung der Wärmeleitfähigkeit mit der Porosität, der Stöchiometrie und der Entstehung von Spaltprodukten. Sie beeinflussen über Gleichung (1) die Zentraltemperatur

$$(1) \quad \int_{T_3}^{T_2} \lambda_0 dT = \int_{r_2}^{r_3} \frac{1}{r} \left[ \int_{r_2}^r Q_v(r) dr \right] dr$$

Darin bedeuten:  $T_B, T_Z$  = Brennstoffoberflächen- bzw. Zentraltemperatur;  $\lambda_B$  = Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs;  $Q_V$  = erzeugte Wärme pro Volumen;  $r$  = radiale Ortskoordinate,  $r_B, r_Z$  = Brennstoff- bzw. Zentralkanalradius.

## 2.1 Die Änderung der Wärmequell-dichteverteilung

Sowohl mit der Plutonium- als auch mit der Porositätsumverteilung wird die Wärmequell-dichte eine Funktion des Radius. Legt man im Brüterbrennstoff nur Pu-Spaltung (keine  $U^{235}$ -Anreicherung) zugrunde, so ergibt eine Kombination des repräsentativen Porositätsprofils /2/ mit gemessenen Pu-Verteilungen aus dem Bestrahlungsversuch Mol 7A<sup>+</sup>) /3/ die in Abb.1 mit Kurve III bezeichnete Wärmequell-dichteverteilung  $Q_V(r)/\bar{Q}_V$ . Hierbei ist  $\bar{Q}_V$  = Stabileistung/Querschnitt. Die Kurve III wird für die Berechnung der Zentraltemperatur (s.u.) zugrunde gelegt.

## 2.2 Die Änderung der Wärmeleitfähigkeit

### 2.2.1 Durch die Porosität

Aus dem Porositätsprofil folgt über die Porositätskorrektur der Wärmeleitfähigkeit eine radien- und temperaturabhängige Wärmeleitfähigkeit, die sich in zwei separierbare Anteile

$$(2) \quad \lambda_p = f(P(r)) \cdot f(T)$$

aufspalten lässt. In der Porositätskorrektur wurde die Wärmeleitfähigkeit der Spaltgase Xe und Kr nicht berücksichtigt. Ihre Leitfähigkeit liegt mit ca.  $10^{-4}$  W/cm K /4/ um den Faktor 200 niedriger, als die des oxidischen Brennstoffs. Es ist gezeigt worden /5/, dass für die in Betracht kommenden Porositätsanteile bis maximal 0,2 die Leitfähigkeit der eingeschlossenen Gase nicht berücksichtigt werden muss. Dann wurde die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs für  $P < 0,1$  mit Gleichung

$$(3) \quad \lambda_p = \lambda_0 (1 - P)^{3/2}$$

/5, 6/

und für  $P > 0,1$  mit Gleichung

---

+) Dieses gemessene Profil wird z.Zt. als Referenzprofil für Parameterstudien der Firma Interatom benutzt.

$$(4) \quad \lambda_p = \lambda_0 \left( \frac{4-9P}{10} + \sqrt{\left(\frac{4-9P}{10}\right)^2 + \frac{1-P}{5}} \right) \quad |5|$$

korrigiert.

$\lambda_p, \lambda_0$  = Wärmeleitfähigkeit des porösen bzw. dichten Brennstoffs.

Für das repräsentative Porositätsprofil Kurve Ia in Abb. 2 ergibt sich dann der Korrekturfaktor  $\frac{\lambda_p}{\lambda_0} = f(P)$  der Wärmeleitfähigkeit als Kurve Ib. Prinzipiell muss nun im Rahmen der Fehlergrenzen und ohne Berücksichtigung von Rissvolumen und zusätzlichem Leervolumen durch Hüllaufweitung während des Betriebes im Reaktor folgende Bilanzgleichung erfüllt sein:

Schmierporosität = Endporosität + Kaltspaltvolumen nach der Bestrahlung + Zentralkanalvolumen.

Für definierte Zentralkanalradien wurde nun der relative Verlauf der Porosität wie in Kurve Ia benutzt und eine Umrechnung mit der Bilanzgleichung vorgenommen. Für einen gesetzten Zentralkanalradius von z.B. 0,09 cm ergibt sich bei einem Kaltspaltvolumen von 0<sup>+</sup>) nach der Bestrahlung und einer Schmierdichte von 80% TD dann eine mittlere Porosität von 7,5% (Kurve IIa, Abb. 2) und ein Korrekturfaktor  $f(P) = \frac{\lambda_p}{\lambda_0}$  nach Kurve IIb.

### 2.2.2 Durch die Stöchiometrieabweichung

Da nachgewiesen wurde /7/, dass  $UO_2$  bis zum Schmelzpunkt ein reiner Phononenleiter ist, führte die Übertragung dieses Sachverhalts auf Mischoxide zu einer physikalisch begründeten Extrapolation von Wärmeleitfähigkeitsdaten an Mischoxiden mit O/M-Verhältnissen von 2,00 bis 1,93 bei hohen Temperaturen /8/. Der mathematische Zusammenhang ergibt sich wie folgt

$$(5) \quad \lambda = \frac{1}{A(x) + B \vartheta} [1 + F(T)] \quad \begin{array}{l} \vartheta = T \quad T < T_0 \\ \vartheta = T_0 \quad T \geq T_0 \end{array}$$

$$T_0 = \varphi_0 + \varphi_1 x$$

$$A(x) = \rho_0 + \rho_1 x$$

<sup>+</sup>) Das vorliegende Bestrahlungsmaterial der Bündelbestrahlung DFR 350 zeigt in der Ebene maximaler Stabileistung mit einer Ausnahme keinen Kaltspalt.

$$F(T) = (f_0 + f_1 x) T^2 + (g_0 + g_1 x) T^4$$

$p_0 = 10.8$	$f_0 = -0.35 \cdot 10^{-7}$
$p_1 = 360$	$f_1 = 0.3 \cdot 10^{-6}$
$B = 0.0218$	$g_0 = 0.284 \cdot 10^{-13}$
$t_0 = 1930$	$g_1 = -0.131 \cdot 10^{-12}$
$q_1 = 5000$	

T = Temperatur ( $^{\circ}\text{C}$ ); x = O/M-Verhältnis /8/.

Die Funktion wurde für die Rechnungen zugrunde gelegt.

### 2.2.3 Durch Spaltprodukte

Eine Berücksichtigung der Spaltprodukte in ihrem Einfluss auf die Wärmeleitfähigkeit erfordert die Angabe der Wärmeleitfähigkeit als Funktion von Temperatur und Abbrand. Diese liegt z.Zt. nicht vor. Es existieren einzelne experimentelle Werte bei 1000 und 2000 K /9/. Messungen an simulierten Systemen bis 1900 K /10/ werden von den Autoren über Sauerstoffleerstellen interpretiert, also mit der Vermutung, dass während der Simulation Stöchiometrieverschiebungen eingetreten sind. Diese können in allen bisher vorliegenden Experimenten nicht ausgeschlossen werden. Für Temperaturen >2000 K sind in der Literatur keine Anhaltswerte vorhanden.

Um den Einfluss der Spaltprodukte auf die Wärmeleitfähigkeit abschätzen zu können, wird eine Alternative vorgeschlagen. Diese Alternative berücksichtigt die ausgeschiedenen Spaltprodukte nach der Theorie der Leitfähigkeit zweiphasiger Werkstoffe /5/ und die gelösten Spaltprodukte nach einem theoretischen Ansatz von Abeles /11/ für die Leitfähigkeit phononenleitender Mischkristalle.

Zunächst wird nach einem Abbrand von ca. 100 000 MWd/t Metall ( $2,8 \cdot 10^{21}$  Spaltungen/cm<sup>3</sup>) ein abgebrannter Brennstoff konstruiert, der keine Stöchiometrieänderung erfahren soll. Diese in der Praxis auftretende Änderung kann gesondert (s.o.) erfasst werden.

---

<sup>+</sup>) Hierunter wird verstanden, dass out-of-pile dem Mischoxid die Menge an Spaltprodukten zugesetzt wird, die einen bestimmten Abbrand simulieren soll.

Unter der Voraussetzung, dass die Seltenen Erden und Zirkon, soweit es nicht durch Ba und Sr ausgeschieden wird, in Lösung geht /12/, entsteht nach der Spaltproduktausbeute der Pu, U-Spaltung /13/ mit einer Abklingzeit von einem Jahr aus einem Oxid  $(U_{0,8}Pu_{0,2})O_{2,00}$  ein Mischoxid  $[(U_{0,8}Pu_{0,2})_{0,942} S.E._{0,048} Zr_{0,01}]O_{2,00}$ <sup>+</sup>.

Für phononenleitende Oxide bewirken gelöste Störatome nun einmal einen hohen lokalen Masseunterschied und zum anderen eine Veränderung der elastischen Bindungskräfte. Beides führt zu einer Erhöhung des Widerstandes bzw. zu einer Absenkung der mittleren freien Weglänge der Phononen. Es wird nun ein Streuquerschnitt für Phononen

$$(6) \quad \Gamma_i = x_i \left[ \left( \frac{\Delta M}{\bar{M}} \right)^2 + \varepsilon \left( \frac{\Delta \delta}{\bar{\delta}} \right)^2 \right]$$

$$(7) \quad \Gamma = \sum \Gamma_i$$

eingeführt. Hierin ist  $x_i$  der Molanteil der Spezies  $i$ ,  $\Delta M$  der Massenunterschied der Komponente  $i$  zur mittleren Masse des Mischkristalls,  $\bar{\delta}$  der mittlere Atomradius, der mit der Gitterkonstanten für kubischflächenzentrierte über  $\frac{a}{\sqrt{2}}$  verknüpft ist,  $\Delta \delta$  der Unterschied des Atomradius der Komponente  $i$  zum mittleren Atomradius und  $\varepsilon$  ein für das kubischflächenzentrierte Gitter der Lösung  $ThO_2-UO_2$  /14/ mit 100 ermittelte Konstante. Der Quotient  $\varepsilon \left( \frac{\Delta \delta}{\bar{\delta}} \right)^2$  steht für die Störung der elastischen Bindungskräfte. Gleichung (7) setzt voraus, dass eine gegenseitige Wechselwirkung der gelösten Störatome nicht stattfindet.

Der mit Gleichung (7) eingeführte Gesamtquerschnitt für Phononen verursacht nun nach Abeles eine Schwächung des durch reine Phononenstreuung  $\lambda_{ph}$  bestimmten Teils der Wärmeleitung

$$(8) \quad \lambda_{st} = f(u_0) \cdot \lambda_{ph}$$

worin

$$(9) \quad u_0 = f(\Gamma, \bar{\delta}, \bar{\Theta})$$

<sup>+</sup> Die bei reiner Plutoniumspaltung auftretende Abreicherung des Pu-Anteils, verglichen zum Uran-Anteil, bedeutet hier keinen wesentlichen Unterschied, da die Wärmeleitfähigkeit im System  $UO_2-PuO_2$  für Temperaturen  $>1100$  K im Rahmen der Messgenauigkeit nicht vom Pu-Anteil abhängen /19/.



ist, mit  $\bar{\Theta}$  der mittleren Debyetemperatur des Systems, die sich aus den Debyetemperaturen der reinen Oxide zusammensetzt.

Nach /8/ kann nun die mittlere freie Weglänge der Phononen einen kleinsten Wert, vorgegeben durch die Gitterkonstante, nicht unterschreiten. Der Wiederanstieg der spezifischen Wärme bei konstantem Volumen  $C_v$  im System  $UO_2$ - $PuO_2$  führt dann zum Wiederanstieg der Wärmeleitfähigkeit, da

$$(10) \quad \lambda \sim C_v \cdot v \cdot \bar{l}$$

ist. Hierin bedeutet  $v$  die Schallgeschwindigkeit bzw. die Geschwindigkeit der Phononen. Wenn  $\bar{l} = \text{const.}$  für  $T > T_0$  (s. Gleichung 5), sind für den Hochtemperaturteil der Wärmeleitfähigkeit die Phononengeschwindigkeit  $v$  und  $C_v$  zu betrachten. Tatsächlich steigt bei Mischkristallbildung der Elastizitätsmodul, wonach über  $v = \sqrt{\frac{E}{\rho}}$  eine Erhöhung von  $v$  zu erwarten ist. Der Wiederanstieg der spezifischen Wärme, hervorgerufen durch Erhöhung der anharmonischen Anteile in den Gitterkräften, führt zumindest im System  $UO_2$ - $PuO_2$  für das Mischoxid  $(U_{0,8}Pu_{0,2})O_2$  zu einer Erhöhung gegenüber dem reinen  $UO_2$  /8/. Danach wäre für den Hochtemperaturanteil eher eine positive Änderung der Wärmeleitfähigkeit zu erwarten. Da keine Materialkonstanten für den betrachteten Mischkristall zur Verfügung stehen, wurde der Hochtemperaturanteil der Wärmeleitfähigkeit des Mischkristalls unverändert gelassen; die Autoren befinden sich damit auf der sicheren Seite der Abschätzung.

Geht man jetzt auf die ausgeschiedenen Spaltprodukte ein, so ist der oben definierte komplexe Mischkristall die Matrix und die ausgeschiedenen Spaltprodukte sind eingebettet in diese Matrix. Mit ersten Messungen der metallischen Ausscheidungen an abgebrannten Mischoxiden und unter Berücksichtigung der oxidischen Ausscheidungen, die mit einem Bildanalysator z.Zt. nicht gemessen werden können, ferner mit einer sehr niedrig angesetzten temperaturunabhängigen Wärmeleitfähigkeit der Ausscheidung von 0,2 W/cm K, was etwa dem 10-fachen der Matrixleitfähigkeit entspricht, folgt für die Wärmeleitfähigkeitssteigerung

durch ausgeschiedene Spaltprodukte ein Wert von ca. 15 % (Abb. 3).

Dann ergibt sich für den Temperaturbereich  $1100 < T < T_{\text{Schmelzp.}}$

$$(11) \quad \lambda = \frac{1}{4,1 + 0,0244 T} - 0,0007 + 3,7 \left(\frac{T}{1000}\right)^4 \cdot 10^{-4}$$

[T] = K

Abb.4 gibt die Wärmeleitfähigkeit des unbestrahlten Mischoxids und die abgeschätzte des bestrahlten stöchiometrisch gebliebenen Oxids wieder. Gleichung (11) wurde für die Berechnung der Zentraltemperatur zugrundegelegt. Gleichung (11) enthält sowohl den Einfluss der gelösten als auch den der ungelösten Spaltprodukte für einen Abbrand von 100 000 MWd/tM.

### 3. Die Zentraltemperatur

Fasst man, wie schon in der Einleitung bemerkt, die Zentraltemperatur nur als Auslegungskriterium auf, so interessieren Werte bei maximaler Stableistung und bei Zielabbrand des Brennstabes. Hierdurch sind die Randbedingungen der folgenden Betrachtung festgelegt. Als Ausgangszustand wird eine Ringtablette betrachtet, in der keiner der behandelten Bestrahlungseffekte vorliegen soll. Diese werden dann nacheinander bei gleichen Randbedingungen eingeführt und ihr Einfluss auf die Zentraltemperatur betrachtet. Wichtig ist dann der Vergleich mit Anfangs- bzw. Anfahrzustand, von dem geprüft werden muss, ob er wie bislang vermutet, die höchsten thermischen Belastungen des Brennstabes darstellt.

#### 3.1 Festlegung der Randbedingungen

Im folgenden sind die Randbedingungen aufgeführt:

Brennstoff	$(U_{0,8}Pu_{0,2})O_{2,00}$
Stableistung	460 W/cm
Hüllaussentemperatur	775 K
Wärmeleitfähigkeit des Hüllmaterials	0,2 W/cm K /17/
Hüllinnentemperatur	820 K
Wärmeübergang	1,00 W/cm <sup>2</sup> K /15/

Brennstoffoberflächen- temperatur	1100 K
Zentralkanalradius	0,09 cm
Ausgangsporosität	14%
Schmierdichte	80% TD.

### 3.2 Festlegung des Ausgangszustandes

Der Ausgangszustand soll eine Ringtablette mit gleichem Zentralkanalradius sein, der über die obengenannte Leervolumenbilanz zu einer homogen verteilten mittleren Porosität von 7,5% führt. Es werden gleiche Brennstoffoberflächentemperatur und Stableistung zugrunde gelegt. Die Wärmequellendichte ist konstant, die Leitfähigkeit ist die des reinen stöchiometrischen Oxids.

### 3.3 Festlegung des Anfangszustandes

Als Anfangszustand wird derjenige Zustand des Brennstoffs definiert, der sich bei Beginn des stationären Betriebes im ersten Reaktorzyklus einstellt. Entscheidend ist hierbei, ob der Brennstoff in diesem Moment einen Zentralkanal besitzt oder nicht. Es ist bekannt, dass die Volltablette bei sonst gleichen Bedingungen die höchste der möglichen Zentraltemperaturen für den zylindergeometrischen Fall liefert. Sie ist deshalb die pessimistischste aller möglichen Grundlagen zum Vergleich mit einem bestrahlten Brennstoff. Die Frage ist, ob diese pessimistischste Möglichkeit auch den realen Tatsachen entspricht. Ihr wurde durch Auswertung der 10 Minuten Bestrahlungen der FR 2-Loop-Versuchsgruppe 2 nachgegangen. Hierbei wurde vorausgesetzt, dass die Wanderungsgeschwindigkeit von Poren in erster Näherung dem Temperaturgradienten proportional ist.

Aus

$$(11a) \quad Q = -\lambda g r dT \quad \lambda = f(P) \cdot f(T)$$

folgt

(11b)

$$a / f(P) \sim \text{grad } T$$

$f(P)$  ist dabei der schon oben erwähnte Porositätskorrekturfaktor der Wärmeleitfähigkeit. In Abb. 5 sind gemessene Zentralkanalradien /16/ gegen  $\frac{\phi}{f(P)}$  für  $UO_2$ -Brennstoff aufgetragen. Eine Übernahme der Proportionalität in Gleichung (11b) führt mit der niedrigeren Leitfähigkeit des stöchiometrischen Mischoxids von ca. 10% von 460 W/cm auf einen Abzissenwert in Abb. 5 von 710 W/cm und damit zu einem Zentralkanal von  $r_z = 0,02$  cm. Damit wird als Anfangs  $\equiv$  Anfahrzustand eine Tablette mit diesem Zentralkanalradius und einer homogen verteilten Porosität von 13,5% (0,5% ist das Volumen des Zentralkanals, das Leervolumen des Spaltes vor der Bestrahlung wurde bei diesen kurzen Zeiten nicht in Betracht gezogen) definiert. Der Wärmeübergang für diesen Zustand führt mit  $0,5 \text{ W/cm}^2 \text{ K}$  /17/ zu einer Brennstoffoberflächentemperatur von 1370 K bei sonst gleichen Bedingungen.

### 3.4 Die Zentraltemperatur

Zunächst sind unten die Ergebnisse für die Zentraltemperatur zusammengefasst:

	Zentraltemperatur (K)
Ausgangszustand	2130
+ radialer Quelldichte- verteilung	2380
+ radialer Porositätsabhängig- keit für die Wärmeleitfähigkeit	2410
+ Spaltprodukteinfluss für die Wärmeleitfähigkeit	2460
+ Stöchiometrie O/M = 2,00	2460
O/M = 1,99	2605
O/M = 1.98	2715
Anfangszustand	3000
Spezifikation	<3033

<sup>+</sup>)  $\phi$  = Stableistung

Man erkennt deutlich, dass es zwei Faktoren sind, die wesentlichen Einfluss auf die Zentraltemperatur haben,

1. die radiale Quelldichteverteilung und
2. die Stöchiometrie,

die hier als konstant über den Radius angenommen wurde. Ergebnisse von Rechnungen mit dem SATURN-Programm /18/ haben gezeigt, dass Stöchiometriegradierten im Brennstoff einen unwesentlichen Einfluss auf die Zentraltemperatur haben, verglichen mit einer Rechnung des mittleren Stöchiometrieverhältnisses. Ein bedeutsames Ergebnis ist auch, dass die radiale Porositätsverteilung, berücksichtigt man sie in der Wärmeleitfähigkeit, keinen Einfluss auf die Zentraltemperatur hat. Dies wird einsichtig aus Abb. 6. Das  $\int \lambda dt$  unterscheidet sich unwesentlich für beide Kurven. Die Spaltprodukte führen bei diesen hohen Stableistungen ebenfalls nur zu einer unbedeutenden Erhöhung der Zentraltemperatur.

Der Vergleich mit dem Anfangs = Anfahrzustand zeigt, dass selbst bei Annahme eines Zentralkanals mit Beginn des stationären Betriebes die höchste thermische Belastung zu Beginn der Bestrahlung vorliegt. Dies wird unterstützt durch die Tatsache, dass Schadensfälle an bestrahlten Stäben bisher nicht auf zentrales Schmelzen bei normalen Betriebsbedingungen zurückgeführt werden konnten. An sich sollte die Tab. 3 neben den Zentraltemperaturen auch deren Schwankungsbreiten enthalten. Dieses Problem der Fehlerabschätzung bewegt sich zwischen zwei Extremen. Je einfacher das Modell ist, um so weniger fehlerbehaftete Größen (z.B. Materialkonstanten) gehen in die Berechnung ein. Die Unsicherheit ist geringer bei hoher systematischer Verfälschung der berechneten Grösse. Je realer das Modell ist, um so geringer ist die systematische Verfälschung, um so grösser aber die Schwankungsbreite. Da z.Zt. keine Angaben über Messfehler, z.B. der Plutoniumverteilungskurven oder auch der Messungen des Anteils der metallischen Spaltprodukte vorhanden sind, kann eine reale Fehlerabschätzung nicht vorgenommen werden. Es wäre lediglich möglich, für den allereinfachsten Fall der Volltablette eine solche anzustellen. Der ermittelte Fehler für die Zentraltemperatur wäre jedoch in jedem Falle zu gering.

#### 4. Zusammenfassung

Für das Auslegungskriterium der Zentraltemperatur eines Schnellen Brütters bei maximaler Stabileistung von 460 W/cm ist die Plutoniumverteilung und das O/M-Verhältnis gegen Ende der Bestrahlung von besonderer Bedeutung. Mit den zugrunde gelegten Werten des Wärmeübergangs für den Anfang und das Ende der Bestrahlung ergibt sich, dass zentrales Schmelzen des Stabes eher zu Beginn der Bestrahlung als durch hohen Abbrand (hier 100000 MWd/t) verursacht, auftreten sollte. Für die Berücksichtigung der Porosität in der Wärmeleitfähigkeit reicht die mittlere Porosität aus. Die Spaltprodukte sind in ihrem Einfluss auf die Wärmeleitfähigkeit bei hohen Stabileistungen nach den vorliegenden Abschätzungen vernachlässigbar.

Die Autoren danken Herrn Dr. Dienst für wertvolle Anregungen.

#### Literatur

- /1/ W.L.Lyon, W.E. Baily: J.Nucl.Mat, 22 (1967)
- /2/ G.Ondracek, B.Schulz; Reaktortagung 1974
- /3/ H.Kleykamp in: KFK 1736 (1973)
- /4/ G.A. Cook: "Ar,He and the Rare Gases" S.188
- /5/ B.Schulz: KFK 1988 (1974)
- /6/ G.Ondracek, B.Schulz: J.Nucl.Mat. 46 (1973) S.253
- /7/ H.E.Schmidt: J.Nucl.Mat. 39 (1971) S. 234
- /8/ H.E.Schmidt: High Temp. High Press. 3 (1971), S.345
- /9/ S.M.Hartlib et al.: AERE-R-7325 (1973)
- /10/ H.E.Schmidt: persönl. Mitteilung
- /11/ B.Abeles: Phys.Rev. 131 (1963) 1906
- /12/ P.Hofmann: KFK 1831 (1974)
- /13/ P.Hofmann: Ext. KFK-Bericht, IMF, 6/70-2 (1970)
- /14/ M.Murabayashi: J.Nucl.Sc.Techn. 7 (1970) 559
- /15/ B.Schulz in: KFK 1960 (1974)
- /16/ A.Gerken: persönl. Mitteilung
- /17/ B.Schulz in: KFK 1727 (1973)
- /18/ H.Elbel: persönl. Mitteilung
- /19/ H.E.Schmidt in: KFK 1400 (1971)

Zusammensetzung	$T_s$ (K)
UO <sub>2</sub>	3113
UO <sub>2</sub> + 10% PuO <sub>2</sub>	3081
20% PuO <sub>2</sub>	3033
25% PuO <sub>2</sub>	2993
30% PuO <sub>2</sub>	2963
40% PuO <sub>2</sub>	2933
PuO <sub>2</sub>	2672

Spezifikation:  $T < 3033$  K

Tab. 1: Schmelztemperaturen im System  
UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> /1/

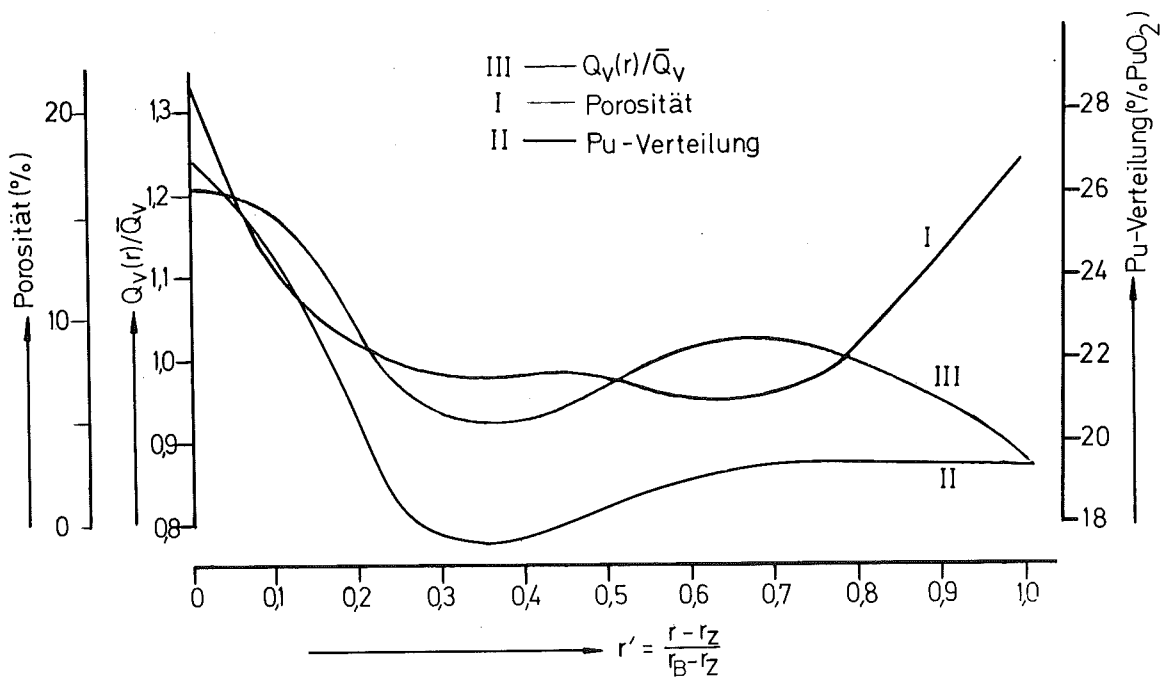


Abb. 1: Wärmequellendichte (III) als Funktion des normierten Radius  $r'$  aus radialer Porositäts- (I) und Plutoniumverteilung (II)

$r_{B,Z}$  = Brennstoff bzw. Zentralkanalradius

$r$  = laufende Ortskoordinate

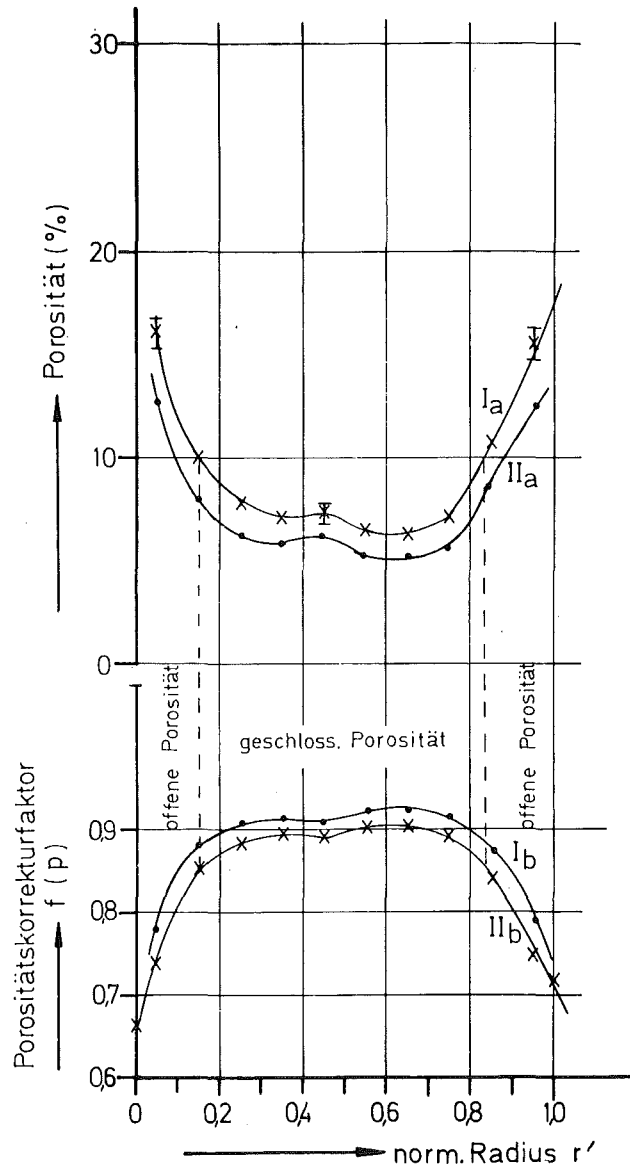


Abb. 2: Radiale Porositätsverteilung Ia, IIa und Porositätskorrekturfaktor Ib, IIb für die Wärmeleitfähigkeit I mittlere Porosität 9,3%, II mittlere Porosität 7,5%



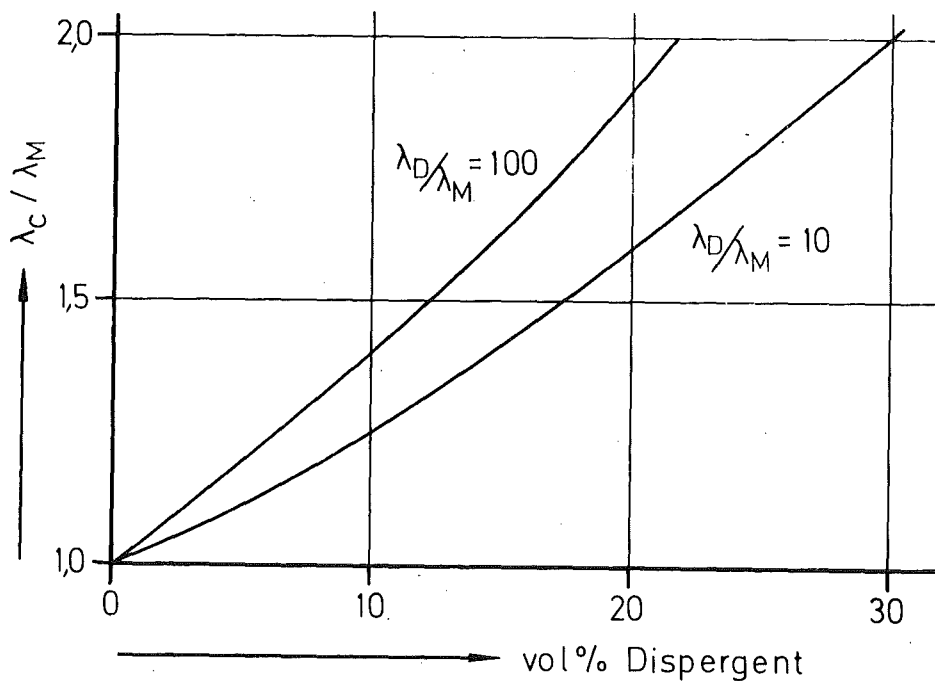


Abb. 3: Wärmeleitfähigkeit eines Verbundwerkstoffes  $\lambda_c$  mit Matrixstruktur und gut leitendem kugeligem Dispergenten, bezogen auf die Wärmeleitfähigkeit der Matrix  $\lambda_M$

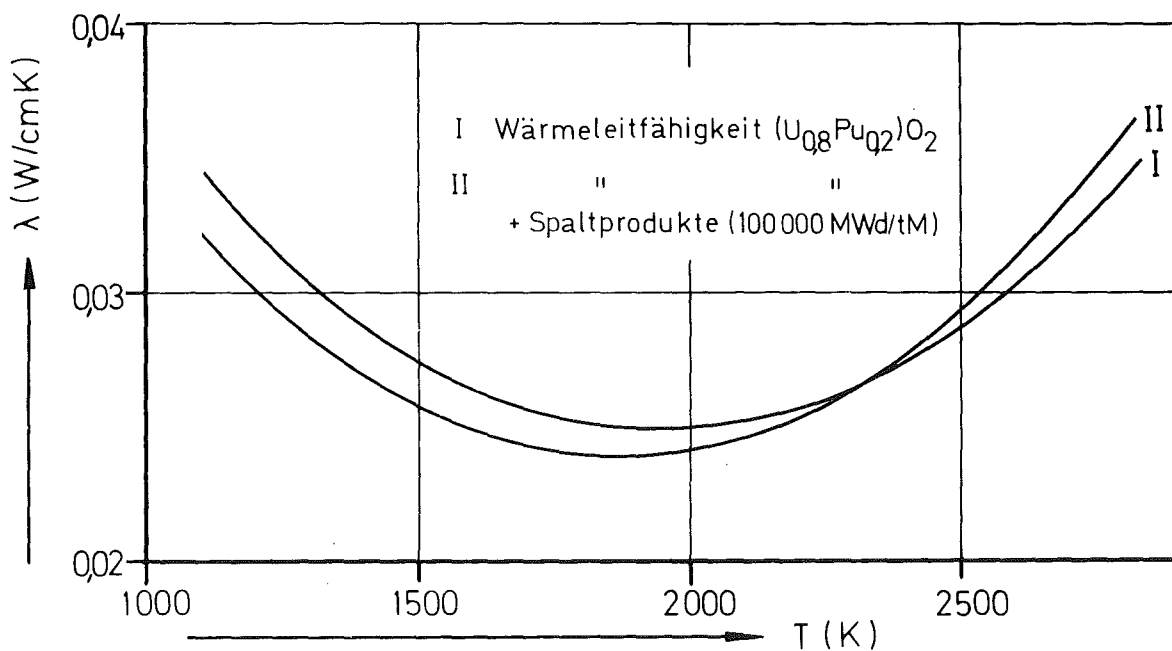


Abb. 4: Wärmeleitfähigkeit von bestrahltem (100 000 MWd/t Metall) oxidisiertem Brennstoff und Vergleich mit unbestrahltem Material

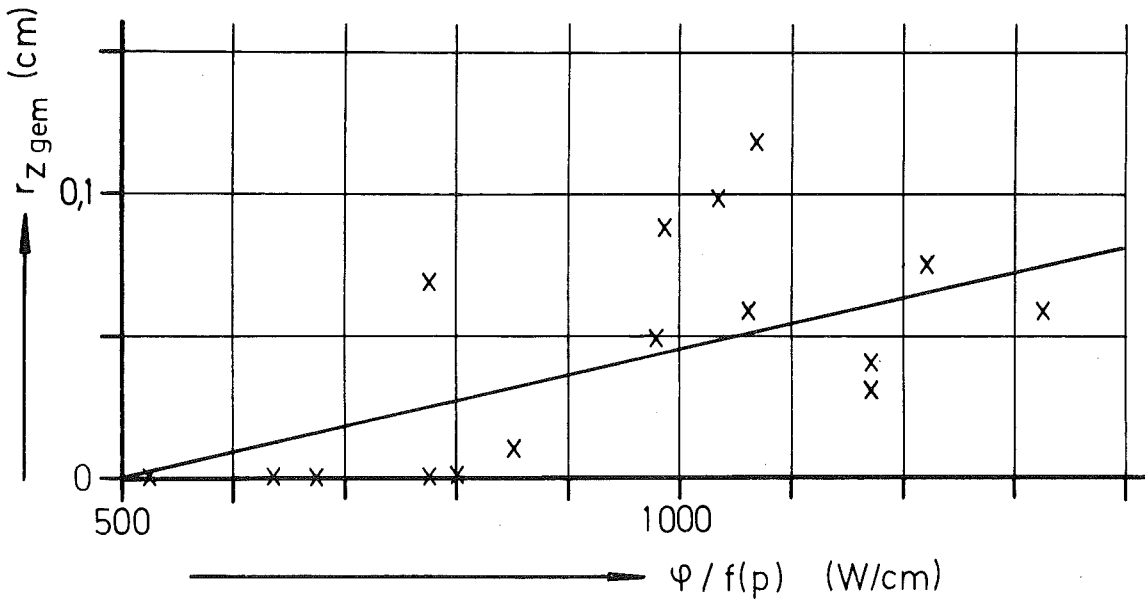


Abb. 5: Gemessene Zentralkanalradien der Loop-Versuchsgruppe 2, FR 2. Bestrahlungszeit 10 min.  
 $\phi$  = Stableistung

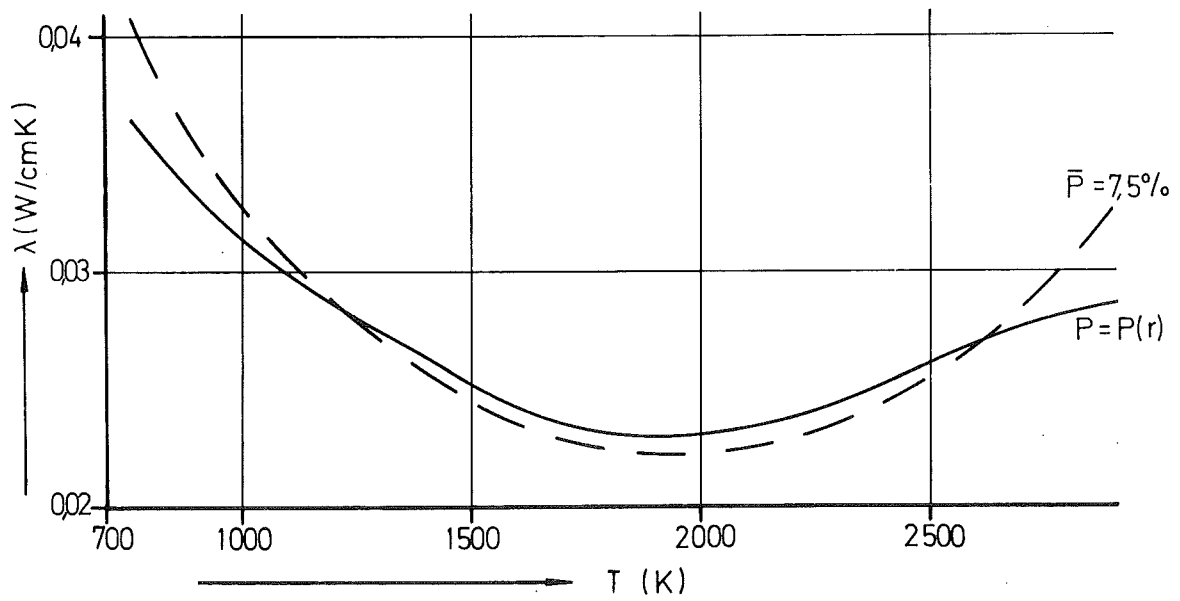


Abb. 6: Wärmeleitfähigkeit für mittlere ( $\bar{P}$ ) und radienabhängige Porosität  $P(r)$

IV. DIE MECHANISCHE BELASTUNG DER HÜLLE DURCH DEN BRENNSTOFF

von

D.Brucklacher, W.Dienst, H.Zimmermann

Inhalt:

1. Spaltgasfreigabe aus dem Brennstoff
2. Brennstoffschwellung durch Spaltprodukte
3. Bestrahlungsbedingte Nachsinterung des Brennstoffes
4. Mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle

Die fortgesetzte Untersuchung der Durchmesseränderungen an bestrahlten Oxidbrennstäben hat eindeutig ergeben, dass es unter Bestrahlung zu plastischen Dehnungen der Hüllrohre gekommen ist /1/ (Abb. 1). Im folgenden sollen die Vorgänge im Brennstab näher betrachtet werden, die zu einer ursächlichen mechanischen Belastung der Brennstabhülle von innen führen könnten.

### 1. Spaltgasfreigabe aus dem Brennstoff

Etwa 15% der Spaltprodukt-Atome sind Xenon- und Krypton-Atome. Wegen ihrer sehr geringen Löslichkeit im Brennstoff werden diese Spaltgase zum grössten Teil in das innere Leervolumen der Brennstäbe freigegeben und bauen dort einen Gasdruck auf, der das Hüllrohr belastet.

Abb. 2 zeigt eine Zusammenstellung von gemessenen Spaltgasfreigabewerten in Abhängigkeit vom Abbrand des Brennstoffes. Viele Messpunkte stammen von Brennstabprüflingen mit kontinuierlicher Spaltgasdruckmessung; die zu einer Kapsel gehörigen Punkte sind dann jeweils durch eine gestrichelte Linie verbunden. Die Messwert-Streuung ist sehr gross, und nur die obere Grenze des Streubandes erscheint zur Brennstabauslegung verwendbar. Die Streuung lässt sich allerdings dadurch vermindern, dass die mittlere Brennstofftemperatur als Parameter eingeführt wird. Dann liegt die Spaltgasfreigabe für  $\bar{T} = 1500^{\circ}\text{C}$  nahe bei der oberen Grenze des Streubandes in Abb. 2, so dass diese Linie als repräsentativ für die Spaltgasfreigabe aus leistungsmässig hoch belastetem Oxidbrennstoff angesehen werden kann.

Abb. 3 zeigt die ebenfalls experimentell gemessene Spaltgasrückhaltung im Brennstoff /2/ als Funktion des Abbrandes mit der Brennstofftemperatur als Parameter. Die Spaltgaskonzentration im Brennstoff erreicht ein Sättigungsniveau, das mit fallender Temperatur steigt und desto später erreicht wird, je niedriger die Temperatur ist. Die rückgehaltenen Spaltgase befinden sich überwiegend in grösseren Poren oder Blasen (Durchmesser  $\lambda 0,5 \mu\text{m}$ ) und nur zu einem kleinen Teil (20 - 30%) in Kristallgitterplätzen oder sehr kleinen Blasen.

Zur formelmässigen Darstellung der Spaltgasfreigabe wurde der folgende Ausdruck entwickelt:

Spaltgasfreisetzung  $F = F_1 + F_2 + F_3$

mit

$$F_1 = \left[ 1 - \frac{3 \cdot 10^{-4}}{0,32 A} (1 - e^{-A/0,005}) \right] \frac{r_{1300}^2 - r_{zk}^2}{r^2 - r_{zk}^2}$$

$$F_2 = \begin{cases} 0 & \text{für } A \leq 0,03 \\ \left[ 1 - \frac{8 \cdot 10^{-3} B}{0,32 A} (1 - e^{-(A-0,03)/0,03}) \right] \frac{r_{1000}^2 - r_{1300}^2}{r^2 - r_{zk}^2} & \text{für } A > 0,03 \end{cases}$$

$$F_3 = \begin{cases} 0 & \text{für } A \leq 0,04 \\ \left[ 1 - \frac{2 \cdot 10^{-2} B}{0,32 A} (1 - e^{-(A-0,04)/0,04}) \right] \frac{r^2 - r_{1000}^2}{r^2 - r_{zk}^2} & \text{für } A > 0,04 \end{cases}$$

Er ist bezüglich der gewählten Konstanten vor allem an die Ergebnisse der Bestrahlungsversuche DFR-304 und DFR-350 angepasst /3,4/. Sie beruht auf einer Spaltgasausbeute von 0,32 Gasatomen/Spaltung und auf den Sättigungskonzentrationen und -abbränden für die Spaltgasrückhaltung in drei Brennstofftemperaturzonen. Die Formel gibt die Spaltgasfreigabe bei niedrigem Abbrand ( $\leq 4\%$ ) nur mühsam (unter Anwendung eines "Fittingfaktors" B) wieder, hat sich aber für höhere Abbrände als gut brauchbar erwiesen.

Auch bei sehr hoher Spaltgasfreigabe kann der Spaltgasdruck jedoch durch ein hinreichend grosses Leervolumen im Brennstab von vornherein niedrig gehalten werden. Das war bei allen untersuchten Brennstäben so weit erfüllt, dass die in Abb. 1 dargestellten plastischen Hülldehnungen nicht auf den erreichten Spaltgasdruck zurückgeführt werden können. Sie müssen demnach auf einer direkten mechanischen Wechselwirkung des Brennstoffes mit der Hülle beruhen.

## 2. Brennstoffschwellung durch Spaltprodukte

Als Ursache für die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle kommt zunächst die Brennstoffvolumenvergrößerung durch Einlagerung der Spaltprodukte in Betracht, die im Verlauf des Abbrandes erzeugt werden. Diese sogenannte Brennstoffschwellung kann den Spalt zwischen den Brennstofftabletten und der Hülle schliessen und führt dann zu einem "Schwelldruck" auf die Innenseite des Hüllrohres.

Im Bereich relativ niedriger Brennstofftemperaturen und -abbrände kann die Schwellung auf atomare Einlagerung aller Spaltprodukte im Brennstoff zurückgeführt werden. Eigene Messungen an  $\text{UO}_2$  in diesem Bereich ( $T < 1000^\circ\text{C}$ ,  $A < 5\%$ ) ergaben eine Schwellrate von 0,8 Vol.-%/ Uran-Abbrand /5/. In der Literatur liegen ähnliche, zum Teil theoretisch berechnete Werte vor /s.a. 6/, die etwa zwischen 0,7 und 1,0 Vol.-%/ Abbrand streuen. Der Anteil nichtgasförmiger Spaltprodukte an der Schwellrate scheint bei 0,5 - 0,6 Vol.-%/ Abbrand zu liegen; man findet jedoch auch Ergebnisse bis herab zu 0,3 Vol.-%/ Abbrand. Dabei spielt die chemische Bindung des Cäsiums und seine hohe Flüchtigkeit im metallischen Zustand eine entscheidende Rolle, weil dieses Spaltprodukt den grössten Teil zur Schwellung durch nichtgasförmige Spaltprodukte beiträgt.

Wenn sich die gasförmigen Spaltprodukte (Xenon und Krypton) bei hohen Temperaturen oder hohem Abbrand in Gasblasen ausscheiden, kann es zu bedeutend höheren Schwellraten kommen. Diese lassen sich viel schwerer erfassen als die Schwellrate durch nichtgasförmige Spaltprodukte, weil sie in komplizierter Weise von den Brennstabbetriebsparametern abhängen. Am besten ist noch die Temperaturabhängigkeit der Schwellrate bei sehr niedrigem Abbrand (<1%) und ohne äusseren Widerstand (z.B. durch Kontakt mit der Hülle) darzustellen. Abb. 4 zeigt das Streuband der annehmbar erscheinenden, in der Literatur vorgeschlagenen Werte mit einigen experimentellen Ergebnissen /7,8,9/.

Die angegebenen Schwellraten sind nicht für Abbrände oberhalb 1% ( $\hat{\sim} 10 \text{ MWd/kgM}$ ) zu verwenden, weil die Gesamtschwellung zweifellos eine gewisse (ebenfalls von der Temperatur abhängige) Sättigungsgrenze nicht überschreiten kann. Dieser Punkt ist von Bedeutung für die Beantwortung der Frage, unter welchen Brennstabbetriebsbedingungen der Brennstoff/Hülle-Spalt durch die Brennstoffschwellung vollständig geschlossen werden kann. Bei hoher Stableistung und bei einer ursprünglichen radialen Spaltbreite von etwa  $100 \mu\text{m}$  ist das bereits im Abbrandbereich  $\leq 1\%$  der Fall /10, 11/. Daraus liess sich auf eine Schwellrate von mindestens 8 Vol.-%/ Abbrand, wahrscheinlich im Temperaturbereich von etwa  $1600 - 1800^\circ\text{C}$  schliessen /11/, die mit Abb. 4 gut übereinstimmt.

Während also die Temperaturabhängigkeit der Schwellung bei niedrigem Abbrand quantitativ fassbar erscheint, ist das für andere Parameterabhängigkeiten noch nicht erreicht: das gilt für die Abhängigkeit der Gasblasenschwellung vom äusseren Druck auf den Brennstoff (bei Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle), für die Abhängigkeit der Schwellung vom Abbrand (auch bei niedrigen Temperaturen  $<1000^{\circ}\text{C}$  für hohe Abbrände  $>5\%$ ) sowie für den Verlauf der Schwellung bei Leistungsänderungen der Brennstäbe. Im letzten Fall könnte sowohl durch Übersättigung der bestrahlungsbedingten "dynamischen" Lösung von Spaltgas im Brennstoff als auch wegen einer Druckentlastung durch Aufhebung des Brennstoff/Hülle-Kontaktes eine stark erhöhte Schwellrate auftreten.

### 3. Bestrahlungsbedingte Nachsinterung des Brennstoffes

Eine gegenläufige Volumenänderung, im Vergleich zur Schwellung, bewirkt die bestrahlungsbedingte Nachsinterung des Brennstoffes. Sie beruht auf der Erzeugung von Kristallgitterdefekten längs der Spaltfragmentbahnen im Brennstoff und führt zu einer Verdichtung des porösen Brennstoffes bei Temperaturen, die weit unterhalb der in Betracht kommenden Sintertemperatur liegen. Dadurch kommt es auch zu einer Schrumpfung der relativ kühlen Brennstoffrandzone und zu einer entsprechenden Verbreiterung des Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle /12,13,14/, die den Beginn der mechanischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle verzögern, u.U. sogar verhindern kann.

Die Nachsinterung von Oxidbrennstoff unter Bestrahlung hat zuerst für Leichtwasserreaktor-Brennelemente Beachtung gefunden /15,16,17,18,19,20/. Abb.5 zeigt die Brennstoffschrumpfung bzw. Porositätsverminderung nach 1000 - 2000 h Bestrahlungsdauer als Funktion der ursprünglichen Sinterporosität für  $\text{UO}_2$ -Brennstoff. In Abb.5 ist angedeutet, dass die Kinetik der bestrahlungsbedingten Sinterung mit derjenigen eines rein thermischen Sintervorganges gleicher Zeitdauer verglichen werden kann /18/. Für eine quantitative Formulierung des Verlaufes der Porositätsabnahme empfiehlt sich zunächst jedoch ein rein empirischer Ansatz.

Dabei liegt es nahe, eine Proportionalität der Schrumpfungsgeschwindigkeit mit der noch verfügbaren Porosität anzunehmen, d.h. eine ex-

ponentielle Porositätsabnahme. Diese ist auf den Abbrand A zu beziehen, weil der Nachsintervorgang in erster Linie von der Spaltungsdichte im Brennstoff und damit nur indirekt von der Zeit abhängt. Es erfolgt keine vollständige Verdichtung des Brennstoffes, so dass eine Restporosität  $P_{\text{Rest}}$  einzusetzen ist. Damit ergibt sich für die Porosität P eine Beziehung der folgenden Form:

$$P = P_{\text{Rest}} + (P_0 - P_{\text{Rest}})e^{-A/A_{\text{NS}}} \quad (1)$$

$P_0$  ist die ursprüngliche Sinterporosität,  $A_{\text{NS}}$  ist eine Abbrandkonstante, die die Geschwindigkeit des Nachsintervorganges angibt. Aus den wenigen bekanntgewordenen Ergebnissen über die Nachsinterung von U-Pu-Mischoxidbrennstoff bei kurzer Bestrahlungsdauer lässt sich auf einen Näherungswert von  $A_{\text{NS}} = 0,2\%$  (U+Pu-Abbrand) schliessen. Er entspricht etwa 200 h bei einer Stableistung von 450 W/cm in üblichen Schnellbrüterbrennstäben. Dabei bleibt offen, ob dieser Wert in mechanisch gemischtem  $U_{\text{nat}}\text{O}_2$ -PuO<sub>2</sub> als mittlerer Abbrand oder eher als Abbrand der Natururanoxid-Matrix zu verstehen ist (s.a. Abb. 5). Die Restporosität  $P_{\text{Rest}}$  scheint nach bisher vorliegenden Ergebnissen, im besonderen von Porositätsmessungen an länger bestrahlten Brennstäben, meistens bei etwa 93% TD vorzuliegen. Daher kann für  $P_0 \geq 7\%$  die Restporosität  $P_{\text{Rest}} = 7\%$  als Konstante eingesetzt werden. Für UO<sub>2</sub>-Brennstoff wurde eine Beziehung gemäss (1) mit  $P_{\text{Rest}} = 0,4$  bis  $0,5 P_0$  angegeben /19/. Diese Restporosität weicht jedoch im Sinterdichtebereich des SNR-Brennstoffes kaum vom obigen Vorschlag ab.

#### 4. Mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle

##### 4.1 Stationärer Brennstoffschwelldruck

Wenn sich Kontakt zwischen dem schwellenden Brennstoff und dem Hüllrohr ergeben hat, kann es zu einer Hülldehnung kommen. Diese könnte nur dann mit einer ähnlichen Geschwindigkeit erfolgen wie die lineare Brennstoffschwellung, wenn der Brennstoff unter Bestrahlung ebenso starr bliebe wie (bei hinreichend niedriger Temperatur) ausserhalb des Reaktors. Es wurde jedoch nachgewiesen, dass die hohe Gitterdefekterzeugungsrate durch die Spaltfragmente im Brennstoff zu einer bestrahlungsbedingten



Beschleunigung des Diffusionskriechens führt /5/. Die bestrahlungsbedingte Kriechgeschwindigkeit ist proportional zur Spaltungsrate und zur Spannung und hängt relativ wenig von der Temperatur ab. Abb.6 zeigt die Kriechgeschwindigkeit von  $UO_2$ - $PuO_2$ -Proben verschiedener Sinterdichte und von hochdichtem  $UO_2$  als Funktion der Temperatur.

Aus diesem Diagramm lässt sich eine Kriechgeschwindigkeit von etwa  $8 \cdot 10^{-5}$ /h für  $UO_2$ -15 bis 20%  $PuO_2$  mit 93% TD (d.h. nach Ablauf der Nachsinterung unter Bestrahlung) bei einer Spaltungsrate von  $1 \cdot 10^{14}$  f/cm<sup>3</sup>s (entspr. einer Stableistung von 450 bis 500 W/cm), Temperaturen im Bereich von 700 bis 1100°C und bei einer Spannung von 1 kp/mm<sup>2</sup> ableiten. Die lineare Schwellrate des Brennstoffes ist bei der angegebenen Spaltungsrate etwa  $4 \cdot 10^{-6}$ /h. Ein Gleichgewicht zwischen Kriech- und Schwellgeschwindigkeit wäre bei einer Spannung von  $(4 \cdot 10^{-6} / 8 \cdot 10^{-5}) \cdot 1$  kp/mm<sup>2</sup> = 5 kp/cm<sup>2</sup> zu erwarten. Diese Spannung kann als grobe Näherung des Kontaktdruckes zwischen dem schwellenden Brennstoff und der Hülle angesehen werden. Sie ist sehr niedrig und führt zu tangentialen Hüllspannungen weit unterhalb 1 kp/mm<sup>2</sup>, die nicht zu plastischen Hülldehnungen von einigen 0,1% führen können, wie sie Abb.1 zeigt.

Diese Abschätzung zeigt gleichzeitig, dass der Brennstoffschwelldruck nicht nennenswert von einem Heisspressvorgang mitbestimmt sein kann, bei dem der schwellende Brennstoff durch den Widerstand des Hüllrohres in seine eigenen Poren gepresst wird. Denn bei vollständiger Aufnahme der Brennstoffschwellung in die Brennstoffporen unter den oben angegebenen Bedingungen wäre dafür ein Druck von mehr als 1000 kp/cm<sup>2</sup> erforderlich.

Die obigen Aussagen über den Brennstoffschwelldruck werden durch Brennstabmodellrechnungen mit dem SATURN-Code bestätigt, der keinen Heisspressvorgang enthält. Eine Verallgemeinerung dieser Rechnungen /21/ zeigt, dass sich mit der Kriechgeschwindigkeit von  $UO_2$ - $PuO_2$  (93% TD) für alle Stableistungen  $\geq 350$  W/cm Kontaktdrucke  $< 10$  kp/cm<sup>2</sup> ergeben, wenn für die Brennstoffschwellung Leervolumen im Zentralkanal zur Verfügung steht.

In einem Bestrahlungsversuch wurde die direkte Messung des maximal möglichen Brennstoffschwelldruckes auf die Hülle angestrebt. Kurze  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstäbe mit sehr schwacher Hülle (0,2 mm dick, Incoloy 800 oder

Zircaloy 2) wurden unter variablem äusserem Helium-Druck bei Hülltemperaturen von 550 - 650°C bestrahlt. Die Hülldurchmesseränderung konnte unter Bestrahlung gemessen werden /5/. Bei der Versuchsauswertung bereitete die Berücksichtigung der Hüllfestigkeit gewisse Schwierigkeiten. Daher konnten nur obere Schranken für den Kontaktdruck zwischen dem schwellenden Brennstoff und der Hülle angegeben werden. So musste der Kontaktdruck für  $UO_2$ - $PuO_2$  mit einer Sinterdichte von 86% TD bei einer Stableistung von 500 W/cm unterhalb 25  $kp/cm^2$  liegen, und bei 250 W/cm unterhalb 40  $kp/cm^2$ .

Alle diese Ergebnisse bestätigen, dass die für den SNR vorgesehenen Hüllrohre durch die stationäre Brennstoffschwellung nicht nennenswert gedehnt werden können. Denn dazu wären Schwelldrucke von mindestens etwa 250  $kp/cm^2$  erforderlich.

#### 4.2 Thermisches Rasten (bei Leistungsänderungen)

Da die gemessenen plastischen Hülldehnungen weder durch den Spaltgasdruck noch durch die stationäre Brennstoffschwellung erklärt werden können, mussten instationäre Vorgänge in Betracht gezogen werden, die bei Leistungsänderungen auftreten /1/. Es handelt sich um Rastvorgänge an thermischen Rissen im Brennstoff, für die drei Mechanismen in Frage kommen:

1. Abkühlungsrisse, die bei einer Reaktorabschaltung gebildet worden sind, können sich beim Wiederauffahren wegen Verschiebung von Brennstoffbruchstücken (evtl. in Verbindung mit lokaler Rissausheilung während des Anfahrvorganges) nicht wieder schliessen. Falls der ursprüngliche Spalt zwischen Brennstoff und Hülle bereits durch Brennstoffschwellung geschlossen war, kommt es dann beim Wiederauffahren zu einer Dehnung des Hüllrohres durch grössere thermische Ausdehnung des Brennstoffes (im Vergleich zur Hülle), weil das entsprechende Differenzvolumen zum Teil blockiert ist. Der Effekt kann dadurch noch verstärkt werden, dass der thermische Widerstand der blockierten Risse zu einer höheren Brennstofftemperatur führt als vor der Abschaltung.

2. Der Spalt, der zwischen Brennstoff und Hülle bei vorübergehend verminderter Leistung vorliegt, schliesst sich während des Teillastbetriebes durch Brennstoffschwellen. Beim Wiederanheben der Stableistung kommt es dann zu einer Dehnung des Hüllrohres durch grössere thermische Ausdehnung des Brennstoffes. Derselbe Effekt kann sich auch im Zusammenhang mit einer Reaktorabschaltung ergeben, wenn die Stableistung vor der Abschaltung niedriger lag als nach dem Wiederanfahren.

Falls der Brennstoff fest an der Hülle haftet, liegen im Teillastbetrieb anstelle des Spaltes Abkühlungsrisse, besonders in Umfangsrichtung vor. Diese Risse können sich ebenfalls durch Brennstoffschwellen schliessen, sie können daneben auch durch partielle Ausheilung oder Verlagerung aufgrund von bestrahlungsbedingten Diffusions- oder Verdampfungs-Kondensationsvorgängen stabilisiert werden (Abb. 7). In diesem Fall kann die Hülldehnung beim Wiederanheben der Stableistung durch eine zusätzliche Brennstofftemperaturerhöhung verstärkt werden (s. 1).

3. In fest an der Hülle haftendem Brennstoff schliessen sich die beim Anfahren des Reaktors entstandenen Erwärmungsrisse (Abb. 8) durch Brennstoffschwellen oder werden durch partielle Ausheilung stabilisiert (s. 2). Beim Abschalten des Reaktors kann es dann zu einer Dehnung des Hüllrohres durch Aufschumpfen auf den Brennstoff kommen, wenn die thermische Kontraktion der Hülle grösser ist als diejenige des anhaftenden Brennstoffringes, weil das entsprechende Differenz-Volumen blockiert ist. Derselbe Effekt kann sich auch durch einen vorübergehenden Überlastbetrieb ergeben.

Die tatsächliche quantitative Auswirkung aller drei Mechanismen in einer plastischen Hülldehnung wird in komplizierter Weise vom Stableistungs- und Hülltemperaturverlauf im Einzelfall sowie von der Streckgrenze der Hülle und von der Festigkeit des Brennstoffes abhängen. Dabei ist das primäre Kriechen des Brennstoffes unter Bestrahlung zu berücksichtigen, das bei einem Anstieg des Kontaktdruckes an der Hülle auftreten und eine erheblich höhere Geschwindigkeit aufweisen kann als das stationäre

Kriechen. Eine befriedigende quantitative Beschreibung der Vorgänge, die der plastischen Hülldehnung durch thermisches Rasten des Brennstoffes zugrundeliegen, kann nur durch Brennstabmodell-Computerrechnungen erfolgen, die durch Vergleich mit experimentell gemessenen Hülldehnungen an bestrahlten Brennstäben zu testen sind. Dabei muss zunächst eine gegenseitige Überlagerung aller drei Mechanismen in Betracht gezogen werden. Aufgrund bereits vorliegender experimenteller Ergebnisse lässt sich jedoch eine gewisse Abgrenzung und Wichtung für die Wirksamkeit der verschiedenen Mechanismen vornehmen.

Mechanismus 1: Dieser Mechanismus scheint für Schnellbrüter-Brennstäbe unter üblichen Betriebsbedingungen keine wesentliche Rolle zu spielen. Abb. 9 zeigt, dass bei wiederholten Leistungszyklen an einem kurzen  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstab mit Incoloy 800-Hülle bei  $650^\circ\text{C}$  Hülltemperatur überhaupt keine bleibende Hülldehnung gemessen werden konnte und bei  $750^\circ\text{C}$  nur sehr geringe Hülldehnungen, die mit dem Wiedereinfahren des Stabes in den Reaktor in Zusammenhang gebracht werden können. Die sehr deutliche Hülldehnung nach dem besonders langen Leistungszyklus bei  $750^\circ\text{C}$  lässt sich besser auf ein Aufschrumpfen der Hülle beim Abschalten gemäss Mechanismus 3 zurückführen. Nur in einem anderen Leistungswechsel-Versuch mit sehr weicher Hülle und viel grösserem Überschuss der thermischen Ausdehnung des Brennstoffes beim Anfahren (Hüllmaterial Zircaloy 2 bei ca.  $550^\circ\text{C}$ ) liess sich der Mechanismus 1 jeweils nach einem langen Leistungszyklus (einige 100 h) nachweisen.

Mechanismus 2: Dieser Mechanismus scheint die grösste Wahrscheinlichkeit zu haben. Ein entsprechendes Rechenmodell, das das Zuschwellen des Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle während eines Teillastbetriebes berücksichtigt, wurde für Leichtwasserreaktor-Brennstäbe entwickelt /22/. Mit dem an das Verhalten von Schnellbrüter-Brennstäben angepassten Rechenprogramm PAUK /23/ gelang es, die besonders deutlichen plastischen Hülldehnungen in einigen FR 2-Brennstabbestrahlungsgruppen auf Stableistungserhöhungen zwischen dem Ende eines Reaktorzyklus und dem Anfang des jeweils folgenden zurückzuführen.

Die gezielte experimentelle Untersuchung des Mechanismus 2 ist mit Teillast-Zyklus-Bestrahlungsversuchen an kurzen  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstäben im

FR 2 begonnen worden. Abb. 10 zeigt die von Zyklus zu Zyklus fortschreitende, bleibende Hülldehnung über der Stablänge. In Abb. 11 ist die maximale Hülldehnung über dem Stableistungsverlauf aufgetragen. Der Hülldehnungseffekt wurde bei diesem Versuch durch gegenläufige Änderung von Stableistung und Hülltemperatur verstärkt. Nach Teillastbetrieb mit folgender Vollast wurden jeweils starke Hüllaufweitungen gemessen, die möglicherweise zum Teil sogar die Differenz der thermischen Ausdehnung von Brennstoff und Hülle (beim Übergang von Teillast auf Vollast) übersteigen. Das deutet auf eine zusätzliche Brennstofftemperaturerhöhung durch Brennstoffgefügeänderung hin. Ein kurzer Vollast-Zyklus allein ergab keinen Effekt. Bei einer langsameren Leistungssteigerung von Teillast auf Vollast erfolgte eine geringere Hüllaufweitung. Eine Verminderung der Hüllaufweitung bei abnehmender Teillastbetriebsdauer ist in Bild 12 noch nicht erkennbar. Sie schien in weiteren Versuchen erst bei Teillastzyklen  $\lesssim 100$  h einzutreten.

Mechanismus 3: Dieser Mechanismus kann nur bei fester Haftung zwischen Brennstoff und Hülle und bei hoher Hülltemperatur ( $\gtrsim 600^{\circ}\text{C}$ ) wirksam werden, d.h. erst nach beträchtlichem Abbrand und in der Nähe des heisseren Brennstoffendes /1/. Diese Bedingungen erschienen zunächst für die beobachteten plastischen Hülldehnungen an bestrahlten Brennstäben in einigen wichtigen Fällen zuzutreffen. Inzwischen haben sich jedoch immer mehr diejenigen Versuchsergebnisse verdichtet, die auf plastische Hülldehnung über die ganze Brennstofflänge hindeuteten /14, 24/. Abb. 12 zeigt als Beispiel die plastische Hülldehnung an einem PSB-Brennstab nach einem mittleren Abbrand von 7,6% (max. 8,3%) als Differenz zwischen Hülldurchmesseränderung und Hüllschwellung ( $\Delta\rho/\rho$  durch Porenbildung unter Bestrahlung).

Damit kann der Mechanismus 3 nicht mehr als vorherrschend angesehen werden, sondern kommt höchstens für die besonders starke plastische Hülldehnung in Betracht, wie sie in Abb. 12 am unteren, heisseren Brennstabende erkennbar ist. Andere Versuchsergebnisse lassen jedoch vermuten, dass diese lokal eng begrenzte Hüllaufweitung vor allem auf die Ansammlung von flüchtigen Spaltprodukten zurückzuführen ist (s. 4.3).

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass bei der modelltheoretischen Behandlung und für die experimentelle Untersuchung der Hülldehnung durch thermisches Rasten vorzugsweise der Mechanismus 2 berücksichtigt werden sollte. Dabei ist dem Einfluss der Hüllfestigkeit, der Brennstoffporosität und des Abbrandes besondere Aufmerksamkeit zu widmen.

Erste Vergleiche an Brennstäben, die im Rapsodie-Reaktor bis zu einem mittleren Abbrand von etwa 10% bestrahlt wurden, deuten darauf hin, dass die mittlere plastische Hülldehnung durch beträchtliche Steigerung der Hüllfestigkeit (1.4970 kaltverformt gegenüber 1.4988 lösungsgeglüht) grössenordnungsmässig etwa von 1% auf 0,1% reduziert wurde. Der Einfluss der Brennstoffporosität schien zunächst durch einen laufenden Anstieg der plastischen Hülldehnung mit der Brennstoffsinterdichte darstellbar zu sein /1/. Nach neueren Ergebnissen ist dieser Zusammenhang nicht allgemein gültig. Anscheinend beeinflusst die Brennstoffporosität die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle weniger direkt (durch Änderung der Brennstofffestigkeit) als indirekt über das Nachsinter- und Schwellverhalten des Brennstoffes. Die bisher vorliegenden Ergebnisse zur Abbrandabhängigkeit zeigen eine Schwelle für den Beginn steigender plastischer Hülldehnung an normal (d.h. ohne besondere Leistungswechsel) bestrahlten Brennstäben bei 3 - 4% Abbrand (s. Abb. 1). Diese Schwelle lässt vermuten, dass der Mechanismus 2 durch die Auffüllung der breiten radialen Risse in der äusseren Brennstoffzone und/oder durch eine feste Haftung zwischen Brennstoff und Hülle entscheidend gefördert wird, d.h. durch Strukturänderungen, die sich erst im Verlauf des Abbrandes ergeben /1/. Bei mittleren Abbränden ergibt sich dann ein Anstieg der plastischen Hülldehnung mit dem Abbrand. Der weitere Verlauf bei hohen Abbränden erscheint noch unklar.

#### 4.3 Spaltprodukt-Anhäufung

Ähnliche Effekte wie durch thermisches Rasten nach den Mechanismen 2 und 3 können sich durch die Anhäufung von flüchtigen Spaltprodukten (vor allem Cs) im Brennstoff/Hülle-Spalt oder in Rissen am Brennstoffrand ergeben. Die resultierende Hülldehnung kann dann noch durch Reaktionen der Spaltprodukte mit Brennstoff oder Brutstoff (z.B. zu Cs-Uranat)

verstärkt werden, die zu einer Vergrößerung ihres spezifischen Volumenbedarfs führt. Im Vergleich zum thermischen Rasten sind hierbei lediglich Vorgänge des Brennstofftransportes und der Brennstoffschwellung durch Verdampfung, Kondensation und chemische Reaktion von flüchtigen Spaltprodukten ersetzt.

Im Gegensatz zum thermischen Rasten gemäss 4.2 kann die Spaltprodukt-Anhäufung jedoch auch im Brutstoffbereich wirksam werden. Sie wird dort u.U. sogar begünstigt durch besonders niedrige Temperatur (bezügl. Kondensation, am kälteren Brennstabende) und durch erhöhtes O/M-Verhältnis (bezügl. Reaktion, bei Einsatz von unterstöchiometrischem Brennstoff). Cs-Anhäufung am Anfang der Brutstoffsäule wurden meistens an beiden Brennstabenden gefunden /25/. Sie können mit beträchtlichen Hüllaufweitungen am Übergang zwischen Brennstoff und Brutstoff verbunden sein. Abb. 13 zeigt ein besonders deutliches Beispiel an einem Brennstab, dessen mittlere plastische Hülldehnung wahrscheinlich nur etwa 0,1% beträgt.

Bei der künftigen Untersuchung der Hülldehnung durch Spaltprodukt-Anhäufung ist dem Einfluss des Brennstoff-O/M-Verhältnisses und der Brutstoffporosität besondere Aufmerksamkeit zu widmen. Nach einigen vorläufigen Ergebnissen (s.a. Abb. 13) scheinen sich bei einem O/M-Verhältnis von 1,965 viel stärkere lokale Hülldehnungen zu ergeben als bei  $O/M = 1,99$ , wahrscheinlich durch stärkeren Transport von metallischem Cs zum Brutstoff. Versuche, die Spaltprodukt-Anhäufung durch eine beträchtliche Erhöhung der Brutstoffporosität (evtl. nur am Anfang der Brutstoffsäule) unschädlich zu machen, sind noch nicht bekannt geworden.

### Literatur

- /1/ Brucklacher D., Dienst W.  
in Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors, IAEA (1974) 147
- /2/ Zimmermann H.  
Reaktortagung 1974, Berlin, Deutsches Atomforum, Bericht 234
- /3/ Zimmermann H.  
in KFK 1864 (1974) Abschnitt 2
- /4/ Zimmermann H.  
in KFK 1960 (1974) Abschnitt 2

- /5/ Brucklacher D., Dienst W.  
J.Nucl. Mat. 42 (1972) 285
- /6/ Zimmermann H.  
in KFK 1400 (1971) Abschnitt XVI
- /7/ Nelson R.C., Zebroski E.L.  
Trans. ANS 9 (1966) 412
- /8/ Grando C., Montgomery M., Strasser A.  
Conf. on Fast Reactor Fuel Element Technology, New Orleans, 1971
- /9/ Chubb W., Storhok V.W., Keller D.L.  
Nucl. Technol. 18 (1973) 231
- /10/ Anselin F. u.a.  
Trans. ANS 11/2 (1968) 514
- /11/ Dienst W., Ondracek G.  
in KFK 1727 (1973) Abschnitt 4
- /12/ Bellamy R.G., Rich J.B.  
J.Nucl.Mat. 33 (1969) 64
- /13/ Dienst W., Götzmann O., Ondracek G., Zimmermann H.  
Reaktortagung 1973, Karlsruhe, Deutsches Atomforum, ZAED, S. 295
- /14/ Carteret Y. u.a.  
in Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors, IAEA (1974) 17
- /15/ Marlowe M.O.  
Bulletin Am.Ceram.Soc. 51/4 (1972) 388
- /16/ USAEC  
Technical Report on Densification of Light Water Reactor Fuels,  
Regulatory Staff, USAEC (1972)
- /17/ Assmann H., Stehle H.  
Reaktortagung 1973, Karlsruhe, Deutsches Atomforum, ZAED, S. 409
- /18/ Brucklacher D., Dienst W.  
Int.Conf. on Nuclear Fuel Performance, BNES, London, 1973, Paper 60
- /19/ Collins D.A., Hargreaves R.  
Int.Conf. on Nuclear Fuel Performance, BNES, London, 1973, Paper 50
- /20/ Ferrari H.M., Roberts E., Scott J.  
Int.Conf. on Nuclear Fuel Performance, BNES, London, 1973, Paper 54
- /21/ Kämpf H., Elbel H.  
KFK 1477 (1971)



- /22/ Hicks E.P., Hughes H.  
Fast Reactor Fuel Pin Modelling, in Europ. Conf. on Irradiation  
Embrittlement and Creep in Fuel Cladding and Core Components,  
BNES, London, 1972
- /23/ Gerken A.  
KFK 1913 (1974)
- /24/ Rubin B.F. u.a.  
Nucl. Technol. 16 (1972) 89
- /25/ Smailos E., Geithoff D.  
KFK 1648 (1972)

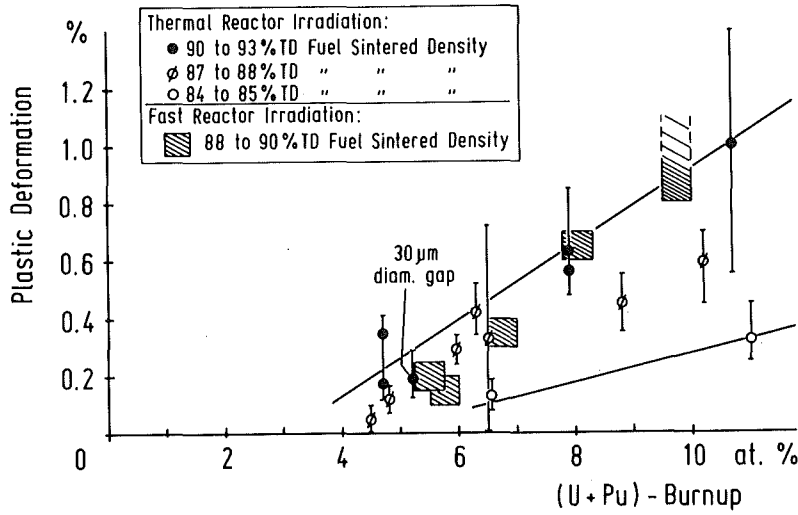


Abb. 1: Plastische Hülldenung von  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstäben verschiedener Versuchsgruppen in Abhängigkeit vom Abbrand (aus /1/)

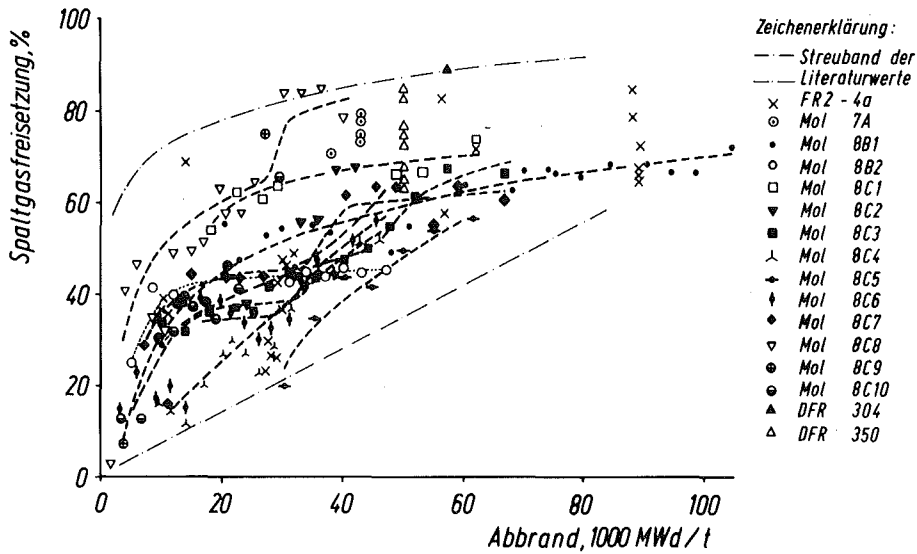


Abb. 2: Spaltgasfreisetzung bei  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstabbestrahlungen in Abhängigkeit vom Abbrand

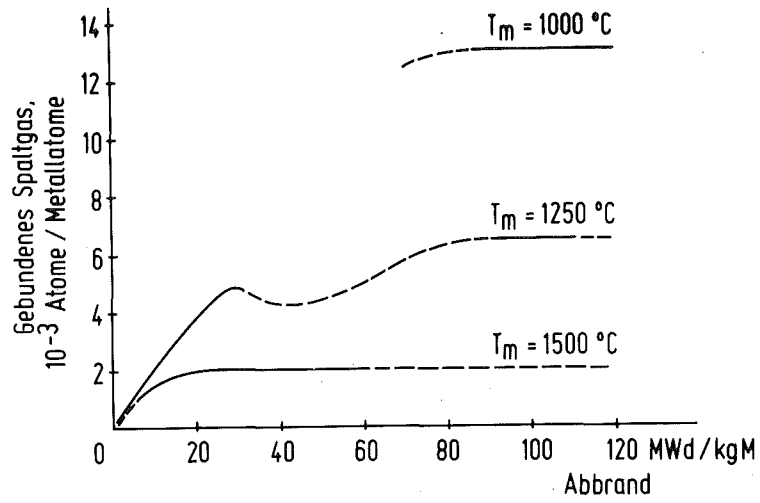


Abb. 3: Konzentration der im Brennstoff zurückgehaltenen Spaltgase in Abhängigkeit vom Abbrand für verschiedene mittlere Brennstofftemperaturen  $T_m$

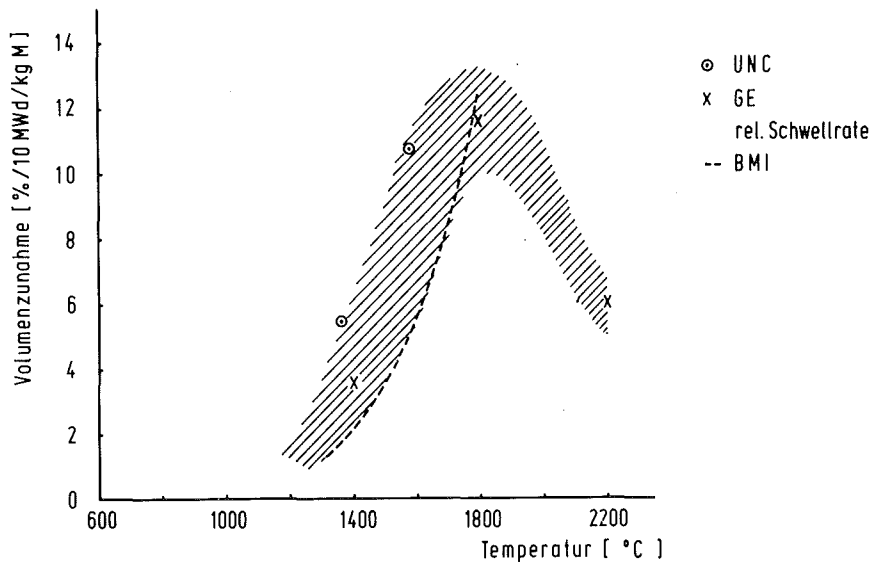


Abb. 4: Temperaturabhängigkeit der Schwellung von Oxidbrennstoff

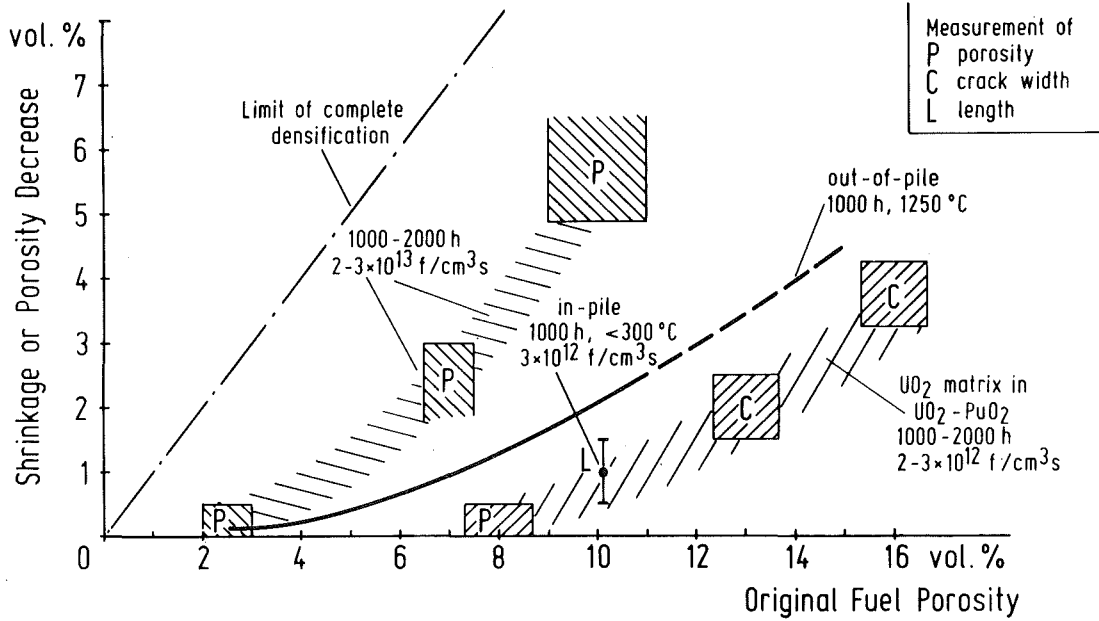


Abb. 5: Bestrahlungsbedingte Nachsinterung von Oxidbrennstoff in Abhängigkeit von der ursprünglichen Porosität, verglichen mit thermischer Sinterung in 1000 h bei 1250°C (aus /18/)

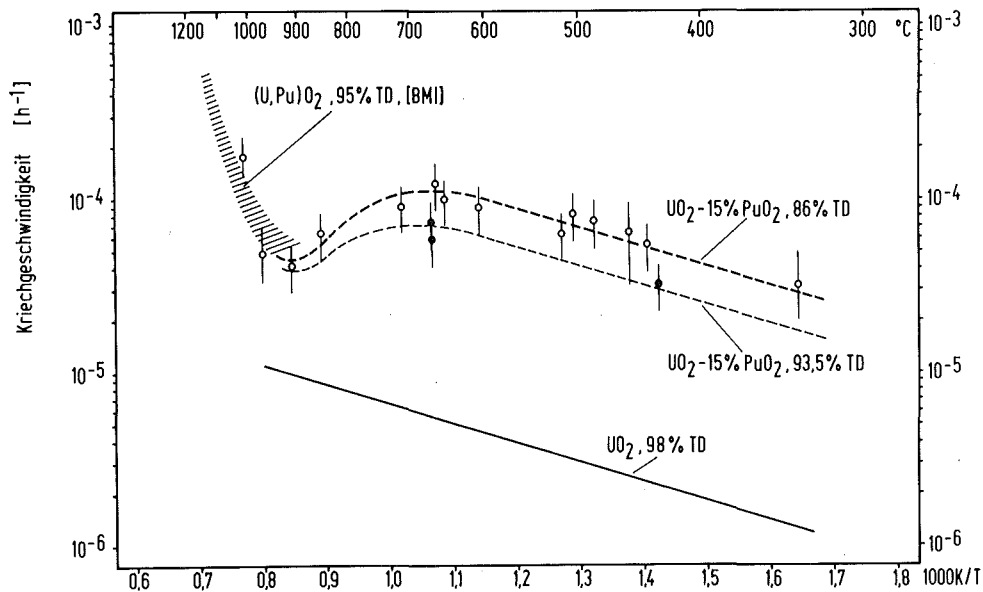


Abb. 6: Stationäre Kriechgeschwindigkeit von UO<sub>2</sub> und UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> verschiedener Dichte unter Bestrahlung in Abhängigkeit von der Temperatur ( $\sigma = 1,5 \text{ kp/mm}^2$ ,  $S = 3 \times 10^{-9}$  Spaltungen/(U+Pu)-At·s)

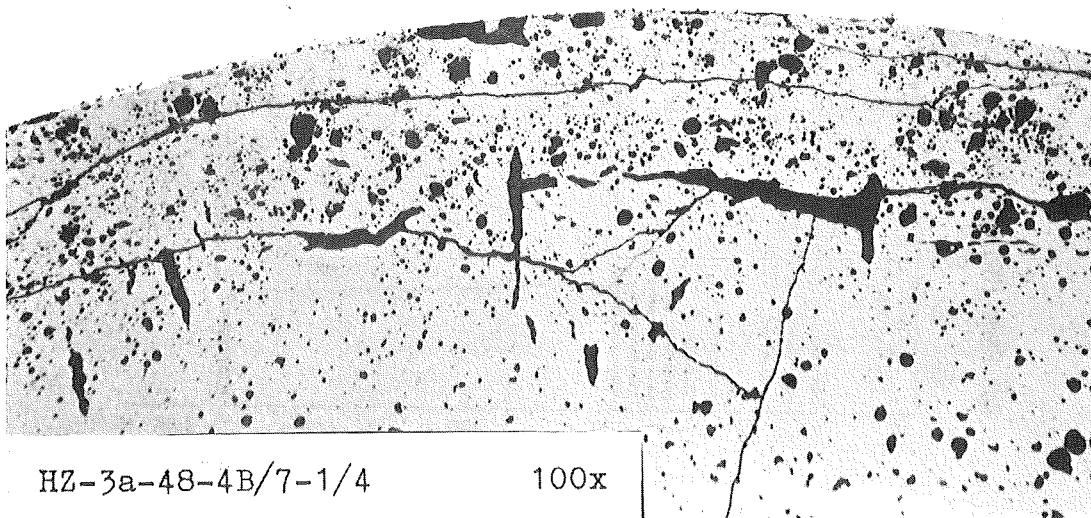
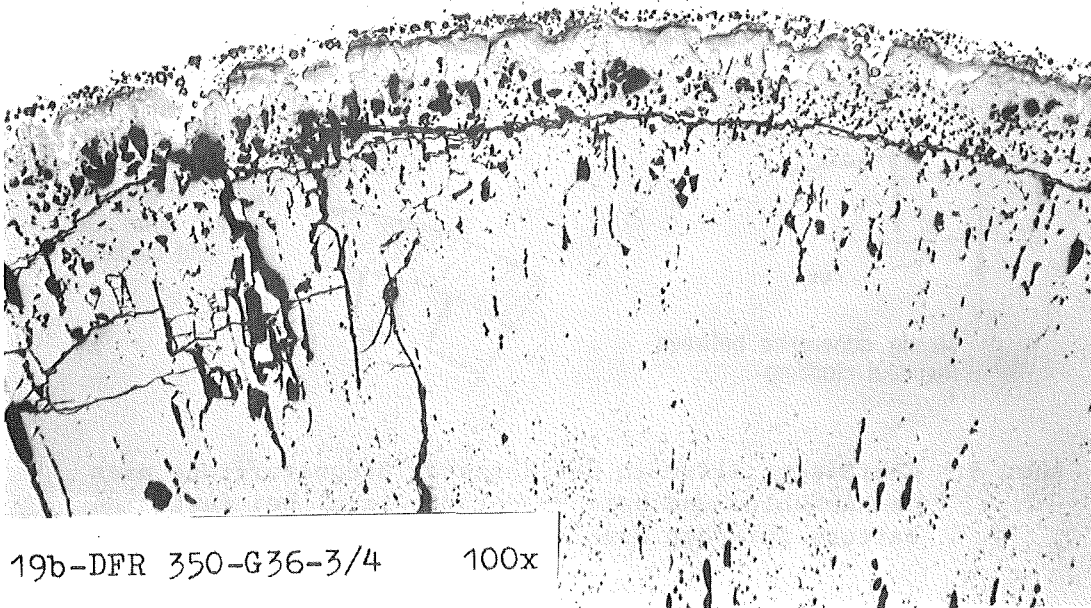


Abb. 7: Rissausheilung unter Bildung neuer Poren in der äusseren Brennstoffzone bei fester Haftung an der Hülle

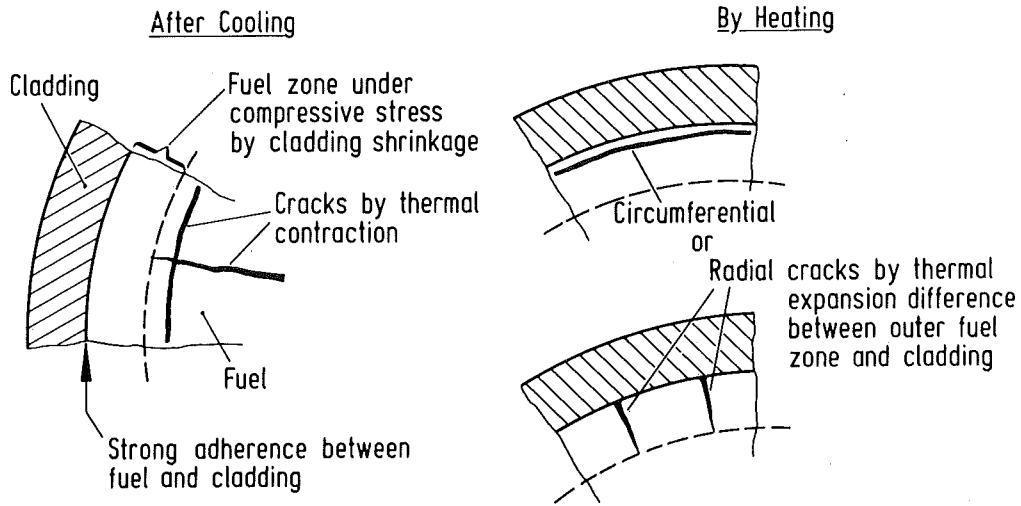


Abb. 8: Thermische Risse in der äusseren Brennstoffzone nach dem Abkühlen und beim Wiederaufheizen, bei fester Haftung zwischen Brennstoff und Hülle (aus /1/)

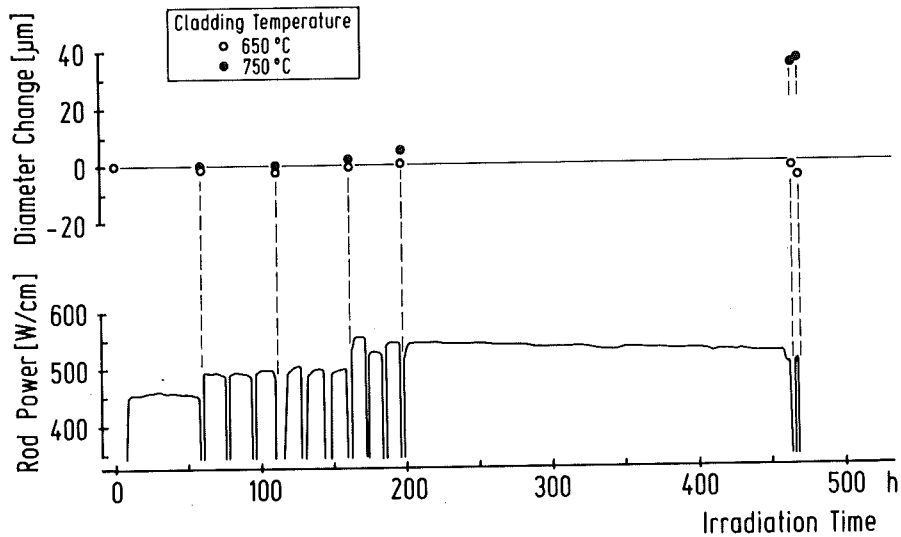


Abb. 9: Durchmesseränderung eines  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstabes im Verlauf einer Folge von Leistungszyklen (aus /1/)

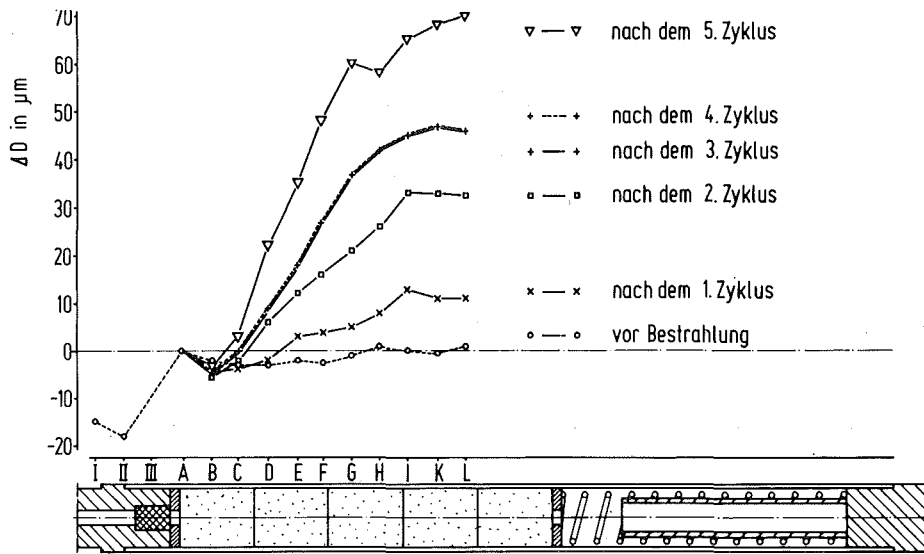


Abb. 10: Durchmesseränderung entlang eines kurzen  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstabes nach Teillastzyklen

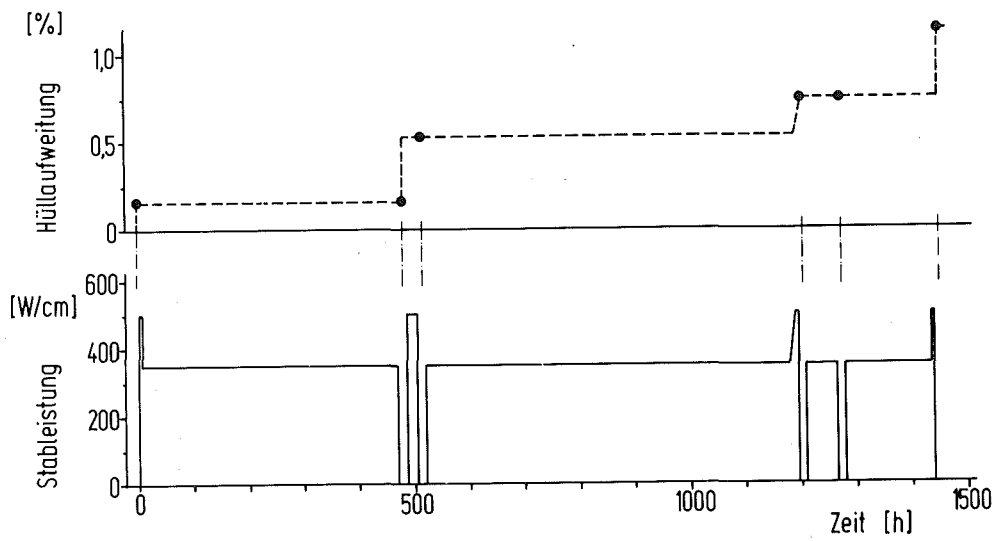


Abb. 11: Hüllaufweitung eines  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstabes nach Teillastzyklen in einer Folge von Leistungszyklen

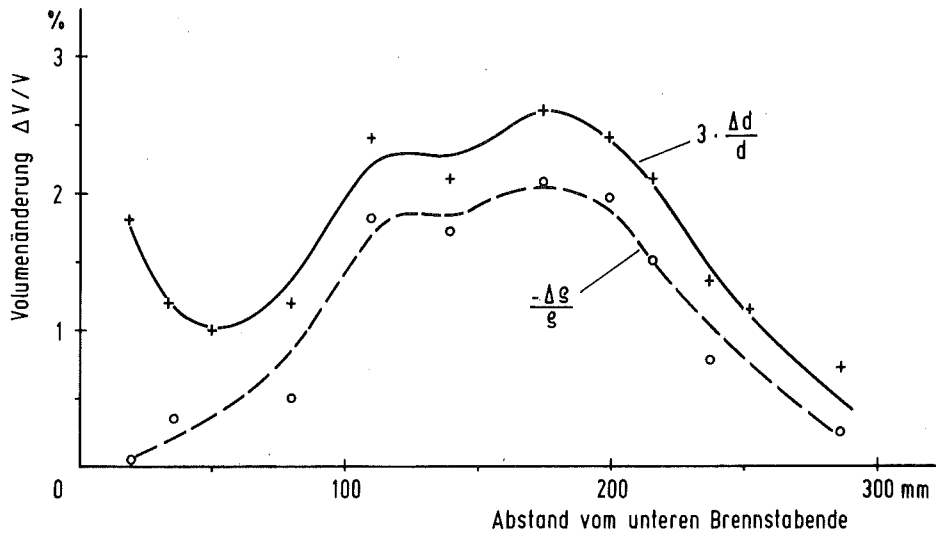


Abb. 12: Vergleich der Hüllmaterial-Volumenänderung eines  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstabes aus Dichte- und Stabdurchmesseränderung nach Bestrahlung im schnellen Neutronenfluss

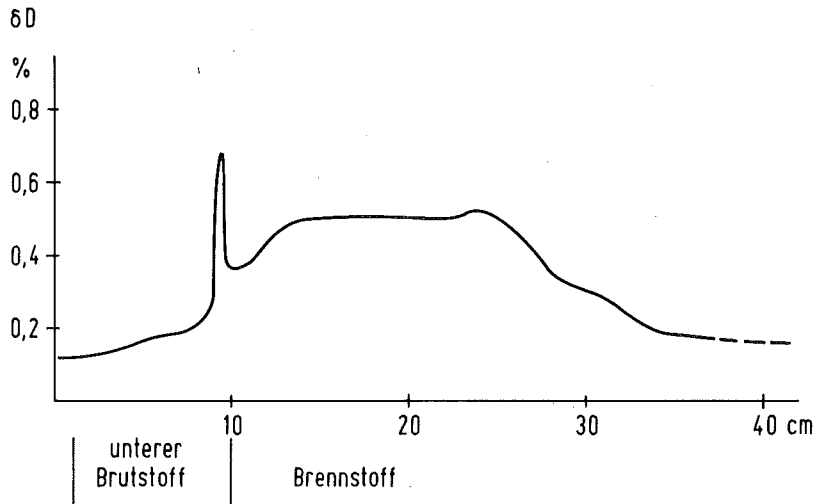


Abb. 13: Axiales Profil der Hülldurchmesser-Vergrößerung an einem  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstab nach max. 10% Abbrand im schnellen Neutronenfluss



V. CHEMISCHE WECHSELWIRKUNG ZWISCHEN BRENNSTOFF, SPALTPRODUKTEN  
UND DER HÜLLE

von

O. Götzmann, P. Hofmann, H. Kleykamp

Inhalt:

1. Einleitung
2. Nachbestrahlungsergebnisse
3. Einflüsse auf die Angriffstiefe
4. Erwarteter Hüllangriff für SNR-Brennstäbe

## 1. Einleitung

Die Hüllmaterialverträglichkeit mit dem Brennstoff ist für einen Oxidstab deshalb ein Problem, weil der Brennstoff durch die Bestrahlung chemisch verändert wird. Es entstehen Spaltprodukte, die Reaktionen mit der Hülle verursachen, und es steigt das Sauerstoffpotential im Brennstoff an, da die entstehenden Spaltprodukte nicht die ganze Menge Sauerstoff binden, die von den gespaltenen Uran-bzw. Plutoniumatomen freigegeben wird. Beides ist für den Hüllangriff notwendig, die Spaltprodukte und das erhöhte Sauerstoffpotential. Der frische Brennstoff, unabhängig vom O/M-Verhältnis, reagiert nicht oder nur in geringem Umfang mit der Hülle.

Die Zusammenhänge und die Voraussetzungen für den Hüllangriff sind in vielen Arbeiten schon eingehend untersucht worden. Hier soll daher vor allem auf die entsprechenden Beobachtungen an den in Karlsruhe untersuchten Brennstäben eingegangen werden. Alle Details über die chemischen Wechselwirkungen zwischen Brennstoff, Spaltprodukten und Hülle, auch über diejenigen zwischen dem Brennstoff und den Spaltprodukten, sind dabei nur soweit interessant, wie sie Einfluß auf den Hüllangriff haben. Anhand der Mikrosondenbilder von den einzelnen Bestrahlungsnachuntersuchungen werden die spezifischen Angriffsmöglichkeiten der Spaltprodukte noch einmal kurz erläutert.

## 2. Nachbestrahlungsergebnisse

Im Projekt Schneller Brüter wurden verschiedene Bestrahlungsversuche durchgeführt, bei deren Nachbestrahlungsuntersuchungen auch das Problem der Verträglichkeit zwischen Brennstoff und Hülle behandelt wurde. Es handelte sich um die Versuchsgruppe FR2-4a mit 8 Kurzstäben, das Bündelexperiment Mol 7A mit 7 Stäben, das Trefoil DFR-304, das Bündelexperiment DFR-350, von dem 15 Stäbe untersucht worden sind, 4 Rapsodie-Monitor-Stäbe und das Rapsodie-Bündelexperiment mit 2 Bündeln, von denen bisher 7 Stäbe untersucht wurden.

## 2.1 Bisher abgeschlossene Versuchsgruppen

In der Versuchsgruppe FR2-4a wurden die Tablettendichte und der Abbrand variiert. Die Tablettendichte lag bei 85 und 92% TD, der Abbrand variierte zwischen 1 und 9 At.%. Die Hülle bestand aus einem 1.4988-Stahl. Der Brennstoff war nicht mit U-235 angereichert, das O/M-Verhältnis lag bei 1,98. Die maximale Hüllangriffstiefe betrug 10 bis 100  $\mu\text{m}$  bei maximalen Hüllinnentemperaturen zwischen 500 und 600 $^{\circ}\text{C}$ . Es wurde keine Abhängigkeit des maximalen Hüllangriffs von der Dichte des Brennstoffs und vom Abbrandgrad gefunden. Sowohl beim Brennstab B10 mit 1% Abbrand wie auch beim Brennstab 4A 22 mit 9% Abbrand wurde eine maximale Angriffstiefe von 100  $\mu\text{m}$  gemessen. Beim letztgenannten Stab waren allerdings mehr Reaktionsprodukte im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle zu beobachten. Der allgemeine Angriff war also größer, nicht aber die maximale Schwächung der Hülle, auf die es hier ankommt. Bei den Ergebnissen der Versuchsgruppe FR2-4a ist allerdings zu berücksichtigen, daß die Hülltemperatur bei hochabgebrannten Brennstäben im Verlauf der Bestrahlung bis auf 220 $^{\circ}\text{C}$  abgesunken war, so daß der hohe Abbrand sich beim Hüllangriff gar nicht bemerkbar machen konnte. Diese Ergebnisse sind deshalb bei der Zusammenstellung der bei den Stabbestrahlungen ermittelten Ergebnisse in Abb.1 nicht aufgeführt.

In dieser Abbildung sind die in den vier Bestrahlungsversuchen DFR-304, DFR-350, Rapsodie-Monitor und Mol 7A beobachteten Angriffstiefen aufgetragen. Wie man sieht, ist eine deutliche Tendenz erkennbar. Mit steigender Hüllinnentemperatur nehmen die maximalen Angriffstiefen zu. Um 500 $^{\circ}\text{C}$  und darunter ist praktisch kein Hüllangriff erkennbar. Die eingezeichnete Kurve soll eine obere Begrenzungslinie für den zu erwartenden Hüllangriff darstellen. Für sie ist die angegebene quadratische Abhängigkeit von T ermittelt worden. Genauso gut hätte man eine gerade Linie zwischen 500 $^{\circ}\text{C}$  und dem obersten Meßpunkt als Begrenzungslinie annehmen können. Die gekrümmte Kurve wurde gewählt, weil erstens die meisten Meßpunkte damit abgedeckt werden können und weil man zweitens der Theorie ein wenig entgegenkommt, daß dem Angriff ein Reaktionsvorgang mit einer thermischen Aktivierung zu Grunde liegt. Die Meßpunkte in dem Diagramm stellen die beobachteten maximalen Hüllangriffstiefen in den Brennstabpositionen dar, bei denen keramographische Schlifflinien angefertigt wurden. Nicht jeder Meßpunkt repräsentiert also den

maximalen Angriff in einem Einzelstab. Die Darstellung berücksichtigt nicht einzelne Parameter, wie das O/M-Verhältnis, den Abbrand, den Hüllmaterialtyp und die Bestrahlungszeit. Das Ausgangs-O/M-Verhältnis lag bei allen aufgeführten Brennstäben zwischen 1,98 und 2,00, der mittlere Abbrand zwischen 5 und 6 At.%. Als Hüllmaterialien waren vertreten die Stähle der Typen 1.4988, 1.4961, 1.4970 und AISI 316. Der 1.4988-Stahl wurde bei jedem Bestrahlungsversuch eingesetzt. Die bis zum Zeitpunkt der Fertigstellung dieses Diagramms stärksten Angriffstiefen wurden bei den DFR-350-Stäben gefunden. Die Ergebnisse der Rapsodie-Bündel-Bestrahlung sind hier noch nicht aufgeführt. Die Stäbe befinden sich gerade in der Nachuntersuchung. Einige Ergebnisse, über die später noch berichtet wird, liegen allerdings schon vor.

Die Angriffe bei Mol 7A scheinen, bezogen auf die gleiche Temperatur, allgemein etwas höher zu liegen als bei den anderen Versuchsgruppen. Ein Fehler in der Temperaturangabe ist nicht auszuschließen, braucht aber nicht der Grund dafür zu sein. Bei Mol 7A waren die Stabileistung mit 670 W/cm wie auch die Brennstofflänge mit 500 mm größer als bei den anderen Versuchsgruppen. Die Bestrahlungszeit war kleiner, sie betrug 139 Tage. Die übrigen Parameter waren mit denen der anderen Experimente vergleichbar, außer daß bei Mol 7A ein epithermischer Fluß herrschte und bei den anderen ein schneller Fluß. Mit Mol 7A wurden drei Stahltypen untersucht: die Typen 1.4988, 1.4961 und AISI 316. Der größte Angriff mit 90 µm trat im Zentralstab auf. Er hatte eine 1.4988-Hülle und wahrscheinlich die höchste Hüllinnentemperatur. Von den sechs Außenstäben waren jeweils zwei mit dem gleichen Material umhüllt. Eine 1.4961-Umhüllung war defekt im Bereich größter Stabileistung. Der Bruch konnte nicht auf den Innenangriff zurückgeführt werden. Die Hüllen aus den Stählen 1.4988 und AISI 316 zeigten Angriffstiefen an den anderen Außenstäben, die zwischen 40 und 60 µm lagen. Zu bemerken ist noch, daß der Angriff sowohl im Brennstoff- wie im Brutstoffgebiet erfolgte.

Ebenfalls starke Angriffe sind im Brutstoffgebiet der Stäbe des DFR-304-Experimentes gefunden worden. In Abb.2 werden Beispiele vom Hüllangriff im Stab G1 gezeigt. Das obere Bild ist ein Beispiel aus dem Brutstoffgebiet und das untere Bild aus der Brennstoffzone. Beide Positionen liegen etwa 10 mm auseinander. Beide Bilder zeigen charakte-

ristische Beispiele für den Korngrenzenangriff in einem 1.4988-Stahl. Im oberen Bild ist er noch in seiner ungestörten Ausbildung zu erkennen. Im unteren Bild dagegen ist er durch die mechanische Wechselwirkung zwischen dem Brennstoff und der Hülle gestört worden. Oft wird die im unteren Bild dargestellte Angrifferscheinung auch als Flächenangriff bezeichnet. Es handelt sich auch hier um einen echten Korngrenzenangriff. Die Reaktionszone setzt sich zusammen aus einem Gebiet mit metallischen Phasen, die direkt am Brennstoff anliegen, und einem Gebiet mit oxidischen Phasen näher an der Hülle und in den angegriffenen Korngrenzen der Hülle. Die Mikrosondenaufnahmen in Abb.3 veranschaulichen die Zusammensetzung der Reaktionszone. Die metallische Phase besteht im wesentlichen aus Eisen und Nickel, die oxidische Phase aus Chrom, Cäsium und etwas Molybdän. Bei allen drei DFR-304-Stäben war kein Angriff unmittelbar am Übergang Brennstoff/Brutstoff, wie es bei Mol 7A der Fall war, zu sehen, sondern erst einige mm unter- bzw. oberhalb des Übergangs. Diese Beobachtung bei den DFR-304-Stäben ist eine singuläre Erscheinung, die bei allen anderen untersuchten Bestrahlungsexperimenten nicht gefunden wurde.

Vom DFR-350-Bündelexperiment lagen von 15 Stäben keramographische Schlitze vor. Davon hatten 5 Stäbe Hüllen aus 1.4988-Stahl und 10 Stäbe Hüllen aus 1.4961-Stahl. Nicht von allen Stäben existierten Schlitze von der Stelle mit der höchsten Hüllinnentemperatur. Bei dieser Versuchsgruppe muß zwischen Außen- und Innenstäben unterschieden werden. In den äußeren Kühlkanälen waren die Kühlmitteltemperaturen deutlich geringer als in den inneren Kanälen. Entlang der Innenseite der Hülle bei den Außenstäben ist im Gegensatz zu den Innenstäben auch ein ungleichmäßiger Angriff beobachtet worden. Die größte Angriffstiefe betrug 130 µm; sie ist an einer 1.4961-Hülle gemessen worden (s.Abb.4). Sehr wahrscheinlich hat bei diesem Stab auch die höchste Hüllinnentemperatur des Bündels geherrscht. Die Angriffe bei den 1.4988-Hüllen reichten bis zu maximal 75 µm Tiefe. Die untere, heiße Brutstoffzone war bei den DFR-350-Stäben auf eine Isoliertablette reduziert. Hüllangriff im Bereich der Isoliertablette fand nicht oder nur in geringem Umfang statt. Über 25 µm ging er nicht hinaus. Allgemein ist bei den 1.4961-Hüllen ein stärkerer Angriff gefunden worden als bei den 1.4988-Hüllen.

## 2.2 Rapsodie-Bündelexperiment

Mit den Rapsodie-Experimenten wurden zwei verschiedene Brennstoffsorten und als Hüllmaterialien die Stähle vom Typ 1.4988 und 1.4970 untersucht. Eine Brennstoffsorte wurde von der Firma Alkem geliefert und hatte ein O/M-Verhältnis von 1,99 bis 2,00, die andere Brennstoffsorte wurde von der Firma Belgonucleaire geliefert mit einem O/M-Verhältnis von 1,965. Bei der Bündelbestrahlung wurde nach 366 Vollasttagen ein Abbrand von etwa 10 At.% erreicht. Bisher sind von den beiden Bündeln bei uns 7 Stäbe keramographisch untersucht worden. Zwei davon waren Belgonucleaire-Stäbe.

Augenfällig bei den Rapsodie-Stäben war der geringere Angriffsumfang durch den Belgonucleaire-Brennstoff. In Abb.5 wird ein Schliffbild eines Belgonucleaire-Stabes gezeigt. Der Angriff ist hier sehr gering. Nur vereinzelt werden Tiefen von 10 bis 20  $\mu\text{m}$  an den Korngrenzen festgestellt. Typisch für die Stäbe mit dem unterstöchiometrischen Oxidbrennstoff ist das Auftreten einer neuen, im Schliffbild grau erscheinenden Phase im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle. Wahrscheinlich handelt es sich um ein Cäsium-Uran-Oxid, das durch die Reaktion des Cäsiums mit dem überstöchiometrischen Brutstoff entstanden ist.

In Abb.6 ist zum Vergleich ein Schliffbild von einem Alkem-Stab wiedergegeben. Der Spalt zwischen Hülle und Brennstoff ist gefüllt mit Reaktionsprodukten. Der Reaktionsumfang an der Hülle ist wesentlich größer als beim Belgonucleaire-Stab. Die Reaktionszone beträgt 100  $\mu\text{m}$ , die eigentliche Angriffstiefe, die Hüllschwächung, jedoch nur 30 bis 40  $\mu\text{m}$ . Beide Bilder zeigen in etwa den durchschnittlichen Angriff, wie man ihn in den heißen Bereichen der Hülle für die jeweilige Brennstoffsorte findet. Die maximalen Angriffstiefen sind jedoch auch für den unterstöchiometrischen Brennstoff wesentlich größer. Bei den Belgonucleaire-Stäben konnte man an den heißen Stabenden vereinzelte Angriffsnester beobachten, wie an einem Beispiel in Abb.7 gezeigt wird. Dieser lokale Angriff fand im Brennstoffgebiet statt und erreichte eine Tiefe von 50  $\mu\text{m}$ . In der unmittelbaren Nachbarschaft scheint die Hülle intakt geblieben zu sein. Dieses Bild verdeutlicht den Beginn des Angriffs. Mit zunehmender Reaktionszeit werden mehrere solcher Angriffsnester entstehen, die dann zu einer Angriffsfront zusammenwachsen. Bei den

Belgonucleaire-Stäben ist aufgefallen, daß starke Angriffe, manchmal sogar der stärkste Angriff, im Brutstoffgebiet stattfindet, wie in Abb.8 gezeigt wird. Diese Aufnahme ist vom gleichen Stab wie in Abb.7, die Stelle liegt nur einige mm höher im Brutstoffbereich. Der Angriff reicht hier bis 75  $\mu\text{m}$  in die Hülle, eine Tiefe, die bei einigen Alkem-Stäben mit dem höheren O/M-Verhältnis im Brennstoff nicht erreicht wurde.

Alle bisher gezeigten Bilder des Rapsodie-Bündelexperimentes betrafen Angriffe an Hüllen aus 1.4988-Stahl. Es handelte sich durchweg um einen Korngrenzenangriff, wie er für diesen Stahl typisch zu sein scheint. Beim 1.4970-Stahl findet man neben Korngrenzenangriffen auch einen echten flächenförmigen Angriff wie er in Abb.9 dargestellt ist. Hier verläuft der Abkühlungsriß durch die Reaktionszone.

Der Reaktionsumfang ist ziemlich groß, es befindet sich eine große Menge an Reaktionsprodukten zwischen dem Brennstoff und der Hülle. Die Reaktionsproduktzone hat eine Dicke von ungefähr 100  $\mu\text{m}$ , die Angriffstiefe beträgt jedoch nur 50  $\mu\text{m}$ . In Abb.10 ist ein weiteres Beispiel dieses flächenförmigen Angriffes mit dem Abkühlungsriß unmittelbar an der Hülle dargestellt. Jenseits des Spaltes ist die Hülle nicht mehr angegriffen. Die Reaktionsproduktzone ist auch hier 100  $\mu\text{m}$  stark, die Hüllschwächung beträgt 60 bis 70  $\mu\text{m}$ . In beiden Fällen handelt es sich um ein großes Reaktionsausmaß, die Hüllschwächung blieb aber noch unter derjenigen des vorher gezeigten Stabes mit dem unterstöchiometrischen Brennstoff. Wenn ein flächenförmiger Angriff stattfindet, bleibt selbst bei großem Reaktionsumfang die Hüllschwächung relativ gering. Der flächenförmige Angriff scheint beim 1.4970-Stahl stärker aufzutreten als beim 1.4988-Stahl. Beim 1.4988-Stahl wurde er nicht beobachtet. Dort zeigt sich der Angriff durchweg als Korngrenzenangriff, manchmal so extrem wie in Abb.11. Hier beträgt die Angriffstiefe 130  $\mu\text{m}$ , es war der stärkste Angriff, der bei einer 1.4988-Hülle gefunden wurde.

Nach diesen Beobachtungen könnte man geneigt sein anzunehmen, daß der Stahl 1.4970 als Hüllmaterial besser geeignet ist als der 1.4988-Stahl. Jedoch ist der stärkste Angriff an einer 1.4970-Hülle beobachtet worden. Die Eindringtiefe beträgt, wie man aus Abb.12 entnehmen kann, rund 230  $\mu\text{m}$ , das ist der bisher größte in Karlsruhe gemessene Hüllangriff.

Das in Abb.12 gezeigte Angriffsnest erstreckt sich etwa über 1 mm Stablänge. Es sind noch mehrere ähnliche Angriffsnester in dem gleichen Hüllrohrabschnitt gefunden worden, sie erreichten aber nur Tiefen bis 70  $\mu\text{m}$ . Wenn auch der flächenförmige Angriff bei einem 1.4970-Stahl eher auftritt als beim 1.4988, werden also beim 1.4970 dennoch starke Korngrenzenangriffe gefunden.

Es ist durchaus möglich, daß der flächenförmige Angriff nur bei hohem Sauerstoffpotential und tieferen Temperaturen zustande kommt. Bei niedrigerem Reaktionspotential (durch vermindertes O/M) zeigt auch der 1.4970-Stahl vorwiegend Korngrenzenangriffe, wie in Abb.13 gezeigt wird. Sie zeigt eine Stelle aus dem Brennstoffgebiet nahe dem Übergang zum Brutstoff. Im Angriffsverhalten zwischen den Alkem- und Belgonucleaire-Stäben wurde außer den verschiedenen Reaktionsproduktmengen noch ein weiterer Unterschied bemerkt. Während bei den Alkem-Stäben wenig bzw. kein Angriff im Bereich des Brutstoffs zu erkennen war, traten bei den Belgonucleaire-Stäben die größten Angriffe im Brutstoffgebiet auf. Auch ist bei diesen Stäben ein Angriff nur in der unmittelbaren Nähe des Übergangs vom Brennstoff zum Brutstoff gefunden worden. Bei den Alkem-Stäben zog sich der Angriff dagegen über die halbe Brennstoffsäule hin. Er war am stärksten ungefähr 30 bis 50 mm unterhalb des Übergangs, dort wurde bei den Belgonucleaire-Stäben kein Angriff mehr beobachtet.

Dieses unterschiedliche Verhalten hängt sehr wahrscheinlich mit den unterschiedlichen Voraussetzungen für den Cäsium-Transport zusammen. Mit zunehmendem Sauerstoffpotential im Brennstoff fällt der Cäsiumdampfdruck ab. Dieser Abfall ist besonders steil im Bereich des O/M-Verhältnisses von 2,00. Denn bei diesem Sauerstoffniveau bildet das Cäsium Komplexoxide mit dem Brennstoff (Uranat), mit Spaltprodukten (Molybdat) oder, wenn Hüllangriff stattfindet, mit der Hülle (Chromat). Das Cäsium wird also weggegettert. Anders ist es bei O/M-Verhältnissen weit unterhalb 2,00. In diesen Fällen wandert das Cäsium über die Dampfphase zu den kälteren Gebieten, also in den Brutstoffteil, kondensiert dort an der Hülle oder reagiert mit dem Brutstoff, wenn vom Brutstoff genügend Sauerstoff zur Verfügung gestellt wird. Erreicht der Brennstoff während des Abbrandes ein höheres Sauerstoffpotential, wird auch Sauerstoff vom Brennstoff in die Brutstoffzone transportiert, was dort dann zum Hüllangriff führt. Daß der Sauerstoff für die Reaktion mit der Hülle vom



Brutstoff kommt, ist weniger wahrscheinlich, da der Brutstoff relativ kalt ist und daher nur ein geringer  $O_2$ -Partialdruck bzw.  $UO_3$ -Druck entstehen kann. Ganz auszuschließen ist jener Mechanismus aber nicht.

Abb.14 veranschaulicht den Cäsiumrückhalt im Brennstoff bei O/M-Verhältnissen von ungefähr 2,00. Es handelt sich hier um ein mit der Mikrosonde gewonnenes Cäsium-Konzentrationsprofil über den Querschnitt einer Probe eines DFR-350-Stabs. Cäsium ist am Rand des Brennstoffs, wo die Bedingungen für die Komplexbildung günstig sind, angereichert.

### 2.3 Mikrosonden-Untersuchungen

In den Abb. 15 bis 18 werden einige Mikrosondenaufnahmen von Reaktionszonen in Brennstäben gezeigt. In Abb.15 handelt es sich um einen Schliff aus einem Mol 7A-Stab. Hier sind deutlich Cäsium- und Palladium-Intensitäten in den angegriffenen Korngrenzen des Hüllmaterials zu erkennen. Schwach ist auch Tellur in den Korngrenzen vertreten, mehr jedoch in der Reaktionszone an der Hülle. Deckungsgleich mit dem Cäsium erkennt man auch Anreicherungen an Chrom. In Abb.16 sind Mikrosondenaufnahmen einer Angriffszone eines DFR-350-Stabes dargestellt. Man erkennt deutlich die Verteilung der Elemente in den verschiedenen Phasen: Eisen und Nickel in der metallischen Phase am Brennstoff und in dem metallischen Anteil der mehrphasigen Zone unmittelbar an der Hülle; Cäsium, Tellur, Technetium und Chrom in den oxidischen Phasenanteilen, wie auch in den Korngrenzen. Die Molybdänintensität in der Reaktionszone ist sehr gering. Die Hülle bestand aus einem 1.4988-Stahl, der nominell etwa 1% Molybdän enthält. In Abb.17 sind Mikrosondenaufnahmen aus der Angriffszone eines anderen DFR-350-Stabes gezeigt. Man erkennt hier deutlich die Intensitäten an Cäsium, Tellur und Molybdän in der Reaktionszone wie auch in den Korngrenzen der Hülle. Hier handelt es sich um eine Umhüllung aus 1.4961-Stahl, der nominell kein Molybdän enthält. Die Mikrosondenaufnahmen in Abb.18 verdeutlichen, daß im heißen Brutstoffteil der DFR-350-Stäbe kaum ein Hüllangriff stattfand. Sie zeigen ebenfalls die Zusammensetzung der neu entstandenen grauen Phase im Spalt zwischen Hülle und Brutstoff. Man erkennt, daß sie offensichtlich aus Oxiden verschiedener Zusammensetzung besteht.

Die Mikrosondenaufnahmen haben gezeigt, daß eine Menge Spaltprodukte

in den Angriffszonen der Hüllen gefunden werden. Nicht alle diese Spaltprodukte sind verantwortlich für den Hüllangriff. Bei unseren out-of-pile-Untersuchungen hat sich herausgestellt, daß im wesentlichen die drei Spaltprodukte Cäsium, Tellur und Jod Angriffe an austenitischen Stählen verursachen. Unter diesen drei muß wiederum das Cäsium wegen seiner relativ hohen Konzentration im Brennstoff nach einem gewissen Abbrand als das kritischste Spaltprodukt in Bezug auf den Hüllangriff angesehen werden. Molybdän und Palladium, die häufiger in den Reaktionszonen und sogar auch in den angegriffenen Korngrenzen gefunden werden, scheinen dagegen nicht ursächlich für den Hüllangriff verantwortlich zu sein. Sehr wahrscheinlich kommen diese Elemente erst nach dem Angriff in die Reaktionszone bzw. in die angegriffenen Korngrenzen.

### 3. Einflüsse auf die Angriffstiefe

In Abb.19 sind Hüllangriffstiefen, die bisher veröffentlicht worden sind, in Abhängigkeit von der Hüllinnentemperatur aufgetragen. Wenn man dieses Diagramm ansieht, könnte man den Eindruck bekommen, daß bei genügend hoher Hüllinnentemperatur (ca. 600°C) alles möglich ist: Angriffe von 0 bis 200 µm. Daraus ergibt sich eine begründete Veranlassung, hinter allen möglichen Parametern einen Einfluß auf den Hüllangriff zu sehen. Vieles, was hierüber angeboten wird, trifft bestimmt nicht zu. Ausschlaggebend für das Zustandekommen des Angriffs sind das notwendige Sauerstoffpotential und die Temperatur sowie die Anwesenheit von Cäsium. Alle anderen Faktoren scheinen nur insofern von Bedeutung zu sein, als sie diese drei Größen beeinflussen. Dichte, Stableistung, Neutronenenergie sowie Verunreinigungen, wie Feuchtegehalt oder Kohlenstoffgehalt, sind hier alle klar und ohne weitere Diskussion als ohne Einfluß auf die Hüllangriffstiefe zu sehen. Diese Parameter sind entweder für den Hüllangriff nicht verantwortlich oder können keinen Einfluß auf seine Tiefe haben, weil im Bereich der Variationsmöglichkeit dieser Faktoren keine Wirkung auf den Hüllangriff erkennbar ist.

Etwas sorgenvoll wird bei der Schnellbrüterentwicklung die Möglichkeit großer Hüllangriffe bei hohen Abbränden betrachtet. Bisher liegen im wesentlichen Ergebnisse von Stäben mit mittleren Abbrandgraden (5 bis 6%) vor. Die Erfahrung mit höheren Abbränden ist noch nicht groß. Auch

wurden bisher im schnellen Fluß nur Testbrennstoffe mit hoher U-235-Anreicherung verwendet. Auf Grund der überwiegenden Uranspaltung in diesen Brennstoffen kommt es zu einer geringeren Sauerstoffpotentialerhöhung als bei reiner Plutoniumspaltung. In den Brennstoffen der Schnellen Brüter hat man es aber mit einer reinen Plutoniumspaltung zu tun, wodurch die O/M-Erhöhung im Brennstoff während des Abbrandes fast doppelt so groß wird. Bei einem Ausgangs-O/M-Verhältnis des Brennstoffs von oder knapp 2,00 hat dieser Umstand möglicherweise keinen negativen Effekt auf den Hüllangriff. Bei einem stöchiometrischen Ausgangsbrennstoff ist sowohl bei Uran- wie auch bei Plutoniumspaltung genügend Sauerstoff für die Hüllmaterialreaktionen vorhanden. Bei den ins Auge gefaßten maximalen Hüllinnentemperaturen sind die Reaktionen mit der Hülle langsamer als die Bereitstellung von reaktiven Elementen. D.h., die Hülle kann nicht so schnell den Sauerstoff aufnehmen, wie er vom Brennstoff zur Verfügung gestellt wird. Anders sieht die Situation aus, wenn man versucht, das Ausgangs-O/M-Verhältnis des Brennstoffes stark zu reduzieren, um ein geringeres Sauerstoffangebot für den Hüllangriff zu haben. Bei den Schnellbrüter-Brennstoffen muß das O/M-Verhältnis viel stärker reduziert werden als bei den bisherigen Testbrennstoffen, um den gleichen Effekt zu erhalten.

Bei den bisherigen Bestrahlungsuntersuchungen hatte sich gezeigt, daß schon nach kurzen Abbränden (ca. 3%) Angriffstiefen von 100 µm beobachtet werden können. Höhere Abbrandgrade vergrößern den Angriffsumfang, d.h., die Reaktionsproduktzonen werden größer, die Hüllangriffstiefe selbst dagegen scheint nicht in gleicher Weise zuzunehmen. Die Abhängigkeit des Hüllangriffs vom Abbrandgrad für ein Brennstoff-Ausgangs-O/M-Verhältnis von etwa 2,00 kann mit der nachfolgenden Tabelle 1 veranschaulicht werden.

Ausgangs-O/M $\approx 2,00$	i.a. zu erwartender max. Hüllangriff	Allgemeiner Angriff	Wahrscheinl. großer Angriffe
bei geringem Abbrand (3 - 5 %)	100 $\mu\text{m}$	gering	↓
bei hohem Abbrand ( $\approx 10$ %)	120 $\mu\text{m}$	groß	

Tabelle 1: Nach geringen bis mittleren Abbrandgraden wird man demnach schon mit Angriffstiefen von etwa 100  $\mu\text{m}$  zu rechnen haben. Bei höheren Abbrandgraden wird sich der maximale Angriff nicht wesentlich erhöhen. Der allgemeine Angriff wird jedoch nach einem hohen Abbrand viel größer sein als nach einem geringen Abbrand. Ebenfalls nimmt die Wahrscheinlichkeit des Auftretens von großen Angriffstiefen mit dem Abbrandgrad zu.

Ähnlich kann die Abhängigkeit des Hüllangriffs vom Brennstoff-Ausgangs-O/M-Verhältnis dargestellt werden. Bei kurzen Bestrahlungen wird der Einfluß des O/M-Verhältnisses noch am deutlichsten sein. Auf hohe Abbrände bezogen sieht der Einfluß des Ausgangs-O/M-Verhältnisses jedoch aus, wie in der nachfolgenden Tabelle 2 gezeigt wird:

Hoher Abbrand (~10%)	i.a. zu erwartender max. Hüllangriff	Allgemeiner Hüllangriff	Wahrscheinl. großer Angriffe
O/M << 2,00 (≈1,96)	100 μm	gering	↓
O/M ≈ 2,00	120 μm	groß	

Tabelle 2: Wie das Schema für die Abhängigkeit des Hüllangriffs vom Abbrandgrad soll auch diese Tabelle gelesen werden. Nach einem Abbrand von 10 % muß auch für Ausgangs-O/M-Verhältnisse von etwa 1,96 mit Hüllangriffstiefen bis zu 100 μm gerechnet werden. Die Angriffstiefen, die man bei einem Ausgangs-O/M-Verhältnis von 2,00 zu erwarten hat, sind nicht viel größer. Der allgemeine Angriff jedoch ist bei hohen Ausgangs-O/M-Verhältnissen immer größer als bei kleinen Ausgangs-O/M-Verhältnissen. Ebenfalls nimmt die Wahrscheinlichkeit des Auftretens großer Hüllangriffstiefen mit dem Ausgangs-O/M-Verhältnis des Brennstoffes zu.

Bei der Beurteilung des Einflusses des Ausgangs-O/M-Verhältnisses auf den Hüllangriff muß die O/M-Erhöhung des Brennstoffs mit dem Abbrand berücksichtigt werden. Bei reiner Plutoniumspaltung beträgt die O/M-Erhöhung 0,008 pro % Abbrand, wenn die Seltenen Erden mit einer Wertigkeit von 3 in die Rechnung eingesetzt werden. Unter Annahme einer Wertigkeit der Seltenen Erden von 4 wird die O/M-Erhöhung auf 0,006 pro % Abbrand reduziert. Bei vorwiegender U-235-Spaltung im Mischoxid und einer Wertigkeit der Seltenen Erden von 3 beträgt die O/M-Erhöhung 0,005 pro % Abbrand und bei einer Wertigkeit der Seltenen Erden von 4 nur noch 0,0025 pro % Abbrand. Bei niederem Sauerstoffpotential im Brennstoff ist die Wahrscheinlichkeit, daß die Seltenen Erden dreiwertig vorliegen, größer. Für frischen Brennstoff mit stark reduziertem O/M-Verhältnis scheint deshalb die Annahme einer Wertigkeit von 3 für die Seltenen Erden als naheliegend. Für annähernd stöchiometrischen Brennstoff scheint dagegen eine Wertigkeit der Seltenen Erden von 4 zutreffender zu sein. D.h., in stark unterstöchiometrischem Brennstoff ist die O/M-Erhöhung noch rela-

tiv hoch. Bei nahezu stöchiometrischem Brennstoff ist sie geringer. Für geringe bis mittlere Abbrandgrade besteht demnach eine Zwischenabhängigkeit des Hüllangriffs von dem Ausgangs-O/M-Verhältnis und dem Abbrandgrad. Bei höheren Abbrandgraden wird diese Zwischenabhängigkeit unbedeutender.

Die Abhängigkeit des Hüllangriffs von der Zeit dürfte sich ähnlich verhalten wie die vom Abbrand. Ein eindeutigeres Zeitgesetz für den Hüllangriff ist mit den bisherigen Ergebnissen noch nicht gefunden worden. Es sieht so aus, als ob nach einer gewissen Zeit die Angriffstiefe nur noch sehr langsam fortschreitet. Ein lineares Zeitgesetz, wie es in amerikanischen Publikationen vorgeschlagen wird, ist auf jeden Fall nicht angebracht. Wird den bei uns ermittelten Angriffstiefen eine parabolische Zeitabhängigkeit zu Grunde gelegt, erhält man die in Abb.20 dargestellte Abhängigkeit des Hüllangriffs von der Zeit und der Temperatur.

Die Temperaturabhängigkeit ist zumindest qualitativ eindeutig. Unter  $500^{\circ}\text{C}$  findet praktisch kein Angriff statt; über  $500^{\circ}\text{C}$  nimmt er mit der Temperatur zu. Dabei scheint der Anstieg zwischen  $500$  und  $600^{\circ}\text{C}$  steiler zu sein als bei Temperaturen über  $600^{\circ}\text{C}$ , wenn die Temperaturfunktion in einer Arrhenius-Darstellung betrachtet wird (s. Abb.20).

Einem bestimmten Hüllmaterialtyp unter den bis jetzt untersuchten austenitischen Stählen kann auf Grund der Ergebnisse kein Vorzug gegeben werden. Bei dem DFR-350-Experiment erwies sich der 1.4988-Stahl als etwas besser als der 1.4961-Stahl. Nach den bisherigen Resultaten aus den Rapsodie-Bündel-Untersuchungen muß man, wenn man den tiefen Angriff an einer 1.4970-Hülle berücksichtigt, dem 1.4988-Stahl eher den Vorzug geben. Die Ergebnisse sind im einzelnen betrachtet jedoch zu unterschiedlich, als daß man eindeutigere Angaben machen könnte. Zu einer verlässlichen Statistik ist die Anzahl der bei uns untersuchten Stäbe noch zu gering.

#### 4. Erwarteter Hüllangriff für SNR-Brennstäbe

Für die besonderen SNR-Bedingungen, wie Heißstellen-Temperaturen  $680^{\circ}\text{C}$ , 10 At.% Abbrand, reine Plutoniumspaltung und ein Ausgangs-O/M-Verhältnis von etwa 1,98, wird der Hüllangriff in 90 bis 95% der Fälle unter

150  $\mu\text{m}$  bleiben. Für etwas tiefere Ausgangs-O/M-Verhältnisse, z.B. 1,95, würde der Prozentsatz der Stäbe mit hohem Hüllangriff etwas niedriger liegen. Hüllangriffe über 150  $\mu\text{m}$  hinaus können jedoch in beiden Fällen nicht ausgeschlossen werden. Um eine zuverlässige Verminderung des Hüllangriffs zu erreichen, müßte man entweder das O/M-Verhältnis des Brennstoffs stark reduzieren (auf etwa 1,92) oder aber in den Brennstab sauerstoffbindende Stoffe, sogenannte Getter einbringen. Bei uns sind schon vielversprechende Ergebnisse mit Niob, Zirkon und Uran als Getter erhalten worden, allerdings nur out-of-pile. Eine endgültige Beurteilung der Wirksamkeit eines eingebrachten Getters ist jedoch erst nach Bestrahlungsversuchen möglich.

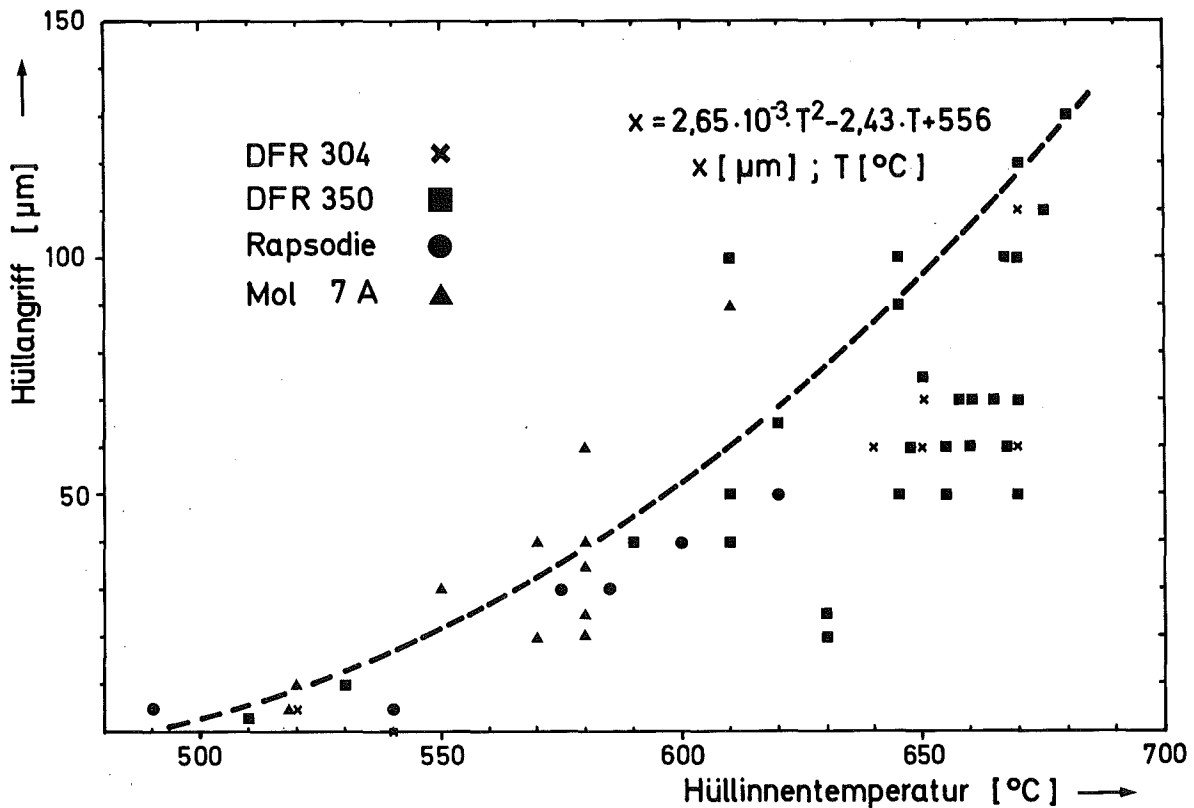
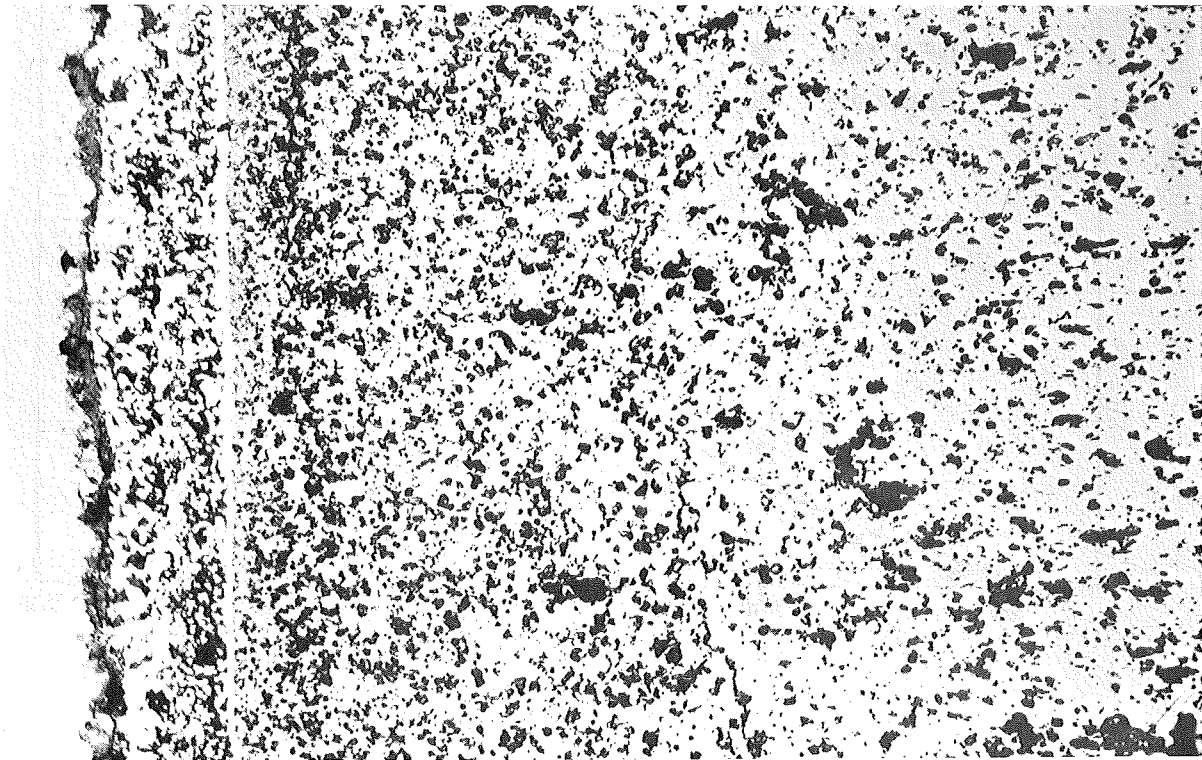
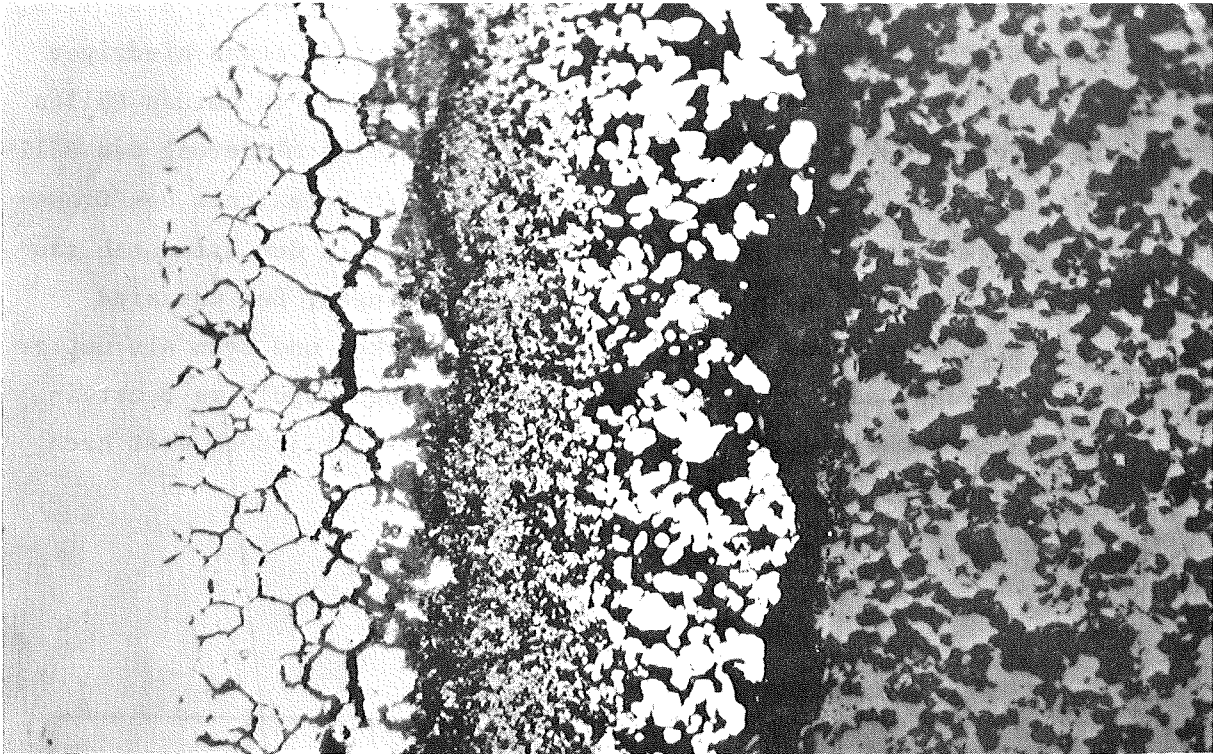




Abb. 1: Hüllangriffstiefen bei in Karlsruhe untersuchten Brennstäben



Ab. 2: Angriffszonen in einem DFR-304-Stab  
oben: Brutstoffzone , 20  $\mu\text{m}$    
unten: Brennstoffzone , 50  $\mu\text{m}$  



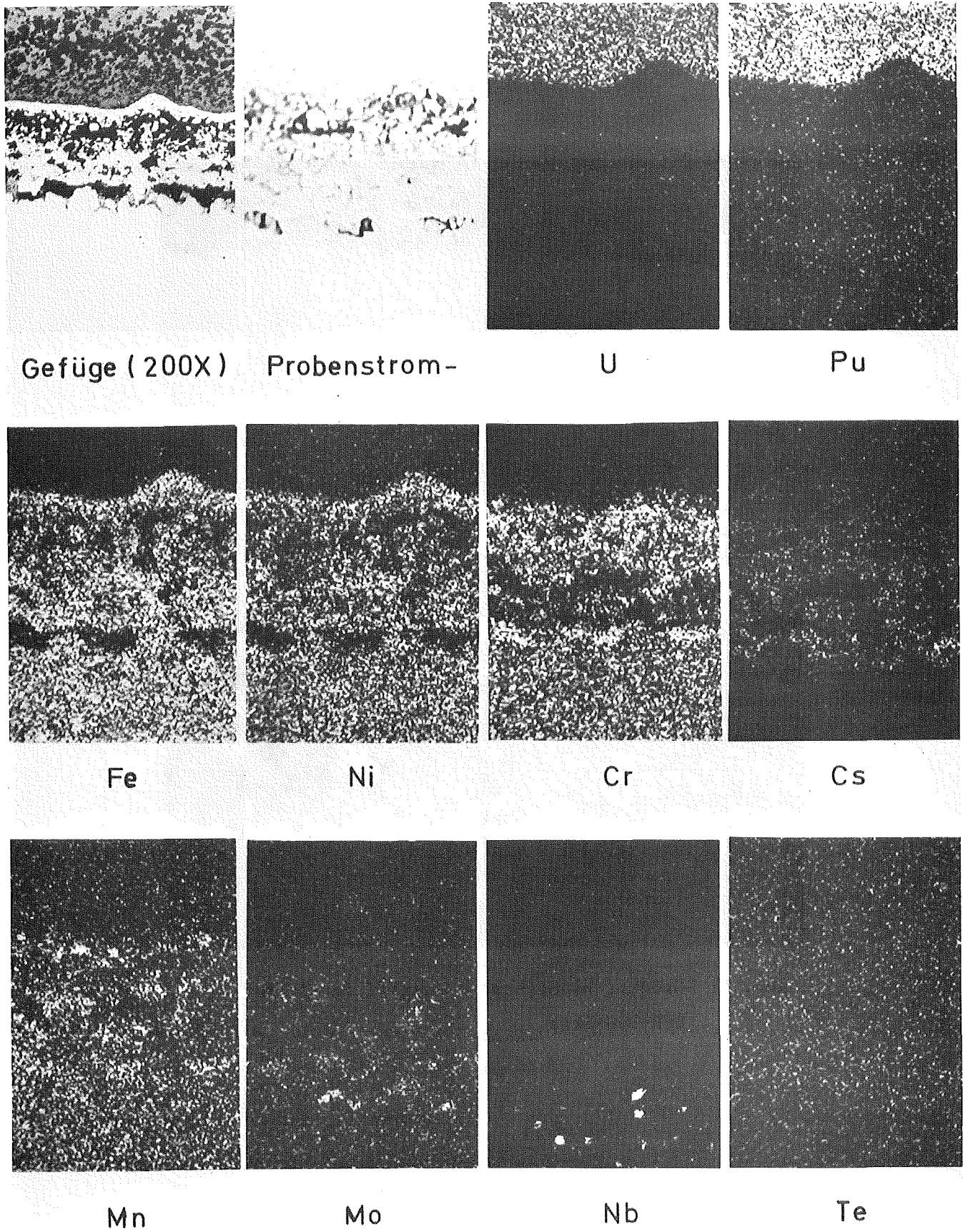


Abb. 3 Mikrosondenbilder der Reaktionszone von Abb. 2,  
unteres Bild 50  $\mu\text{m}$   $\longleftrightarrow$

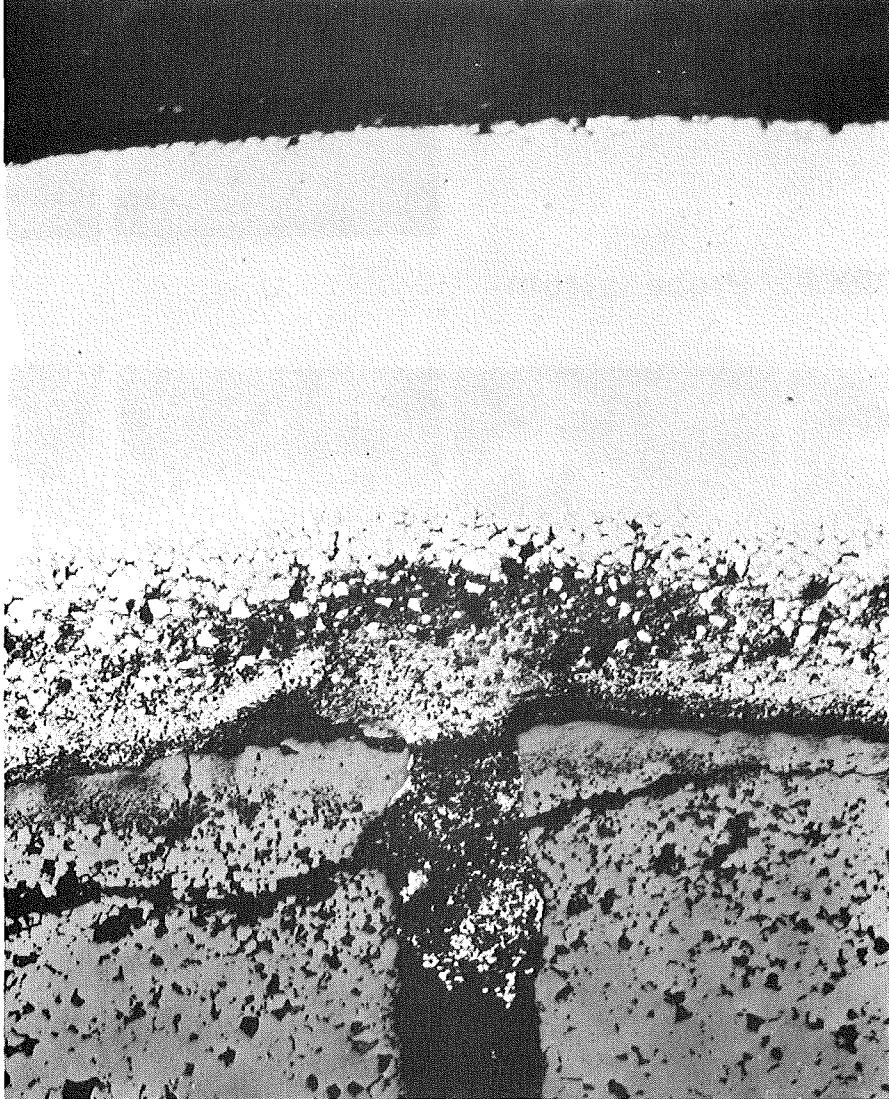


Abb. 4: Größter beobachteter Angriff in einem  
DFR-350-Stab



50  $\mu\text{m}$

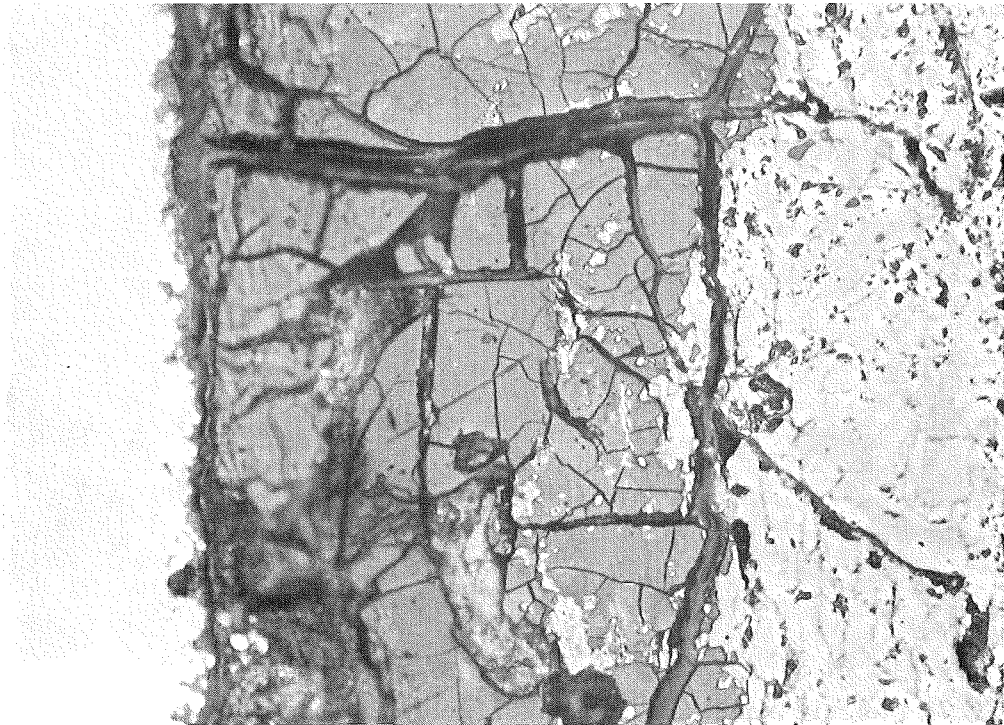


Abb. 5: Neu gebildete Phase im Spalt zwischen Hülle und Brennstoff in einem Belgonucleaire-Stab des Rapsodie-Bündel-Versuchs, 20  $\mu\text{m}$   $\longleftrightarrow$

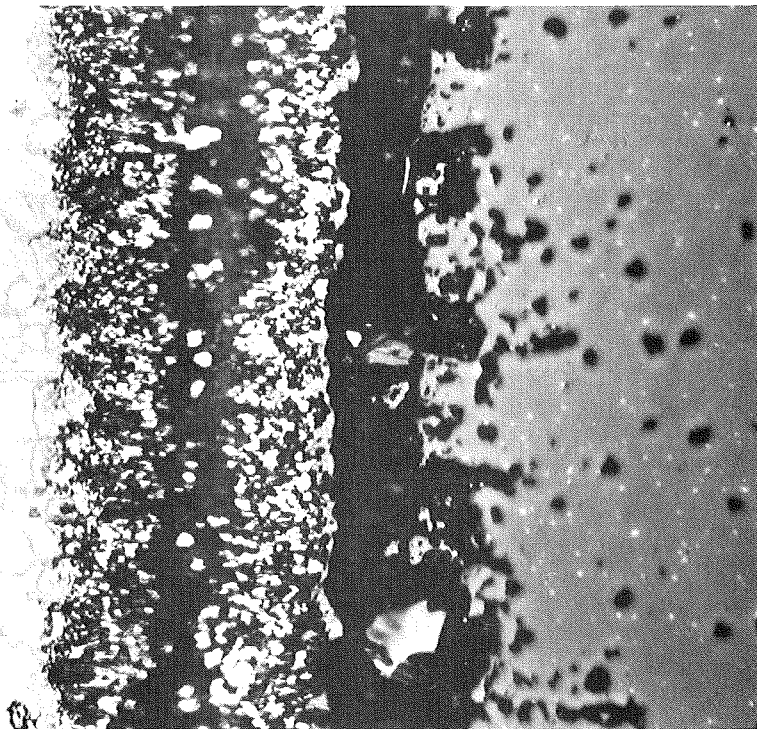


Abb. 6: Reaktionsprodukte im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle in einem Alkem-Stab des Rapsodie-Bündel-Versuchs, 20  $\mu\text{m}$   $\longleftrightarrow$

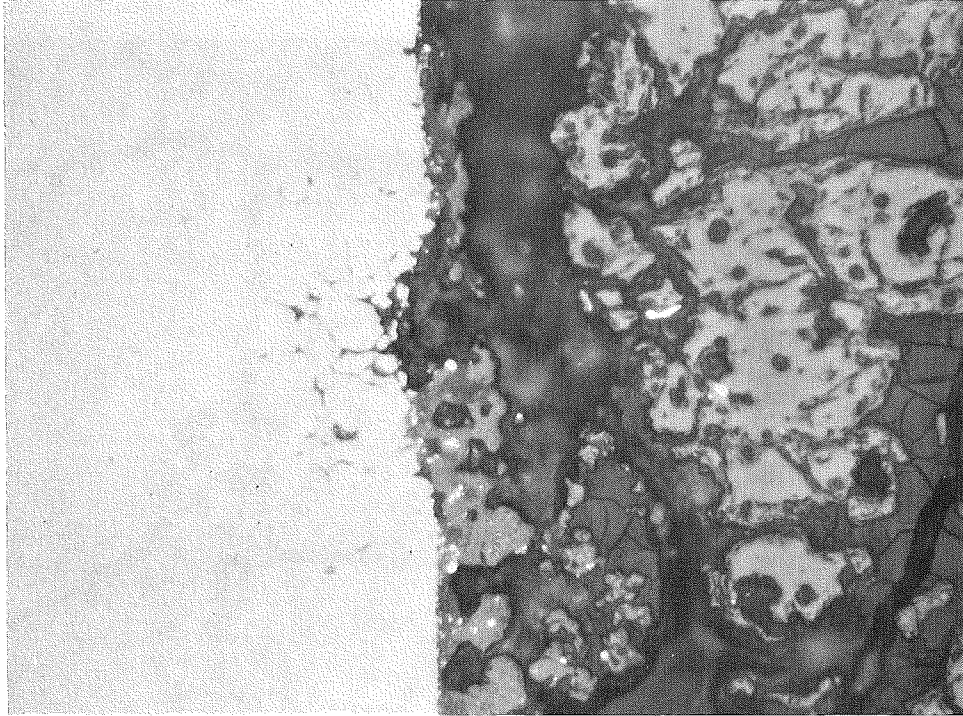



Abb. 7: Angriffsnest im Brennstoffgebiet eines Belgonucleaire-Stabes mit 1.4988-Umhüllung im Rapsodie-Bündelexperiment, 20  $\mu\text{m}$  

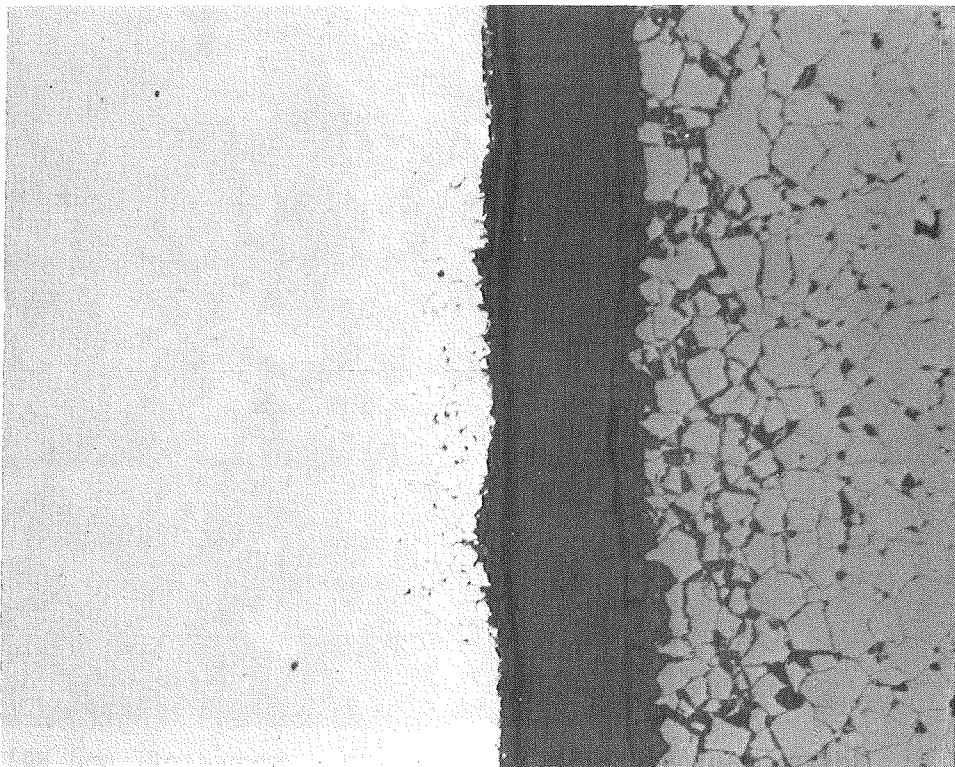



Abb. 8: Angriffszone im Brutstoffgebiet eines Belgonucleaire-Stabes mit 1.4988-Hülle im Rapsodie-Bündelexperiment, 50  $\mu\text{m}$  

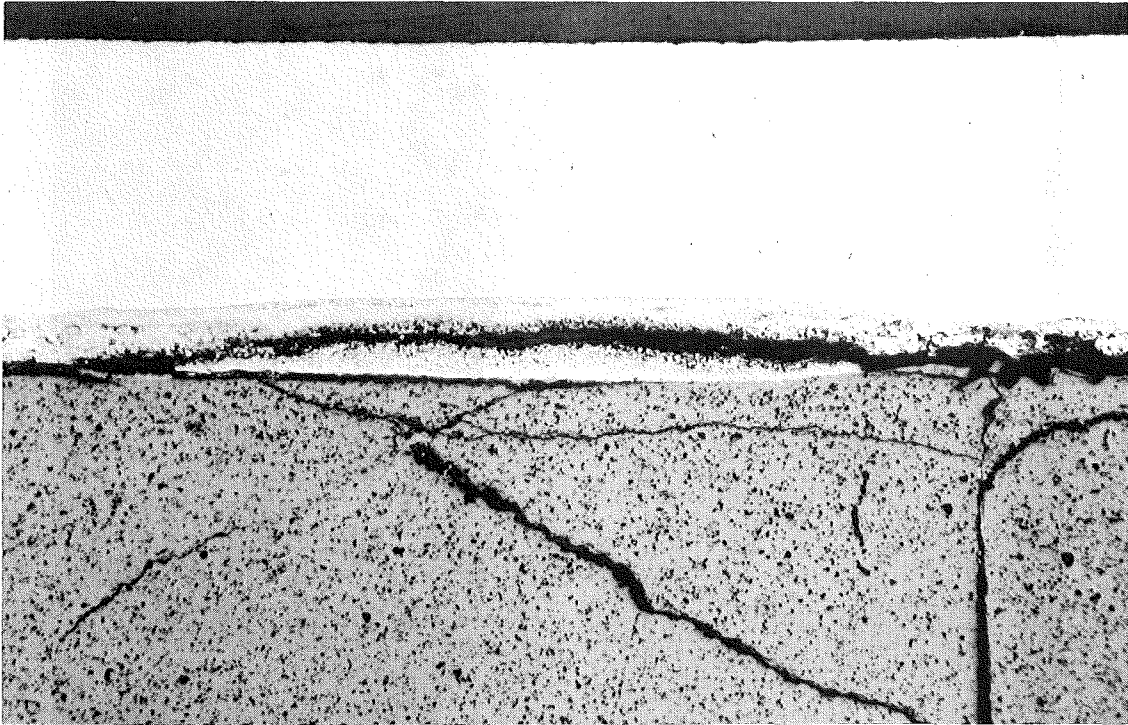



Abb. 9: Angriffszone mit flächenförmigem Angriff im Brennstoffgebiet eines Alkem-Stabes mit 1.4970-Hülle im Rapsodie-Bündel-experiment, 100  $\mu\text{m}$  

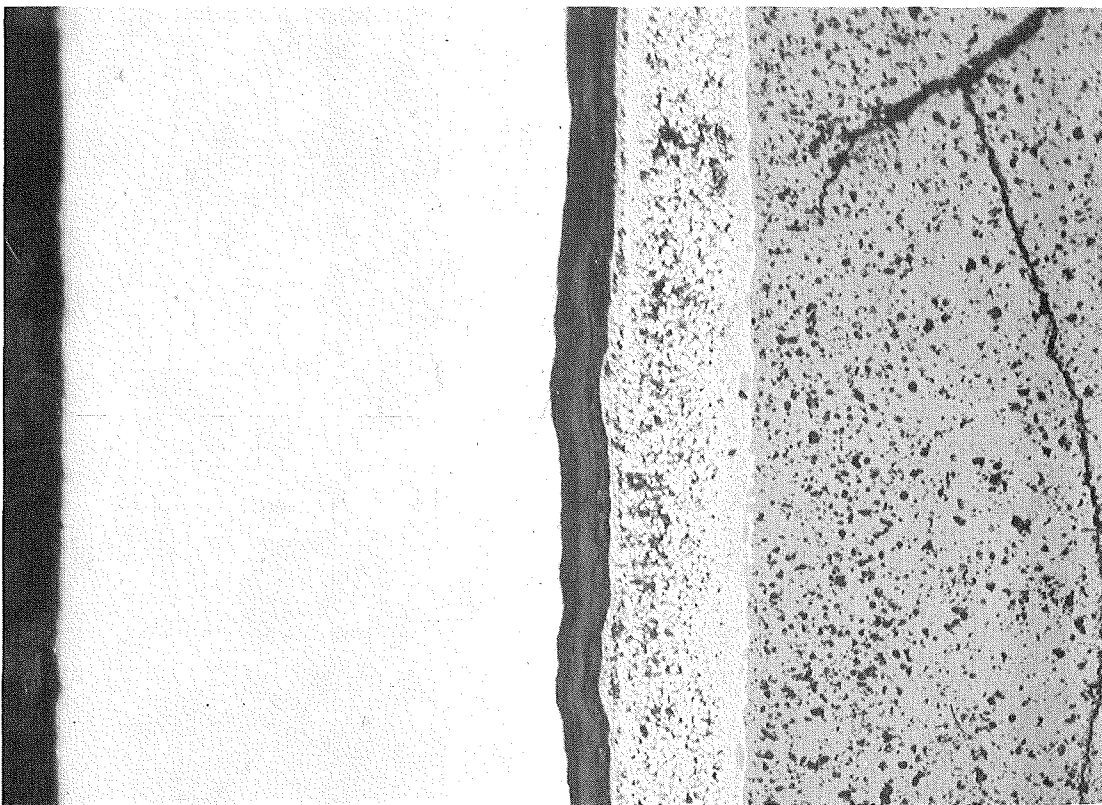



Abb. 10: Angriffszone mit flächenförmigem Angriff in einem Alkem-Stab mit 1.4970-Hülle im Rapsodie-Bündelexperiment, 50  $\mu\text{m}$  

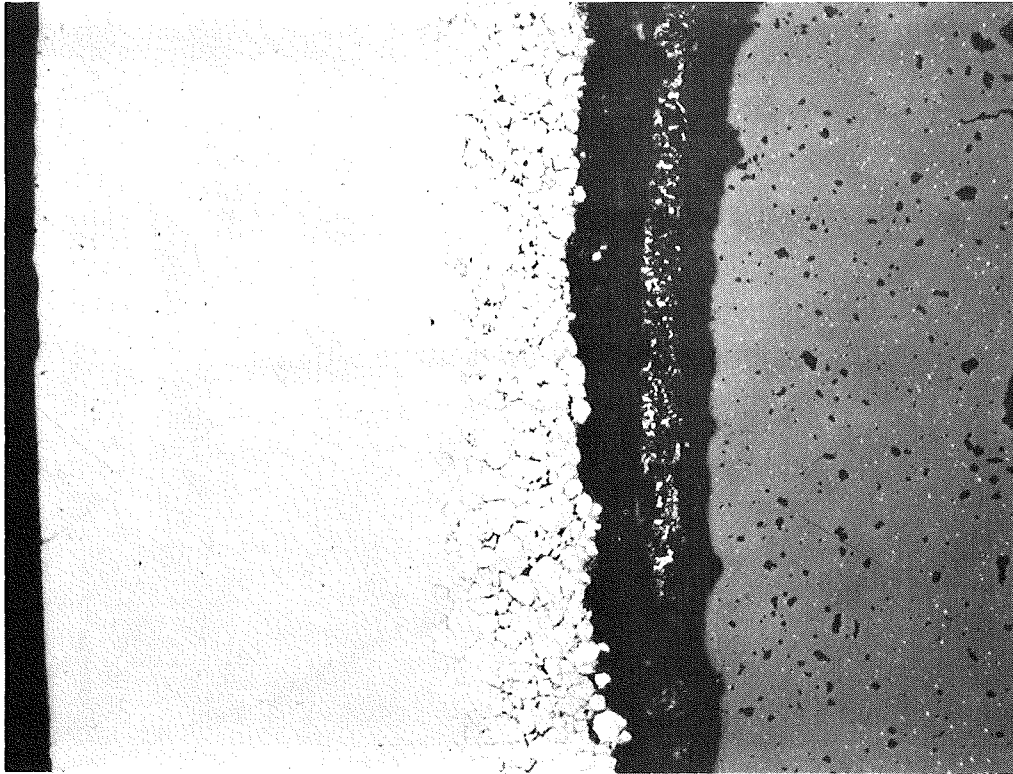



Abb. 11: Korngrenzenangriff im Brennstoffgebiet eines Alkem-Stabes mit 1.4988-Hülle im Rapsodie-Bündelexperiment, 50  $\mu\text{m}$  

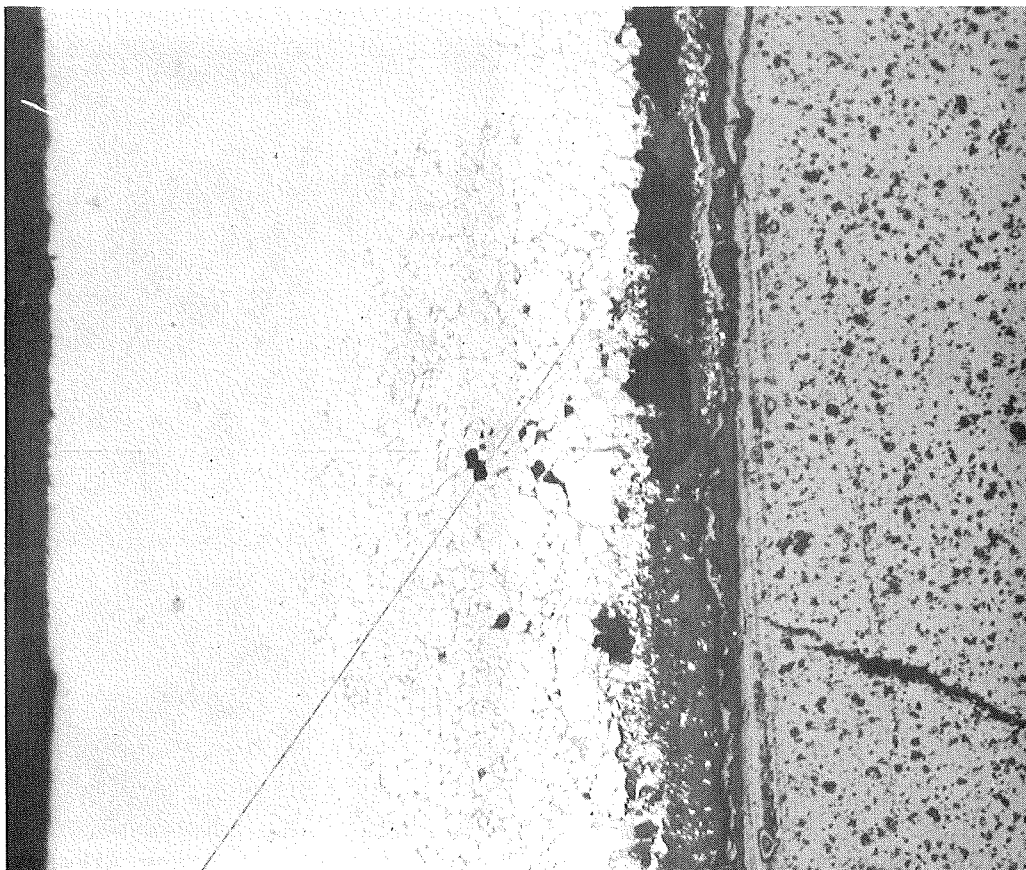



Abb. 12: Größter beobachteter Hüllangriff beim Rapsodie-Bündelexperiment (230  $\mu\text{m}$ ). Alkem-Brennstoff, 1.4970-Hülle, 50  $\mu\text{m}$  



Abb. 13: Korngrenzenangriff in einem Belgonucleaire-  
Stab mit 1.4970-Hülle im Rapsodie-Bündel-  
experiment, 20  $\mu\text{m}$   $\longleftrightarrow$

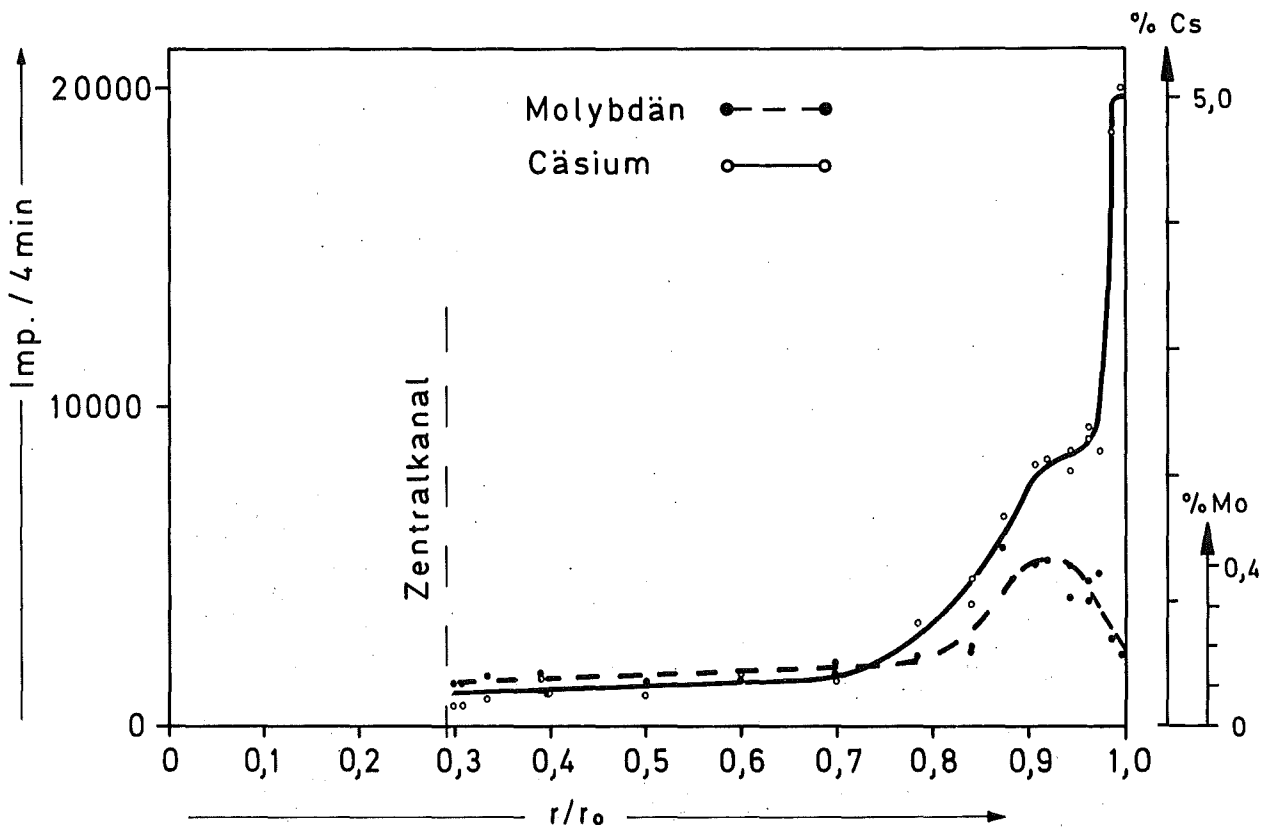


Abb. 14: Cäsium- und Molybdänprofil über den Probenquerschnitt eines DFR-350-Stabes (Brennstoffzone)



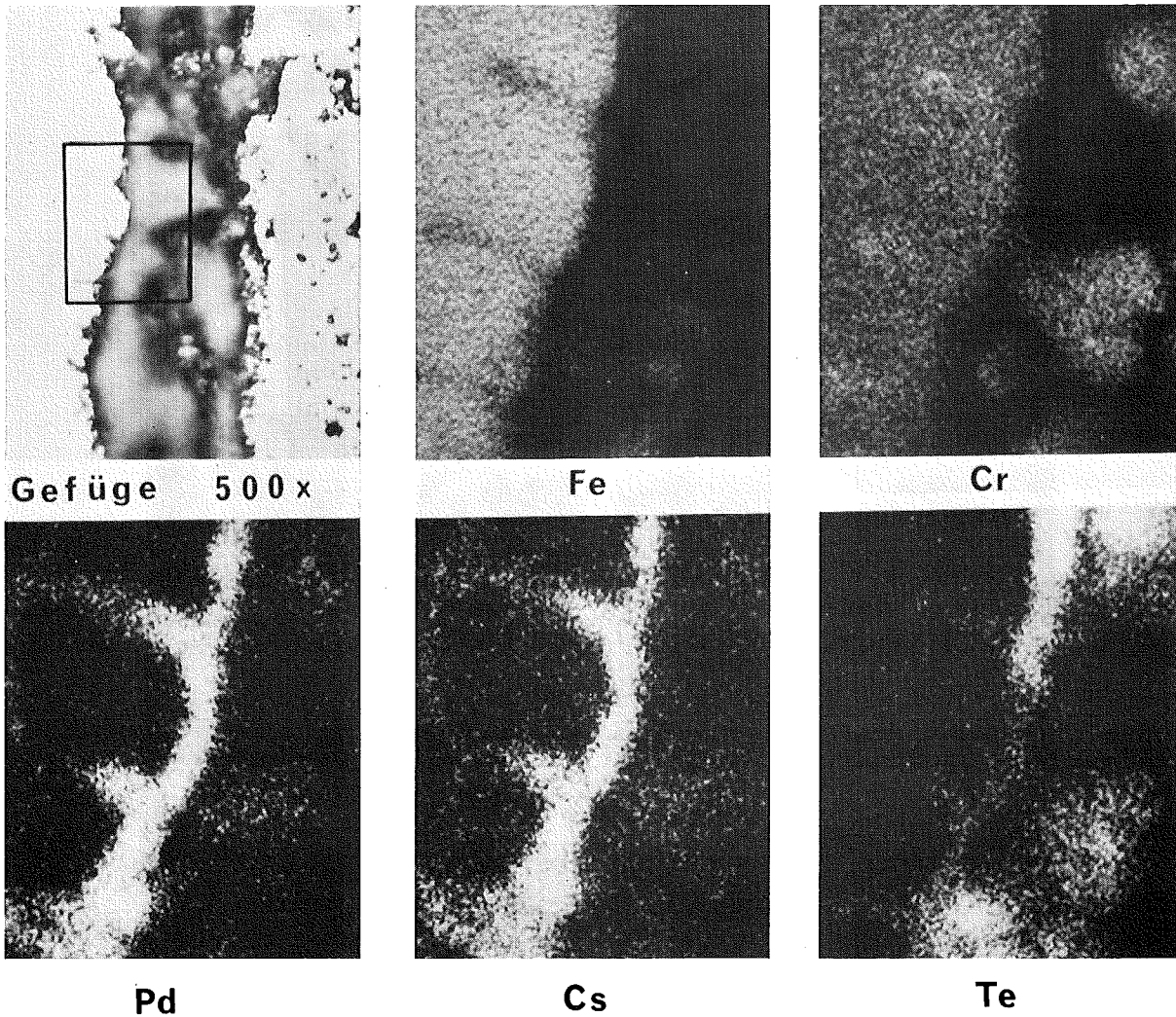


Abb. 15: Korngrenzenangriff der Hülle mit Pd, Cs und Te  
bis zu 25  $\mu\text{m}$  Tiefe (Mol 7A, Stahl 4988,  
 $\bar{T}_{\text{Hm}}=560^{\circ}\text{C}$ )

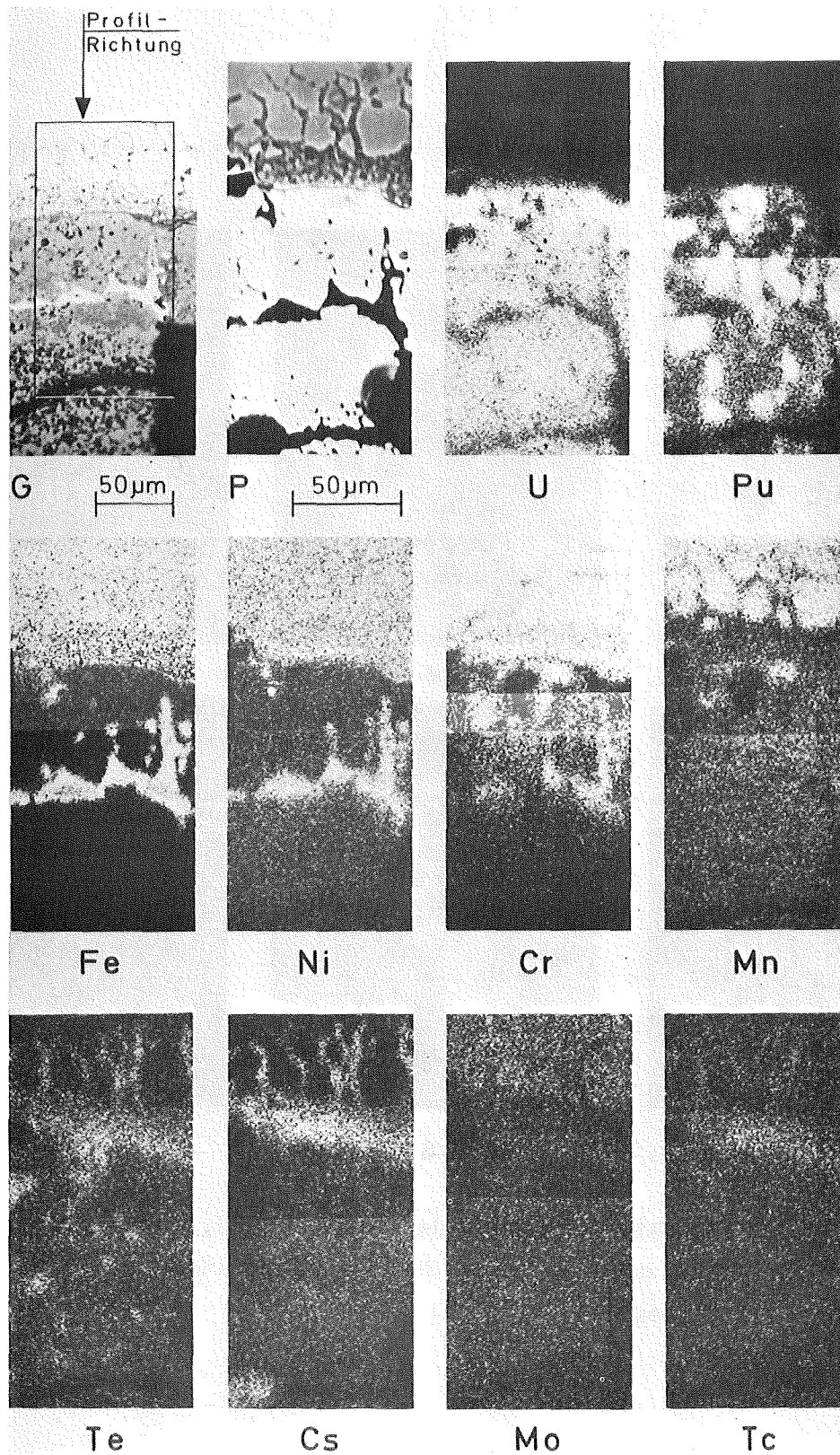


Abb. 16: Metallische Fe-Ni-Ausscheidungen im Brennstoff, Cs-Te-Pertechnetatzone sowie Cs-Te in den Korngrenzen (DFR-350-G6-2)

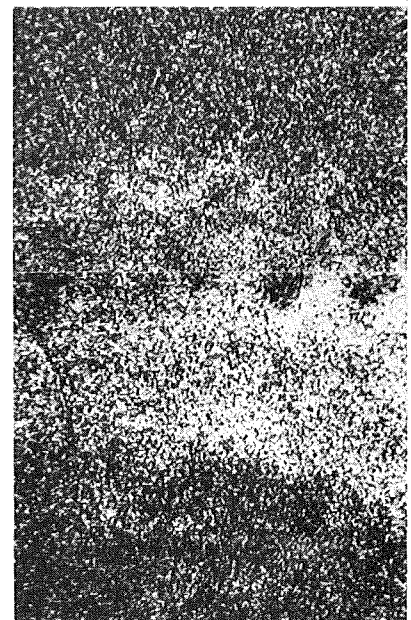
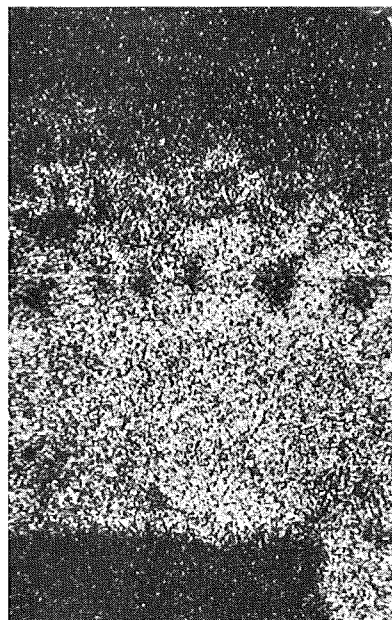
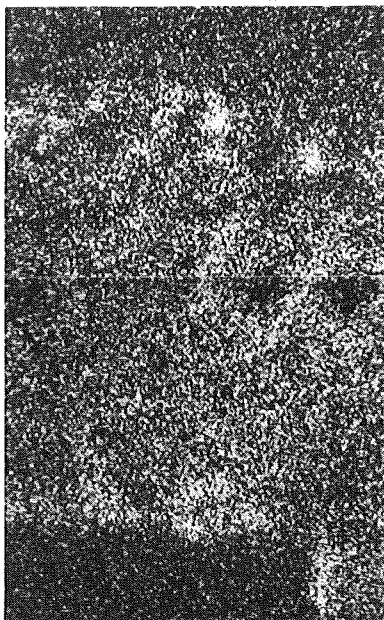
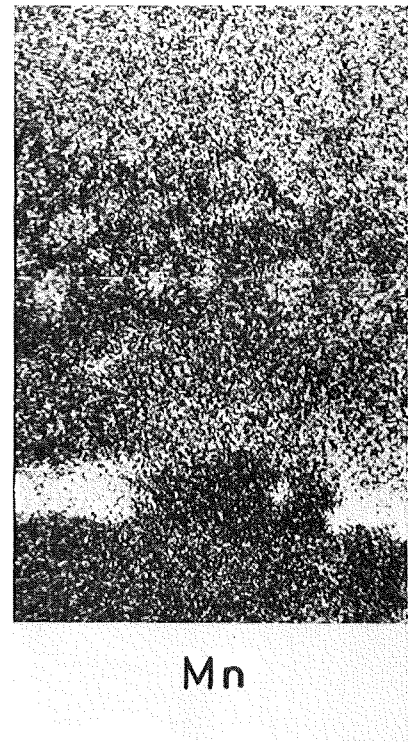
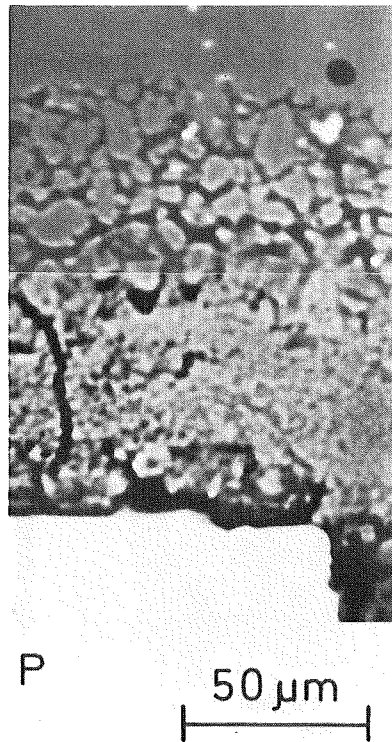
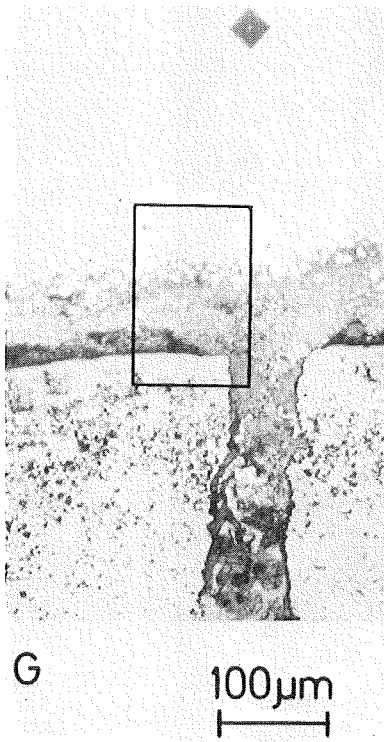


Abb. 17 Korngrenzenangriff der Hülle durch Cs, Te und Mo;  
Mo befindet sich in den Korngrenzenspitzen  
(DFR-350 - G43 - 3)

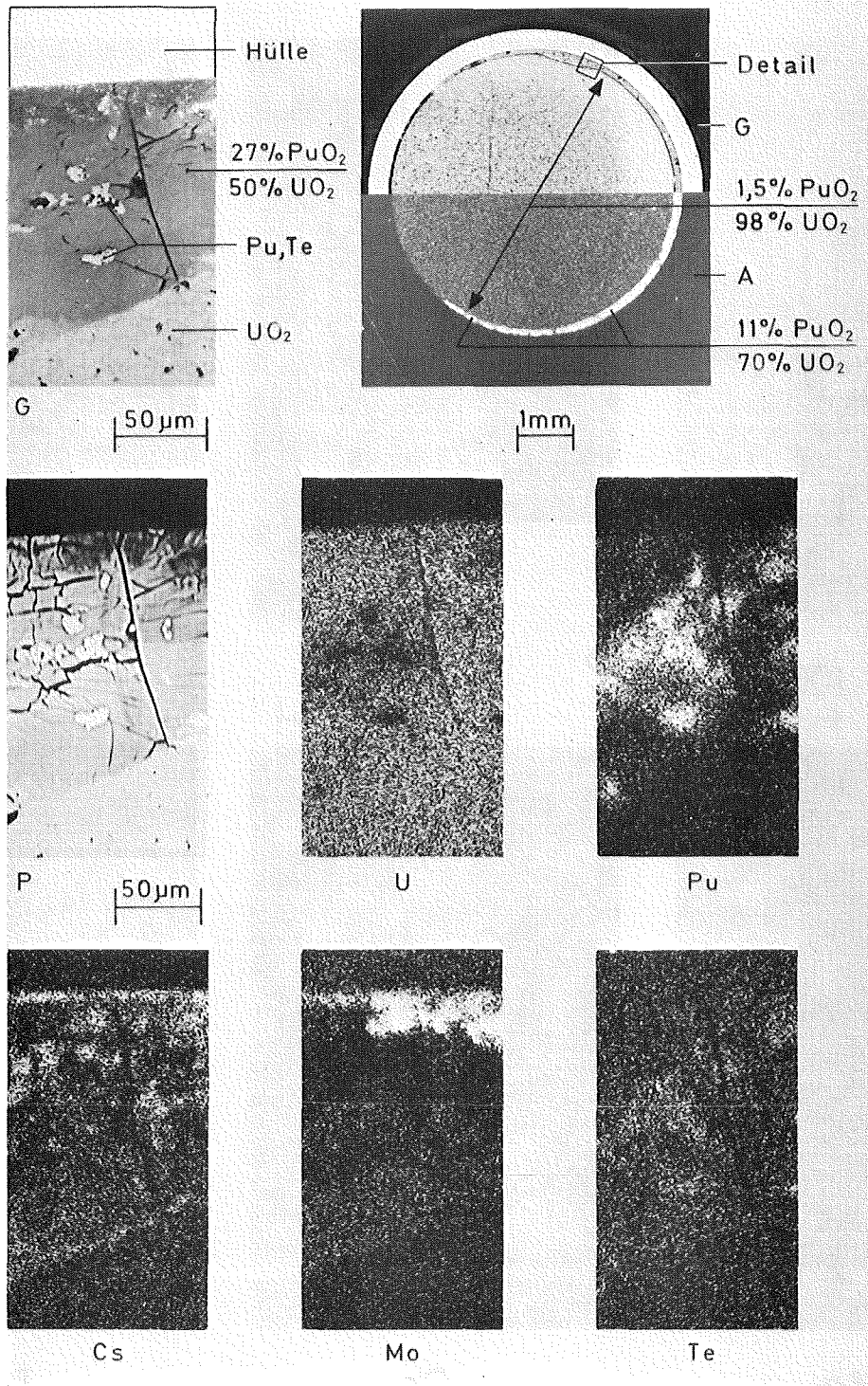


Abb. 18: Erstarrete Cs-U-Pu-Oxid-Schmelze und Cs-Molybdat im Spalt in Höhe der unteren Brennstoff-Tablette (DFR-350-G14-11)

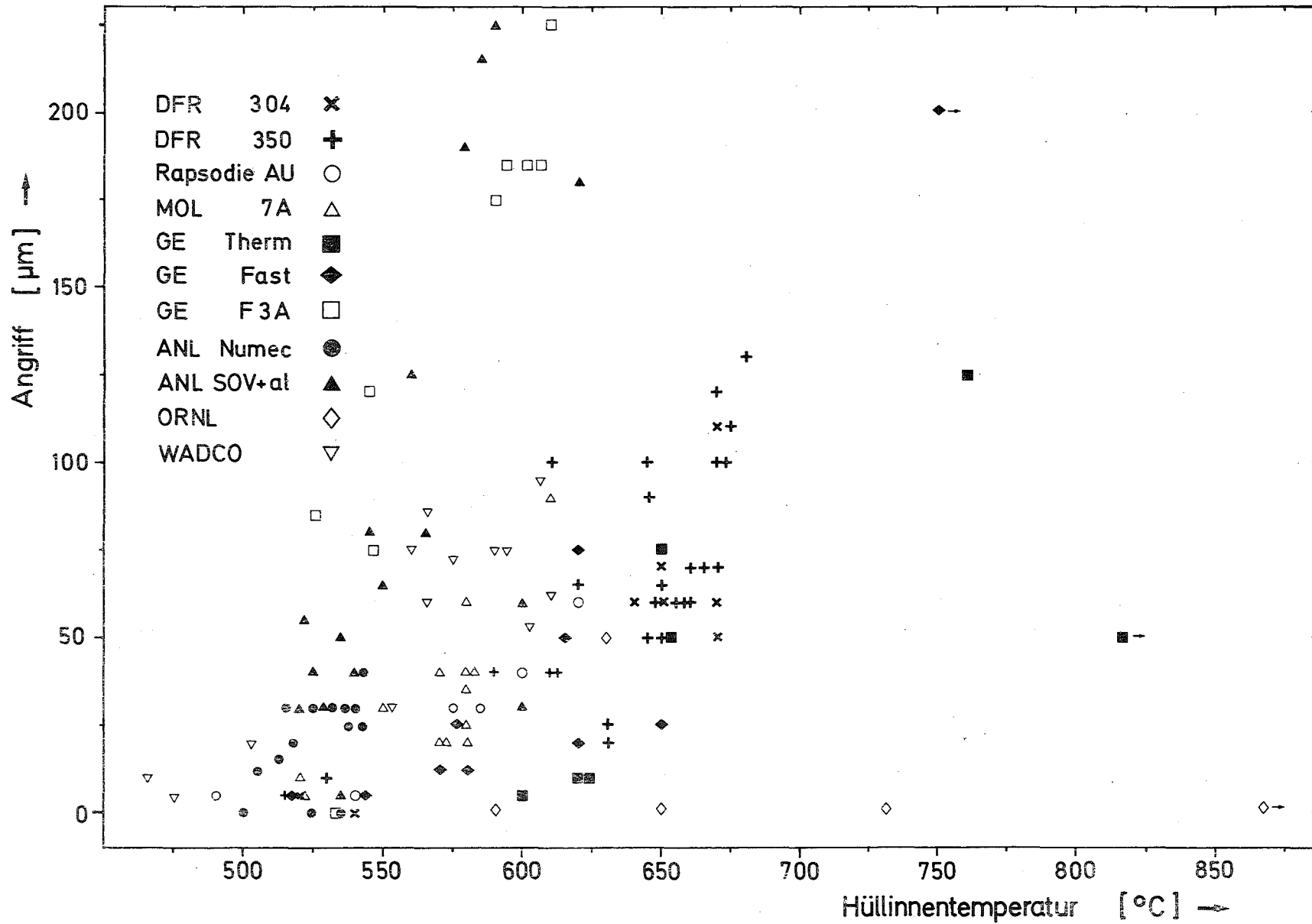


Abb. 19: Zusammenstellung der in der Literatur berichteten Hüllangriffstiefen

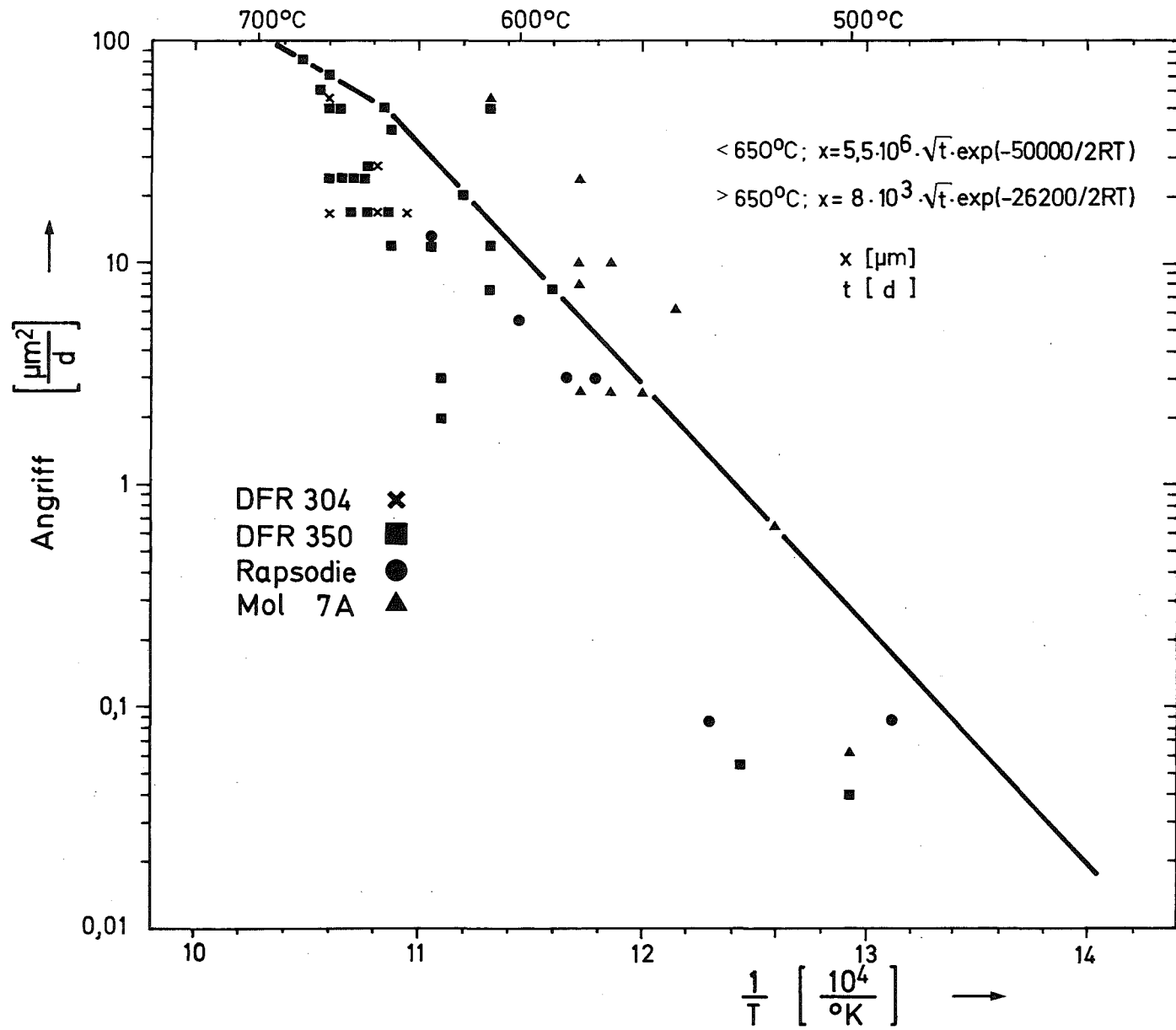


Abb. 20: Zeit-Temperatur-Abhängigkeit des Hüllangriffs

VI. FOLGERUNGEN FÜR DIE BRENNSTOFF- UND BRENNSTAB AUSLEGUNG

von

W.Dienst

Inhalt:

1. Wahl von Auslegungsdaten
2. Modelldarstellung des Brennstabverhaltens
3. Empfehlungen für dringende neue Untersuchungen

Aus den Ergebnissen der Untersuchungen über das Brennstoffverhalten in Schnellbrüter-Brennstäben sollen abschliessend einige Folgerungen gezogen werden. Sie betreffen Empfehlungen für die Wahl von Auslegungsdaten, Vorschläge für die modellmässige Darstellung des Brennstabverhaltens sowie einige Hinweise auf notwendige neue Untersuchungen.

## 1. Wahl von Auslegungsdaten

### 1.1 O/M-Verhältnis

In den PSB-Bestrahlungsversuchen wurden bisher meistens Brennstäbe mit einem Brennstoff-O/M-Verhältnis von 1,98 bis 2,00 eingesetzt. Eine Absenkung unter 1,98 führt zweifellos zu einer Verminderung des chemischen Angriffes auf die Hüllinnenseite. Diese Verminderung scheint bei hohen Abbränden jedoch bezüglich der entscheidenden maximalen Eindringtiefe des Korngrenzenangriffes eher nur statistisch als allgemeingültig wirksam zu werden, jedenfalls bis zu einem  $O/M \sim 1,96$ .

Andererseits ergeben sich durch eine O/M-Absenkung verschiedene negative Folgen für das Brennstabverhalten. Die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes wird vermindert, der thermische Ausdehnungskoeffizient steigt und könnte dadurch die plastische Hülldehnung bei Leistungswechseln beträchtlich vergrössern, die Ansammlung von leicht flüchtigen oder vorübergehend geschmolzenen Spaltprodukten am Brennstoffsäulenende, u.U. ebenfalls mit folgender Hülldehnung, wird begünstigt.

Ausserdem ist zu berücksichtigen, dass von anderer Seite ein ungünstigeres Stabverhalten bei niedrigem O/M-Verhältnis konstatiert wurde (GE), und dass die Lage bisher bekanntgewordener Hüllschäden bei hohem Abbrand nicht durch den maximalen chemischen Hüllangriff bestimmt erschien (ANL). Nach Abwägung aller erwähnten Punkte sollte zur Zeit **keine gezielte Absenkung auf  $O/M < 1,98$  erfolgen.**

Die Auswirkung einer solchen Absenkung auf das Brennstabverhalten könnte evtl. Gegenstand einer späteren statistischen Untersuchung an grossen Brennstabbündeln sein.



### 1.2 Sinterdichte, Spaltbreite

Es erscheint sinnvoll, mit vorgegebener Brennstoff-Schmierdichte eine möglichst niedrige Sinterdichte bei noch ausreichendem Spalt zwischen Brennstoff und Hülle (für Montage und thermische Differenzdehnung beim Anfahren) zu wählen. Das erscheint günstig für die Wärmeleitung im Brennstab (besonders beim ersten Anfahren) und bietet andererseits keinen Nachteil bezüglich der mechanischen Wechselwirkung Brennstoff/Hülle, weil der Spalt durch starke Spaltgasschwellung des Brennstoffes ohnehin schnell verschwindet. In dieser Beziehung ergibt sich eher ein Vorteil, weil die allmähliche Nachsinterung des Brennstoffes mit erhöhter Porosität zu einer Verzögerung der Einstellung festen Kontaktes zwischen Brennstoff und Hülle führen kann. Die Nachsinterung darf jedoch nicht zu schnell verlaufen (im Vergleich zum Schwellen), damit es nicht sogar zu einer Überhitzung durch eine anfängliche Verbreiterung des Spaltes kommt. Nach bisher vorliegenden Versuchsergebnissen dürfte eine Kombination von etwa 85% TD Brennstoffdichte und 100 µm Spaltbreite empfehlenswert sein.

Die öfters beobachtete lokale Hülldehnung durch Ansammlung von flüchtigen Spaltprodukten, vor allem von Cs, am Anfang der Brutstoffsäule kann möglicherweise durch eine Erhöhung des verfügbaren Leervolumens vermindert werden. Daher wird zunächst der Übergang auf etwa 85% TD Sinterdichte für die erste Brutstofftablette empfohlen. Dabei ist dann zu beachten, dass auch der Brutstoff einer bestrahlungsbedingten Nachsinterung unterliegt.

### 1.3 Hülltemperatur, Hülldicke

Im Hinblick auf die Belastung der Hülle durch den inneren Spaltgasdruck sollte die relative Hüllpenetration durch Innenkorrosion enger begrenzt bleiben, als sie sich bisher unter SNR-spezifischen Bestrahlungsbedingungen gezeigt hat. Als entsprechende Massnahme käme zunächst eine Absenkung der maximalen Hülltemperatur in Betracht. Sie verspricht jedoch im betroffenen Intervall der Hüllinnenwandtemperatur (ca. 650 - 600°C) keine hinreichend sichere allgemeine beträchtliche Verminderung der maximalen Korngrenzenangriffstiefe. Daher ist in diesem Zusammenhang eher eine Vergrößerung der Hülldicke als

eine Herabsetzung der Hülltemperatur zu empfehlen. Das schliesst jedoch nicht aus, dass das erwähnte Problem bereits aufgrund der Hüllfestigkeitssteigerung durch eine Temperaturabsenkung gelöst werden kann.

## 2. Modelldarstellung des Brennstabverhaltens

Für die modellmässige Beschreibung der verschiedenen Vorgänge im Brennstab unter Bestrahlung werden, entsprechend dem derzeitigen Kenntnisstand, die folgenden Vorschläge gemacht:

### 2.1 Innenkorrosion

Temperaturabhängige maximale Hüllangriffstiefe mit linearem Anstieg zwischen 0 bei 500°C und 125 µm bei 650°C Hüllinnentemperatur. Sofortiges Auftreten des vollen Hüllangriffs beim Erreichen einer konstanten Hülltemperatur (d.h. keine Zeit- oder Abbrandabhängigkeit). Keine Abhängigkeit von der Hüllmaterial- und Brennstoffzusammensetzung (bei O/M = 1,98 - 2,00, s. 1.1).

### 2.2 Spaltgasfreigabe

Spaltgasausbeute 0,32 Gasatome/Spaltung. Mit dem Abbrand steigende Spaltgasfreigabe aus dem Brennstoff, die sich bei hohem Abbrand asymptotisch der 100%-Grenze nähert. Dabei wird die 50%-Grenze in verschiedenen Brennstofftemperaturzonen desto später erreicht, je niedriger die Temperatur ist, spätestens aber bei 8% Abbrand ( $f.T \lesssim 1000^\circ\text{C}$ ).

### 2.3 Brennstoffschwellung

Schwellrate für  $T \leq 1000^\circ\text{C}$  0,8 Vol.-%/Abbrand, für  $T > 1000^\circ\text{C}$  gemäss empirischer Temperaturabhängigkeit (s. Beitrag IV, Abb.5) mit Maximum bei etwa 12 Vol.-%/Abbrand und 1800°C. Spaltgasschwellungs-Sättigung bei Gesamtschwellung von 12 Vol.-%, dann nur noch Schwellrate von 0,5 Vol.-%/Abbrand (durch feste Spaltprodukte).

Einbeziehung der Spaltgasblasen in die Brennstoffporosität, auch bezüglich der Porenwanderung.

#### 2.4 Bestrahlungsbedingte Nachsinterung

Abbrandabhängige Porositätsverminderung in der äusseren Brennstoffzone (frei von sonstiger, thermisch bedingter Strukturänderung) nach der Beziehung  $P = P_{\text{Rest}} + (P_0 - P_{\text{Rest}}) e^{-A/A_{\text{NS}}}$  mit  $P_{\text{Rest}} = 7\%$  und  $A_{\text{NS}} = 2\%$  Abbrand für mechanisch gemischten  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstoff.

Für  $\text{UO}_2$ -Brutstoff kämen ggf.  $P_{\text{Rest}} = 4\%$  und  $A_{\text{NS}} = 0,2\%$  in Frage.

#### 2.5 Brennstoffkriechen

Stationäres bestrahlungsbedingtes Kriechen (neben dem thermisch bedingten Kriechen) mit einer Geschwindigkeit von  $\dot{\epsilon}_{\text{Bestr.}} = 1 \cdot 10^{-5} \cdot \sigma \cdot R_{\text{Sp}}$ , wenn  $[\dot{\epsilon}_{\text{Bestr.}}] = \text{h}^{-1}$ ,  $\sigma$  Spannung in  $\text{kp/mm}^2$  und  $R_{\text{Sp}}$  Spaltungsrate in  $10^{-9}$  Spaltungen/(U+Pu)-Atom·sec.

Kein Heisspresseffekt (Kriechen in die Brennstoffporen).

#### 2.6 Thermisches Rasten

Entwickeln und Testen des Modells der Rissausheilung bei Teillast-Betrieb (bzw. bei Leistungserhöhung zwischen Zyklusende und folgendem Zyklusanfang), evtl. auf der Grundlage des KFK-Berichtes 1913. Hauptpunkte: Zurückbleiben eines bestimmten Rissvolumenanteiles je Leistungszyklus im Brennstoff, vorübergehend verschlechterter Wärmeübergang Brennstoff/Hülle nach jedem Wiederauffahren auf Vollast.

#### 2.7 Spaltprodukt-Anhäufung

Vorschläge zur modellmässigen Beschreibung können noch nicht gemacht werden, sind aber dringend erforderlich.

#### 2.8 Wärmeleitfähigkeit

Vernachlässigung des Einflusses der Spaltprodukte im Brennstoff, aber Berücksichtigung des O/M-Verhältnisses, im besonderen des radialen O/M-Profiles im Brennstoff unter Bestrahlung.

#### 2.9 Porositätsprofil

Verwendung eines "Normalprofils" über dem normierten Radius des Brennstoffringes (s. Beitrag III, Abb. 2) bei hohem Abbrand ( $A \gtrsim 5\%$ ), un-

abhängig von Sinterdichte, Stableistung und Abbrand, bzw. einer daraus folgenden Porositätskorrekturfunktion zur Temperaturberechnung. Im besonderen Berücksichtigung einer minimalen Restporosität von 5% und einer starken Wiederzunahme der Porosität in der Umgebung des Zentralkanals. Der Zentralkanaldurchmesser könnte ggf. aufgrund einer empirischen Abhängigkeit von der (bezüglich der Porosität normierten) Stableistung ermittelt werden (s.KFK-Bericht 1736).

Berücksichtigung der bestrahlungsbedingten Nachsinterung bei Bestrahlungsbeginn.

### 2.10 Pu/U-Entmischung

Berücksichtigung einer anfänglichen zentralen Pu-Anreicherung im Brennstoff mit maximal 50%iger (relativer) Erhöhung der ursprünglichen Pu-Konzentration (am Rand des Zentralkanals). Diese Empfehlung beruht auf Messungen an Brennstoff mit hochangereichertem Uranoxid; für Brennstoff mit Natururanoxid ist evtl. eine noch stärkere Entmischung zu erwarten. Die Form des radialen Pu-Konzentrationsprofils hängt vom örtlichen Brennstofftemperaturprofil ab.

## 3. Empfehlungen für dringende neue Untersuchungen

Zu den folgenden Punkten sollten neue Untersuchungen aufgenommen werden:

### 3.1 Pu-Verteilung (bei der Brennstoffherstellung)

Einsatz von kopräzipitiertem  $(U,Pu)O_2$  als Brennstoff für Versuche zum thermischen Rasten (s. 3.2). Recherche über die Verwendung von kopräzipitiertem bzw. mechanisch gemischtem Oxidbrennstoff und Vergleich der Erfahrungen.

### 3.2 Thermisches Rasten

Experimentelle Parameter-Untersuchung über die Abhängigkeit von Hülltemperatur, Hüllfestigkeit, Anfahrsgeschwindigkeit, Zyklusdauer und Abbrand.

### 3.3 Spaltprodukt-Anhäufung

Experimentelle Untersuchungen und Entwicklung von Modellvorstellungen über den Spaltprodukttransport im Brennstab (evtl. auch von ge-

schmolzenen Spaltprodukten im Zentralkanal) und über die Spaltproduktreaktionsschwellung (einschl. Ermittlung optimaler Brutstoffdichte).

#### 3.4 Pu/U-Entmischung

Modellmässige Beschreibung der Entmischung in  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstäben mit Natururanoxid und Vergleich mit hochangereichertem Uranoxid.

#### 3.5 Sauerstoff- und Spaltproduktverteilung

Vermessung der Sauerstoff- und Spaltprodukt-Konzentrationsverteilung in bestrahlten Brennstäben und Untersuchung ihres Einflusses auf das Brennstofftemperaturprofil.



VII. EINFLUSS DER BESTRAHLUNG AUF DIE FESTIGKEITSEIGENSCHAFTEN  
VON HÜLLWERKSTOFFEN

von

K.D. Closs, L. Schäfer, M. Schirra, Ch. Wassilew

Inhalt:

1. Einleitung
2. Kurzzeitverhalten
3. Langzeitverhalten
  - 3.1 Werkstoff Nr. 1.4988
  - 3.2 Werkstoff Nr. 1.4981
  - 3.3 Werkstoff Nr. 1.4970
4. Vergleich der drei Stähle

## 1. Einleitung

---

Die Hüllrohre von Schnellbrüterbrennstäben gehören sowohl von der Strahlenbelastung als auch von der Temperatur her zu den am höchsten beanspruchten Bauteilen dieses Reaktortyps. In der Mitte der Brennstäbe treten Dosen schneller Neutronen ( $E > 0,1 \text{ MeV}$ ) von ca.  $1,3 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$  und an den beiden Enden des Stabes von ca. 6 bis  $7 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$  auf. Die maximalen Hüllrohrtemperaturen liegen bei  $700^\circ\text{C}$ .

Bekanntlich werden von deutscher Seite im Rahmen der Hüllmaterialentwicklung für den SNR-300 stabilisierte austenitische Stähle favorisiert, und zwar vor allem die Nb-stabilisierten Stähle 1.4988 und 1.4981 sowie der Ti-stabilisierte Stahl 1.4970. Man nennt diese Stähle stabilisiert, weil durch die Elemente Nb bzw. Ti bei geeigneter Vorbehandlung der Kohlenstoff abgebunden wird. Damit wird zunächst einmal die Neigung zur Bildung von Chromkarbid an den Korngrenzen und damit die Neigung zur interkristallinen Korrosion herabgesetzt. Darüberhinaus lassen stabilisierte Stähle neben der höheren Warmfestigkeit bei geeigneter Vorbehandlung auch ein günstigeres Bestrahlungsverhalten als nichtstabilisierte Stähle erwarten. Hier sind vor allem in der Matrix fein verteilte Nb- bzw. Ti-Karbide zu nennen, die durch eine geeignete Lösungsglühtemperatur, eine Kaltverformung und eine geeignete Auslagerung sehr stabile Strukturen hervorrufen können.

Die einzelnen Experimenttypen, die im Rahmen der Hüllmaterialauswahl bei den Untersuchungen des mechanischen Verhaltens unter Neutronenbestrahlung berücksichtigt wurden, sind neben den Bestrahlungsparametern in Tab. 1 zusammengestellt. Neben den technologisch ausgerichteten Mol 2-Versuchen und den Mol 3 F-Experimenten der Firma INTERATOM an Rohrproben unter Innendruck wurden bei den reinen Materialbestrahlungen vor allem Versuche an Flachproben (Mol 3 B, 3 C sowie DFR 397) durchgeführt, um systematisch den Einfluß verschiedener mechanisch-thermischer Vorbehandlungen auf das Bestrahlungsverhalten zu untersuchen. Weitere Informationen liegen vor aus der Rapsodie-Materialbestrahlung, die ebenso wie die Rapsodie-Monitorbestrahlung unter Federführung von Interatom durchgeführt wurde.

Ferner wurden mechanische Untersuchungen an Hüllrohrabschnitten aus Bündelbestrahlungen durchgeführt. Berücksichtigt wurden bei der Zusammenstellung



der Ergebnisse vor allem das Experiment Mol 7 A sowie die vom CEA durchgeführten Untersuchungen aus der Rapsodie-Monitorbestrahlung. Ergebnisse aus DFR 350 liegen bisher nur zum mechanischen Kurzzeitverhalten vor.

Aus der Zusammenstellung ist zu entnehmen, daß für den Temperaturbereich  $< 600^{\circ}\text{C}$  die Experimente noch weit von der Zieldosis des SNR-300 von etwa  $1,3 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 0,1 \text{ MeV}$ ) entfernt sind. Für den Bereich der Hochtemperaturbestrahlungsexperimente ist die Zieldosis am heißen Ende jedoch bereits durch das Experiment DFR 397 erreicht. Vom He-Gehalt her betrachtet liegt man mit den Experimenten Mol 3 B und Mol 3 C sogar wesentlich über der maximal im SNR 300 zu erwartenden He-Konzentration.

Vom mechanischen Verhalten her ist es sinnvoll, mehrere Temperaturbereiche zu unterscheiden: Im Temperaturbereich 400 bis etwa  $550^{\circ}\text{C}$  tritt Bestrahlungsverfestigung auf. In diesem Bereich werden die mechanischen Eigenschaften vorwiegend durch die Gitterdefekte sowie die Porenbildung bestimmt. Hier findet man auch das bestrahlungsinduzierte Kriechen. Oberhalb etwa 600 bis  $650^{\circ}\text{C}$  werden die mechanischen Eigenschaften vorwiegend durch die Hochtemperaturversprödung geprägt. Im Temperaturbereich zwischen etwa  $550^{\circ}\text{C}$  und  $650^{\circ}\text{C}$  beobachtet man teilweise beide Arten von Strahlenschäden.

## 2. Kurzzeitverhalten

Neben den Ergebnissen an den Werkstoffen Nr. 1.4961, 1.4988, 1.4981 und 1.4970 sind in den einzelnen Diagrammen auch Literaturwerte von den Stählen AISI 304 /1 bis 3/ und AISI 316 /4 bis 7/ enthalten. Die Ergebnisse gelten für Verformungsgeschwindigkeiten um 1%/min.

In den Abbildungen 1 bis 3 ist die Streckgrenze als Funktion der Neutronendosis ( $E > 0,1 \text{ MeV}$ ) für den Temperaturbereich 370 bis  $560^{\circ}\text{C}$  zusammengestellt. Die oberen Kurven in den einzelnen Diagrammen geben bis zu einer Dosis von etwa  $2 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$  den Verlauf der Streckgrenze für kaltverformtes und die unteren Kurven für lösungsgeglühtes Material wieder. Oberhalb etwa  $3-4 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$  ist eine Sättigung der Streckgrenze zu beobachten. Das bei hohen Neutronendosen eingetragene Streuband kommt da-

durch zustande, daß bei einigen Experimenten die Bestrahlungstemperatur nur ungenau bekannt ist. Betrachtet man nämlich Proben verschiedener Vorbehandlung (z.B. 1.4988 lg und 1.4970 kv), die gemeinsam in einer Bestrahlungseinrichtung bestrahlt wurden und somit identischen Bestrahlungsbedingungen ausgesetzt waren, so erkennt man keinen Unterschied in der Streckgrenze zwischen kaltverformtem und lösungsgeglühtem Material. Auch stabilisierte und nichtstabilisierte austenitische Stähle zeigen nach hohen Neutronendosen weitgehend identische Streckgrenzen.

Ein im Prinzip ähnliches Bild erhält man für die Zugfestigkeit, jedoch wird sie in einem sehr viel geringeren Maße durch die Neutronenbestrahlung erhöht. Auch hier tritt bei hohen Neutronendosen eine Sättigung auf, ferner existieren auch hier im Bereich der Sättigung keine Unterschiede zwischen kaltverformten oder lösungsgeglühten Werkstoffen bzw. zwischen stabilisierten und nichtstabilisierten Stählen.

Wie man aus den Abbildungen 4 und 5 entnehmen kann, treten bei Bestrahlungs- und Prüftemperaturen oberhalb von etwa 550°C zumindest bis zu Neutronendosen von  $1 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$  deutliche Unterschiede in der Streckgrenze zwischen lösungsgeglühtem und kaltverformtem Material auf. Sowohl bei 600°C als auch bei 650°C ist für lösungsgeglühte Werkstoffe im Gegensatz zum kaltverformten Material noch ein Ansteigen der Streckgrenze mit der Neutronendosis zu beobachten. Ob bei 650°C bei kaltverformten Werkstoffen tatsächlich schon eine Abnahme aufgrund einer Erholung der Kaltverformung auftritt, ist wegen der wenigen Versuchsergebnisse noch nicht eindeutig zu klären. - Aus Abb. 4 ist ferner zu entnehmen, daß der Werkstoff Nr. 1.4981 im Zustand kaltverformt + 800°C/23h (DFR 397) sowohl im unbestrahlten als auch bestrahlten Zustand relativ niedrige Streckgrenzen zeigt. In Zusammenhang mit dem Langzeitverhalten dieses Werkstoffes wird darauf noch näher eingegangen.

In Abb. 6 ist die Sättigungsstreckgrenze als Funktion der Bestrahlungs- und Prüftemperatur dargestellt. Für Temperaturen oberhalb 550°C ist statt der Sättigungsstreckgrenze die Streckgrenze eingetragen, die sich nach einer Dosis von  $1 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$  durch Extrapolation ergibt. Wie bereits erwähnt, geben die dicken Balken den Streubereich wieder, der durch die Ungenauigkeit in der Bestrahlungstemperatur vorgegeben ist. Die dünnen Balken hin-

gegen sind so zu interpretieren, daß im oberen Bereich des Balkens die kaltverformten und im unteren Bereich die lösungsgeglühten Materialien liegen. Man erkennt deutlich, daß bei kaltverformten Werkstoffen keine Bestrahlungsverfestigung oberhalb etwa 550°C mehr festgestellt wurde, während lösungsgeglühte Werkstoffe eine Verfestigung noch bei 650°C erfahren. Das Streuband für unbestrahlte kaltverformte Werkstoffe gilt für Kaltverformungsgrade von etwa 10-20%. Die Kurve für bestrahlte kaltverformte Materialien oberhalb 600°C sollte vorwiegend qualitativ gesehen werden, da - wie bereits erwähnt - für diesen Temperaturbereich nur relativ wenige Meßergebnisse vorliegen.

Für den Temperaturbereich unterhalb etwa 550°C war eine Streckgrenzenerhöhung aufgrund der Matrixverfestigung beobachtet worden. Eine Streckgrenzenerhöhung ist im allgemeinen verbunden mit einer Erniedrigung des Verfestigungsexponenten  $n$  in der Gleichung  $\sigma = k \cdot \epsilon^n$ . Ferner ist aus der Literatur bekannt, daß bei vielen Werkstoffen ein Zusammenhang zwischen Verfestigungsexponent und Gleichmaßdehnung existiert. Es ist daher anzunehmen, daß auch ein Zusammenhang zwischen Streckgrenze und Gleichmaßdehnung besteht.

Dieser Zusammenhang ist in Abb. 7 dargestellt. In dieses Diagramm wurden nicht nur Werte für bestrahlte Werkstoffe mit den unterschiedlichen Neutronendosen eingetragen, sondern auch Werte von unbestrahlten Materialien liegen in dem eingezeichneten Streubereich. Nicht in dieses Diagramm eingetragen wurden Gleichmaßdehnungen vom AISI 304 /3/, die bei einer um den Faktor 10 niedrigeren Verformungsgeschwindigkeit als bei den übrigen Versuchen gemessen wurden. Diese Werte liegen unterhalb des eingezeichneten Streubandes.

Aus diesem Diagramm ist zu entnehmen, daß bei einer Bestrahlungstemperatur von 400°C aufgrund der Sättigungsstreckgrenze von 800 N/mm<sup>2</sup> selbst nach sehr hohen Neutronendosen noch Gleichmaßdehnungen um 1% zu erwarten sind. Für eine Bestrahlungs- und Prüftemperatur von 550°C liegt die Sättigungsstreckgrenze bei etwa 500 N/mm<sup>2</sup>. Nach diesem Diagramm liegen bei dieser Temperatur selbst nach sehr hohen Neutronendosen die Gleichmaßdehnungen nicht unter 4%.

Da ferner innerhalb des Streubandes keine Tendenz zwischen den einzelnen Werkstoffen und Werkstoffzuständen erkennbar ist, ist folgende Schlußfolgerung zu ziehen: Bezüglich der mechanischen Eigenschaften im Temperaturbereich von etwa 400 bis 550°C gibt es keine Unterschiede zwischen den einzelnen Werkstoffen und Werkstoffzuständen nach hohen Neutronendosen (ab ca.  $4 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ ).

Für die Duktilität im Bereich der Hochtemperaturversprödung liegen nur relativ wenige Ergebnisse vor. Aus Abb. 8 ist zu entnehmen, daß für die Stähle AISI 304 und 316 sowie den Werkstoff Nr. 1.4988 ein Zusammenhang zwischen Versprödung, also der relativen Abnahme der Bruchdehnung, und der Neutronendosis bzw. dem He-Gehalt besteht. Die aus Mol 3-Experimenten stammenden Ergebnisse am Werkstoff Nr. 1.4988 wurden dabei auf die im BR 2 erreichte He-Konzentration umgerechnet. Die starke Versprödung der lösungsgeglühten Werkstoffe bei 650°C ist darauf zurückzuführen, daß bei diesen Materialien neben der Hochtemperaturversprödung noch die Tieftemperaturversprödung wirkt. Auch die Proben aus DFR 397 zeigten bei 600°C aufgrund der Überlagerung der beiden Mechanismen eine starke Versprödung. Allerdings liegen die Gleichmaßdehnungen nach einer Neutronendosis von  $7,5 \times 10^{22}$  bei allen Werkstoffen noch über 1%.

### 3. Langzeitverhalten

#### 3.1 Werkstoff Nr. 1.4988

In Abb. 9 ist die Zeitstandfestigkeit von Rohren des Stahls 1.4988 im lösungsgeglühten Zustand aus verschiedenen Bestrahlungsprojekten wiedergegeben. Nach den bisher vorliegenden Ergebnissen sind aus diesem Diagramm folgende Schlüsse zu ziehen:

- 1) Einfluß des Neutronenspektrums auf die Zeitstandfestigkeit im Temperaturbereich 600 bis 720°C konnte nicht festgestellt werden.
- 2) Die Zeitstandfestigkeit von Rohrabschnitten aus Stab-Bestrahlungen (Mol 7 A) liegt ebenfalls im Streuband, wenn man die nominelle Spannung umrechnet auf die tatsächliche Spannung infolge Wandstärkenschwächung durch Innenkorrosion.

- 3) Unterschiede zwischen in-pile tests (Mol 2) und post-irradiation-tests (Mol 3 F) scheinen nicht zu existieren.

Ein Vergleich zwischen der Zeitstandfestigkeit von Rohrproben und Flachproben wird in Abb. 10 vorgenommen. Unterschiede zwischen lösungsgeglühten Rohrproben und lösungsgeglühten Flachproben (Mol 3 B/5, DFR 397) scheinen nicht zu existieren. In das Streuband der Rohrproben fallen auch die Ergebnisse aus 3 B/1, woraus zu schließen ist, daß eine Glühung  $850^{\circ}\text{C}/1\text{h}$  nach der Kaltverformung bereits weitgehend zur Erholung führt. Die Werte für die beiden Zustände aus Mol 3 C liegen unterhalb des Streubandes. Dieses Verhalten konnte bereits an unbestrahlten Proben beobachtet werden, außerdem lag bei diesem Experiment die Bestrahlungstemperatur relativ hoch ( $>750^{\circ}\text{C}$ ).

Die Zeitstandfestigkeit von kaltverformten Proben des Werkstoffs Nr. 1.4988 wird in Abb. 11 mit der von lösungsgeglühten Rohrproben verglichen. Die Ergebnisse der Experimente 3 B/5 (Prüftemperatur  $650^{\circ}\text{C}$ ) und DFR 397 (Prüftemperatur  $600^{\circ}\text{C}$ ) liegen oberhalb des Streubandes. Eine Aussage, ob beim Werkstoff Nr. 1.4988 durch eine Kaltverformung eine Erhöhung der Zeitstandfestigkeit erreicht werden kann, ist erst möglich, wenn Ergebnisse bei Prüftemperaturen von  $700^{\circ}\text{C}$  vorliegen. Ferner ist aus diesem Diagramm zu entnehmen, daß eine Auslagerung  $800^{\circ}\text{C}/23\text{h}$  nach einer Kaltverformung von 10% offensichtlich noch nicht zur Erholung führt.

Ein ähnliches Verhalten der verschiedenen Werkstoffzustände wie für die Zeitstandfestigkeit wurde auch für die Kriechgeschwindigkeit beobachtet. Die entsprechenden Ergebnisse sind in den Abbildungen 12 bis 14 zusammengestellt. Dabei wurde für alle Zustände eine Aktivierungsenergie von 84,5 kcal/mol angenommen. Dieser Wert gilt strenggenommen nur für die Charge 25116. Abweichungen von diesem Wert für andere Chargen und Vorbehandlungszustände sind daher möglich.

Aus diesen Diagrammen sind folgende Fakten zu entnehmen:

- 1) Rohrproben aus einer Charge, die in verschiedenen Reaktoren eingesetzt waren, liegen alle im Streuband. Die Probe aus der Rapso-die-Materialbestrahlung (Abb. 12) mit einer Spannung von  $100\text{ N/mm}^2$  fällt aus dem Streuband, weil die Kriechgeschwindigkeit als Quotient aus Bruchdehnung und Standzeit berechnet wurde und die Bruchdehnung 5,5% betrug.

- 2) Unterschiede im Kriechverhalten zwischen lösungsgeglühten Rohr- und Flachproben wurden nicht beobachtet. Allerdings zeigen die Flachproben aus 3 B/1 bei niedrigen Spannungen (Abb. 13) ein günstigeres Kriechverhalten als die Rohrproben, was jedoch zustandspezifisch zu sein scheint.
- 3) Für die Proben aus DFR 397 wird ein leicht positiver Einfluß der Kaltverformung auf das Kriechverhalten bei 600°C festgestellt (Abb. 14).

In Tab. 2 sind die Zeitstand-Bruchdehnungen des Stahls 1.4988 aus den verschiedenen Bestrahlungsprojekten zusammengestellt. Man erkennt, daß bis auf eine Ausnahme bei Mol 7 A die Bruchdehnungen des lösungsgeglühten Zustandes generell über 1% liegen. Auch für die bisher vorliegenden Ergebnisse am kaltverformten 1.4988 werden relativ hohe Bruchdehnungen beobachtet, allerdings ist noch unklar, ob diese Werte bei 700°C nicht doch noch stark abfallen.

### 3.2 Werkstoff Nr. 1.4981

Die drei untersuchten Chargen von Rohren des Werkstoffs Nr. 1.4981 im lösungsgeglühten Zustand liegen nach Abb. 15 in der Zeitstandfestigkeit in einem sehr engen Streuband. In diesem Streuband liegen auch die bisher vorliegenden Ergebnisse an Flachproben aus 3 B/5. Auch hier hat eine Auslagerung 850°C/1h nach der Kaltverformung offensichtlich bereits zu einer Erholung geführt.

Die entsprechenden Werte für kaltverformten 1.4981 sind in Abb. 16 dargestellt. Weder bei den Flachproben noch bei den Rohrproben läßt sich ein positiver Einfluß der Kaltverformung auf die Standzeit erkennen. Deutlich unterhalb des Streubandes liegen die Werte aus DFR 397, was bereits im Kurzzeitverhalten bei 600°C beobachtet wurde. Es wird angenommen, daß bei der Vorbehandlung der Proben entweder die Glühtemperatur zu hoch war oder der Verformungsgrad zu niedrig gelegen hat. Diese Werte wollten daher nicht als charakteristisch für den kaltverformten 1.4981 angesehen werden.

In Abb. 17 ist die Kriechgeschwindigkeit als Funktion der Spannung für mehrere Chargen des lösungsgeglühten 1.4981 wiedergegeben. Einige Ergebnisse aus Mol 2 Charge HV 139 liegen außerhalb des Streubandes. Diese Prüflinge zeigten Bruchdehnungen über 2,9%, was zu relativ hohen mittleren Kriechgeschwindigkeiten führte.

Ein positiver Einfluß der Kaltverformung auf die Kriechgeschwindigkeit ist aus Abb. 18 für den Werkstoff Nr. 1.4981 nicht zu erkennen. Allerdings liegen noch keine Werte aus 3 B/5 vor.

Bei der für den Werkstoff Nr. 1.4981 angegebenen Aktivierungsenergie von 82 kcal/mol handelt es sich wieder um einen Mittelwert für mehrere Chargen. Das schließt nicht aus, daß für einzelne Chargen bzw. Werkstoffzustände teilweise bedeutend höhere oder niedrigere Werte gemessen wurden.

Bei den in Tab. 3 zusammengestellten Zeitstand-Bruchdehnungen des Stahles 1.4981 wurden für lösungsgeglühtes Material generell Werte über 0,9% gemessen. Die kaltverformten Rohre aus Mol 2 und Mol 3 F zeigten eine mit der Standzeit ansteigende Bruchdehnung auf Werte über 1,5%. Sehr niedrige Bruchdehnungen um 0,3% wurden beim Experiment DFR 397 gemessen.

Die Tatsache, daß sowohl bei out-of-pile Versuchen als auch unter Bestrahlung kein positiver Einfluß von kaltverformten Rohrproben des Stahls 1.4981 auf die Zeitstandfestigkeit als auch auf die Kriechgeschwindigkeit gegenüber lösungsgeglühten Rohren zu beobachten ist, steht in Widerspruch zu out-of-pile Untersuchungen an Rundproben aus diesem Stahl /9/. Dabei wurde ein deutlicher positiver Einfluß auf die Zeitstandfestigkeit und vor allem auf die Kriechgeschwindigkeit bei Kaltverformungsgraden um 12 bis 15% gemessen.

### 3.3 Werkstoff Nr. 1.4970

Die Zeitstandfestigkeit von Rohren aus dem Werkstoff Nr. 1.4970 ist in Abb. 19 dargestellt. Betrachtet man die Ergebnisse für den Zustand kaltverformt und ausgelagert aus den Experimenten Mol 2, Mol 3 F und Rapsodie, so liegen alle Meßpunkte bis auf die Untersuchungen bei 650°C aus der Rapsodiebestrahlung in dem eingezeichneten Streuband. Das abweichende Verhalten dieser Proben ist wahrscheinlich darauf zurückzuführen, daß bei dieser Prüftemperatur

in Zusammenwirken mit der niedrigen Bestrahlungstemperatur von maximal 580°C die Hochtemperaturversprödung noch nicht voll wirkt. Darauf deuten auch die relativ hohen Bruchdehnungen von 0,7 bis 1,3% hin. Bei diesen Proben besteht kaum ein Unterschied in der Standzeit zu den unbestrahlten Prüflingen.

Sehr starke Unterschiede bestehen zwischen den Mol 2- und Mol 3 F-Ergebnissen an nur kaltverformten Rohren. Obwohl die Rohre aus der gleichen Charge stammen, wurden sie zu verschiedenen Zeiten geliefert. Deutliche Unterschiede existieren dabei in der Korngröße: Während die in Mol 2 eingesetzten Proben am Rande extrem feinkörnig und in der Mitte sehr grobkörnig waren, zeigten die Mol 3 F-Prüflinge ein relativ homogenes feines Korn. Wahrscheinlich ist der Unterschied in der Zeitstandfestigkeit auf die unterschiedliche Korngröße zurückzuführen. Feinkörniges Material zeigt eine geringere Neigung zur Hochtemperaturversprödung als grobkörniges Material. Der Einfluß auf die Kriechgeschwindigkeit ist dabei nur äußerst gering. Da die Kriechkurven dieses Stahls im Sekundärbereich relativ flach verlaufen, hat eine höhere Bruchdehnung einen sehr starken Einfluß auf die Standzeit.

Wie man aus Abb. 20 entnehmen kann, liegen die Ergebnisse an Flachproben aus den Mol 3-Bestrahlungen bis auf drei Ausnahmen generell über den Werten der Rohrproben. Der starke Abfall dieser drei Mol 3 B/2-Proben bei einer Prüftemperatur von 700°C ist nach den bisher vorliegenden Untersuchungen auf Sekundäreffekte (starke Korrosion) und nicht auf die Bestrahlung zurückzuführen.

Betrachtet man die einzelnen Mol 3-Ergebnisse untereinander, so stellt man fest, daß alle Zustände kaltverformt + ausgelagert bei 700°C und langen Versuchszeiten eine deutliche Abnahme der Zeitstandfestigkeit zeigen und sich dem oberen Bereich des Streubandes der Rohre nähern. Eine Ausnahme bildet hierbei der Zustand lösungsgeglüht + ausgelagert + kaltverformt, der selbst bei 700°C noch eine sehr hohe Festigkeit zeigt.

Die höhere Festigkeit der Flachproben aus den Experimenten Mol 3, die bereits bei out-of-pile Untersuchungen zu beobachten ist, wird auf die hohe Lösungsglühtemperatur von 1150°C gegenüber 1080 bis 1120°C bei den Rohrproben zurückgeführt. Dadurch kommt es zu einer homogenen Borverteilung und damit zu vielen fein dispersen Ausscheidungen nach der Kaltverformung und Auslagerung.



Die beiden im Experiment DFR 397 untersuchten Zustände fallen deutlich aus dem Gesamtbild heraus. Trotzdem zeigt auch hier der Zustand ausgelagert + kaltverformt ein günstigeres Zeitstandverhalten als der Zustand kaltverformt + ausgelagert. Die DFR 397-Ergebnisse sollten allerdings bei der Auslegung nicht berücksichtigt werden, da wahrscheinlich bei der Probenvorbereitung der Kaltverformungsgrad und/oder die Auslagerungstemperatur nicht richtig eingehalten wurden. Ferner zeigen diese Proben ein relativ grobes Korn ( $\approx 150 \mu\text{m}$ ), was auf das Lösungsglühen  $1150^\circ\text{C}/3,5 \text{ h}$  zurückzuführen ist.

In den Abbildungen 21 und 22 ist die Kriechgeschwindigkeit als Funktion der Spannung für Rohre und Flachproben aus dem Werkstoff Nr. 1.4970 dargestellt. Man erhält ein im Prinzip ähnliches Bild wie für die Zeitstandfestigkeit. Die Aktivierungsenergie von  $125 \text{ kcal/mol}$  ist wieder als Mittelwert aus mehreren Chargen zu verstehen.

Zur Abb. 21 ist zu bemerken, daß die Kriechgeschwindigkeit der bei  $650^\circ\text{C}$  untersuchten Rapsodie-Proben im Streuband der anderen Meßwerte liegt. Das deutet erneut darauf hin, daß die hohe Zeitstandfestigkeit dieser Proben nicht auf eine Bestrahlungsverfestigung, sondern auf eine geringere Versprödung zurückzuführen ist. - Ferner deutet sich eine Erhöhung der Kriechgeschwindigkeit der bestrahlten und bei  $700^\circ\text{C}$  getesteten Proben gegenüber den Versuchen an unbestrahlten Prüflingen von Braun und Schäfer an.

Aus Abb. 22 ist zu entnehmen, daß die Vorbehandlung ausgelagert + kaltverformt zu keiner negativen Beeinflussung der Kriechgeschwindigkeit bei  $700^\circ\text{C}$  gegenüber dem Zustand kaltverformt + ausgelagert führt.

In Tab. 4 sind die Bruchdehnungen dieses Werkstoffs im Zeitstandversuch zusammengestellt. Wesentliche Unterschiede in der Bruchdehnung von Rohren im Zustand kaltverformt bzw. kaltverformt + ausgelagert wurden nicht beobachtet. Bei den Flachproben sind vor allem die hohen Bruchdehnungen der ausgelagert + kaltverformten Proben aus den Experimenten Mol 3 B/2 und DFR 397 hervorzuheben.

Der Zusammenhang zwischen Versprödung bei  $700^\circ\text{C}$  und dem He-Gehalt geht aus Abb. 23 hervor. Deutlich ist hier auch der Einfluß der Verformungsgeschwin-

digkeit auf die Versprödung zu erkennen. Der Zustand ausgelagert + kaltverformt aus dem Experiment Mol 3 B/2 zeigt allerdings bei 700°C eine von der Kriechgeschwindigkeit weitgehend unabhängige Versprödung. Bei niedrigen Kriechgeschwindigkeiten bis herab zu  $5 \times 10^{-6}$  /h liegt der Zustand bedeutend günstiger als die kaltverformten + ausgelagerten Proben.

Aus diesem Diagramm ist ferner zu entnehmen, daß bei den Mol 3-Bestrahlungen He-Gehalte über 100 ppm erreicht wurden. Da im SNR 300 für diesen Werkstoff He-Gehalte von maximal 50 ppm erwartet werden, sollte die Versprödung unter SNR-Bedingungen geringer sein als bei den Mol 3-Experimenten.

#### 4. Vergleich der drei Stähle

In Abb. 24 wird die Zeitstandfestigkeit von Rohren aus den Werkstoffen Nr. 1.4970 (kaltverformt + ausgelagert), 1.4981 (lösungsgeglüht) und 1.4988 (lösungsgeglüht) verglichen. Die Zeitstandfestigkeit von kaltverformten Rohren aus dem Stahl 1.4981 ist dabei identisch mit der des lösungsgeglühten Materials. Man erkennt deutlich das günstigere Verhalten des 1.4970, während zwischen den Stählen 1.4988 und 1.4981 keine wesentlichen Unterschiede auftreten. Als Vergleich dazu sind britische Untersuchungen an kaltverformten Rohren aus den Stählen FV 548 und AISI 316 /8/ eingetragen. Die Untersuchungen wurden bei 650°C durchgeführt. Im oberen Bereich des Streubandes liegt der FV 548, im unteren Bereich der AISI 316. Aufgrund der höheren Kaltverformung von 20% liegen die Werte bei kurzen Versuchszeiten günstiger als bei den deutschen Stählen. Zu langen Versuchszeiten hin und vor allem bei höheren Temperaturen ist jedoch, wahrscheinlich aufgrund von Erholungsvorgängen, ein starker Abfall der Festigkeit zu verzeichnen.

Als gestrichelte Linie wurden die Zeitstandfestigkeitswerte für den Zustand ausgelagert + kaltverformt aus dem Experiment Mol 3 B/2 eingetragen. Es sollte möglich sein, diese Werte zu erreichen, wenn es gelingt, Rohre mit den gleichen Eigenschaften wie bei den entsprechenden Flachproben herzustellen.

Auch im Kriechverhalten bei 700°C zeigen die bisher untersuchten Rohre aus dem Werkstoff Nr. 1.4970 nach Abb. 25 ein günstigeres Verhalten als die

Rohre aus dem Stahl 1.4981. Zwischen den Werten für den Werkstoff Nr. 1.4988 und dem Werkstoff Nr. 1.4981 treten dabei keine wesentlichen Unterschiede auf.

Eine Werkstoffauswahl nach Zeitstandfestigkeit und Kriechfestigkeit allein ist jedoch nicht ausreichend, da auch die Duktilität berücksichtigt werden sollte. Hier schafft die Kenngröße  $\sigma_{\delta/2}$  Abhilfe, die allerdings keine physikalische Bedeutung hat und auch für Auslegungsrechnungen direkt nicht zu verwenden ist. Diese Kenngröße geht davon aus, daß man einen Werkstoff von der Beanspruchung her bis zur halben Bruchdehnung ausnutzen kann. Sie stellt diejenige Spannung dar, bei der nach einer bestimmten Zeit eine Kriechverformung erreicht ist, die der halben Bruchdehnung entspricht.

Für die Zeit  $t = 1000h$  ist diese Kenngröße bei Temperaturen von 650 und 700°C für Rohre aus den untersuchten Stählen in Abb. 26 dargestellt. Auch hier kommt das günstige Verhalten des Werkstoffs Nr.1.4970 gegenüber den anderen Stählen deutlich zum Ausdruck. So liegt z.B. diese Kenngröße bei 700°C für den Werkstoff Nr. 1.4970 um 50% höher als für den Werkstoff Nr. 1.4981.

Um für den Werkstoff Nr. 1.4981 die gleiche Kenngröße zu erhalten wie für den Stahl 1.4970 bei 700°C, müßte man die Temperatur etwa um 40°C absenken.

Die beiden rechten Balken dieser Abbildung geben das Potential des 1.4970 wieder und gelten für die Proben aus dem Experiment 3 B/2 im Zustand ausgelagert + kaltverformt. Aufgrund der hohen Kriechfestigkeit und guten Duktilität dieser Proben wird ein derart günstiges Verhalten erreicht. Eine Optimierung des Stahls 1.4970 muß zeigen, ob diese hohen Werte auch bei Rohren zu verwirklichen sind.

Zusammenfassend läßt sich folgendes sagen:

- 1) Im Temperaturbereich von 400 bis 550°C gibt es keine Unterschiede im mechanischen Verhalten zwischen den einzelnen Werkstoffen und Werkstoffzuständen.
- 2) Aufgrund mangelnder Ergebnisse kann das mechanische Kurzzeitverhalten bei Temperaturen oberhalb 600°C nicht als Auswahlkriterium für die einzelnen Werkstoffe herangezogen werden. Die wenigen bis-

her vorliegenden Untersuchungen deuten jedoch darauf hin, daß kaltverformte Werkstoffe niedrigere Bruchdehnungen aufweisen als lösungsgeglühte.

- 3) Beim mechanischen Langzeitverhalten schneidet der Werkstoff Nr. 1.4970 im bisher untersuchten Rohrzustand günstiger ab als die beiden anderen Werkstoffe. Dies gilt auch für die Kenngröße  $\sigma_{\delta/2}$ , die die Kriechfestigkeit und Duktilität miteinander kombiniert. Ferner sollte eine Optimierung des 1.4970 zu einem noch günstigeren Verhalten führen.

#### Literatur

- /1/ E.E. Bloom, J.R. Weir: Effect of Neutron Irradiation on the Ductility of Austenitic Stainless Steels. Nuclear Technology 16 (Oct. 1972) S. 45
- /2/ E.E. Bloom, J.O. Stiegler: Postirradiation Mechanical Properties of Types 304 and 304 + 0.15% Ti Stainless Steels. Nuclear Technology 17 (Jan. 1973) S. 24-37
- /3/ R.L. Fish, J.L. Straalsund, C.W. Hunter, J.J. Holmes: Swelling and Tensile Property Evaluations of High-Fluence EBR II Thimbles. ASTM-Stp 529 (1973), S. 149-164
- /4/ D. Fahr, E.E. Bloom, J.O. Stiegler: Post Irradiation Tensile Properties of Annealed and Cold-Worked Type 316 Stainless Steel. Proceedings BNES, London (1972) S. 167-177
- /5/ R.L. Fish, A.J. Lovele, H.R. Brager, J.J. Holmes: Tensile and Creep Behaviour of 20% Cold Worked Type 316 Stainless Steel after EBR II Irradiation. Proceedings BNES, London (1972) S. 187-194
- /6/ R.L. Fish, J.J. Holmes: Tensile Properties of Annealed Type 316 Stainless Steel after EBR II Irradiation. Journal of Nuclear Materials 46 (1973) S. 113-120
- /7/ A.L. Ward: Tensile Properties of Fast Reactor Irradiated AISI 316 Stainless Steel. Trans. ANS 12 (1969) S. 584

/8/ K.A. Bagley, J.W. Barnaby, A.S. Fraser: Irradiation Embrittlement of Austenitic Stainless Steels. Proceedings BNES, London (1972) S. 143-153

/9/ H. Böhm, M. Schirra: Einfluß der Kaltverformung auf das Zeitstand- und Kriechverhalten einiger warmfester austenitischer Stähle. Archiv Eisenhüttenwesen 44 (1973) S. 785-791

Charge	Vorbehandlung	Bestrahlungsprojekt	$\delta$ [%]		
			600°C	650°C	700°C
25116	lg + $\leq$ 7% kv + 800°C/1h bzw. lg + $\leq$ 7% kv + 750°C/3h	Mol 2	> 1,4	-	$\geq$ 1,0
		Mol 3 F	-	-	> 1,7
		Mol 7 A	0,5-1,7	-	-
		Rapsodie	-	0,7-1,3	5,5
03588 <sup>+</sup>	lg lg+750°C/3h+800°C/23h lg + 10% kv lg+10%kv+850°C/1h lg+750°C/3h+10%kv+850°C/1h	Mol 3 B/5	-	-	-
		DFR 397	2,7-3,0	-	-
		Mol 3 C	-	0,25-0,5	-
		Mol 3 C	-	> 0,35	-
03588 <sup>+</sup>	lg + $\leq$ 10%kv+800°C/23h lg + 10% kv	DFR 397	0,7-1,1	-	-
		Mol 3 B/5	-	1,7	-

<sup>+</sup> Flachproben. Bruchdehnung einachsrig

Tab. 2 Zeitstand-Bruchdehnungen des Stahls 1.4988

Bestrahlungsexperiment	Probenform	Eingesetzte Werkstoffe	Neutronendosis ( E > 0,1 MeV ) [ n/cm <sup>2</sup> ]	Bestrahlungstemperatur [ °C ]
Mol 2	Rohrproben	1.4988, 1.4981, 1.4970	≤ 1,2 x 10 <sup>22</sup>	615, 720
Mol 3 B, C	Flachproben	1.4988, 1.4981, 1.4970	≤ 1,0 x 10 <sup>22</sup>	620 bis 650
Mol 3 F <sup>+</sup>	Rohrproben	1.4988, 1.4981, 1.4970	≤ 2,0 x 10 <sup>21</sup>	620 bis 650
DFR 397	Flachproben	1.4988, 1.4981, 1.4970	≤ 7,5 x 10 <sup>22</sup>	490 bis 620
Rapsodie Material	Rohrproben	1.4988, 1.4970	≤ 4,9 x 10 <sup>22</sup>	415 bis 530
Mol 7 A	Hüllrohrabschnitte	1.4988, 1.4961	≤ 6,8 x 10 <sup>21</sup>	365 bis 580
DFR 350	Hüllrohrabschnitte	1.4988, 1.4961	≤ 3,8 x 10 <sup>22</sup>	240 bis 650
Rapsodie Monitor	Hüllrohrabschnitte	1.4988, 1.4970	≤ 4,3 x 10 <sup>22</sup>	410 bis 580

<sup>+</sup> INTERATOM-Versuch

Tab. 1 Übersicht über die Bestrahlungsexperimente zum mechanischen Verhalten des Hüllmaterials

Charge	Vorbehandlung	Bestrahlungsprojekt	$\delta$ [%]		
			600°C	650°C	700°C
HV 139	1g + $\leq$ 7% kv	Mo1 2	1,6-0,9	-	> 2,9
70015	1g + $\leq$ 7% kv	Mo1 2	1,3	-	1,1-1,5
70703	1g + $\leq$ 7% kv	Mo1 3 F	-	0,9-3,9	2,1-1,2
19590 <sup>+</sup>	1080°C/30'	Mo1 3 B/5			
19590 <sup>+</sup>	1080°C/30'+10%kv+850°C/1h	Mo1 3 B/5			
70015	1g + 13% kv	Mo1 2	1,0	-	0,07-1,5
70015	1g + 13% kv	Mo1 3 F	-	-	1,2-1,8
70015	1g + 18% kv	Mo1 3 F	-	-	1,2-1,9
19590 <sup>+</sup>	1080°C/30'+10%kv	Mo1 3 B/5			
19590 <sup>+</sup>	1080°C/5'+10% kv	Mo1 3 B/5			
19590 <sup>+</sup>	1080°C/30'+20% kv	Mo1 3 B/5			
19590 <sup>+</sup>	1100°C/45'+12%kv+800°C/23h	DFR 397	0,2-0,4	-	-

<sup>+</sup> Flachproben: Bruchdehnung einachsig

**Tab. 3** Zeitstand-Bruchdehnungen des Stahls 1.4981

Charge	Vorbehandlung	Bestrahlungsprojekt	$\delta$ [%]		
			600°C	650°C	700°C
8 - 29052	1g + 15% kv	Mo1 2	0,5-0,9	-	0,1-1,2
	1g + 15% kv	Mo1 3 F	-	-	(0,2-0,6)
8- 29052	1g + 15% kv + 800°C/23h	Mo1 2	-	-	0,1-0,4
8 - 29052	1g + 15% kv + 800°C/24h	Mo1 3 F	-	-	0,4-0,8
8 - 29052	1g + 15% kv + 800°C/2h	Mo1 3 F	-	-	0,2-0,5
8 - 29052	1g + 15% kv + 800°C/2h	Rapsodie	-	0,7-1,3	1,0
8 - 29053 <sup>+</sup>	1g + 15% kv + 800°C/23h	Mo1 3B/2	1,6-1,8	1,0-0,4	0,2-0,3
8 - 29053 <sup>+</sup>	1g + 10% kv + 800°C/23h	Mo1 3B/3	-	0,5-0,2	0,2-0,1
8 - 29053 <sup>+</sup>	1g + 10% kv + 850°C/2h	Mo1 3B/3	-	3,9-1,0	0,1-0,2
8 - 29097 <sup>+</sup>	1g + 10% kv + 800°C/23h	DFR 397	1,4-1,0	-	-
8 - 29053 <sup>+</sup>	1g + 800°C/23h + 15% kv	Mo1 3B/2	5,3-3,0	5,6-1,1	1,4-0,7
8 - 29097 <sup>+</sup>	1g + 800°C/23h + 10% kv	DFR 397	3,5	-	0,7

<sup>+</sup> Flachproben: Bruchdehnung einachsig

**Tab. 4** Zeitstand-Bruchdehnungen des Stahls 1.4970

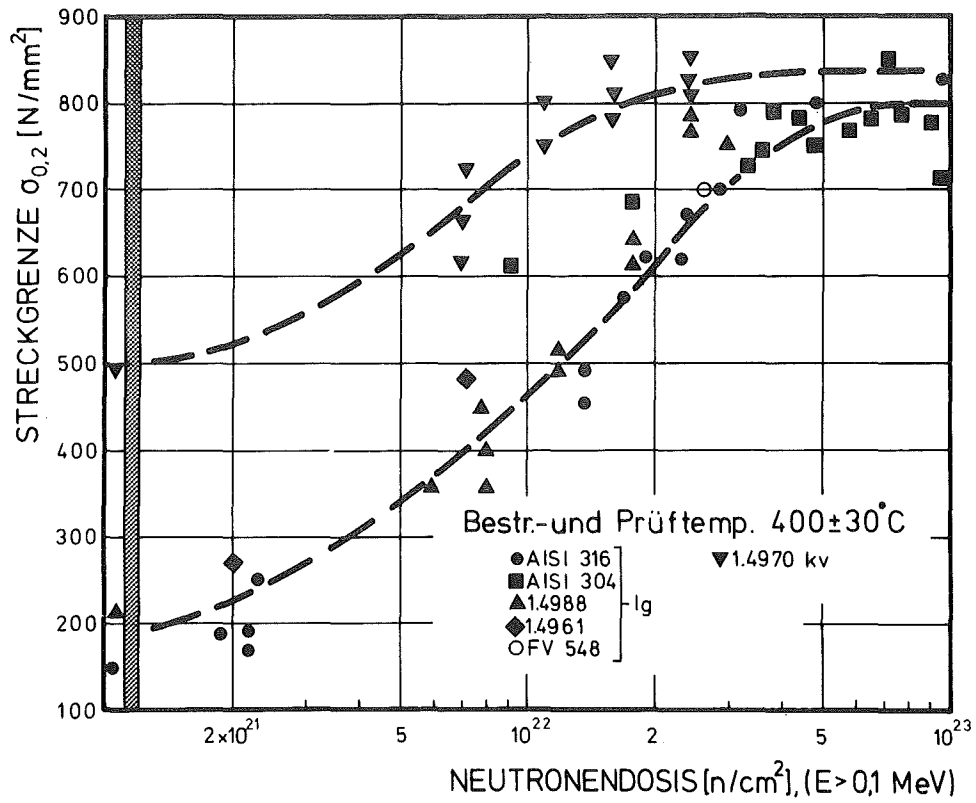


Abb. 1 Streckgrenze als Funktion der Neutronendosis für  $T = 400 \pm 30^\circ\text{C}$

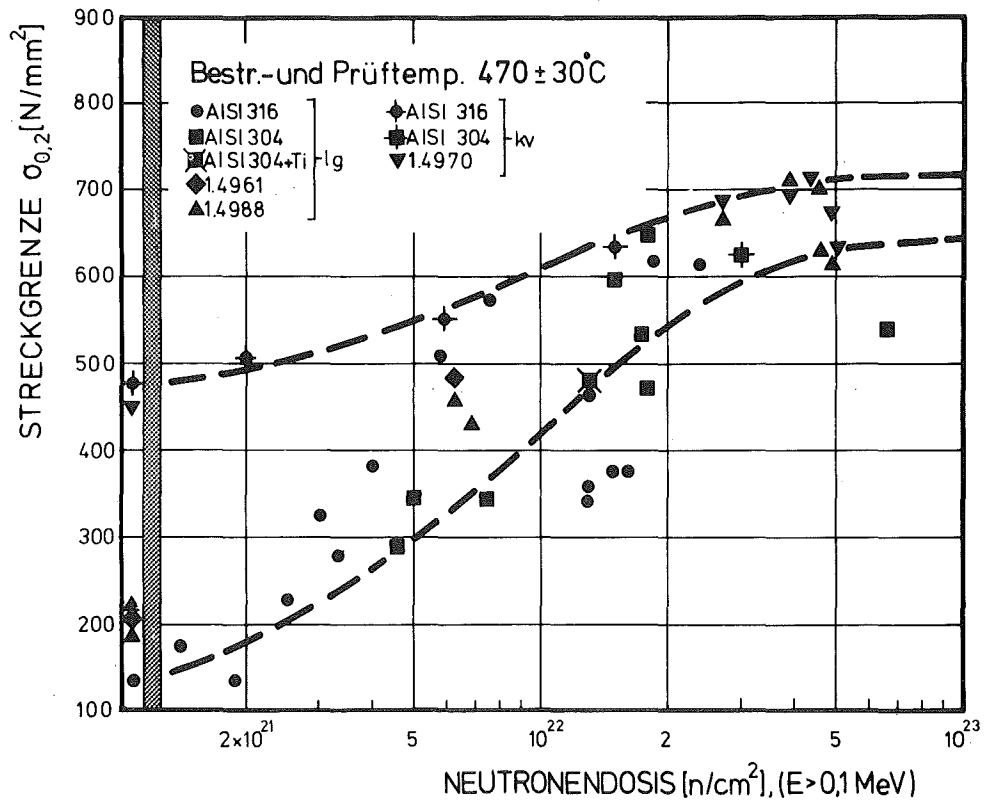


Abb. 2 Streckgrenze als Funktion der Neutronendosis für  $T = 470 \pm 30^\circ\text{C}$



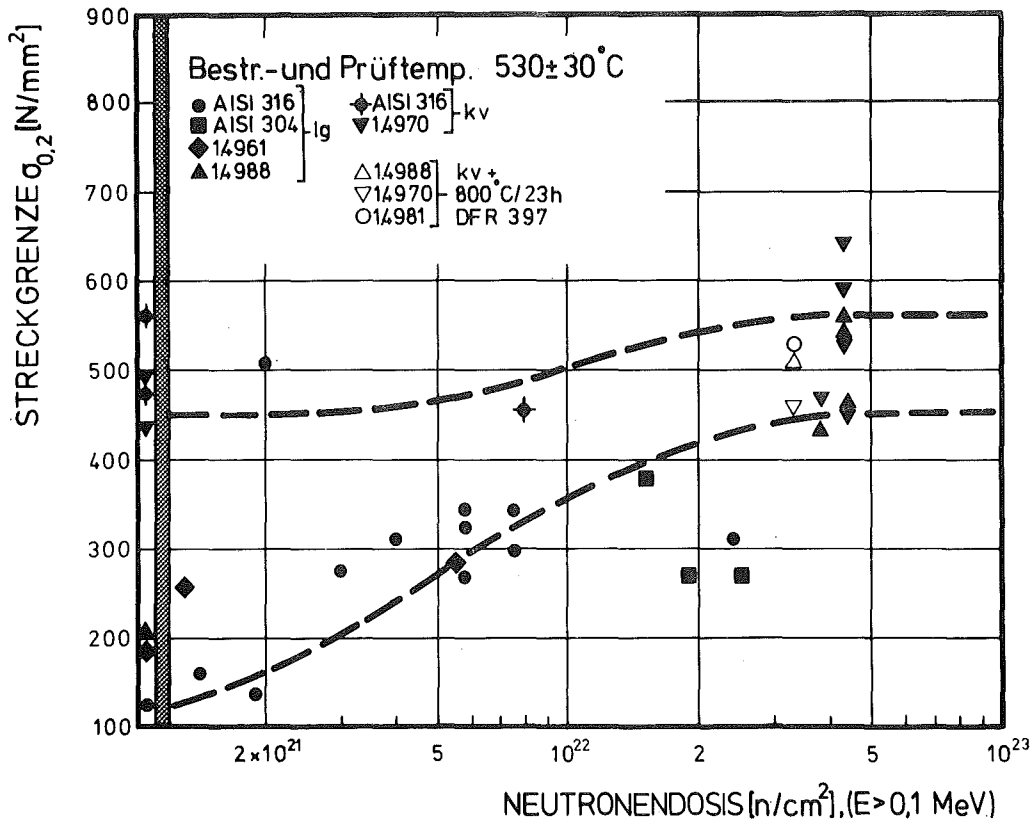


Abb. 3 Streckgrenze als Funktion der Neutronendosis für  $T = 530 \pm 30^\circ\text{C}$

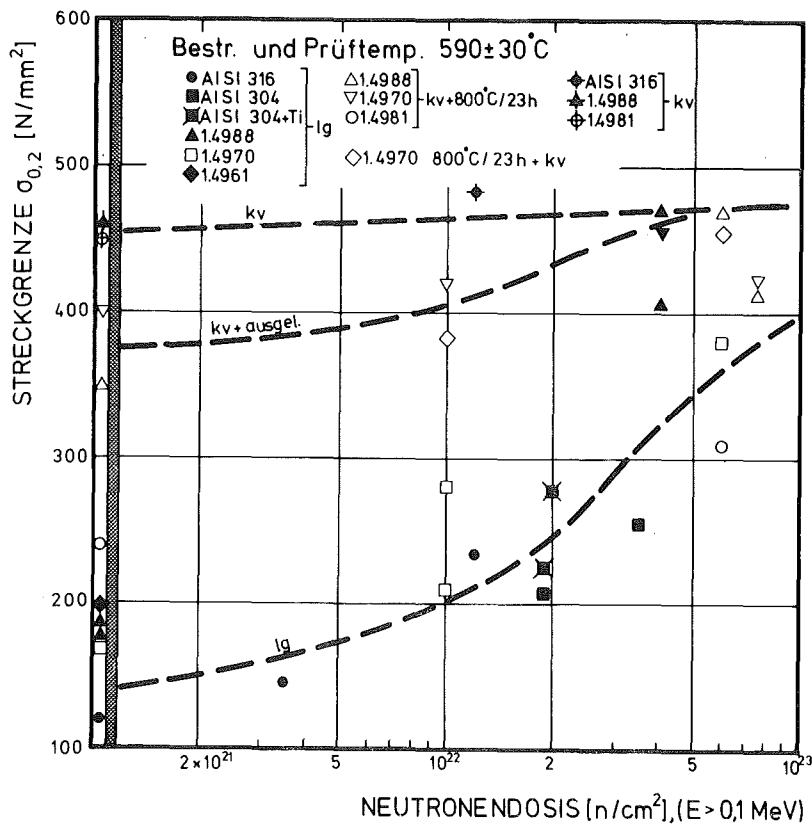


Abb. 4 Streckgrenze als Funktion der Neutronendosis für  $T = 590 \pm 30^\circ\text{C}$

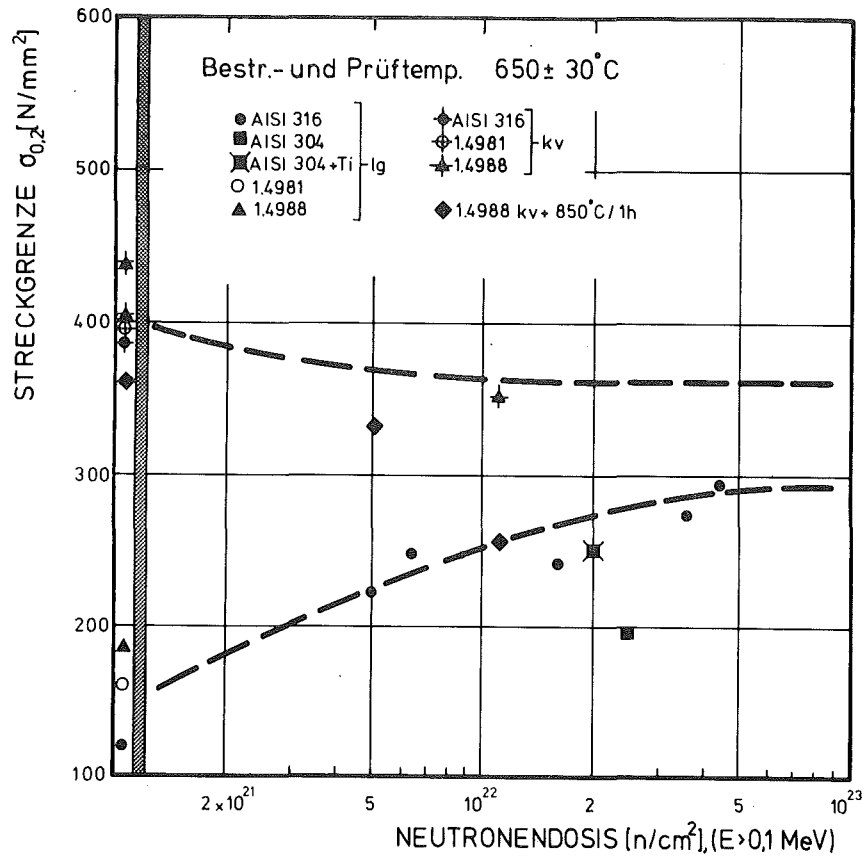


Abb. 5 Streckgrenze als Funktion der Neutronendosis für  $T = 650 \pm 30^\circ\text{C}$

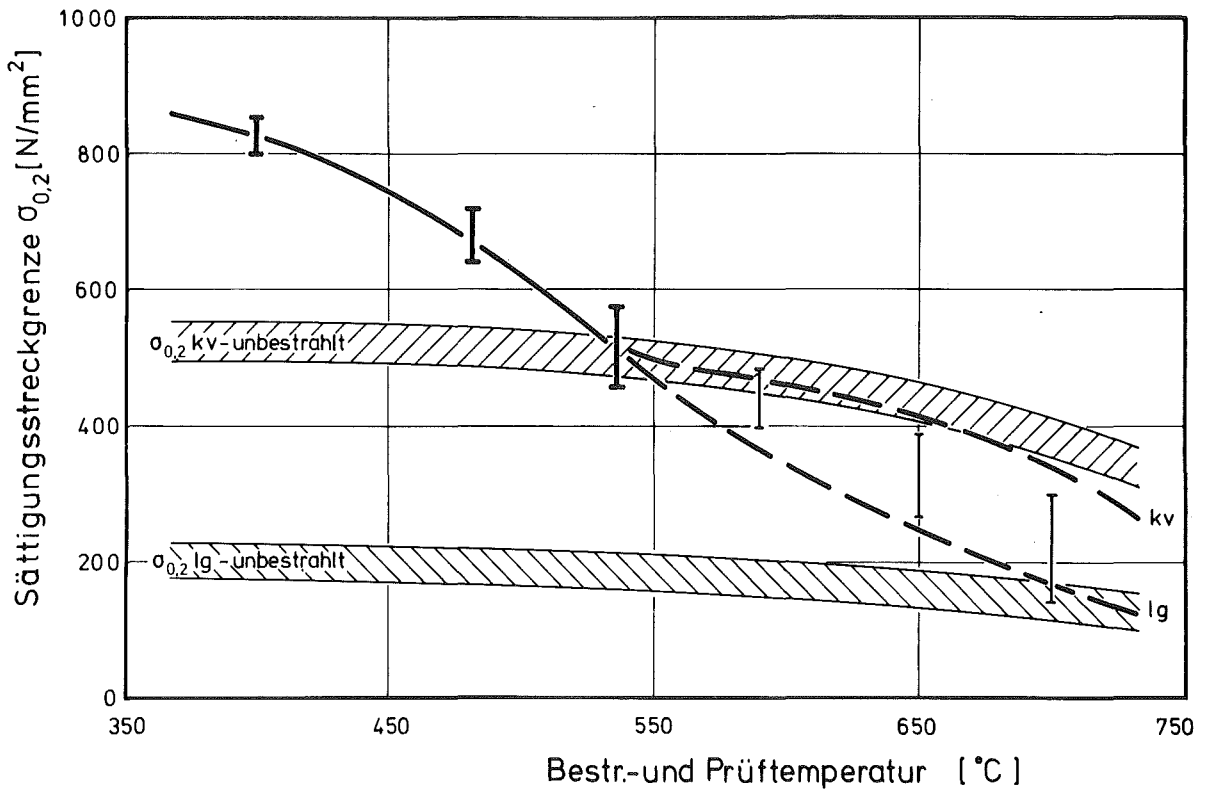


Abb. 6 Sättigungsstreckgrenze als Funktion der Temperatur

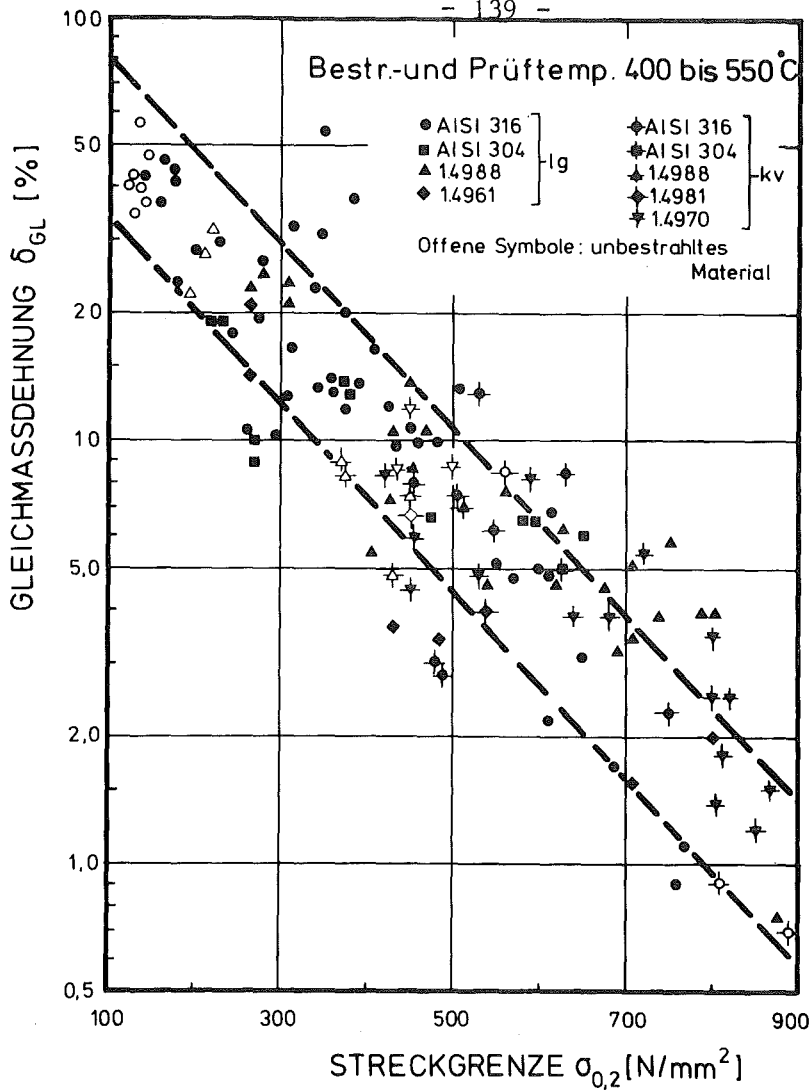


Abb. 7

Zusammenhang zwischen Gleichmaßdehnung und Streckgrenze

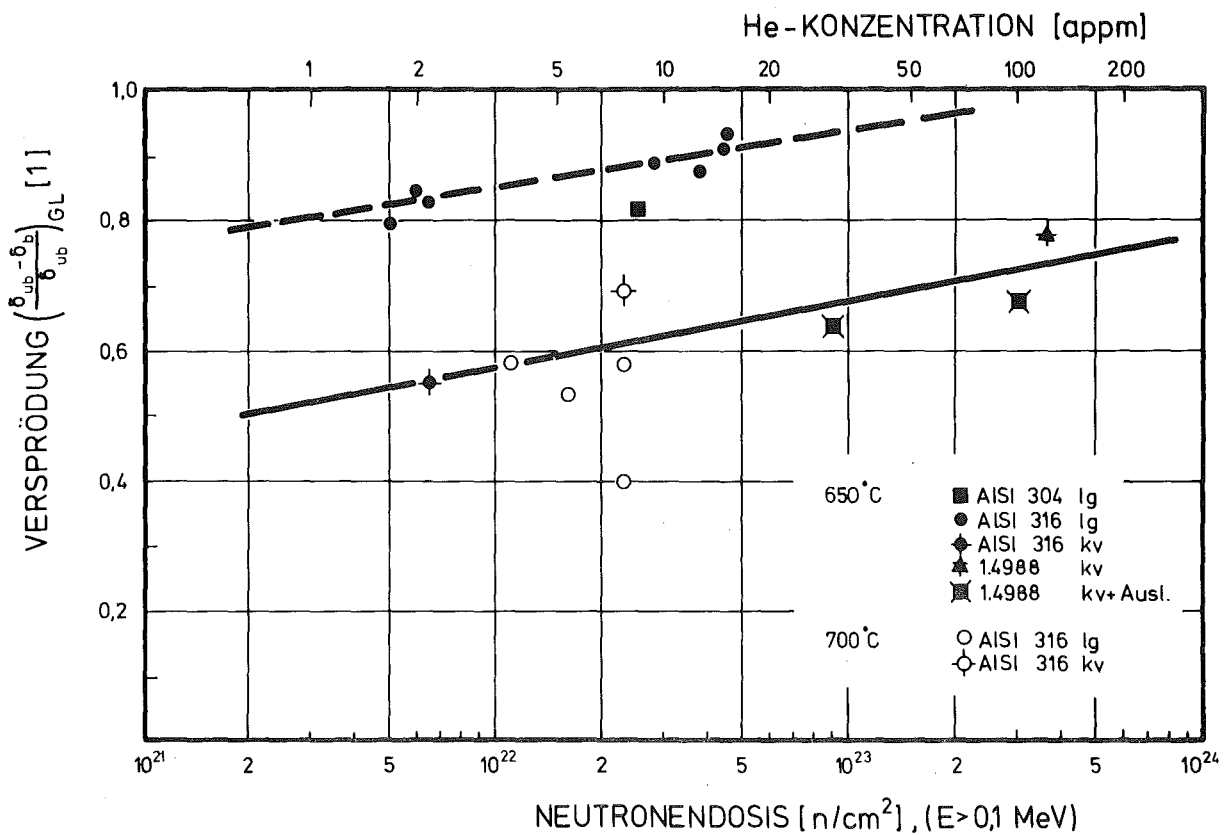


Abb. 8 Versprödung als Funktion der Neutronendosis bzw. des He-Gehalts für T = 650 und 700°C

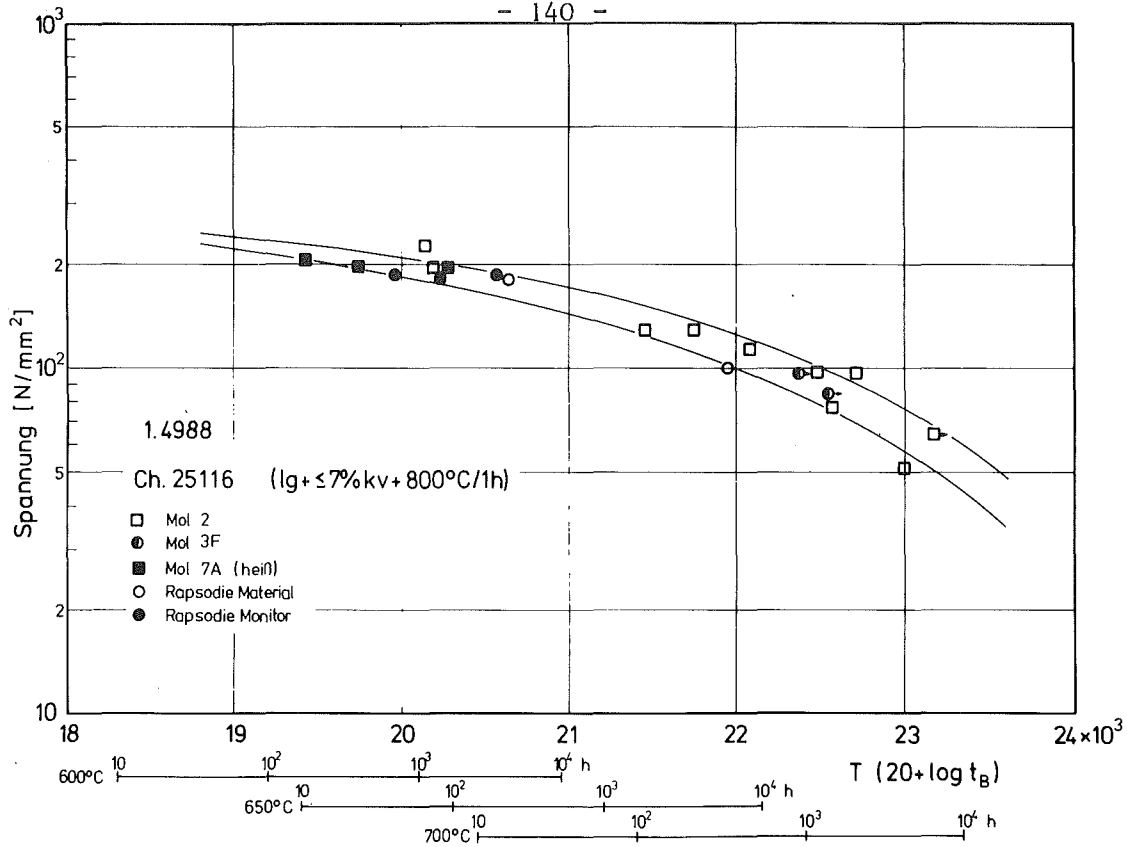


Abb. 9 Zeitstandfestigkeit von Rohren des Stahls 1.4988 (lösungsgeglüht)

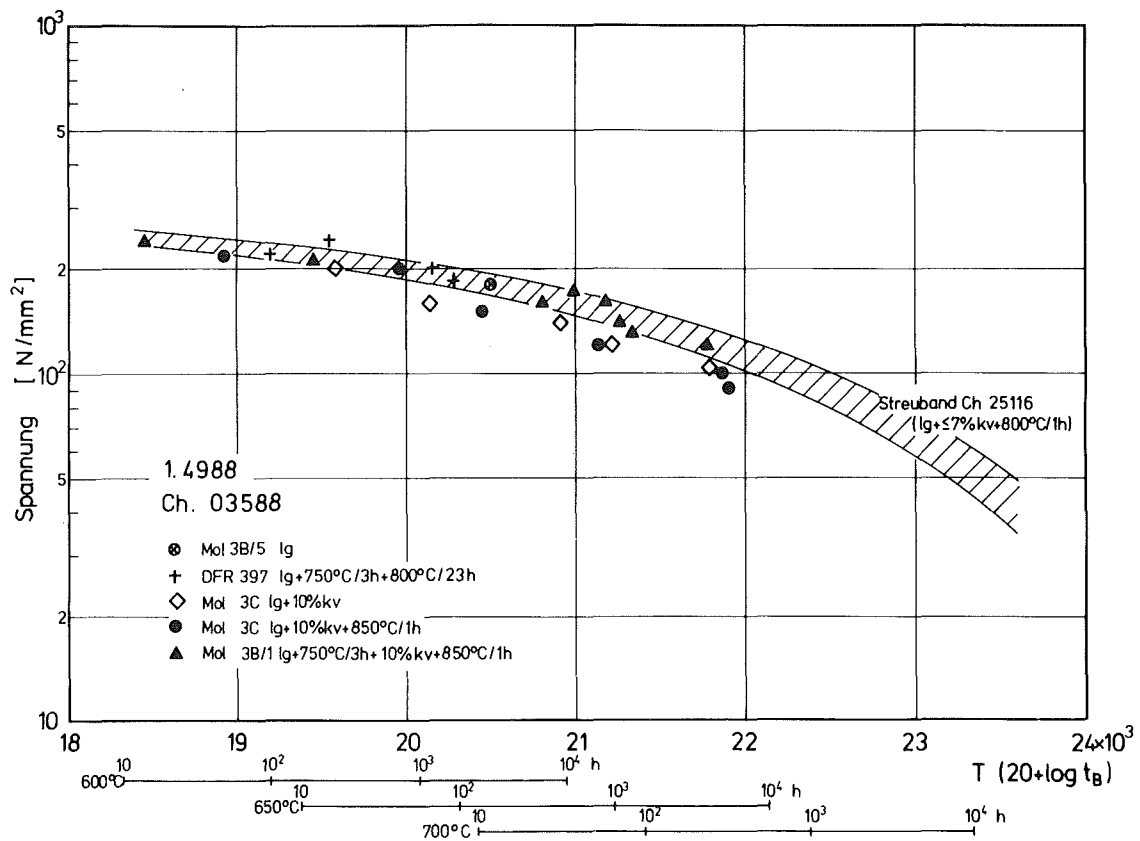


Abb. 10 Zeitstandfestigkeit von Flachproben des Stahls 1.4988 (lösungsgeglüht)

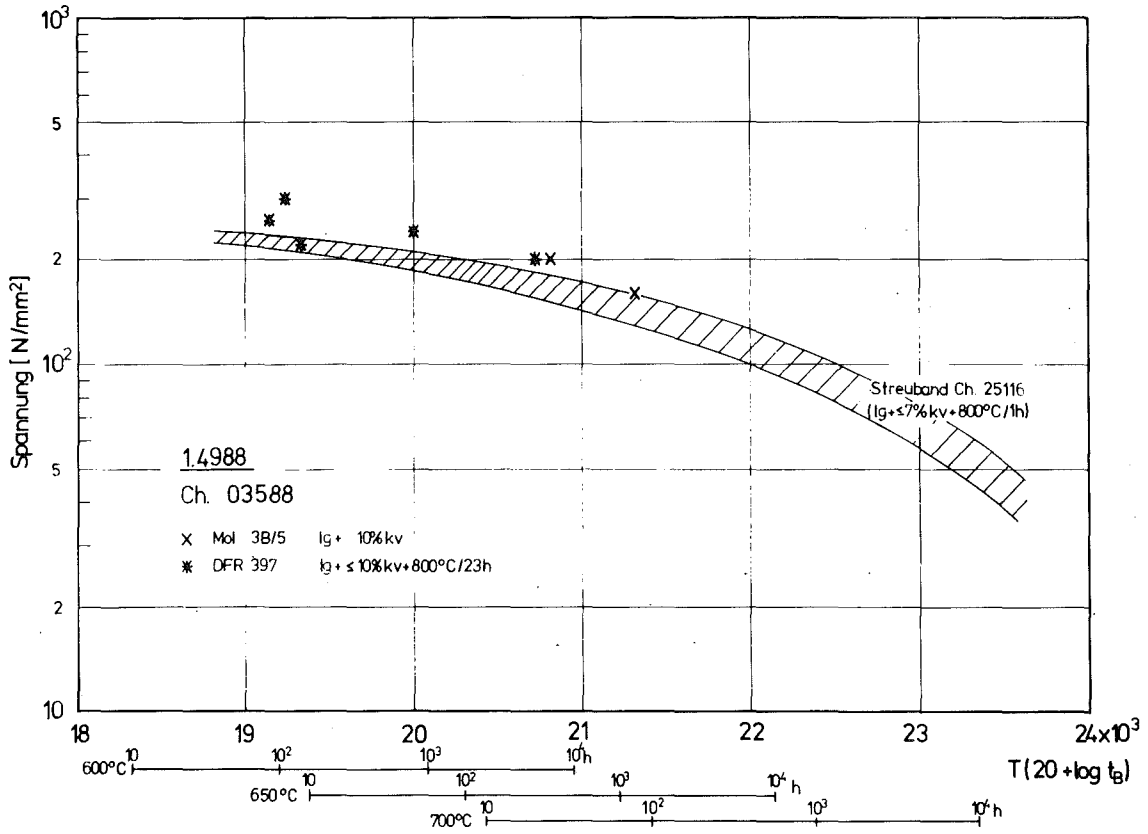


Abb. 11 Zeitstandfestigkeit des Stahls 1.4988 (kaltverformt)

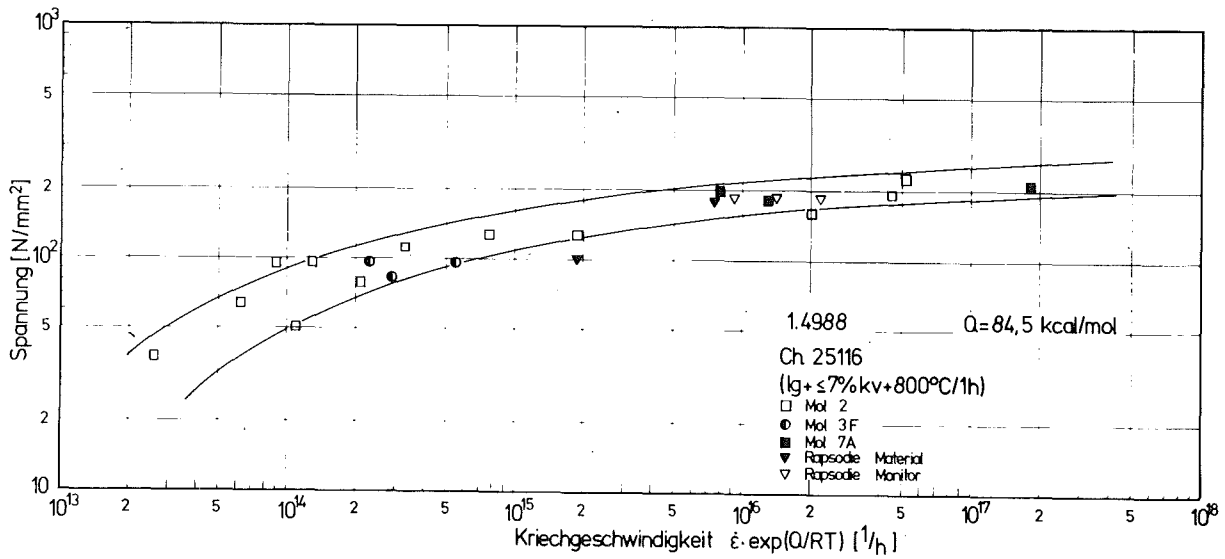


Abb. 12 Kriechgeschwindigkeit von Rohren des Stahls 1.4988 (lösgeglüht)

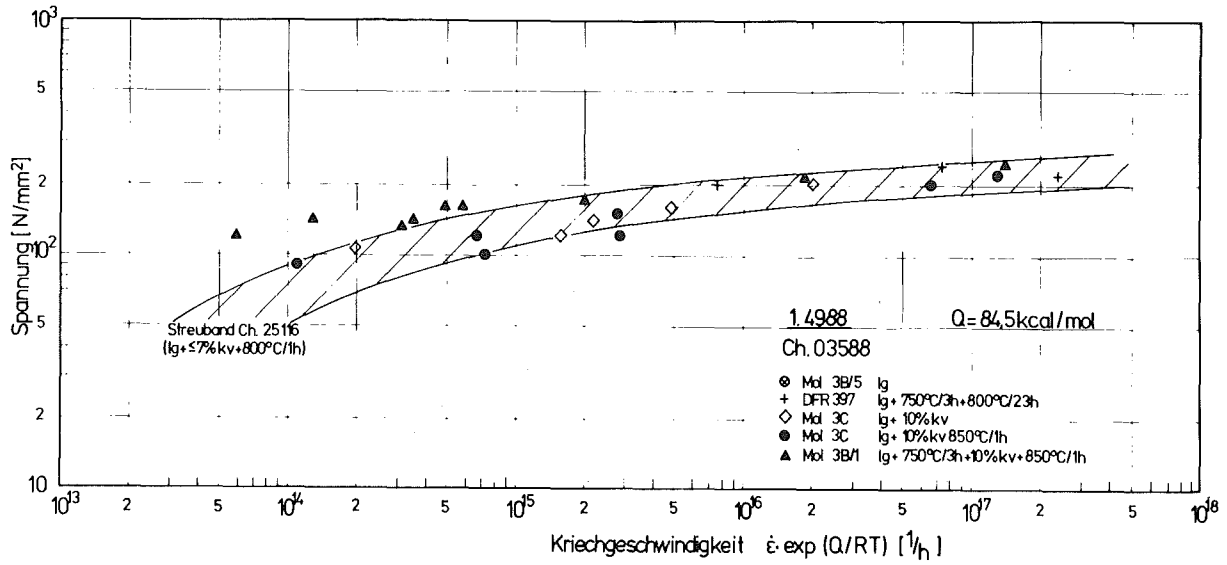


Abb. 13 Kriechgeschwindigkeit von Flachproben des Stahls 1.4988

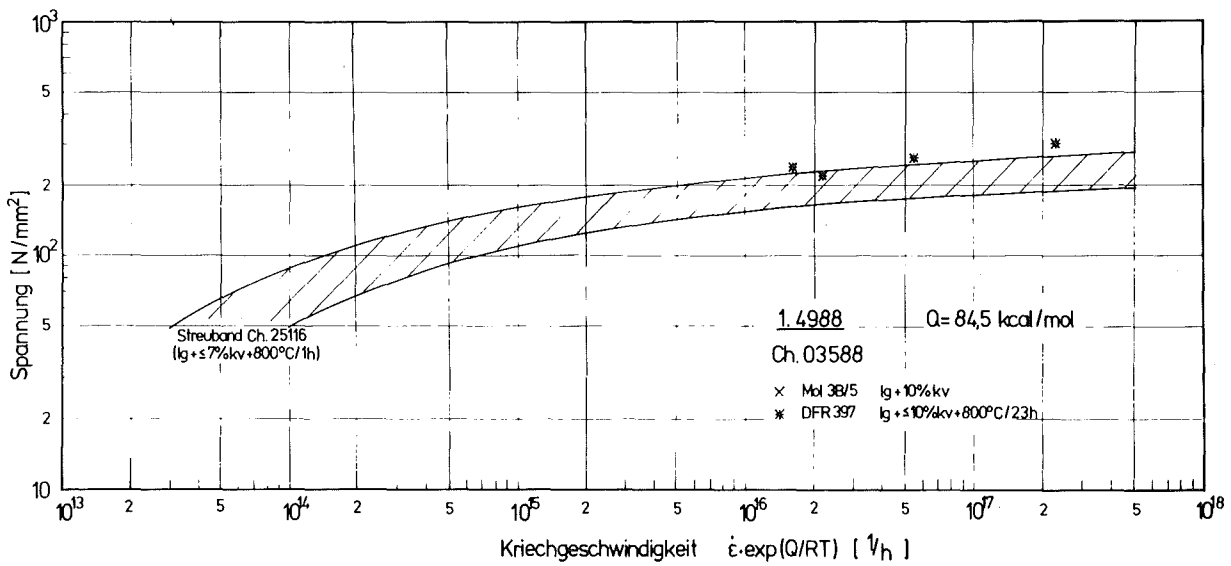


Abb. 14 Kriechgeschwindigkeit des Stahls 1.4988 (kaltverformt)

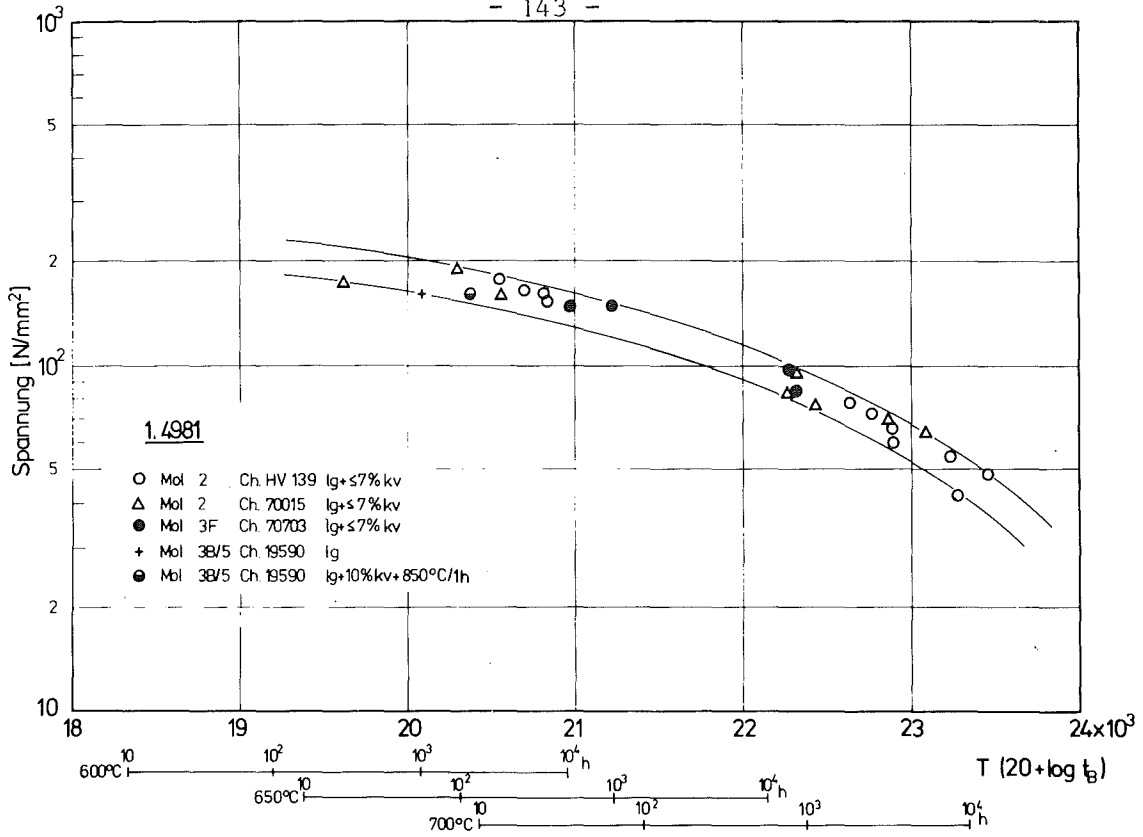


Abb. 15 Zeitstandfestigkeit des Stahls 1.4981 (lösungsgeglüht)

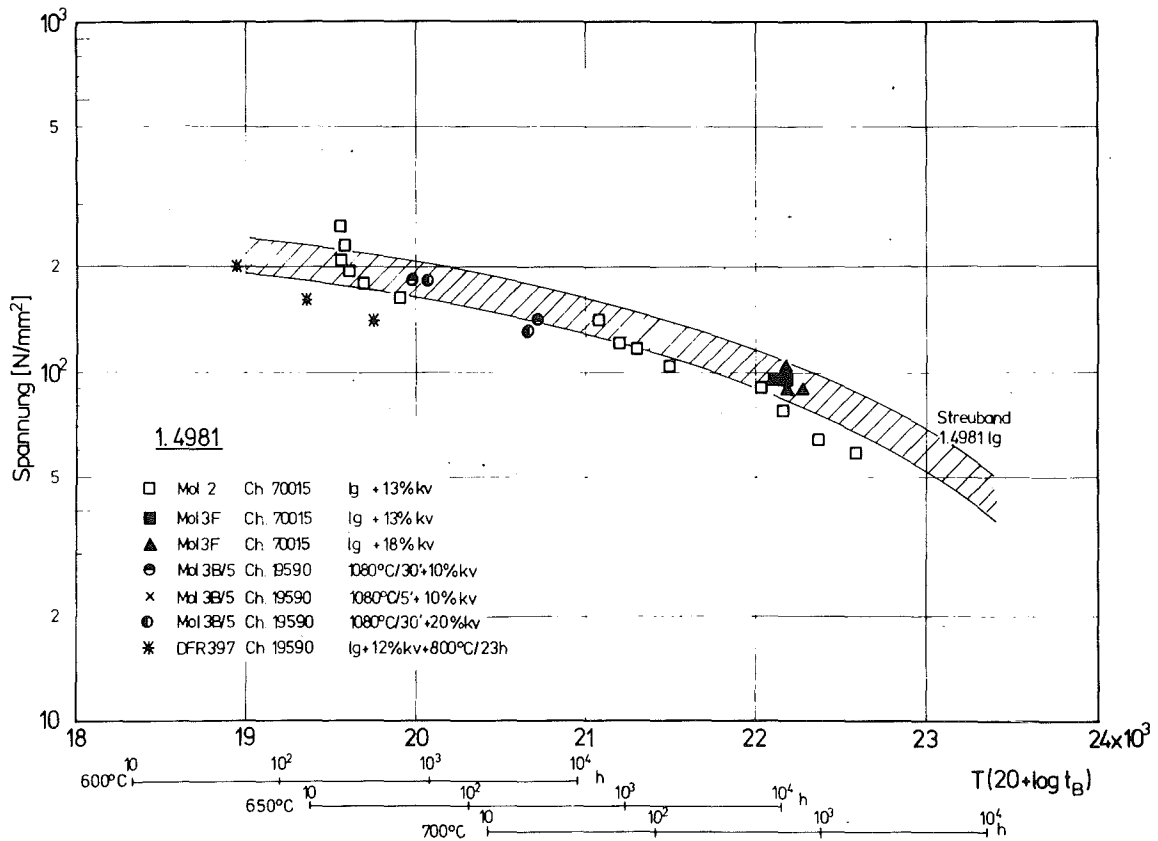


Abb. 16 Zeitstandfestigkeit des Stahls 1.4981 (kaltverformt)

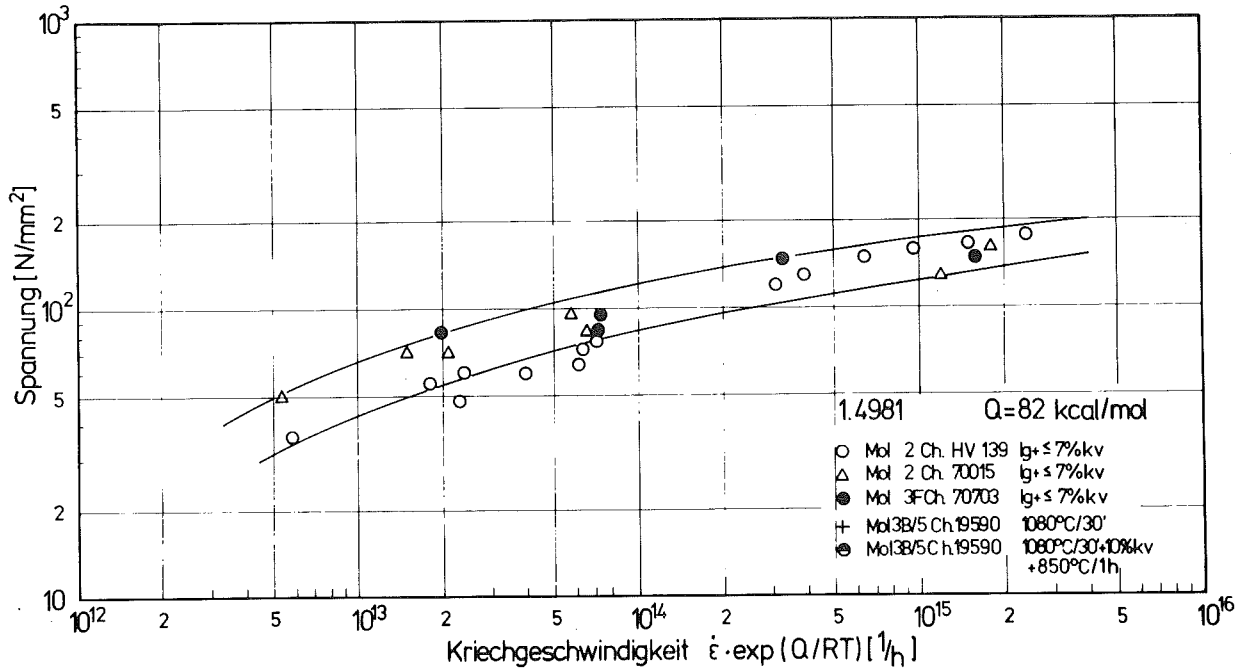


Abb. 17 Kriechgeschwindigkeit des Stahls 1.4981 (lösungsgeglüht)

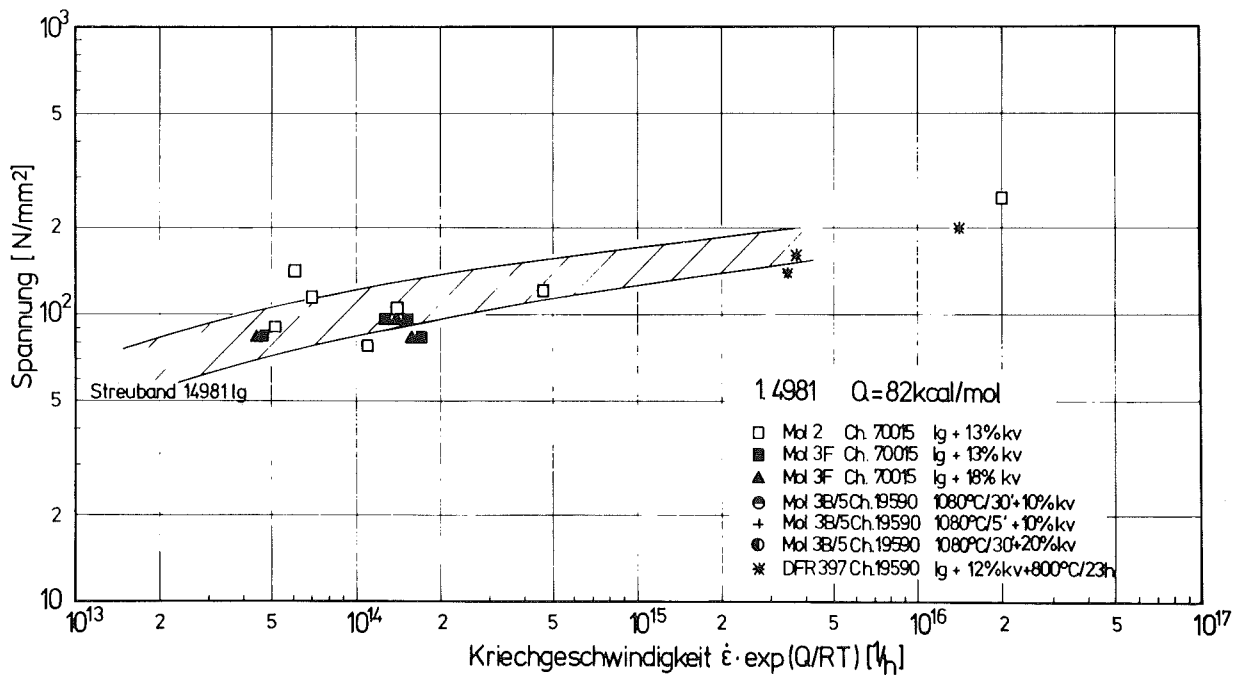


Abb. 18 Kriechgeschwindigkeit des Stahls 1.4981 (kaltverformt)



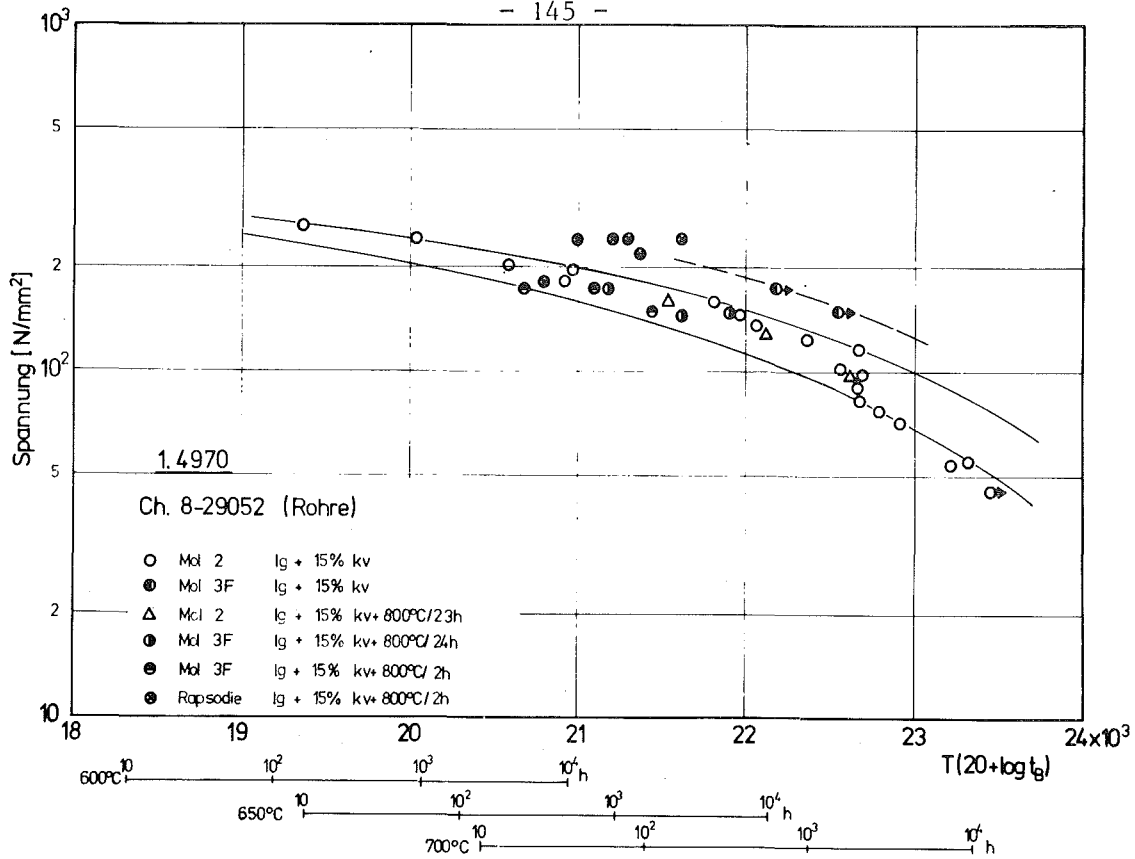


Abb. 19 Zeitstandfestigkeit von Rohren des Stahls 1.4970

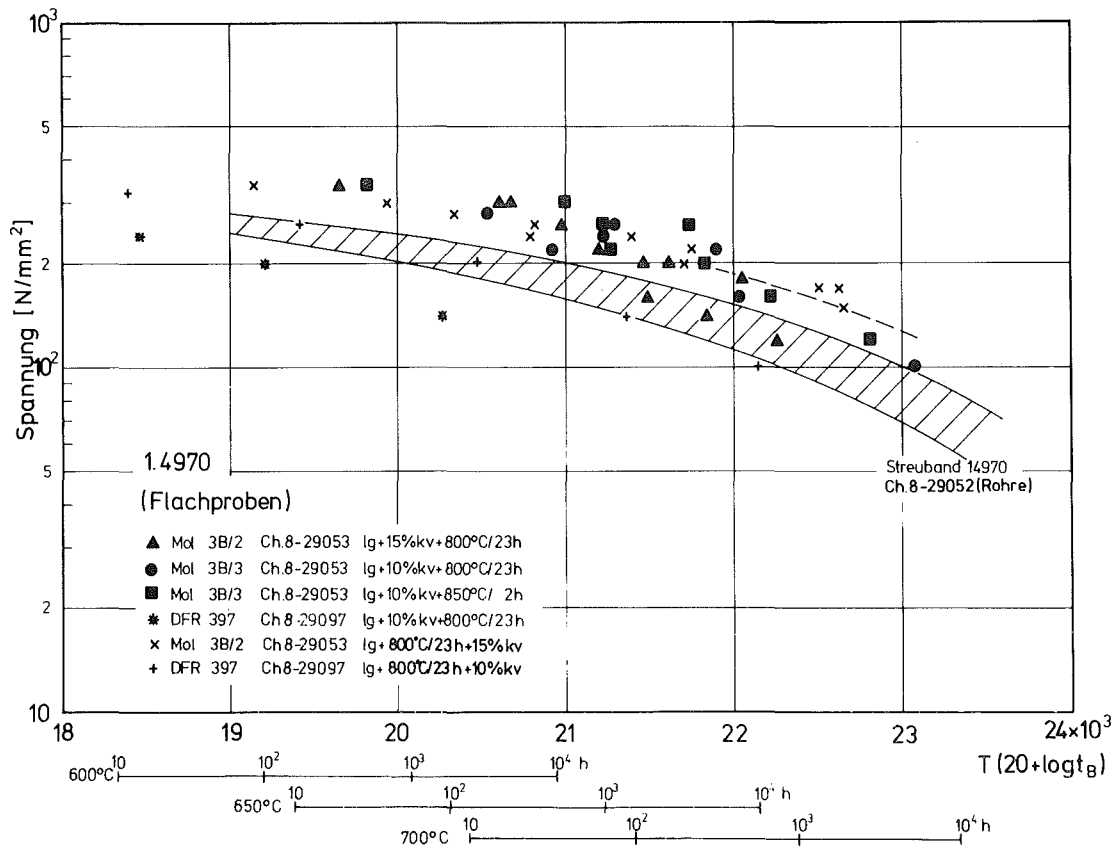


Abb. 20 Zeitstandfestigkeit von Flachproben des Stahls 1.4970

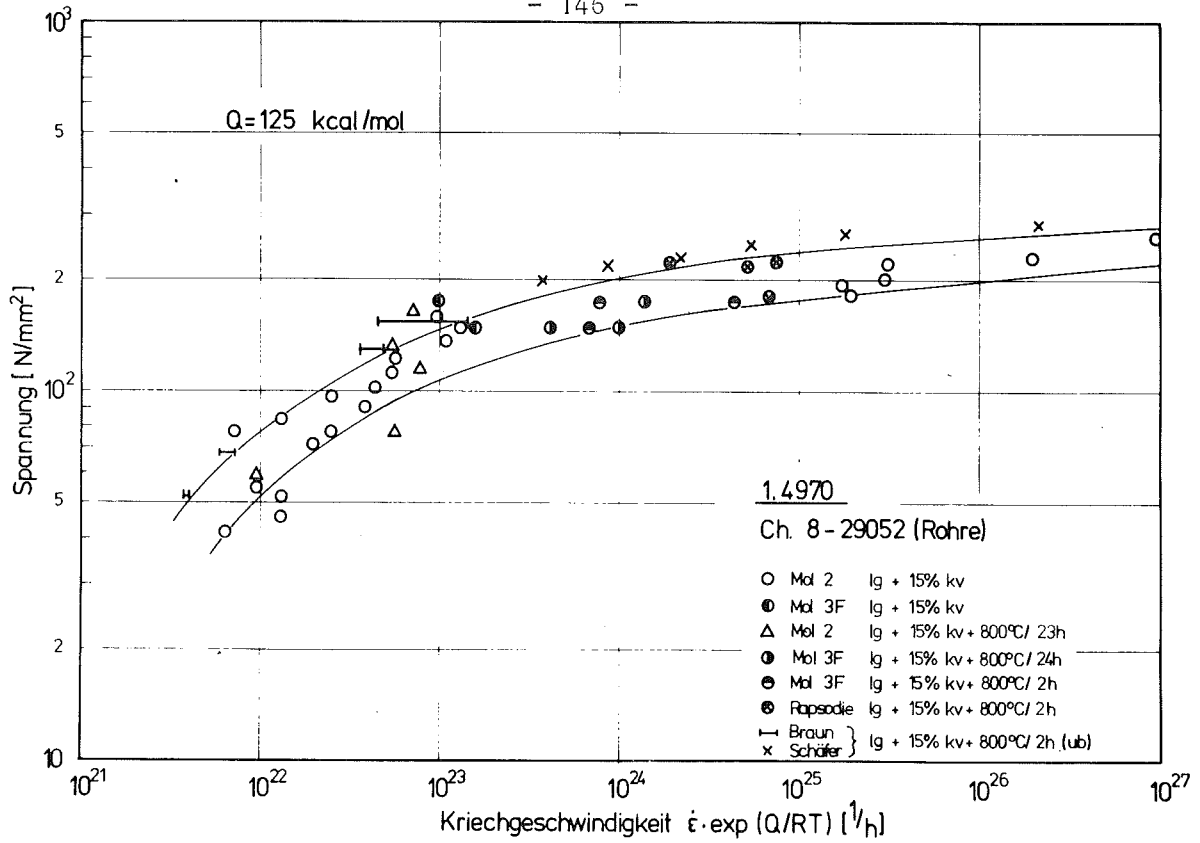


Abb. 21 Kriechgeschwindigkeit von Rohren des Stahls 1.4970

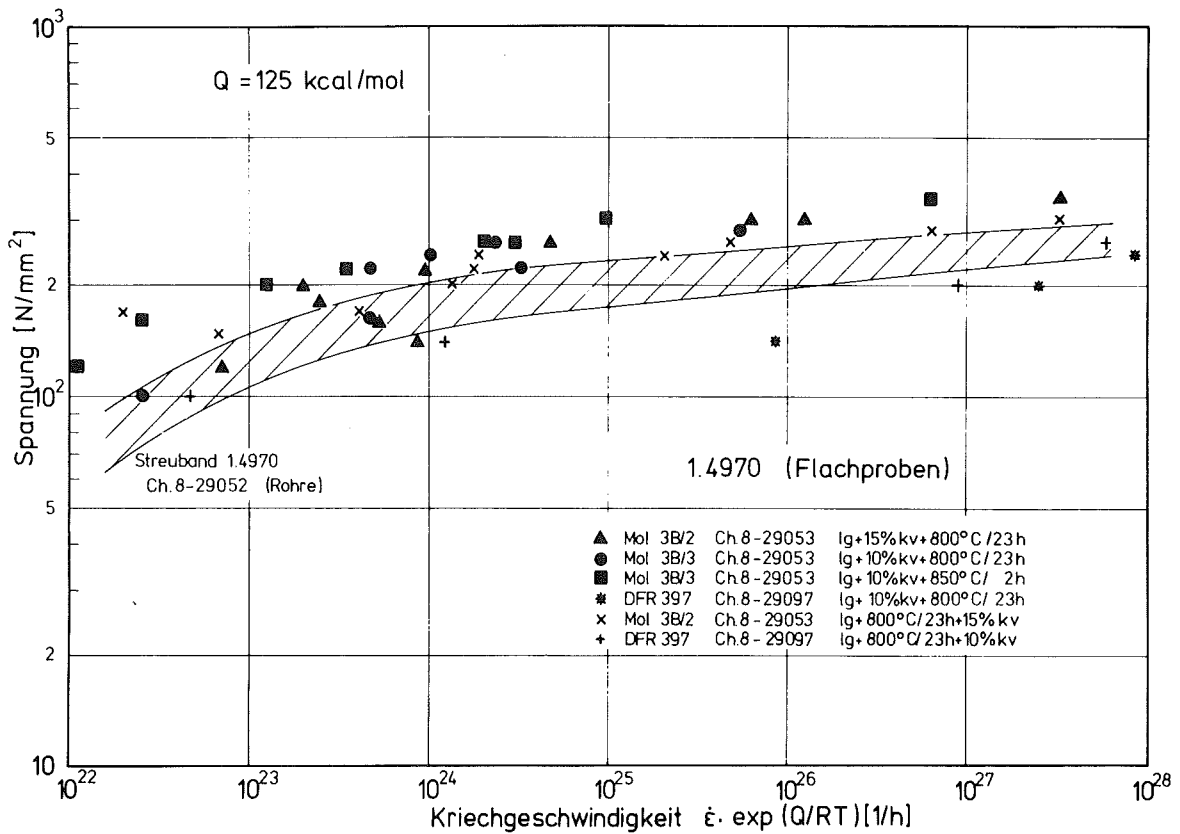


Abb. 22 Kriechgeschwindigkeit von Flachproben des Stahls 1.4970

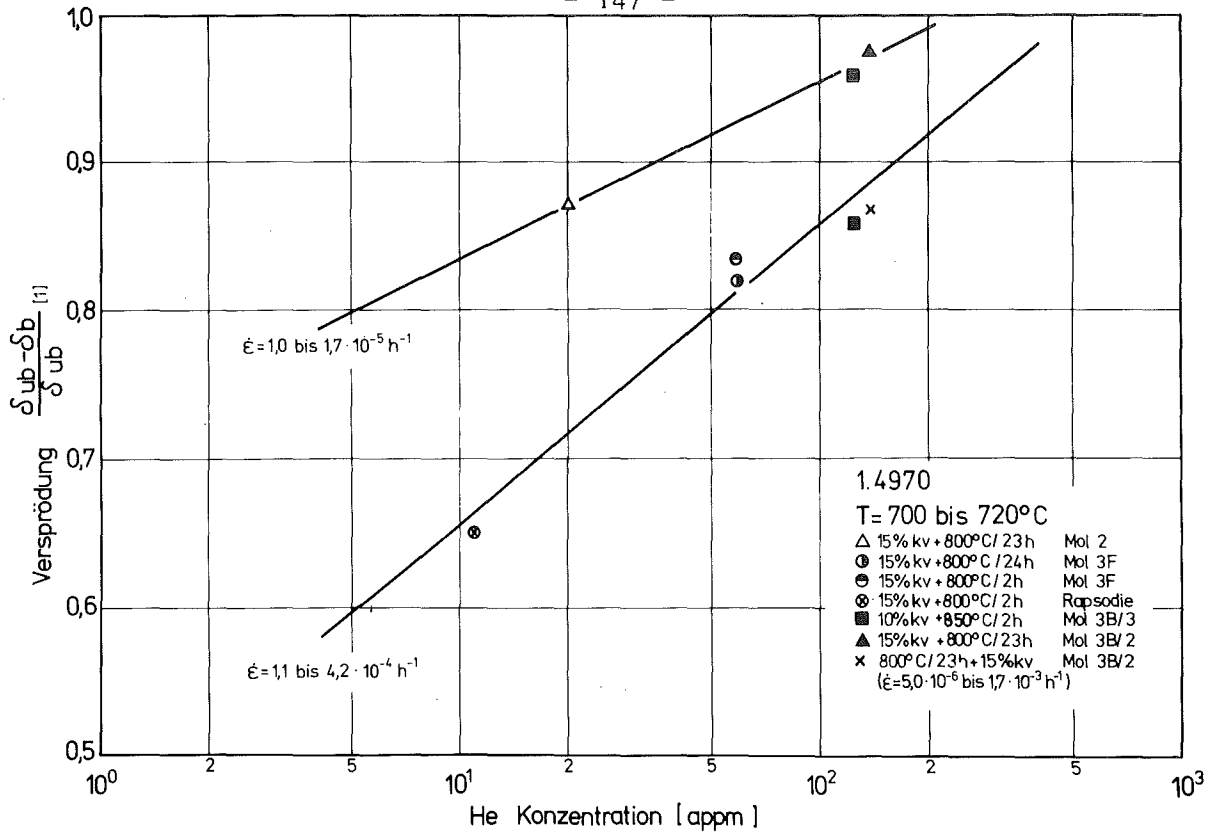


Abb. 23 Versprödung des Stahls 1.4970 als Funktion der He-Konzentration

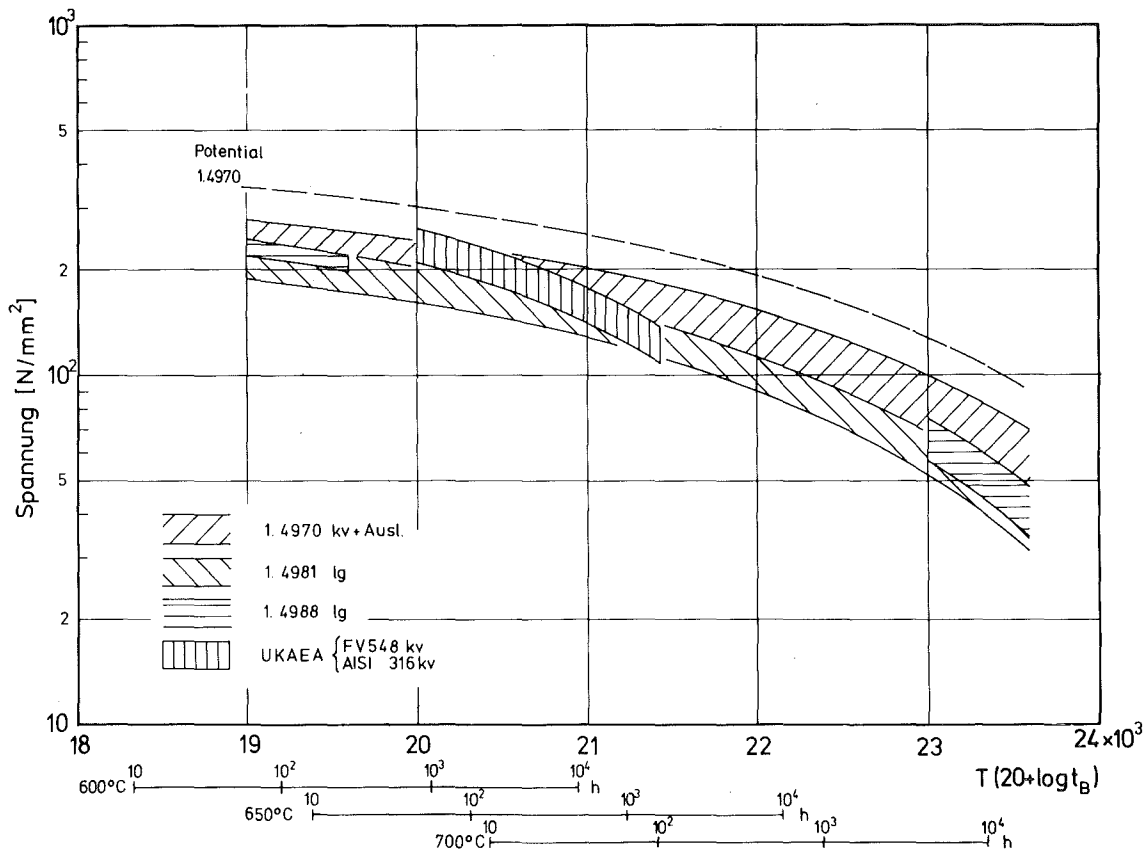


Abb. 24 Vergleich der Zeitstandfestigkeit der Stähle 1.4988, 1.4981 und 1.4970 (Rohre)

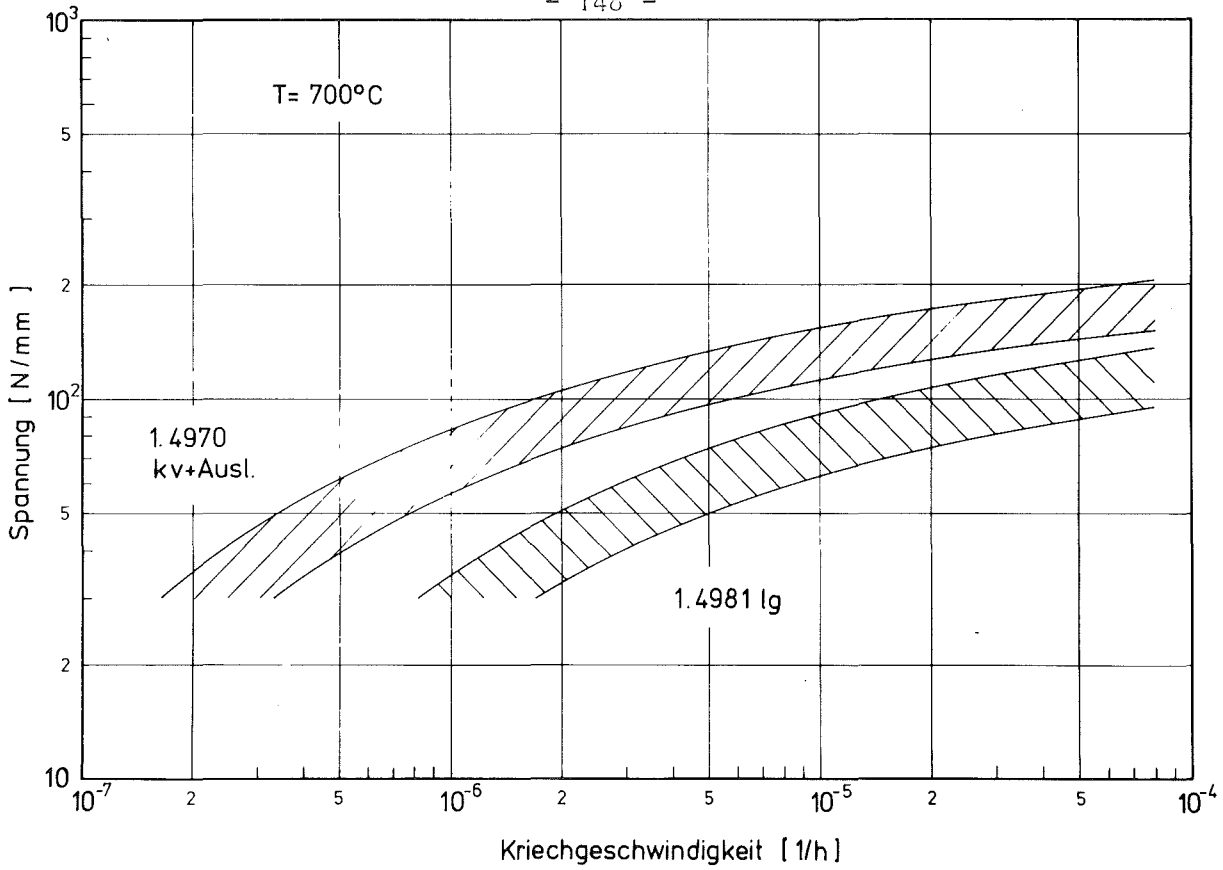


Abb. 25 Vergleich der Kriechgeschwindigkeit der Stähle 1.4981 und 1.4970 (Rohre)

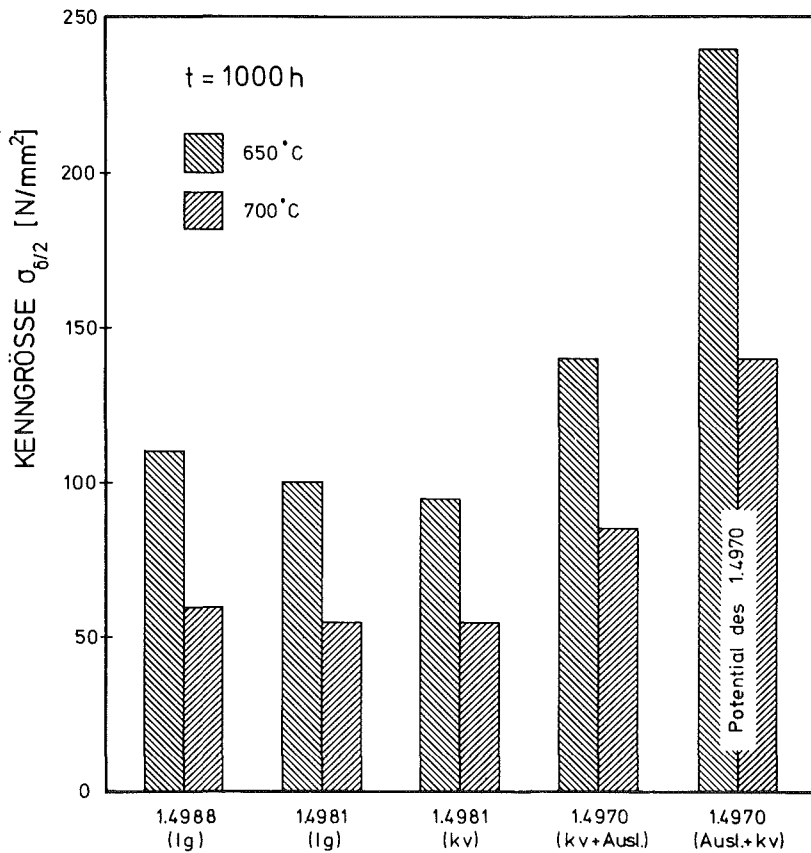


Abb. 26

Kenngröße  $\sigma_{0.5}$  der Stähle 1.4988, 1.4981 u. 1.4970

VIII. SCHWELLEN UND KRIECHEN VON HÜLLWERKSTOFFEN UNTER BESTRAHLUNG

von

K. Ehrlich, K. Herschbach, W. Schneider

Inhalt:

1. Schwellverhalten
2. Kriechen unter Bestrahlung

In diesem Kapitel sind die Ergebnisse mehrerer Experimentgruppen zum Thema Schwellverhalten und In-pile Kriechen stabilisierter Stähle zusammengestellt. Es handelt sich hier um Bestrahlungen, die z. T. mit Interatom und Belgo-nucléaire durchgeführt und bei der GfK nachuntersucht wurden.

- a) Brennelementbestrahlungen in den Reaktoren DFR (Dounreay Fast Reactor) und Rapsodie
- b) Simulationsexperimente am Variable Energy Cyclotron (VEC) in Harwell
- c) Werkstoffbestrahlungen im BR2-, DFR- und Rapsodiereaktor.

### 1. Das Schwellverhalten von Hüllwerkstoffen

Die Ergebnisse zur Porenbildung wurden mittels elektronenmikroskopischer Untersuchungen (TEM), der Messung der Dichte und - bei Hüllrohrproben - der Bestimmung der Durchmesseränderung gewonnen. Die Kombination der letzteren Methode mit den beiden erstgenannten führt zu Aussagen über die Wechselwirkung von Brennstoff und Hülle.

Die angewendeten Verfahren zur Probenentnahme bzw. Probenpräparation wurden bereits eingehend dargestellt / 1 /, ebenso die angewendeten Auswertverfahren. Falls nicht anders vermerkt, sind für die Bestimmung der Volumenzunahme mittels TEM Fehlergrenzen von  $\pm 25\%$  anzunehmen, was im wesentlichen auf die Unsicherheiten in der Foliendickenbestimmung zurückzuführen ist. Die Ergebnisse der Dichtemessung sind mit einem mittleren Absolutfehler von 0,1% der Ausgangsdichte behaftet.

Die Ergebnisse aus den Brennelementbestrahlungen für das Hüllmaterial 1.4988 sind im folgenden zusammengefaßt: In den Abbildungen 1 und 2 sind die Bestrahlungsbedingungen für die zum Studium der Porenbildung herangezogenen Hüllrohrsegmente der Bestrahlungsexperimente DFR 304 und DFR 350 dargestellt. Die aus TEM Untersuchungen gewonnenen Ergebnisse sind in den Abb. 3 und 4 verglichen mit den Dichteänderungen und den aus den Hüllrohraufweitungen bei Annahme isotropen Schwellens folgenden Volumenzunahmen.

Folgende wesentliche Aussagen können getroffen werden: Bei geringfügigem Kaltverformungsgrad des Stahles 1.4988 (Versetzungskonzentration  $\sim 2-4 \times 10^{10}$

Vers. Linien/cm<sup>2</sup> im DFR 304-Experiment und  $\sim 5 \times 10^9$  Linien/cm<sup>2</sup> für DFR 350) sowie praktisch ausscheidungsfreier Matrix erhält man in beiden Experimenten ein stark temperaturabhängiges Schwellen mit einem Maximum von 1,3 bzw. 1,6% bei einer Hüllmittentemperatur von etwa  $450 \pm 25^\circ\text{C}$ . Es ist jedoch darauf hinzuweisen, daß die Neutronendosis gemäß den Abb. 1 und 2 über die Brennstablänge variiert und sich der Temperaturabhängigkeit überlagert. In beiden Experimenten kann eine Übereinstimmung der drei Meßmethoden unterhalb  $580\text{--}600^\circ\text{C}$  festgestellt werden. Dies bedeutet, daß die Durchmesseränderung des Hüllrohres ausschließlich auf die Volumenzunahme durch bestrahlungsinduzierte Porenbildung zurückzuführen ist. Als Voraussetzung dafür gilt, daß ein sogenanntes isotropes Volumenschwellen auftritt. Demgegenüber kann Hüllrohraufweitung am heißen Ende des Brennstabes nicht bzw. nur zu einem geringen Teil durch Porenbildung erklärt werden. Als eine mögliche Ursache für die Hüllrohraufweitung in diesem Temperaturbereich kann die Wechselwirkung des Spaltproduktes Caesium mit dem Brutstoff angesehen werden /2,3/. Von uns durchgeführte Simulationsexperimente, bei denen durch Zugabe von Caesium sowie CuO zu Uranoxidpellets die Verbindung Cs<sub>2</sub>UO<sub>4</sub> gebildet wird und damit ein um den Faktor 3 erhöhtes Volumen gegenüber den festen Ausgangsprodukten entsteht, führen zu deutlich meßbaren Durchmessererweiterungen an den verwendeten Kapseln. Abb. 5 gibt die Versuchsanordnung und die gemessenen Hüllrohrerweiterungen nach 170stündiger Glühung der Kapsel bei  $700^\circ\text{C}$  wieder. Neben Caesium könnten auch die Spaltprodukte Barium und Strontium aufgrund analoger Reaktionen einen nachteiligen Einfluß auf das Hüllrohrverhalten haben.

Die Mikrostruktur des bestrahlten Hüllwerkstoffes ist dadurch gekennzeichnet, daß für Temperaturen  $T \leq 530^\circ\text{C}$  intragranulare globulare M<sub>23</sub>C<sub>6</sub>-Karbide beobachtet werden, die z. T. mit Poren assoziiert sind. Bei Bestrahlungstemperaturen  $T \geq 480^\circ\text{C}$  werden nadelförmige Ausscheidungen beobachtet, die in der Matrix orientiert sind, jedoch nicht identifiziert werden konnten. Bei den höchsten Bestrahlungstemperaturen dominieren größere Stapelfehlerbereiche.

Versetzungsringe werden in größerer Zahl ( $\sim 10^{14}/\text{cm}^3$ ) unterhalb  $500^\circ\text{C}$  beobachtet und führen zusammen mit den Poren zu erheblicher Matrixhärtung.

Weiterführende Detailergebnisse zu diesen Versuchsgruppen sind den Veröffentlichungen /4,5/ zu entnehmen.

Ein Teil der in DFR 350 bestrahlten Stäbe wurde in Trefoileinsätzen des als DFR 435 bezeichneten Experimentes zu höheren Abbränden gebracht, deren Hüllmaterialien bisher nur zum Teil untersucht sind. Abb. 6 gibt den Verlauf der dreifachen Durchmesserzunahme und die gemessenen Dichteänderungen wieder. Durch den Einsatz in zwei Bestrahlungsexperimenten wird die Temperaturverteilung über die Stablänge variiert, so daß jedem Segment im Verlauf der Bestrahlung zwei unterschiedliche Hüllmittentemperaturen zuzuordnen sind. Details der Bestrahlungsbedingungen sind Ref. /6/ zu entnehmen. Allerdings kann damit nicht das in Abb. 6 beobachtete Doppelmaximum bei 460 bzw. 540°C erklärt werden. Es ist auch hervorzuheben, daß offenbar über die gesamte Stablänge eine geringe plastische Verformung stattgefunden hat, die erneut bei hohen Temperaturen besonders ausgeprägt ist. Die Durchmesseraufweitung dreier Stäbe mit unterschiedlichem Abbrand in Abb. 7 zeigt, daß ein Dosisexponent  $n > 1$  für  $3 \frac{\Delta d}{d_0}$  anzunehmen ist. Zugleich wird deutlich, daß im mittleren Temperaturbereich die Porenbildung der begrenzende Faktor der Stabauslegung sein dürfte, bei hohen Temperaturen jedoch die bereits angesprochene Wechselwirkung von Spaltprodukten mit Uranoxidpellets dominiert. Letztere Aussage ist jedoch nur für die bisher erreichten Neutronendosen gültig. Es kann nicht ausgeschlossen werden, daß der Dosisexponent des reinen Schwellens bei 600°C und höher größer ist als bei tieferen Bestrahlungstemperaturen.

Die Abb. 8 und 9 sowie die Tabelle 1 enthalten weitere Ergebnisse zum Schwellverhalten des Werkstoffes Nr. 1.4988 in dem eingangs definierten Materialzustand. Die Dosisabhängigkeit des Schwellens im Bereich des Schwellmaximums ( $500 \pm 25^\circ\text{C}$ ) ist in Abb. 10 dargestellt, ebenso die aus den Stabbestrahlungen folgenden Durchmesseraufweitungen. In diesem Temperaturbereich muß mit einem Dosisexponenten  $n$  für  $\frac{\Delta V}{V}$  von 2,5 oder sogar mehr gerechnet werden, was mit Ergebnissen amerikanischer Autoren am lösungsgeglühten Stahl AISI 316 übereinstimmt /7/. Ähnliche Werte für den Dosisexponenten erhält man bei Temperaturen von 425 bzw. 575°C, allerdings über einen engeren Dosisbereich. Als weiteres wichtiges Ergebnis folgt, daß mit zunehmendem Abbrand die plastische Verformung des Hüllmaterials offenbar zunimmt. Aus der Temperaturabhängigkeit der Differenz aus dreifacher Durchmesserzunahme und Schwellbetrag (siehe z.B. Abb. 9) sowie aus den in etwa bekannten Brennstoffschwelldrücken kann geschlossen werden, daß In-pile Kriechen nicht zur Erklärung dieser Verformung herangezogen werden kann. Das Phänomen der Wechselwirkung Brennstoff-Hülle,



welches zur plastischen Verformung führt, ist bisher nicht eindeutig verstanden, es fehlen auch statistische Aussagen über viele Brennstäbe, um z.B. herauszufinden, ob ein direkter Zusammenhang mit der Neutronendosis oder den An- und Abschaltvorgängen des Reaktors besteht.

Aus Abb. 8, in der bei identischen Bestrahlungsbedingungen die Schwelldaten der beiden Werkstoffe 1.4988 und 1.4970 verglichen sind, geht das günstigere Verhalten des titanstabilisierten Werkstoffes 1.4970 eindeutig hervor. Allerdings ist darauf hinzuweisen, daß die Werkstoffzustände beider Stähle erheblich unterschiedlich sind. Dabei ist aus vielen Experimenten bekannt, daß durch die Vorbehandlung des Materials erheblich differierende Volumenzunahmen durch Porenbildung zu beobachten sind. Der "Rohrzustand" des titanstabilisierten Werkstoffes sieht nach der Lösungsglühung eine Kaltverformung von mehr als 10% und eine daran anschließende Auslagerungsglühung bei 800°C vor. (Sofern nicht anders vermerkt, beziehen sich die weiteren Ergebnisse dieses Stahles auf den hier charakterisierten Zustand). Dies führt zu hohen Versetzungsdichten ( $\rho > 10^{11}$  cm/cm<sup>3</sup>) und zur Bildung feinverteilter Titankarbid-ausscheidungen.

Ein eingehender Vergleich der Porenbildung in beiden Werkstoffen zeigt, daß zumindest bei höheren Bestrahlungstemperaturen eine niedrigere Porenkonzentration im titanstabilisierten Werkstoff auftritt. Es werden allerdings auch größere Variationen in der Porengröße und Konzentration beobachtet als z.B. in dem kaltverformungsfreien, niobstabilisierten 1.4988. Als Ursache dafür könnten Inhomogenitäten in der Kaltverformung, möglicherweise aber auch unregelmäßige Verteilung des Bors und damit auch des erzeugten Heliums gelten. Es ist nicht zu übersehen, welche Auswirkungen eine solche Inhomogenität insgesamt auf die makroskopischen Eigenschaften hochbestrahlter Werkstoffe haben könnte.

Insgesamt läßt dieses Ergebnis keinen Schluß darüber zu, ob die niedrigere Schwellrate des 1.4970 auf die unterschiedliche Kaltverformung, Stabilisierung des Kohlenstoffes oder die unterschiedliche chemische Zusammensetzung beider Werkstoffe zurückzuführen ist.

In Abb. 11 ist das Ergebnis der Nachuntersuchung eines Brennstabes des Hüllwerkstoffes 1.4970 aufgetragen. Es zeigt bei etwa gleichen Bestrah-

lungsbedingungen wie für die in Abb. 9 gezeigten Resultate des Stahls 1.4988 erneut das günstigere Schwellverhalten. Auch hier wird eine von der Bestrahlungsposition abhängige Differenz aus Hüllaufweitung und Dichteabnahme beobachtet, wobei möglicherweise die Dichteabnahme am unteren Brennstabende (durch einen Meßpunkt belegt) auf einer Probenvertauschung beruht. Das relative Verhältnis von dreifacher Durchmessererweiterung zu Dichteänderung ist jedoch sehr ähnlich den in Abb. 9 gefundenen Daten. Es bleibt abzuwarten, ob dieses Resultat generell für die im Experiment Rapsodie I bestrahlten Brennelemente gültig ist.

Aus den hier besprochenen und weiteren Ergebnissen kann für den Werkstoff 1.4970 (Rohrzustand) das in Abb. 12 zusammengestellte Schwellverhalten beobachtet werden. Es zeigt, daß im angegebenen Temperaturbereich ( $500 \pm 25^\circ\text{C}$ ) ähnlich wie im Falle des 20% kaltverformten unstabilisierten Stahles AISI 316 /8/ die Volumenzunahme linear mit der Neutronendosis ansteigt.

In den zusammenfassenden Abbildungen 10 und 12 sind auch Ergebnisse aus VEC-Bestrahlungen enthalten. Ohne auf nähere experimentelle Einzelheiten einzugehen, die aus Publikation /9/ zu entnehmen sind, seien hier einige wichtige Ergebnisse erläutert: In Abb. 13 ist das Schwellverhalten mehrerer Werkstoffe bzw. Werkstoffzustände nach Bestrahlung mit Kohlenstoffionen und vorhergehender Heliumimplantation gezeigt. Als ein wesentliches Ergebnis kann festgestellt werden, daß eine 20%ige Kaltverformung des Werkstoffes 1.4988 gegenüber dem Zustand einer 5-7%igen Kaltverformung und anschließender Auslagerung eine deutliche Reduktion des Schwellens mit sich bringt. Ebenso ist die Temperaturabhängigkeit des Effektes deutlich flacher. Diese Reduktion beruht im wesentlichen auf kleineren mittleren Porendurchmessern. Die niob- bzw. titanstabilisierten Stähle 1.4981 und 1.4970 liegen in den in Abb. 13 angegebenen Werkstoffzuständen in etwa vergleichbar zu dem 20% kaltverformten Stahl 1.4988.

Allerdings ist zu bemerken, daß die Übertragbarkeit der durch Simulation gewonnenen Ergebnisse sowohl bezüglich der Umrechnung der Schädigung auf Neutronenäquivalenz als auch im Hinblick auf die direkte Wechselwirkung der Implantate mit der Matrix und daraus resultierender möglicher Wirkung auf die Porenbildung eine gewisse Unsicherheit in sich birgt.

Ein Vergleich der beiden Werkstoffe, die in dem jeweiligen "Rohrzustand" in technologisch wichtigen Bestrahlungsexperimenten getestet wurden, zeigt, daß die Mikrostrukturen im Bereich maximalen Schwellens deutlich unterschiedlich sind (Abb. 14). Im niobstabilisierten Werkstoff 1.4988 ist die Assoziation von karbidischen Ausscheidungen ( $M_{23}C_6$ -Typ) mit Poren außerordentlich häufig, während im titanstabilisierten Stahl 1.4970 die Bildung von interstitiellen Loops auf  $\{111\}$ -Ebenen vorherrscht. Die Analyse hierzu ist noch nicht abgeschlossen.

Unabhängig vom Werkstoffzustand ist die für die Bildung von  $M_{23}C_6$ -Ausscheidungen wichtige Frage der Stabilisierung des Stahles 1.4988 nicht eindeutig. Setzt man nämlich voraus, daß durch Niob neben dem Kohlenstoff auch der beträchtliche Stickstoffgehalt von 0,09% abzubinden ist, dann ist dieser Werkstoff unterstabilisiert. Falls jedoch Vanadium das Niob teilweise oder ganz bei der Bildung von Nb (CN) ersetzen kann, ist das Material voll stabilisiert. Demgegenüber kann der Kohlenstoff im Stahl 1.4970 vollständig durch die Bildung von TiC abgebunden werden. Insofern kann ein direkter Zusammenhang von Stabilisierungsgrad und Porenbildung nicht eindeutig hergestellt werden.

#### Zusammenfassung

Ein Vergleich der beiden Werkstoffe 1.4988 und 1.4970 in den jeweiligen "Rohrzuständen" fällt in allen angeführten Experimenten deutlich zugunsten des titanstabilisierten Stahles 1.4970 aus. Dies wird auch durch erste Nachuntersuchungen an Proben des Bestrahlungsexperimentes DFR 397 bestätigt, in dem insbesondere der kritische Temperaturbereich um  $600^{\circ}\text{C}$  durch Neutronendosen bis zu  $8,6 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$  abgedeckt ist. Der in dem oben genannten Zustand eingesetzte Stahl 1.4970 zeigt ein relativ günstiges Verhalten im Vergleich zu anderen Werkstoffzuständen bzw. Werkstoffen.

Kaltverformung verringert die durch Porenbildung bedingte Volumenzunahme eindeutig. Die Frage, ob die Stabilisierung des Kohlenstoffs durch Titan bzw. Niob einen echten Einfluß auf die Porenbildung hat, kann nicht generell beantwortet werden. Ein Hinweis auf eine negative Beeinflussung bei möglicherweise nicht vollständiger Stabilisierung ergibt sich aus der Beobachtung, daß der Stahl 1.4988 im Bereich maximaler Schwellraten sehr

häufig die Assoziation von  $M_{23}C_6$ -Ausscheidungen und Poren zeigt. Dies ist nicht der Fall im überstabilisierten Stahl 1.4970, der im Gegensatz dazu eine hohe Konzentration von Loops aufweist.

Außerhalb der Meßgenauigkeit ist auch die Beobachtung, daß bei den Brennelementbestrahlungen hoher Abbrände eine plastische Verformung des Hüllmaterials im Bereich des maximalen Schwellens auftritt. Die Ursachen hierfür sind nicht eindeutig bekannt. Unter der Voraussetzung, daß die Abschätzungen über die Brennstoffschwellldrücke korrekt und die Beobachtungen über die Temperaturabhängigkeit des In-pile Kriechens gesichert sind, kann man davon ausgehen, daß die Verformung der Brennstoffhüllen nicht auf das In-pile Kriechen zurückzuführen sind.

Im Bereich des Überganges von Brennstoff zu Brutstoff muß aufgrund der Temperaturverteilung mit einer verstärkten Wechselwirkung von Spaltprodukten mit Uranoxydpellets gerechnet werden. Da die Reaktionsprodukte, verglichen mit dem ursprünglichen  $UO_2$  ein erhebliches Exzeßvolumen besitzen, ist auch in diesem Temperaturbereich bei hohen Abbränden mit starken plastischen Verformungen der Hülle zu rechnen.

## 2. Kriechen unter Bestrahlung

Neben dem Schwellen kann das strahleninduzierte Kriechen zu dimensional Änderungen von Hülle und anderen im Reaktor vorhandenen Strukturen führen. Für die Auslegung ist daher eine gründliche Kenntnis dieses Phänomens erforderlich. Bei der Diskussion des In-pile Kriechens muß man sich folgende Schwierigkeiten vor Augen halten: In-pile Kriechversuche sind, das braucht nicht betont zu werden, technisch äußerst schwierig und aufwendig, und liefern auch im günstigsten Fall nur Daten, die mit einem relativ großen Fehler behaftet sind. Im Gegensatz zum Schwellen sind auch bislang, von einem Versuch abgesehen /10/, keine Simulationsversuche mit Teilchenbeschleunigern gemacht worden. Der Einfluß verschiedener Bestrahlungsparameter wie Bestrahlungstemperatur usw. wurde bislang noch nicht systematisch untersucht, lediglich die Spannungsabhängigkeit ist einigermaßen genau bekannt. Auch werden die verschiedensten Stähle in unterschiedlichen Zuständen (z.B. lösungsgeglüht, kaltverformt usw.) eingesetzt und obendrein die verschiedensten Möglichkeiten benutzt, die Spannung zu beaufschlagen (einachsiger

Spannungszustand, Federbelastung, Druckröhrchenversuche). Trotz der Fülle von variablen Versuchsparametern haben sich doch aus den vorliegenden Daten gewisse Erkenntnisse herausgeschält. Innerhalb der Meßgenauigkeit hängt die stationäre Kriechgeschwindigkeit linear von der Spannung ab und ist nur wenig, wenn überhaupt, von der Temperatur abhängig. Ein wichtiges Ergebnis ist ferner, daß strahleninduziertes Kriechen nicht unbedingt mit Porenbildung verbunden ist. In Abb. 15 sind eigene und Ergebnisse britischer Autoren zusammengefaßt. Die Kurven geben einen Anhalt für die zu erwartenden Größenordnungen des In-pile Kriechens. Die Ergebnisse mehrachsiger In-pile Kriechversuche (Druckröhrchen) wurden unter der Annahme, daß eine von uns entwickelte Kriechthese, die unten näher erläutert wird, Gültigkeit hat, auf den einachsigen Spannungszustand normalisiert. Da beim Druckröhrchen, physikalisch gesehen, die Summe von Tangential- und Axialspannung wirksam wird, ist ein größerer Kriecheffekt zu erwarten als sich rechnerisch unter alleiniger Berücksichtigung der Tangentialspannung ergibt. Allerdings wird auch nur die Projektion dieses Effektes in tangentialer Richtung gemessen. Der Normalisierungsfaktor kann berechnet werden /11/.

Das theoretische Verständnis des In-pile Kriechens ist, dem Mangel an systematischen, experimentellen Ergebnissen entsprechend noch nicht weit fortgeschritten, sodaß sichere Voraussagen, insbesondere für hohe Neutronendosen, noch nicht möglich sind. Auf Grund der empirischen Daten konnte jedoch eine Unzahl von Thesen schon verworfen werden, hauptsächlich, weil sie eine falsche Spannungsabhängigkeit ergeben.

An Hand von zwei Mechanismen, die auf Grund allgemeiner metallphysikalischer Überlegungen die bei In-pile Kriechen ablaufenden Vorgänge erklären könnten, soll ein kurzer Überblick über die Theorie gegeben werden. Die in Abb. 15 wiedergegebenen Daten lassen sich mit der allgemeinen Kriechformel

$$\bar{\epsilon}/\bar{\sigma} = A + B t$$

darstellen, wobei A das Übergangskriechen beschreibt, welches hauptsächlich in kaltbearbeiteten Stählen auftritt /12 /. Als numerisches Beispiel sei hier die LMFBR Design Formula angeführt /13/.

$$\bar{\epsilon}/\bar{\sigma} = 0.24 \times 10^{-19} \bar{E} \phi \left\{ 1 - \exp \left( \bar{E} t / 1.98 \times 10^{20} \right) \right\} \\ + 1.07 \times 10^{-26} \bar{E} \phi t$$

mit  $\bar{\sigma}$  der effektiven Spannung ( $\text{kg mm}^{-2}$ ),  $\bar{E}$  der mittleren Neutronenenergie (MeV),  $\phi$  dem Neutronenfluß ( $\text{cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ ) und  $t$  der Zeit (sec).

Nach elektronenmikroskopischen Untersuchungen /14,15/ handelt es sich beim Übergangskriechen um eine Umlagerung bzw. Vernichtung von ursprünglich vorhandenen Versetzungen, ein Vorgang, der bei einer Neutronendosis von etwa  $3 \times 10^{21} \text{ n cm}^{-2}$  (oder 2 dpa) beendet ist. Obwohl die Einzelheiten dieser Vorgänge noch nicht bekannt sind, fügen sich doch die Tatsachen in das Bild ein, daß Übergangskriechen hauptsächlich in kaltbearbeiteten Materialien gefunden wird, daß Kaltbearbeitung keinen Einfluß auf das stationäre Kriechen hat (Faktor B) /12/, und daß ferner der Abgleitungsbetrag relativ klein ist, verglichen mit dem durch stationäres In-pile Kriechen hervorgerufenen (eine Tatsache, die für die Anwendung wichtig ist). Somit dürfte der von der Praxis her weniger wichtige Vorgang des Übergangskriechens in naher Zukunft in großen Zügen zumindestens aufgeklärt sein.

Für das stationäre Kriechen werden im wesentlichen zwei Prozesse diskutiert, die eventuell sogar gleichzeitig oder auch nacheinander ablaufen können:

Unter dem Einfluß einer angelegten Spannung ist während der Bestrahlung die Keimbildung und/oder das Wachstum von Frankschen Versetzungsringen auf gewissen kristallographischen Ebenen bevorzugt und liefert so einen Dehnungsbetrag. Die bevorzugte Keimbildung wurde vor kurzem ausführlich von uns diskutiert /11/, insbesondere auch der Einfluß der Textur und des Spannungszustandes. Es ist jedoch noch eine Reihe von Fragen offen, insbesondere auch, ob die Keimbildung bei hohen Dosen zum Erliegen kommt. Ein weiterer Dehnbeitrag kann dadurch gewonnen werden, daß die Versetzungsringe durch ihre Wechselwirkung mit anderen Versetzungsringen oder auch mit gewissen partiellen Versetzungen (Shockley-Versetzungen) reagieren und dadurch einen weiteren Beitrag zur Abgleitung liefern /16/. Mit Ausnahme des letzteren Beitrages lassen sich die Dehnungen durch spannungsloses Austempen rückgängig machen, da sich die Versetzungsringe wieder auflösen können, wenn sie noch nicht mit anderen Versetzungen reagiert haben.

Einem weiteren Vorschlag zufolge /17/ handelt es sich beim In-pile Kriechen um Kletter- und Gleitvorgänge an Versetzungen, wobei zwei Fälle unterschieden werden. Im Falle des sogenannten I-creep gleiten die Versetzungen unter dem Einfluß der angelegten Spannung, bis sie sich gegenseitig durch die auf-

gebaute innere Spannung am weiteren Gleiten hindern. Unter dem Einfluß der Zwischengitteratomübersättigung, wie oben geschildert, klettern sie dann in Gebiete, wo die innere Spannung sie nicht am weiteren Gleiten hindert. So wird elastische Dehnung durch die bestrahlungserzeugten Zwischengitteratome in permanente plastische Dehnung umgewandelt. Für das Verständnis des zweiten, verwandten Falles, des sogenannten Cottrell-Kriechens, ist es nützlich, sich des Begriffes der chemischen Spannung zu bedienen, wie er von uns diskutiert wurde /18/. Er besagt, daß eine Punktfehlerübersättigung an einer beweglichen Senke, wie Porenoberfläche oder Versetzung, auch als eine Spannung  $\sigma$  aufgefaßt werden kann. Diese kann bei Bestrahlung wesentlich über der Streckgrenze liegen, wie man an Hand von Modellrechnungen leicht sehen kann /19/. Unter dem Einfluß dieser chemischen Spannung klettern nun die Versetzungen und bauen dabei örtlich innere Spannungen auf, die schließlich die Streckgrenze erreichen und dann durch lokales Abgleiten abgebaut werden. Die von außen angelegte Spannung beeinflusst diesen Abgleitprozeß derart, daß bestimmte Gleitrichtungen bevorzugt werden, was zu einer makroskopischen Dehnung der Probe führt. Im Gegensatz zu den durch Versetzungsringe verursachten Dehnungen lassen sich die hier erörterten Prozesse nicht durch Tempern rückgängig machen, auch ist, wie man sieht, keine Sättigung zu erwarten; das heißt, die Duktilität spielt in diesem Fall keine Rolle, es handelt sich um eine Art superplastisches Kriechen. In Abb. 16 ist ein schematischer Überblick über die hier diskutierten Möglichkeiten gegeben.

Alle hier diskutierten Modelle liefern - in erster Näherung zumindestens - eine lineare Spannungsabhängigkeit, und auch die in der Kriechformel angegebene lineare Zeitabhängigkeit hat ihre Berechtigung, ein überaus wichtiger Punkt für die Anwendung, da bisher In-pile Kriechversuche nur bis zu schnellen Neutronendosen von etwa  $2 \times 10^{22} \text{ n cm}^{-2}$  durchgeführt wurden.

Die oben genannten Prozesse spiegeln die Punktfehlerkonzentration, genauer die Punktfehlerübersättigung, wieder. Die Punktfehlerkonzentration hängt in erster Näherung von der Quadratwurzel der Erzeugungsrate ab. Letztere ist, bei sonst konstanten Parametern, proportional dem Neutronenfluß. Da zudem die oben erwähnte chemische Spannung vom Logarithmus der Übersättigung, die Klettergeschwindigkeit der Versetzungen aber vom Konzentrationsgradienten und von der Diffusionskonstante der Punktfehler abhängen, ist die stationäre Kriechgeschwindigkeit mit Sicherheit keine lineare Funktion des Neu-

tronenflusses wie in industriellen Kriechformeln angenommen wird. Es scheint im Augenblick lediglich, als ob die verschiedenen Einflüsse so zusammenwirken, daß innerhalb der Meßgenauigkeit diese lineare Abhängigkeit vorgetäuscht wird.

Auch die Temperatur hat einen sehr komplexen Einfluß auf alle oben genannten Prozesse, z.B. gehorcht die Bildung von Versetzungsringen einer Boltzmann-Statistik. Die experimentellen Daten deuten jedoch darauf hin, daß global gesehen die Temperatur das In-pile Kriechen nicht oder nur wenig beeinflusst. Offen ist jedoch, über welchen Temperaturbereich genau In-pile Kriechen stattfindet.

#### Literatur

- /1/ K. Ehrlich, N. Packan; J. Nucl. Mat. 46 (1973) 77
- /2/ J.D.B. Lambert et al.; Trans. Am. Nucl. Soc. 17 (1973) 193
- /3/ C.E. Johnson; ANL-RDP-18, July 1973
- /4/ K. Ehrlich; KFK-1864, Jan. 1974, 81
- /5/ K. Ehrlich, L. Schäfer; KFK-1960 (im Druck)
- /6/ G. Roussel, B. van Outryve de' Ydewalle; BN-Report 7312.03
- /7/ H.R. Brager, J.L. Straalsund; J. Nucl. Mat. 46 (1973)
- /8/ D. Mosdale et al.; Proc. IAEA-Symposium on Fuel and Fuel Elements, SM-173/55, 2-6 July 1973
- /9/ K. Ehrlich, R. Groß; Proc. IAEA-Symposium an Fuel and Fuel Elements, SM 173/30, Vol. II; 2-6 July 1973
- /10/ S.D. Harkness, F. L. Yaggee und F. V. Nolfi,  
Proceedings of the Conference BNES, London, 9-10 Nov. 1972, S.259
- /11/ K. Herschbach u. W. Schneider; J. Nucl. Mat. June 1974 (im Druck)
- /12/ D. Mosedale, G.W. Lewthwaite und I. Ramsay, a) Ref. 10, S. 233  
b) Intern. Conf. Phys. Metall. of Reactor Fuel Elements,  
Berkeley Nuclear Lab., 2-7 Sept. 1971



- /13/ W.E. Pennel; Nucl. Techn. 16 (1972) S. 332
- /14/ P.K. Okamoto und S.D. Harkness;  
J. Nucl. Mat. 48 (1973) 204
- /15/ H. K. Brager, E.K. Gilbert und J.L. Straalsund;  
Scripta Met. 7 (1973) 847
- /16/ G.W. Lewthwaite; Phil. Mag. 28 (1973), 1287
- /17/ J. H. Gittus, K.G. Anderson und M.J. Makin; Ref., 10, S.
- /18/ H. Wiedersich und K. Herschbach;  
Scripta Met. 6 (1972),453
- /19/ K. Herschbach, unveröffentlicht

Tab. 1: Elektronenmikroskopische (TEM) Daten und Dichteänderungen der Stähle 1.4988 (A) und 1.4970 (B) aus Rapsodie-Materialbestrahlung

Kapsel Nr.	Proben- bez.	Bestr.Temp. [°C]	$\phi \cdot t_{\text{total}}$ [n/cm <sup>2</sup> × 10 <sup>22</sup> ]	Porenkonzentr. [cm <sup>-3</sup> × 10 <sup>14</sup> ]		Mittlerer Poren- durchmesser [Å]		Volumenzunahme aus TEM-Daten $\frac{\Delta V}{V_0}$ [%]		Dichteabnahme $\frac{\Delta \rho}{\rho_0}$ [%]	
				1.4988	1.4970	1.4988	1.4970	1.4988	1.4970	1.4988	1.4970
3011	A2+B1	415	3,3	11,3	12,7	155	130	0,25	0,2	0,25	0,2
	A1+B2	415	4,1	9,5	9,1	180	160	0,4	0,25	0,5	0,35
3012	A2+B1	470	4,7	15,3	8,9	180	165	0,65	0,3	0,7	0,35
	A1+B2	470	5,9	21,3	11	195	220	1,15	0,8	0,9	0,4
3013	A2+B1	505	6,3	13,5	9,7	245	210	2,2	0,65	2,35	0,8
	A1+B2	505	6,3	13,0	8,5	280	255	2,35	1,0	2,7	0,7
3014	B1	530	5,9		0,6		350		0,2		0,3
	A2	530	4,7	1,3		455		0,95		0,5	

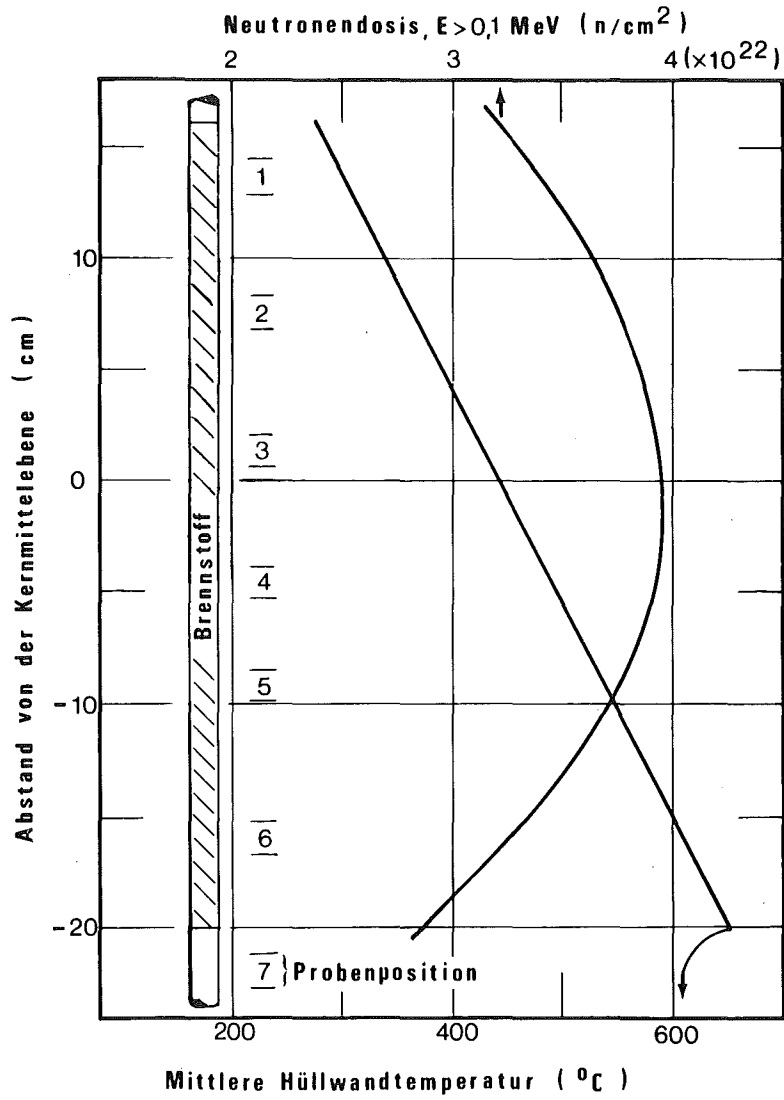


Abb. 1 Bestrahlungsbedingungen für die Brennstäbe G 1, G 2 und G 3 aus DFR-Trefoil (Material 1.4988)

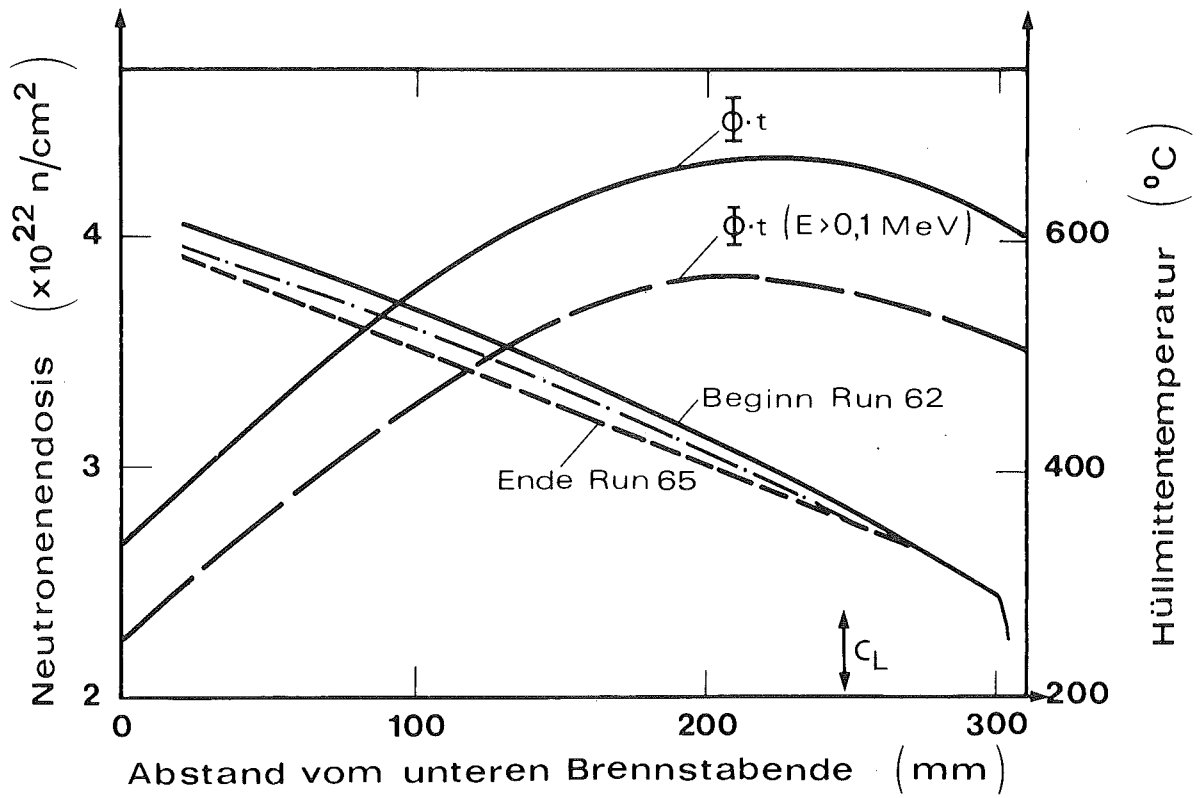


Abb. 2 Bestrahlungsbedingungen für Brennstab G 21 aus DFR 350  
(Material 1.4988)

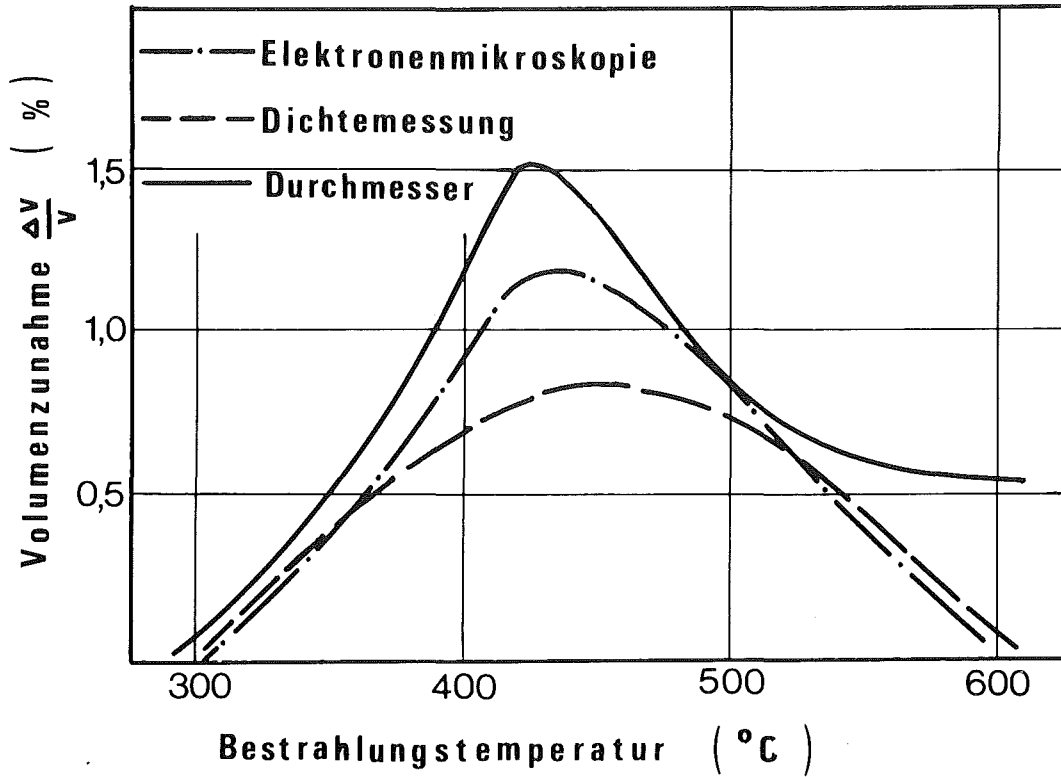


Abb. 3 Vergleich der mit verschiedenen Methoden ermittelten Volumenzunahmen aus dem Bestrahlungsexperiment DFR-Trefoil (Material 1.4988)

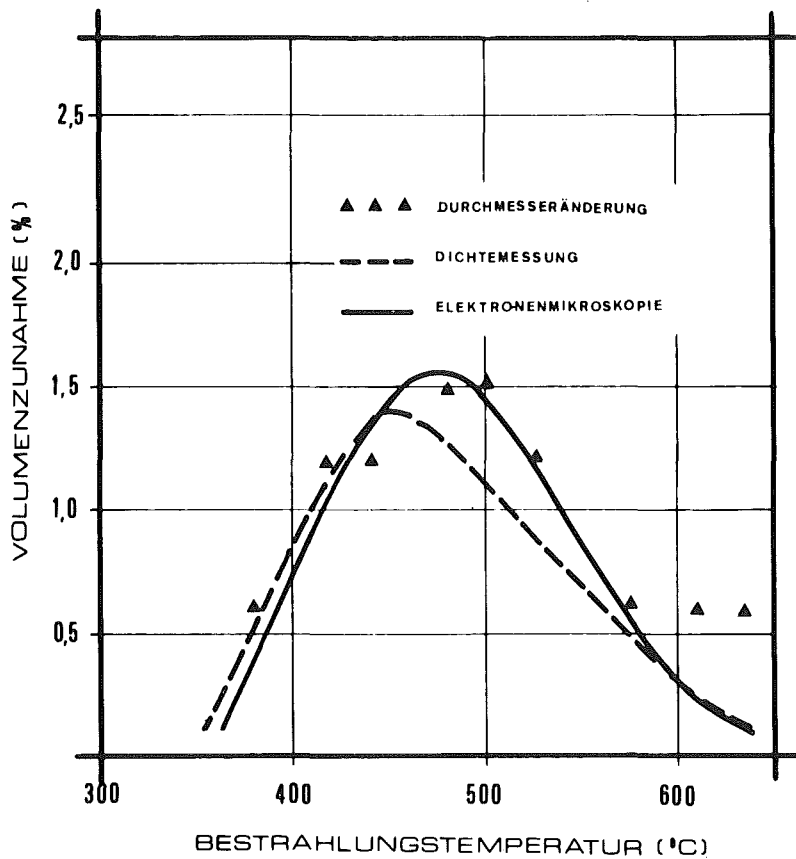


Abb. 4 Vergleich der mit verschiedenen Methoden ermittelten Volumenzunahmen aus DFR 350 - Stab G 21 (Material 1.4988)

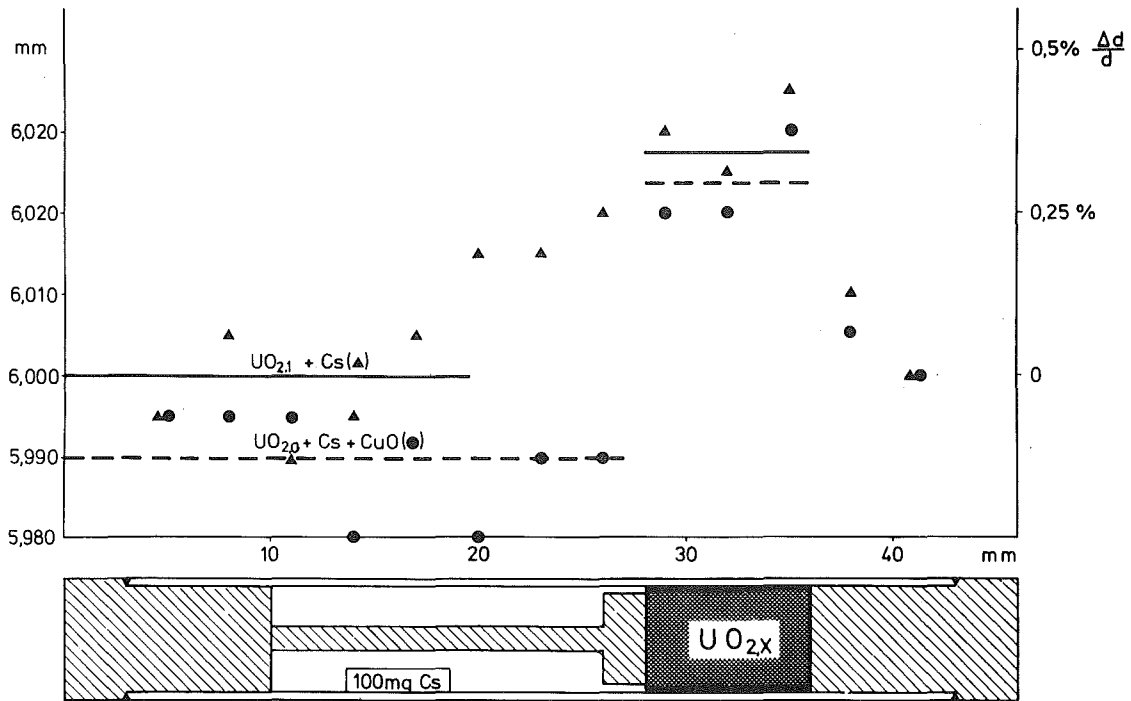


Abb. 5 Versuchsanordnung zur Simulation des Caesium-Einflusses auf die Hüllrohraufweitung im Brennstoff/Brutstoffbereich (IMF-Bericht 183/74)

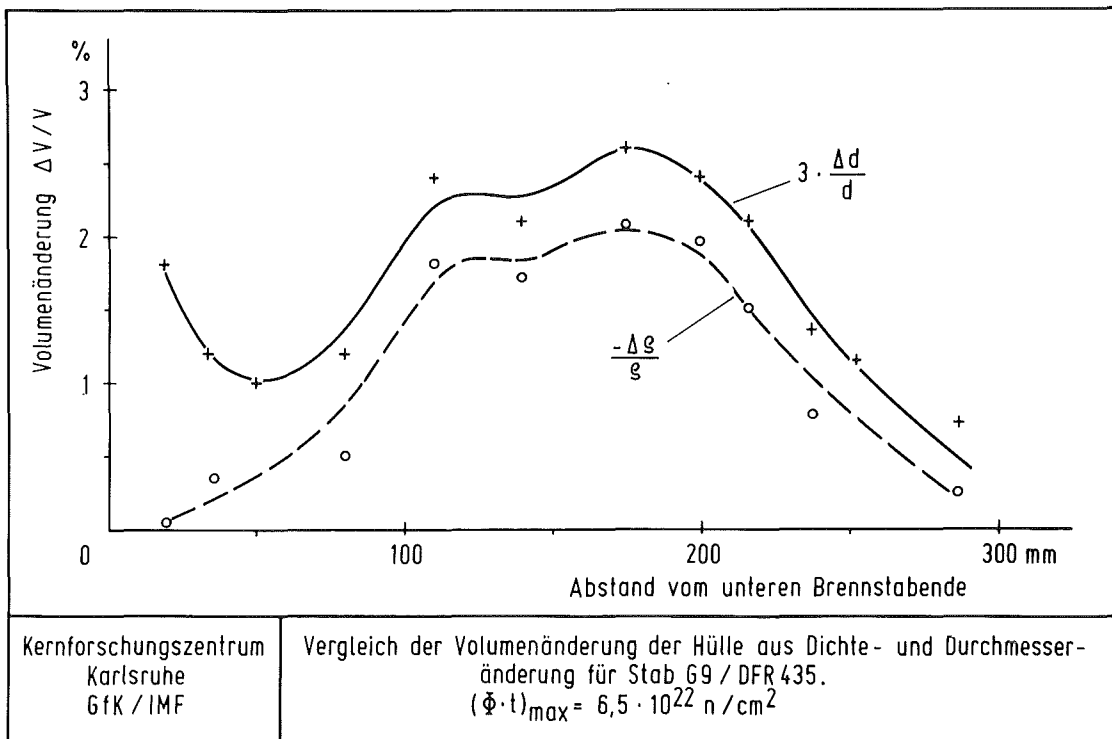


Abb. 6 Vergleich der aus Dichtemessung und Durchmesseränderung ermittelten Volumenzunahme von Stab G 9 aus DFR 435 (Material 1.4988)

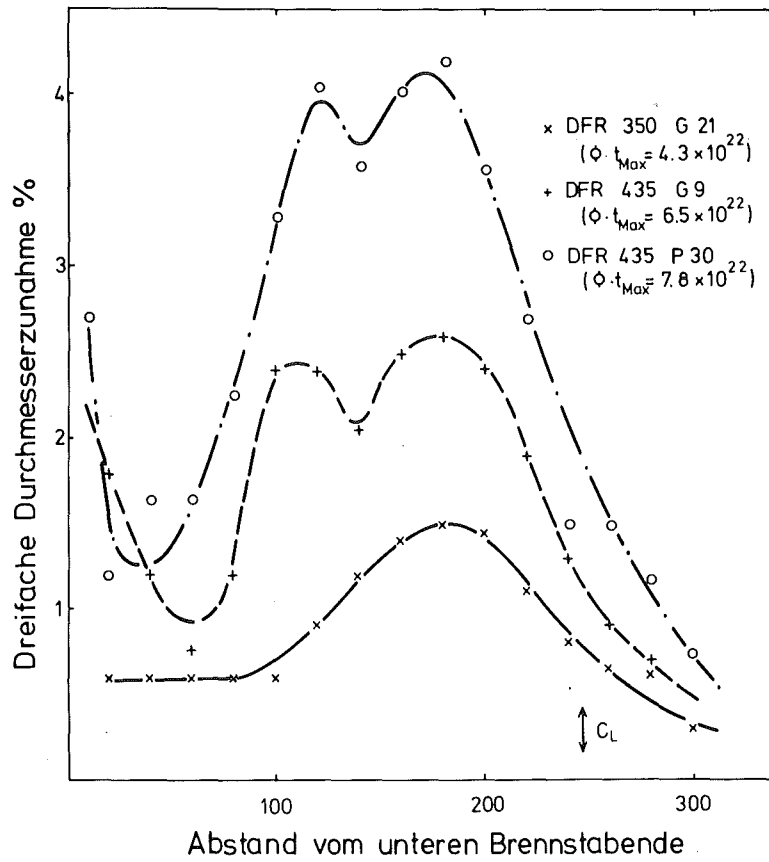


Abb. 7 Durchmessererweiterung bei drei Stäben (G21, G9 und P 30) der Experimente DFR 350 und DFR 435

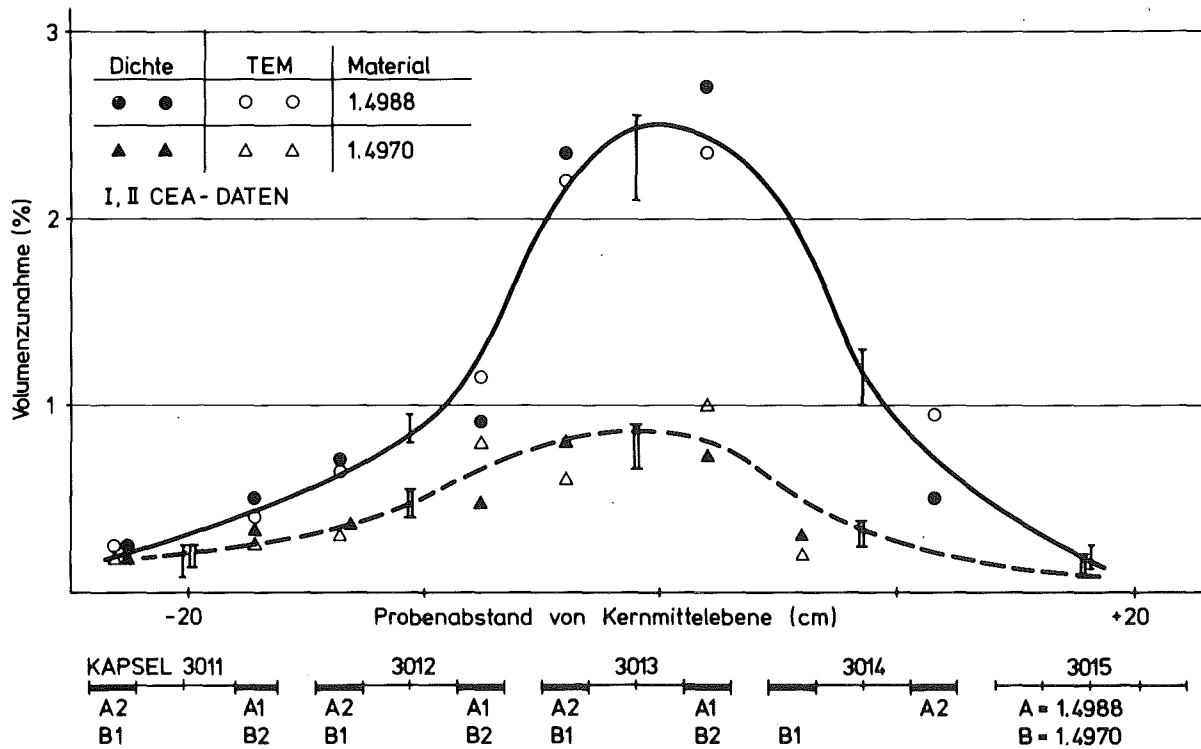


Abb. 8 Bestrahlungsbedingungen und Schwellverhalten der Stähle 1.4988 u. 1.4970 aus dem Experiment Rapsodie-Material

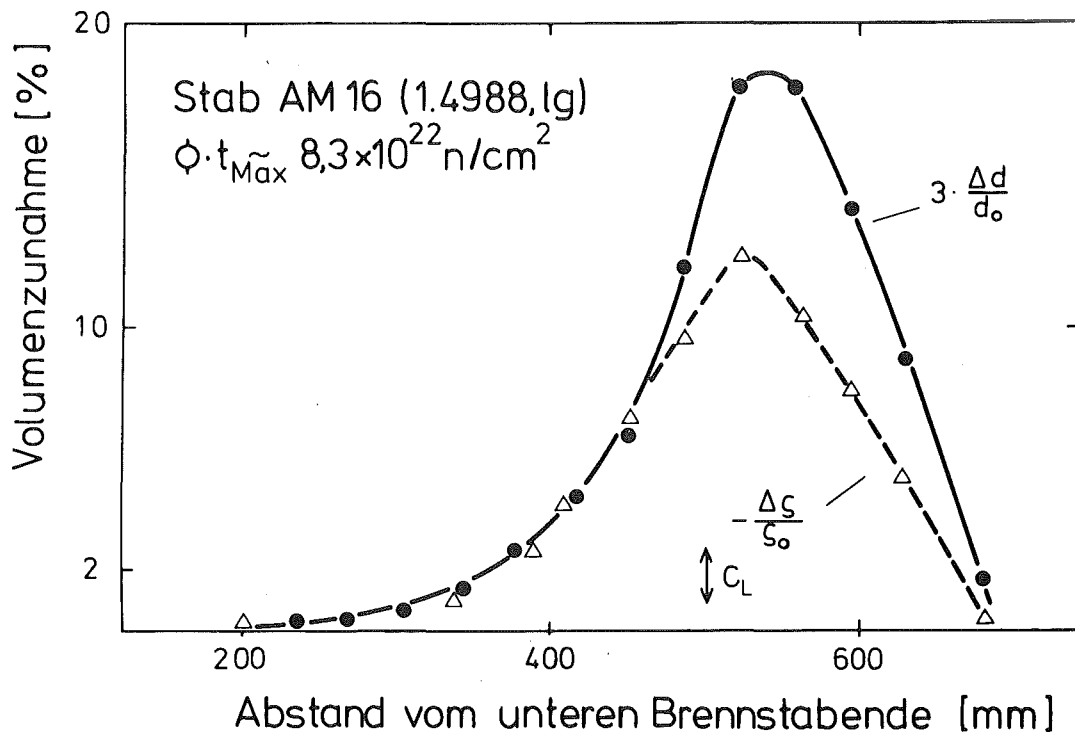


Abb. 9 Vergleich der aus Dichtemessung und Durchmesseraufweitung ermittelten Volumenzunahme an Stab AM 16 aus Rapsodie I (Material 1.4988)

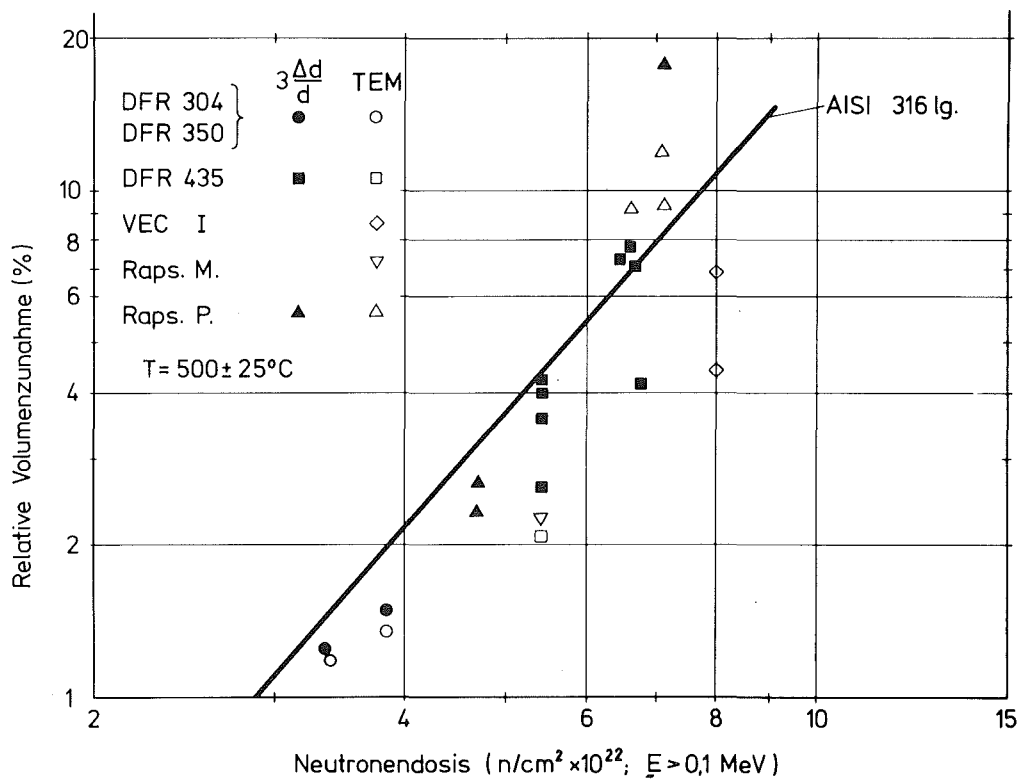


Abb. 10 Dosisabhängigkeit der Porenbildung im Temperaturbereich maximalen Schwellens für den Stahl 1.4988 im lösungsgeglühten Zustand



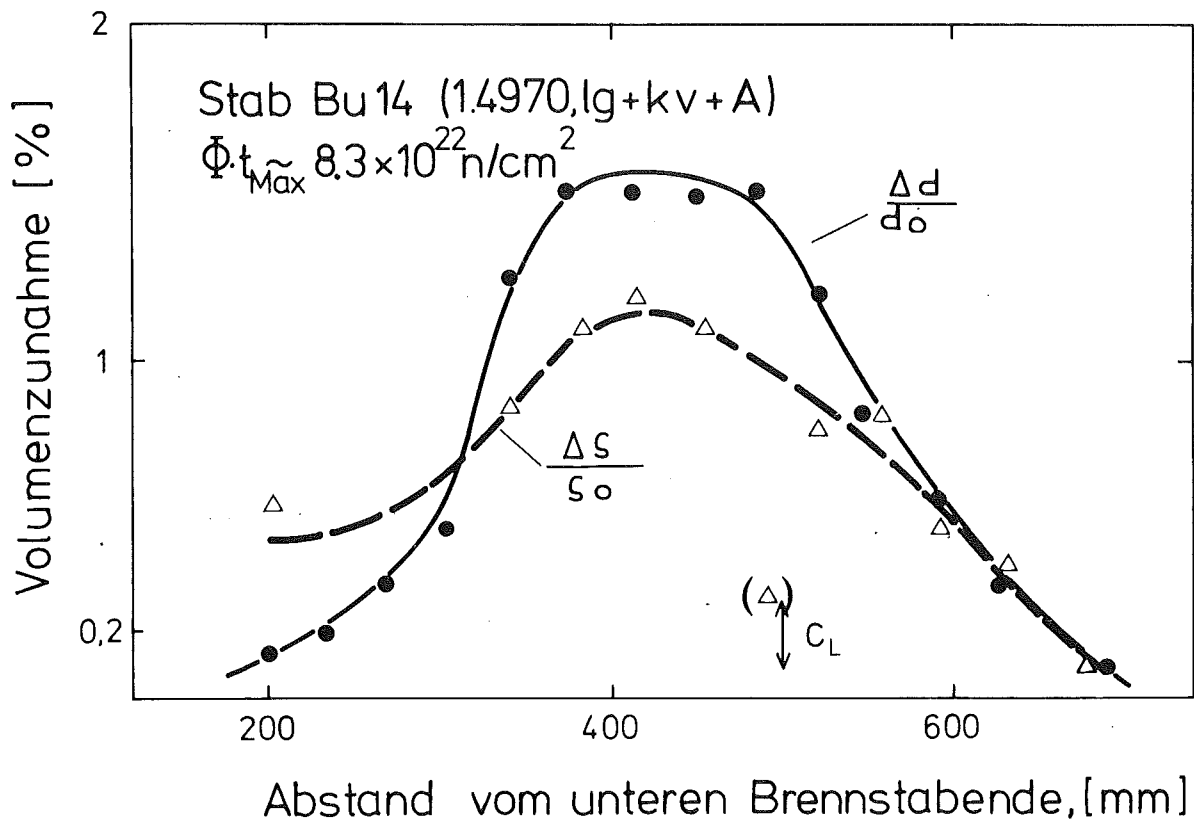


Abb. 11 Vergleich der aus Dichtemessung und Durchmessererweiterung ermittelten Volumenzunahme an Stab BU 14 aus Rapsodie I (Material 1.4970)

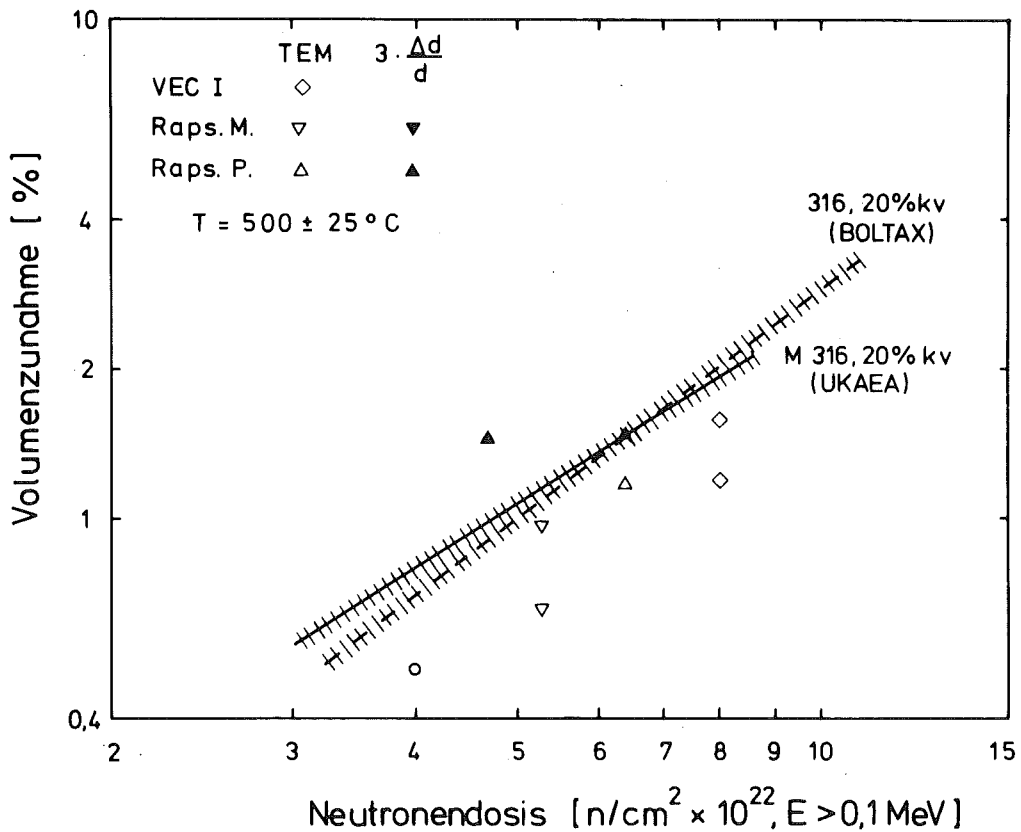


Abb. 12 Dosisabhängigkeit der Porenbildung für den Stahl 1.4970 im sogen. Rohrzustand

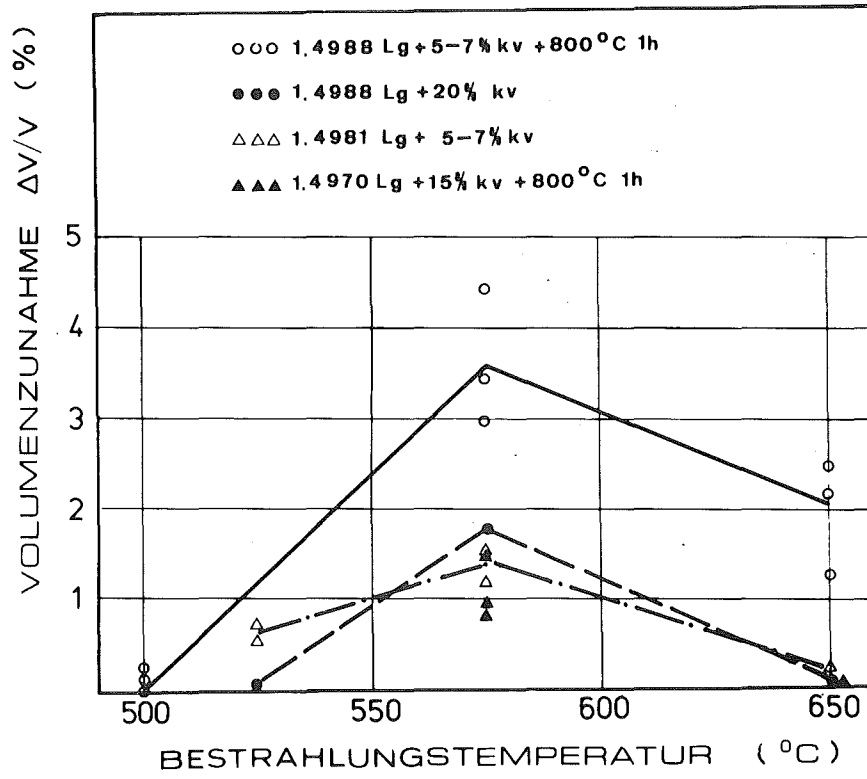
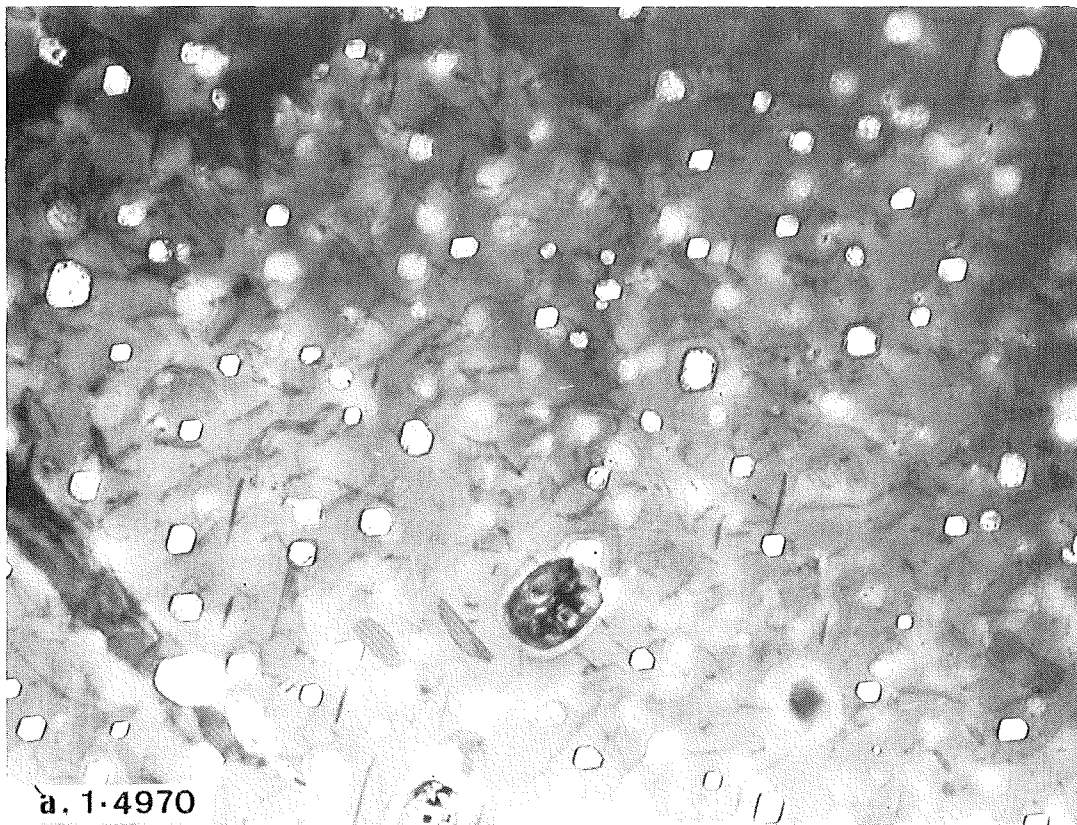


Abb. 13 Das Schwellverhalten mehrerer Werkstoffe bzw. Werkstoffzustände aus dem Simulationsexperiment VEC I



0,1  $\mu\text{m}$

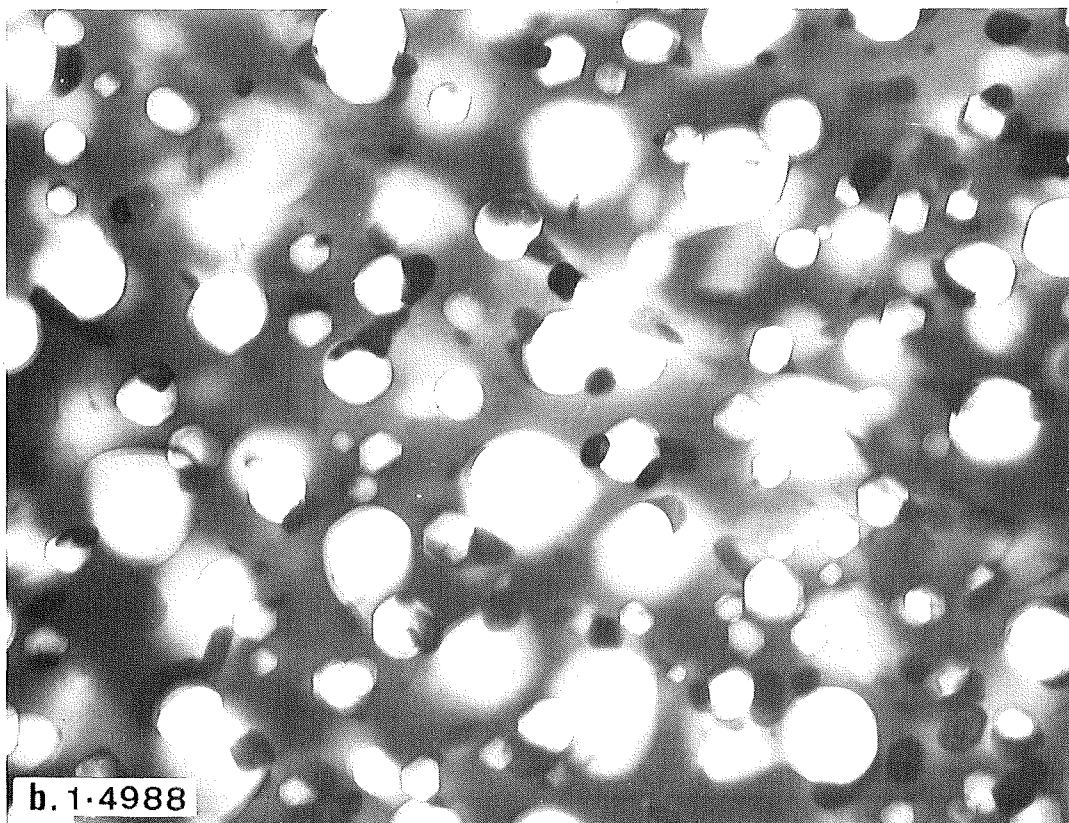


Abb. 14 Vergleich der Mikrostruktur der Stähle 1.4988 und 1.4970 im Temperaturbereich maximalen Schwellens aus Rapsodie I (elektronenmikroskopische Aufnahmen).

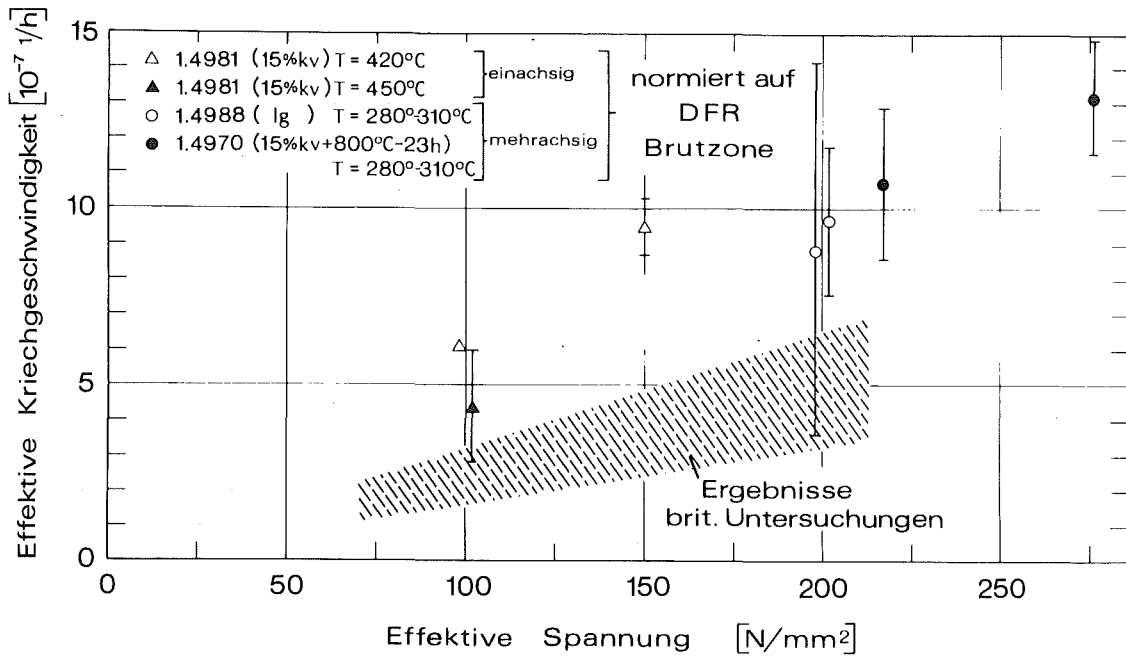


Abb. 15 Vergleich der In-pile Kriechdaten stabilisierter Stähle mit britischen Referenzstählen

Wahrscheinliche Mechanismen für In-Pile-Kriechen ( $\dot{\epsilon} \sim \sigma^n$ , $n = 1$ )		
Modus	Ist Sättigung möglich?	Ist Aushellung durch spannungsloses Aus-tempern möglich?
<b>1. Interstitielle Versetzungsringe</b>		
a) Bevorzugte Keimbildung auf günstig orientierten Kristallebenen.	? Diskutiert für mittlere und höhere Dosen.	Ja.
b) Bevorzugtes Wachstum auf günstig orientierten Kristallebenen.	Ja, wenn 1a) Sättigung zeigt.	Ja, bis zu mittleren Dosen (noch keine Vernetzungen).
<b>2. Klettern und Gleiten von Versetzungen</b>		
a) I-creep: Elastische Verformung wird durch Versetzungsklettern in plastische Verformung umgewandelt.	Nein.	Nein.
b) Cottrell-creep: Durch Punktfehler-Übersättigung verursachtes Klettern führt zu hohen Inneren Spannungen, die durch Abgleiten abgebaut werden. Letzterer Vorgang wird durch äußere Spannung gesteuert.	Nein.	Nein.

Abb. 16 Mechanismen des In-pile Kriechens

## IX. KORROSIONSV ERHALTEN VON HÜLLWERKSTOFFEN

von

H.U. Borgstedt

### Inhalt:

1. Einleitung
2. Gewichtsveränderungen durch Na-Korrosion
  - 2.1 Temperaturabhängigkeit
  - 2.2 Sauerstoffabhängigkeit
3. Morphologie des Abtrags
4. Bildung von Schichten ferritischer Struktur
5. Stabilität des Werkstoffgefüges
6. Effekte langzeitiger Natriumeinwirkung
7. In-pile Effekte
8. Konzentrationsänderungen an B, N und C
9. Wirkung des Natriums auf mechanische Langzeiteigenschaften der Hüllrohrwerkstoffe
10. Effekte am Hüllrohr

## 1. Einleitung

Über das Korrosionsverhalten von Hüllwerkstoffen in flüssigem Natrium unter SNR 300-hot spot-Bedingungen liegen Informationen aus einer Anzahl von Kreislaufversuchen innerhalb des Konsortiums vor, die vor allem im SCK Mol, TNO Apeldoorn und SGAE Seibersdorf ausgeführt worden sind. Besondere Bedeutung kommt dabei den Korrosionsversuchen an Hüllrohren unter Innendruckversuchen zu, die im Natrium-Hochtemperaturprüfstand im IRB ausgeführt wurden und fortgesetzt werden.

Diese Versuche werden in Zusammenarbeit der Gruppen 'Chemische Analyse' und 'Na-Korrosion' des IMF und der Gruppe 'Na-Prüfstände' des IRB ausgeführt. Darüber hinaus besteht eine Zusammenarbeit mit Gruppen der Firma Interatom, die einen Teil der Proben gefertigt und einige Messungen vorgenommen haben.

In einem Spezialistenkreis des Koordinierungsausschusses für Natriumkorrosion wurden die Auslegungskriterien festgelegt, die bei der Versuchsauswertung zur Anwendung kommen sollten. Diese Kriterien sind für die Hüllwerkstoffe:

- abtragende Korrosion
- Sauerstoffabhängigkeit der Abtragung
- Bildung von Schichten ferritischer Struktur
- Stabilität des Werkstoffgefüges
- Effekte langzeitiger Na-Einwirkung (Mikroporosität)
- in-pile Effekte
- Ab- und Zunahme von B, N, C
- Wirkung des Na auf mechanische Langzeiteigenschaften.

## 2. Gewichtsänderungen durch Na-Korrosion

### 2.1 Temperaturabhängigkeit

Für die Bewertung der Meßergebnisse hinsichtlich ihrer Anwendbarkeit für Auslegungsbetrachtungen wurden Standardparameter definiert, und nur maximale Meßwerte, die in Versuchen unter solchen Bedingungen erhalten worden sind, wurden zur Festlegung der Abtragungsgrößen herangezogen.

---

+) Institut für Reaktorbauelemente

Standardparameter

Temperatur	700°C
Strömungsgeschwindigkeit des Na	3-10 m/s
Sauerstoffgehalt	7-13 ppm
Mindestdauer des Tests	1400 h

In den Teststrecken des Natrium-Hochtemperaturprüfstandes im IRB wurde die Abtragungsgeschwindigkeit an Hüllrohrproben aus den drei Stählen W.-Nr. 1.4970, 1.4981 und 1.4988 bei 700 und 600°C gemessen. Die nach 5000 h erhaltenen Resultate sind in Abb. 1 und Abb. 2 aufgetragen als Gewichtsänderungen pro Flächeneinheit über der Versuchszeit. Für die einzelnen Zeitabschnitte des Versuchs ist der mittlere Sauerstoffgehalt des Natriums angegeben, der die Abtragung deutlich beeinflusst. (s. 2.)

Einem Gewichtsverlust von 7,9 mg/cm<sup>3</sup> entspricht ein Dickenverlust von 10 µm. Die maximale Abtragung bei 700°C in 5000 h betrug also 8,25 µm, bei 600°C waren es nur 1,9 µm. Umgerechnet auf ein Jahr Einsatz unter den Bedingungen im Natriumkreislauf ergeben sich folgende Werte:

Abtragung im Jahr	
600°C	3,3 µm
700°C	14,4 µm

Die Abtragung ist also stark temperaturabhängig und läßt sich wie in Abb. 3 als eine Arrhenius-Funktion darstellen. Die von uns gemessenen Daten passen sehr gut in dieses Diagramm hinein. Die entsprechende Gleichung für die Abtragsrate R (µm/a) lautet (mit dem 1σ-Streuband):

$$(1) \quad \ln R = 12,867 - \frac{9663}{T} \pm 0,3748$$

Danach ist bei der hot-spot Temperatur des Hüllrohres von 685°C der Wandstärkenverlust im Jahr mit

$$16,2 \pm 7,3 \mu\text{m}$$

(einschließlich des + 1σ-Wertes)

anzusetzen.

## 2.2 Sauerstoffabhängigkeit

Die Literatur gibt an /1,2,3/, daß die Natriumkorrosionsgeschwindigkeit der austenitischen Stähle vom Sauerstoffgehalt des Natriums abhängt. Diese Aussage ist überwiegend durch Versuchsergebnisse mit hohen Sauerstoffkonzentrationen (> 10 ppm) belegt. Deutliche Hinweise darauf, daß auch unterhalb dieser Konzentrationen eine Konzentrationsabhängigkeit auffindbar ist, blieben wohl wegen der schwierigen Sauerstoffkonzentrationsmessung in diesem Bereich selten /4/.

Aus den Ergebnissen des 5000h-Versuches läßt sich vor allem für 700°C eine Abhängigkeit der Korrosionsgeschwindigkeitskonstanten von der Sauerstoffkonzentration im Natrium aufzeigen. In Abb. 4 sind die Korrosionskonstanten gegen die Sauerstoffkonzentration im Natrium doppelt logarithmisch aufgezeichnet. Danach ist auch in dem Konzentrationsbereich 3-7 ppm O im Na ein etwa linearer Zusammenhang feststellbar. Für 600°C werden die Abhängigkeiten erst nach längerer Versuchszeit klarer werden, da die Oberflächen noch keine Gleichgewichtszusammensetzungen haben.

Zwischen den Sauerstoffkonzentrationsniveaus in den Teilversuchen konnte gut unterschieden werden, da die Messungen mit gut kalibrierten EMK-Sonden mit einem hohen Grad von Exaktheit laufend vorgenommen wurden.

## 3. Morphologie des Abtrags

Morphologische Informationen dienen nicht direkt der Auslegung von Brennelementen, doch ist die Kenntnis der Morphologie der Natriumkorrosion wichtig für die Umrechnung der gemessenen Gewichtsänderungen in die zur Auslegung benutzten Werte der Wanddickenänderung /5/. Die Untersuchungen mit dem Rasterelektronenmikroskop an korrodierten Hüllrohrproben ergaben folgenden Befund:

- Die ursprüngliche Bearbeitungsform der Oberflächen war in eine Kornstruktur umgewandelt.
- Korngrenzen waren ein wenig vertieft gegenüber Kornflächen.
- Feine Partikel traten bei den Stählen Werkstoff-Nr. 1.4970 und 1.4981 hervor, nicht jedoch beim 1.4988.



- Die feinen Partikel waren reich an Molybdän.
- In einer Häufigkeit von etwa 5-10 Stück auf einer Fläche von 0,1x0,1 mm traten tiefe Löcher von  $\sim 5 \mu\text{m}$  Durchmesser auf.

Diese Erscheinungen sind in Abb. 5 einer Oberfläche im Anlieferungszustand in REM-Bildern in etwa 1000-facher Vergrößerung gegenübergestellt. Insgesamt gesehen war der Abtrag durch Natrium jedoch flächenhaft, bei der Umrechnung von Gewichtsverlust in Wanddickenänderung wird also in diesem Fall nur ein kleiner Fehler gemacht, der sich außerdem nach der sicheren Seite auswirkt.

#### 4. Bildung von Schichten ferritischer Struktur

Die Korrosionsveränderungen an den Hüllwerkstoffen sind jedoch nicht auf die Oberflächen selbst beschränkt, sondern unter den Oberflächen bilden sich mehr oder weniger dünne Diffusionszonen mit veränderter Zusammensetzung und gegebenenfalls auch veränderter Struktur aus /1,2,3,5/. Die Kinetik des Wachstums solcher Schichten ist bislang nur für ungestabilisierte Austenite wie die Typen AISI 304 und AISI 316 untersucht worden, wobei parabolische Zeitabhängigkeit vorgeschlagen worden ist /6,7/.

Ferritische Gefügeanteile in der austenitischen Matrix können durch metallografische Techniken sichtbar gemacht werden. Durch Ätzen mit Oxalsäure bleibt ferritisches Material erhaben über dem Austenit stehen und läßt sich wie in Abb. 6 besonders gut mit dem Rasterelektronenmikroskop beobachten. Bei der vorliegenden Probe aus dem Stahl W.-Nr. 1.4988 ist eine durchgehende Randschicht aus ferritischem Material etwa 6-8  $\mu\text{m}$  dick; darunter reichen ferritisierte Korngrenzen bis 35  $\mu\text{m}$  tief in das Hüllrohr hinein.

Eine andere metallografische Technik bedient sich eines Interferenzverfahrens nach dem Bedampfen des polierten Schiffs mit ZnSe-Dampf. Dieser Dampf schlägt sich auf den ferritischen Materialteilen in größerer Schichtdicke nieder und die Schichtdickenunterschiede werden im Interferenzmikroskop sichtbar /8/. Die Abb. 7 zeigt drei Proben aus den Stählen 1.4970, 1.4981 und 1.4988 auf diese Weise präpariert. Der Oberflächenferrit (Fer-

ritschicht I) und der Korngrenzenferrit (Ferritschicht II) sind erkennbar und einer Vermessung zugänglich.

Für die Auslegung wird angenommen, daß die Schicht Ferrit I keinen Beitrag zur Festigkeit des Hüllrohrs mehr leistet. Dagegen braucht für die Schicht Ferrit II kein Korrosionszuschlag für die Auslegung vorgenommen zu werden. Mit folgenden Zahlen für die Ferritbildung bei der hot spot-Temperatur 685°C muß man rechnen:

#### Ferritschichtbildung

Ferrit I	9 ± 7 µm
Ferrit II	30 - 40 µm

Den strukturellen Veränderungen entsprechen, wie chemisch-analytische Untersuchungen mit Hilfe der Spektrallampe von RSV /9/ ergeben haben, Verschiebungen in den Konzentrationen der Legierungselemente. Die Konzentrationsänderungen der Elemente Cr, Ni, Mn, Mo, V, Nb, Ti und C entsprechen dabei den strukturellen Befunden. Konzentrationsprofile sind in Abb. 8 dargestellt. In der Schicht Ferrit I finden wir einen steilen Konzentrationsabfall der Elemente Cr, Ni, Mn, V, Nb und Ti. Dagegen nimmt der Gehalt an Fe und Mo in dieser Zone zu.

In der Schicht Ferrit II ist für die genannten Elemente ein schwacher Gradient meßbar. In etwa 35 µm Tiefe erreicht die Konzentration an Cr, Ni, Mn, V und Nb den Wert im Ausgangszustand.

#### 5. Stabilität des Werkstoffgefüges

An einer großen Anzahl von Schliffbildern, die von langfristig in Natrium exponierten Proben hergestellt worden sind, wurde geprüft, ob sich auch außerhalb der durch die Korrosion unmittelbar betroffenen Zonen Veränderungen im Gefüge und der Härte als Folge der Natriumkorrosion ergeben haben. Die Prüfung der Korngrößen hat keine Veränderungen angezeigt. Die Härte ist in der Grenzzone zwischen der Ferrit II-Schicht und der Matrix schwach erhöht, vermutlich infolge einer Aufkohlung, die an dieser Stelle ihren höchsten Umfang aufweist. Ausscheidungen sind im Bereich des Härte-

maximums ebenfalls gelegentlich leicht angehäuft, in der Matrix sind mit metallografischen Methoden keine Veränderungen feststellbar.

## 6. Effekte langzeitiger Natriumeinwirkung

In der Literatur war auf eine Erscheinung hingewiesen worden, die vor allem bei stabilisierten Austeniten auftreten sollte. Danach bilden sich bei langen Expositionszeiten (über 2500 h) Mikroporen entlang Korngrenzen, die ein Netzwerk bis zu einer Tiefe von 100  $\mu\text{m}$  in 15000 h formen können /6/. In den Versuchen an den Hüllwerkstoffen W.-Nr. 1.4970, 1.4981 und 1.4988 traten solche Effekte nur schwach auf und waren auf die ohnehin durch die Natriumkorrosion beeinflusste Zone beschränkt. Die von der Oberfläche beobachtbaren Löcher (s. Abb. 5) können, wie die rastermikroskopische Aufnahme eines Schliffs einer Hüllrohrprobe aus W.-Nr. 1.4988 in Abb. 9 zeigt, eine Tiefe von über 30  $\mu\text{m}$  erreichen.

Die Unterschiede in den Befunden der Literatur und unserer Versuche führen wir auf die hohe Reinheit unserer vakuumerschmolzenen Probenwerkstoffe zurück.

## 7. In-pile Effekte

Die Herstellung von Beziehungen zwischen Kreislaufversuchen und Bestrahlungsversuchen in natriumgekühlten Reaktoren (Rapsodie und DFR) ist schwierig. In den In-pile Versuchen waren keine Standardparameter (Temperatur, Sauerstoffgehalt) eingestellt, daher waren auch keine vergleichbaren Effekte zu erwarten.

Für die bestrahlten Brennstäbe stehen die Standardmethoden der Nachbehandlung und Untersuchung nicht zur Verfügung. Bei der Anwendung der Mikrosonde fehlt es an Erfahrungen in der Problematik der Korrosionsuntersuchung.

Alle Befunde sind hinsichtlich ihrer Aussage über Außenkorrosion als sehr fragwürdig anzusehen, es besteht noch eine Informationslücke, die bei nachfolgenden Untersuchungen geschlossen werden sollte. Die Folgerung, daß Ausenkorrosion keine die Standzeit der Brennstäbe begrenzende Erscheinung war,

ist allerdings zulässig.

### 8. Konzentrationsänderungen an B, N und C

Analysen der in Natrium korrodierten Proben von Hüllwerkstoffen haben ergeben, daß über die Korrosionszone hinaus Konzentrationsveränderungen an B, N und C das ganze Hüllrohr betreffen können.

Profile der Kohlenstoffkonzentration, gemessen mit der Spektral-Lampe von RSV /9/, sind in Abb. 10 aufgezeichnet. Ein starker Konzentrationsgradient findet sich in der Ferritzone, ein schwächerer in der Zone der ferritisierten Korngrenzen, und ein Maximum der Kohlenstoffkonzentration, bis zum vierfachen der Ausgangskonzentration, tritt am Beginn der Matrix auf. Im austenitischen Gefüge fällt der C-Gehalt nach innen nur langsam ab, und selbst in 150 µm Tiefe ist der Ausgangswert des C-Gehalts noch nicht wieder erreicht.

Die Proben aus W.-Nr. 1.4970 hatten, wie schon in der Literatur berichtet /10/, starke Verluste an Bor aufzuweisen.

Ausgangszustand:	55 ppm B
therm. Parallelprobe:	18-22 "
Korrosionsprobe:	20-23 "

Die Verluste sind in der Korrosionszone am stärksten, betreffen aber darüber hinaus weite Teile des Hüllrohres, bei 40 µm Tiefe fanden sich etwa 15 ppm Bor.

Die Befunde früherer Versuche /10/ hinsichtlich des Verlusts an Stickstoff, zum Beispiel im 5000h-Versuch im Kernforschungszentrum Seibersdorf, bei dem der Stickstoffgehalt von 900 auf 200 ppm zurückgegangen war /11/, haben sich in den jüngsten Versuchen nicht bestätigt. Weitere Analysen müssen die Diskrepanzen in dieser Frage klären.

### 9. Wirkung des Natriums auf mechanische Langzeiteigenschaften der Hüllrohrwerkstoffe

In den Innendruckkriechversuchen (SGAE 1.4 und HT1 und HT 2) wurde der Fra-

ge nachgegangen, ob die Natriumkorrosionseffekte die mechanischen Langzeiteigenschaften der Hüllrohre beeinflussen. Dabei wurde besonders an die Effekte gedacht, die das gesamte Hüllrohr betreffen: Veränderungen der Konzentrationen an C, N und B.

In Abb. 11 sind die Kriechgeschwindigkeiten (definiert als Kriechdehnung in % dividiert durch die Versuchszeit in h) der in Natrium und im Vakuum bei 700°C ausgelagerten Proben gegen die Tangentialspannungen aufgetragen. Die Kriechgeschwindigkeit der in Natrium eingesetzten Proben ist nach diesen Befunden nicht nennenswert erhöht. Ungünstigere Befunde im Versuch SGAE 1.4 /11/ haben sich also nicht bestätigt.

Die Versuche werden jedoch weitergeführt; da mit weiteren Änderungen am Hüllrohr hinsichtlich der Gehalte an C, N und B gerechnet werden muß, ist ein Effekt auf die mechanischen Langzeiteigenschaften nicht auszuschließen.

#### 10. Effekte am Hüllrohr

Die Abtragung durch Korrosion an einem Brennstab ist wegen der Temperaturgradienten längs des Stabes ungleichmäßig. Das Maximum tritt bei der höchsten Wandtemperatur am Übergang vom Brennstoff zum oberen Brutstoff auf. Auch die inneren Effekte - Ferritschicht, Korngrenzenferrit, BNC-Verschiebungen - werden nur in der Zone der höchsten Temperatur eine Rolle spielen. Schematisch ergibt sich ein Verlauf der Abtragung, wie er in Abb. 12 angegeben ist.

Bei der hot-spot Temperatur (685°C) müssen wir für ein Jahr Standzeit folgende Effekte bei der Auslegung der Hüllrohre berücksichtigen:

685°C	Abtragung, max.	23,5 µm
	Ferritschicht	<u>16,0 "</u>
	Schwächung	39,5 µm

ferner: Korngrenzenferrit bis 50 µm

Die Hüllwerkstoffe 1.4970, 1.4981 und 1.4988 unterscheiden sich untereinander hinsichtlich ihrer Beständigkeit in Natrium nicht. Da sie bei hohem Temperaturen nicht entkohlt wurden und ihre Festigkeit durch Natrium kaum beeinträchtigt wird, dürften sie den Stahl AISI 316 in ihrem Verhalten in Natrium überlegen sein.

Literatur

- /1/ A.W. Thorley, C. Tyzack: in "Alkali Metal Coolants", IAEA, Wien 1967, 97-117
- /2/ E.L. Zebroski, R.S. Young, F.A. Comprelli, D. Dutina: in "Alkali Metal Coolants", IAEA, Wien 1967, 195-209
- /3/ A.W. Thorley, C. Tyzack: in "Liquid Alkali Metals", BNES, London 1973, 257-274
- /4/ H.U. Borgstedt, G. Frees: in "Chemical Aspects of Corrosion and Mass Transfer in Liquid Sodium", TMS of AIME, New York 1972, 265-277
- /5/ H.U. Borgstedt: 5. Kongress der Europäischen Föderation Korrosion, Paris, 24.-28. September 1973, Kongressband, S. 279-283
- /6/ D.W. Sandusky, J.S. Armijo, W.J. Wagner: J. Nucl. Mat. 46 (1973) 225-243
- /7/ P. Baque, L. Champeix, A. Lafon, E. Sermet: in "Liquid Alkali Metals" BNES, London 1973, 223-231
- /8/ W.Pepperhoff, H.-E. Bühler; Archiv Eisenhüttenwesen 34 (1963)839-843
- /9/ H. Schneider, H. Schumann: KFK-2009 (1974)
- /10/ H.U. Borgstedt, E.D. Grosser: "Liquid Alkali Metals", BNES, London 1973, 275-282
- /11/ H.U. Borgstedt, W. Dietz: Bericht KFK-1932 (1974), (im Druck)  
H.U. Borgstedt, W. Dietz, N. Schwarz:  
Reaktortagung 1973, Tagungsbericht S. 267-270

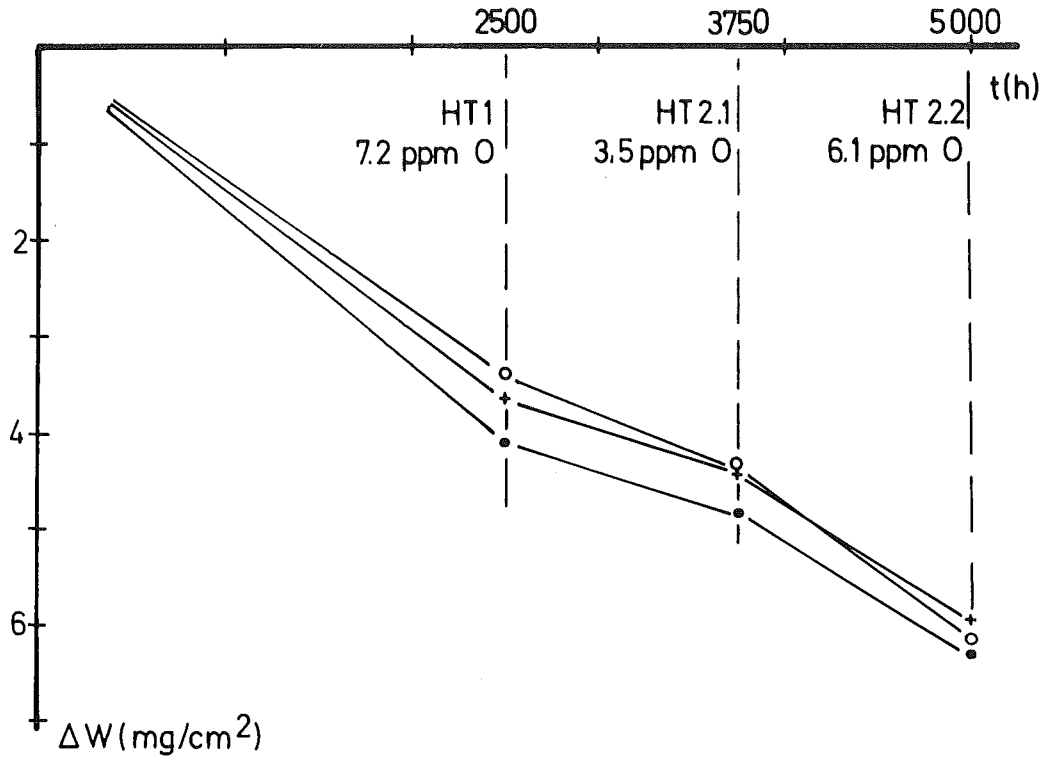


Abb. 1 Gewichtsänderungen der Hüllrohrproben in Downstream-Position 1 in 5000 h bei 700°C

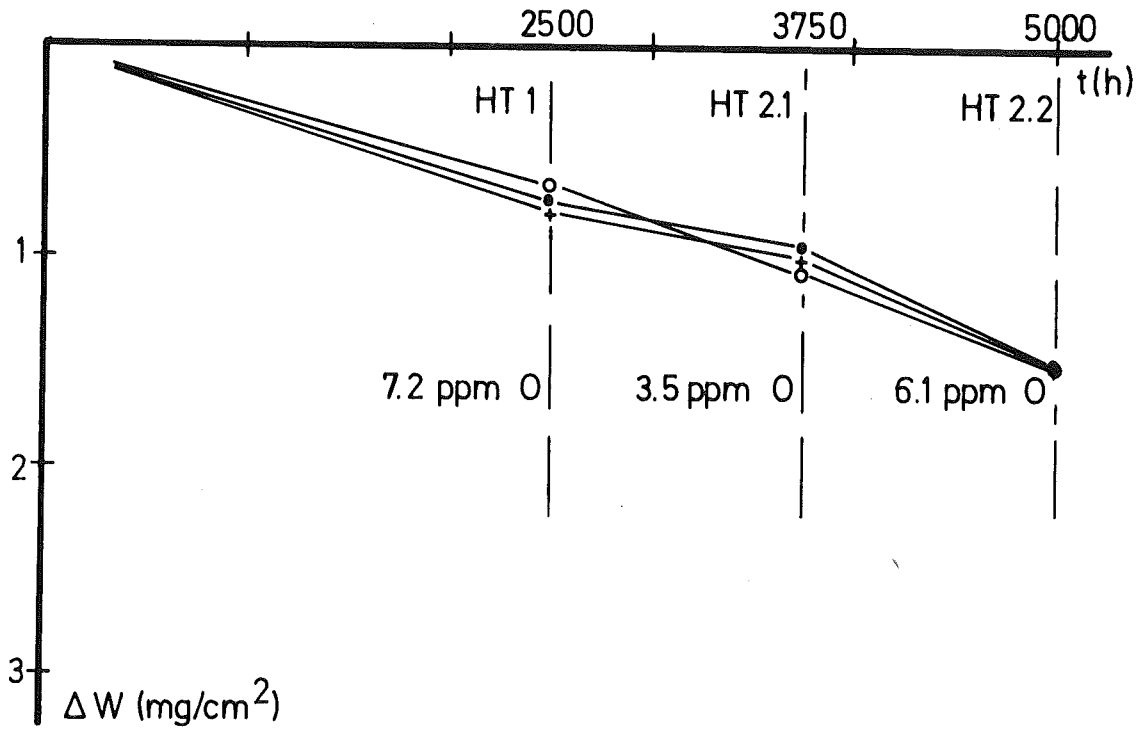


Abb. 2 Gewichtsänderungen der Hüllrohrproben in Downstream-Position 1 in 5000 h bei 600°C

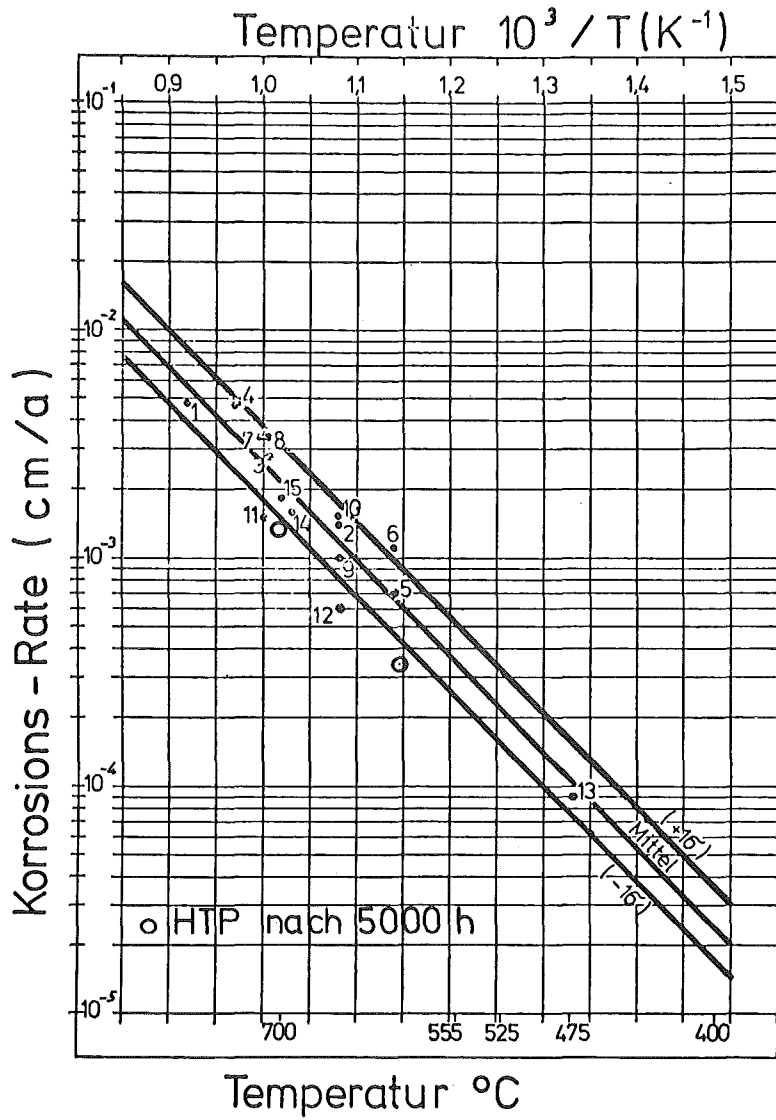


Abb. 3 Arrhenius-Darstellung maximaler Korrosionsraten unter Standardbedingungen für austenitische Stähle (nach einer Materialsammlung von G. Menken, Interatom)



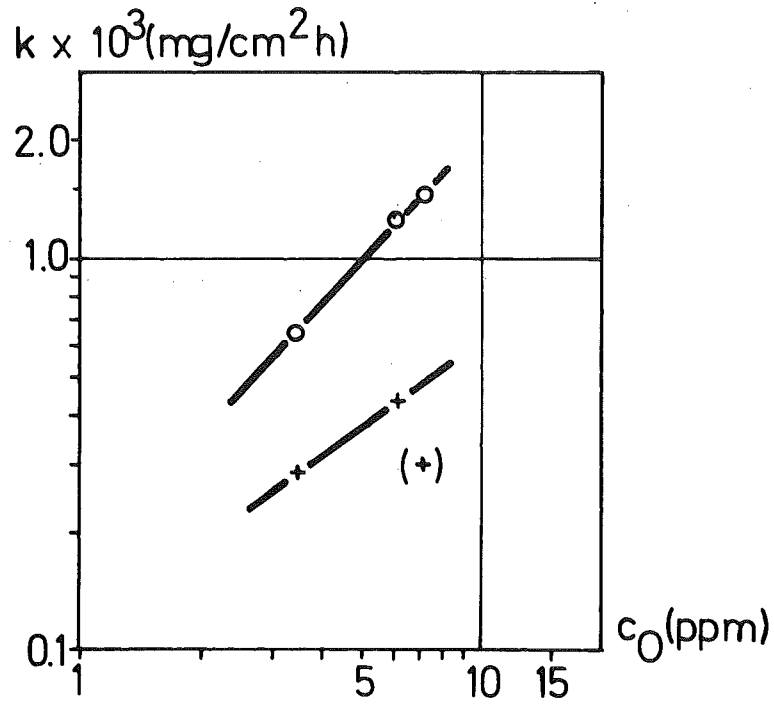


Abb. 4    Abhängigkeit der Konstanten der Korrosionsgeschwindigkeit vom Sauerstoffgehalt im Natrium

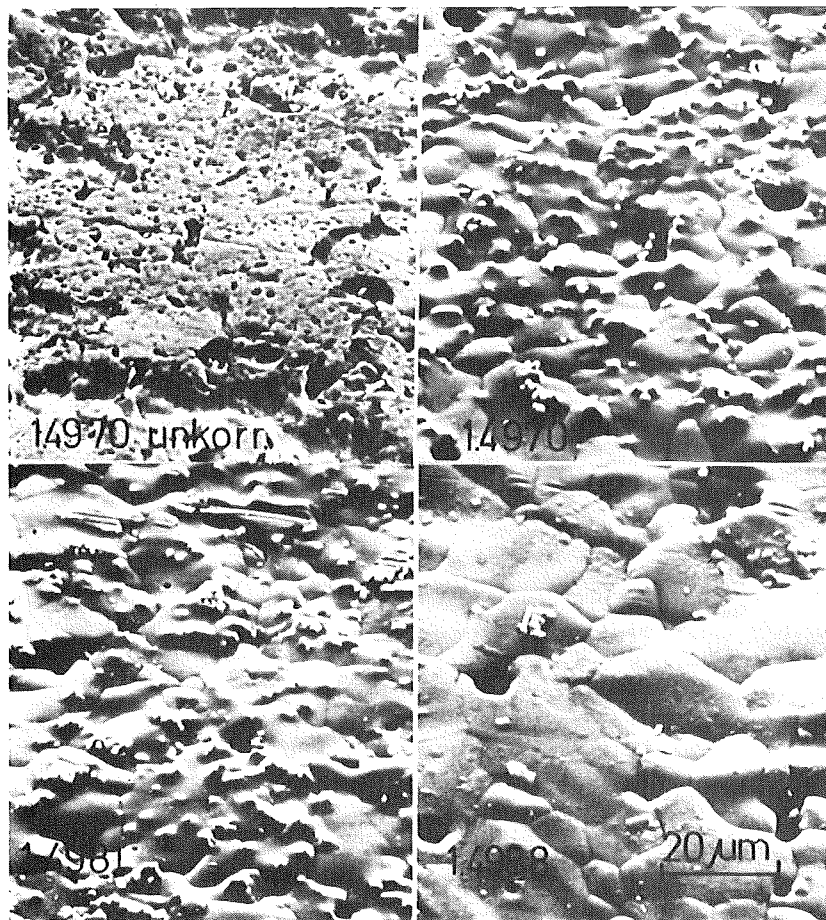


Abb. 5    Morphologie des Abtrags, sichtbar gemacht im Rasterelektronenmikroskop (etwa 1000-fach vergrößert)

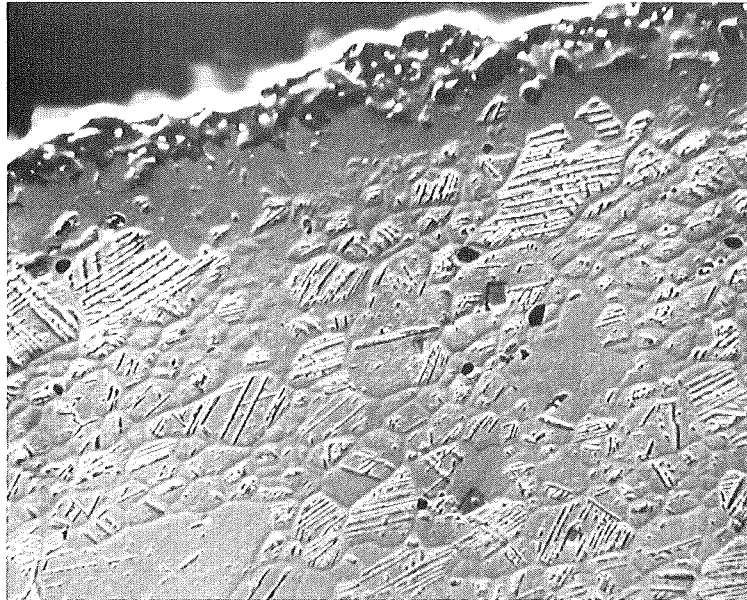


Abb. 6 Rasteraufnahme eines Querschliffs (W.-Nr. 1.4988) nach dem Anätzen mit Oxalsäure zur Hervorhebung der ferritischen Randschicht und Korngrenzen

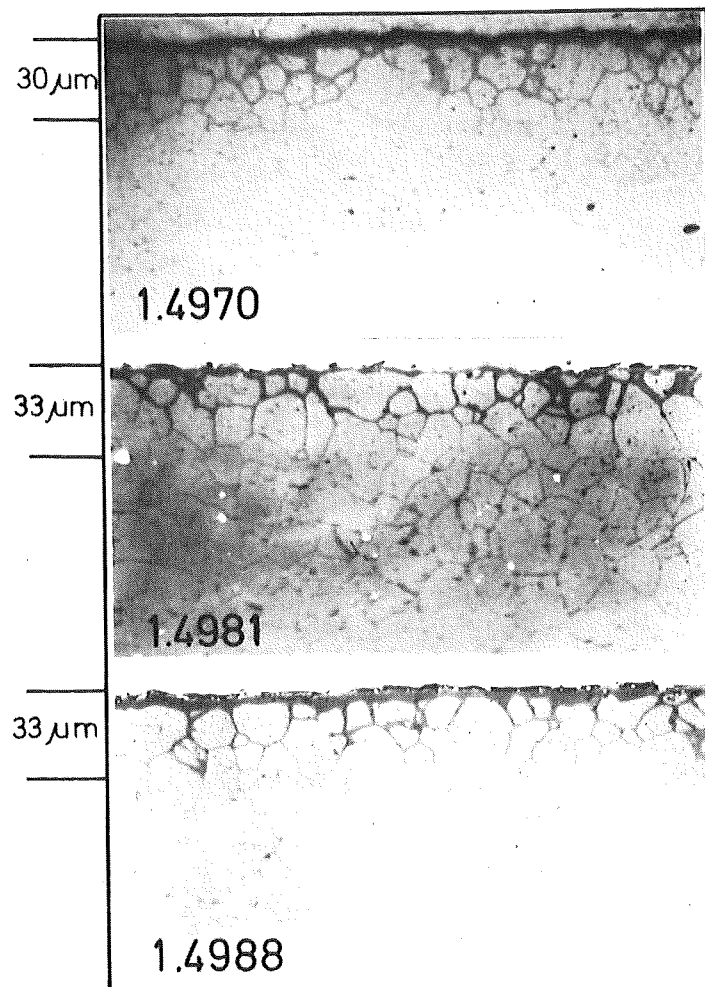


Abb. 7 Mittels Interferenz sichtbar gemachte Ferrit-Anteile auf Schliffbildern der Werkstoffe 1.4970, 1.4981 und 1.4988 nach 5000 h Einsatz in Na von 700°C

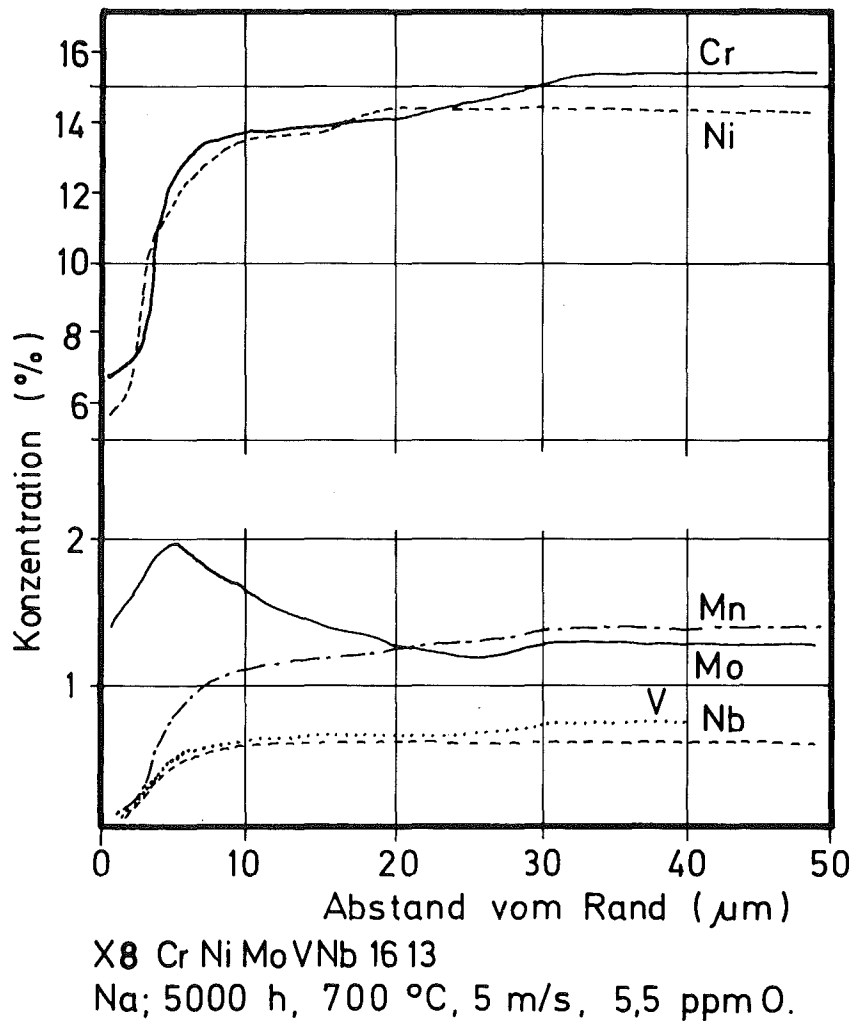


Abb. 8 Konzentrationsprofile der Legierungselemente Cr, Ni, Mo, Mn, V und Nb in der Randzone (W.-Nr. 1.4988)

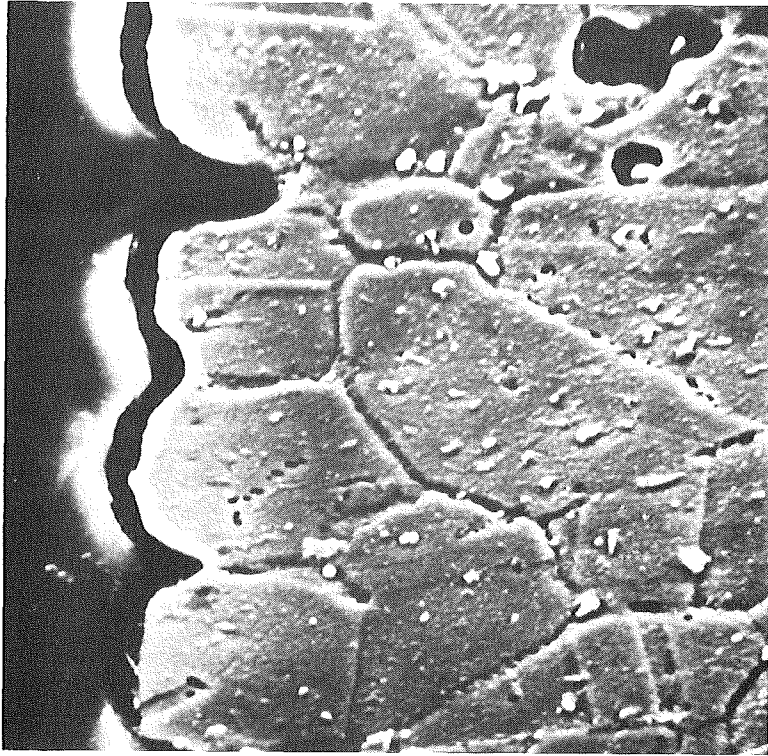


Abb. 9 Schliffbild in Rasteraufnahme der Randschicht einer Probe aus 1.4988 mit Hohlraumbildung

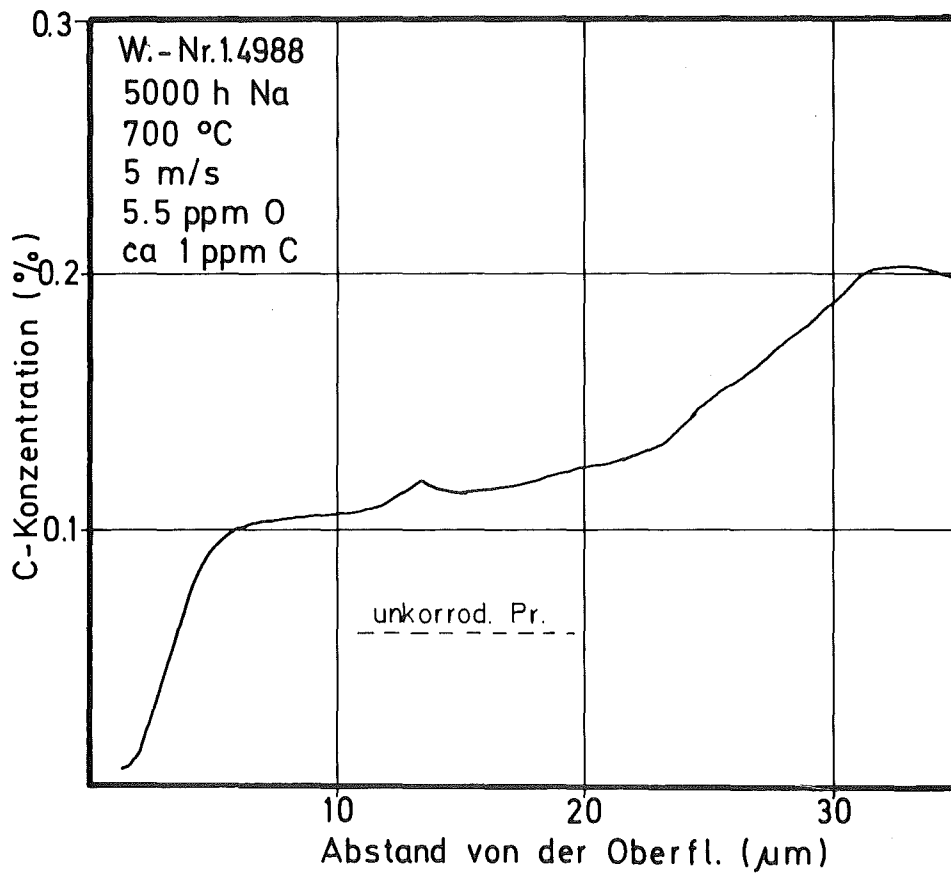


Abb. 10 Konzentrationsprofile des Kohlenstoffs in Hüllrohrproben (5000 h Na, 700°C) aus 1.4970, 1.4981 und 1.4988

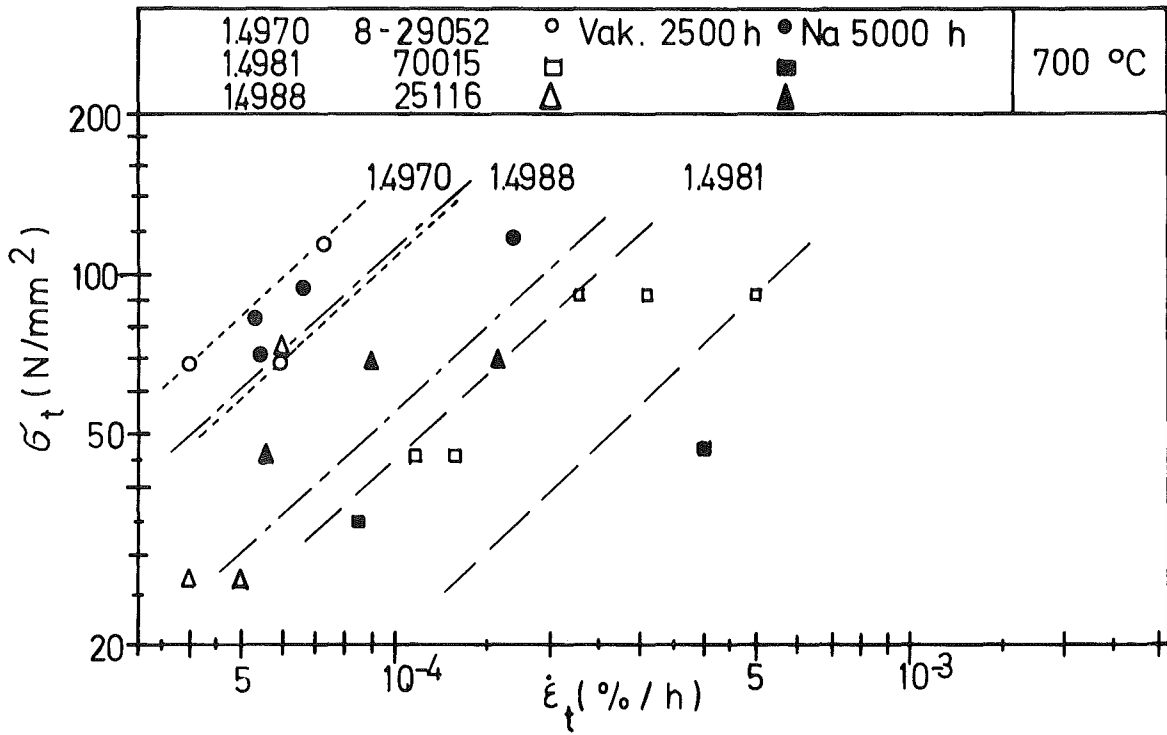


Abb. 11 Diagramm der Kriechgeschwindigkeit über der Tangentialspannung für Innendruckproben in Na und im Vakuum bei 700°C

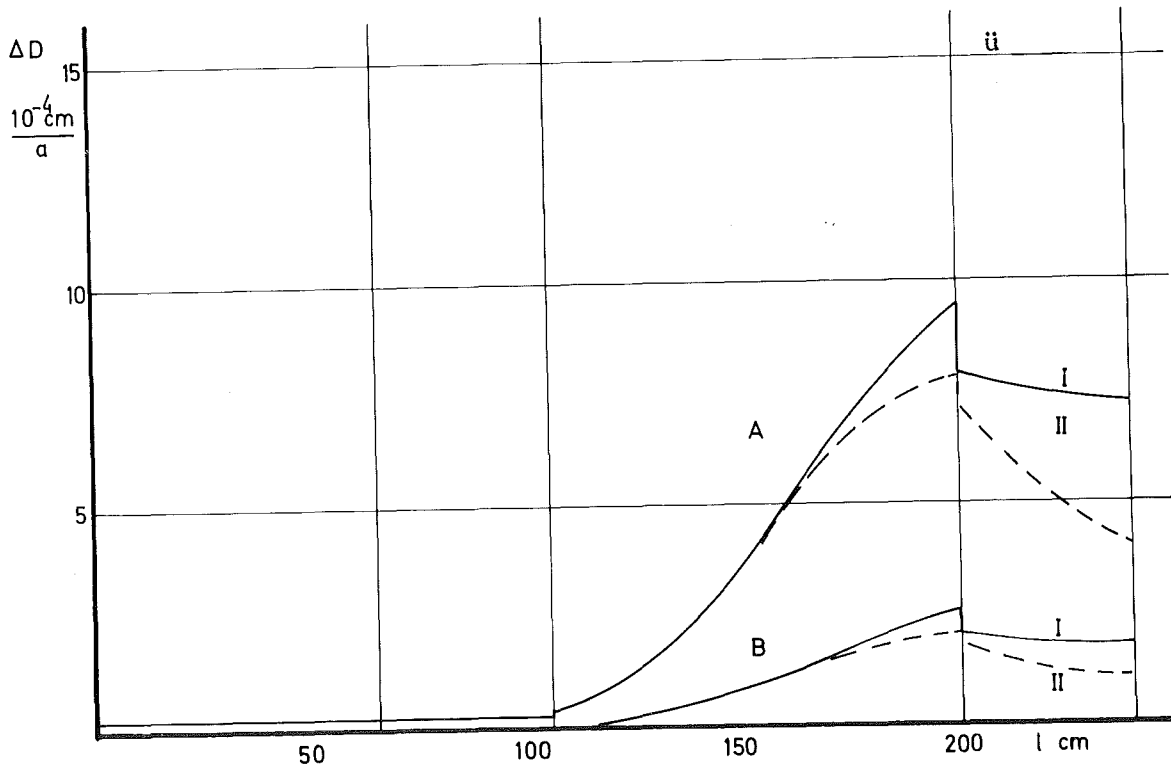


Abb. 12 Verlauf der Abtragung durch Natriumkorrosion entlang eines Brennstabes (schematisch)



X. ZUSAMMENFASSEND BEURTEILUNG DER FÜR SNR-300-BRENNSTÄBE  
IN BETRACHT KOMMENDEN HÜLLWERKSTOFFE

von

H. Böhm

Inhalt:

1. Einleitung
2. Kriterien für Hüllmaterialauswahl
  - 2.1 Neutronenabsorption
  - 2.2 Festigkeit bei hohen Temperaturen
  - 2.3 Festigkeit bei mittleren Temperaturen
  - 2.4 Bestrahlungsversprödung
  - 2.5 Schwellverhalten
  - 2.6 Bestrahlungsinduziertes Kriechen
  - 2.7 Korrosionsverhalten
  - 2.8 Verträglichkeit mit Brennstoff und Spaltprodukten
3. Abschließende Betrachtung

## 1. Einleitung

In vorhergehenden Berichten wurde bereits ausführlich über die mechanischen Eigenschaften der potentiellen Hüllwerkstoffe vor und nach Bestrahlung /1/, über das bestrahlungsinduzierte Schwellen und Kriechen /2/ sowie über das Verträglichkeits- /3/ und Korrosionsverhalten /4/ berichtet. Damit wurden die Eigenschaften, die für die sehr unterschiedlichen und komplexen Beanspruchungen des Hüllrohrs eines Schnellbrüter-Brennstabes maßgebend sind, im Detail behandelt. Aufgabe dieses Berichtes soll es sein, die Auswahl- und Entwicklungskriterien für einen Hüllwerkstoff in ihrer Gesamtheit und damit auch in ihrer gegenseitigen Beeinflussung zu betrachten und zu einer zusammenfassenden Beurteilung des derzeitigen Standes der Hüllmaterialauswahl sowie der Aspekte zukünftiger Entwicklungen zu kommen.

Im Gegensatz zur Zeit vor etwa 8-10 Jahren, als die Auswahlkriterien mangels ausreichender Kenntnisse der Vorgänge auf geringe Neutronenabsorption sowie ausreichende Zeitstandfestigkeit und Korrosionsbeständigkeit beschränkt waren, ist die Liste der Kriterien jetzt verständlicherweise viel umfangreicher und mehr spezifiziert, obwohl auch heute noch eine Reihe von Kriterien nur ungenügend gekennzeichnet werden können.

Im einzelnen muß man sich bei der Beurteilung eines Hüllwerkstoffes mit folgenden Kriterien auseinandersetzen:

1. Geringe Neutronenabsorption
2. Ausreichende Zeitstand- und Kriechfestigkeit bis zu Temperaturen von etwa derzeit  $700^{\circ}\text{C}$
3. Ausreichende Festigkeit im mittleren Temperaturbereich ( $350-550^{\circ}\text{C}$ )
4. Möglichst geringe Versprödung durch Bestrahlung, d.h. möglichst hohe Duktilität über den gesamten Temperaturbereich von  $350-700^{\circ}\text{C}$
5. Günstiges Schwellverhalten d.h. a) möglichst niedrige Schwellrate und b) schwache Temperaturabhängigkeit des bestrahlungsinduzierten Schwellens
6. Genaue Kenntnis des bestrahlungsinduzierten Kriechens



7. Ausreichende Na-Korrosionsbeständigkeit
8. Ausreichende Verträglichkeit mit Brennstoff  
und Spaltprodukten
9. Wirtschaftliche Fertigung der Hüllrohre

Ein für die Brennstabhüllen geeigneter Werkstoff ist daher nicht durch eine - ganz bestimmte hervorragende - Eigenschaft gekennzeichnet, er zeichnet sich vielmehr durch die optimale Kombination der verschiedenen geforderten Eigenschaften aus.

Eine kritische Beurteilung und Auswahl der geeigneten Werkstoffe, insbesondere aber auch Hinweise für ihre Verbesserung, setzen eine möglichst umfassende Kenntnis des Einflusses der Werkstoffzusammensetzung und des Werkstoffzustandes auf die verschiedenen geforderten Eigenschaften voraus. Bei vielen der Eigenschaften sind diese Abhängigkeiten noch garnicht oder nur sehr unvollständig bekannt, so daß man hier eine Beurteilung auf wenigen experimentellen Ergebnissen aufbauen muß.

Wie aus den vorangegangenen Berichten zu entnehmen ist, werden als Werkstoff für Brennstabhüllen in der BRD eine Reihe hochwarmfester stabilisierter austenitischer Stähle in Betracht gezogen, insbesondere die Stähle 1.4981, 1.4988 und 1.4970.

Dieser vor 7-9 Jahren getroffenen Vorauswahl lagen die hohe Festigkeit der stabilisierten Stähle, die industrielle Erfahrung mit ihnen sowie die Zulassung dieser Stähle für Anwendung bei höheren Temperaturen zugrunde.

Die folgenden Ausführungen beziehen sich daher primär auf die Gruppe der hochwarmfesten austenitischen Stähle, mit Schwergewicht auf den stabilisierten Stählen.

Es soll gezeigt werden, welche der zahlreichen geforderten Eigenschaften auf Grund einer starken Abhängigkeit von Werkstoffzusammensetzung und/oder -zustand als echte Auswahlkriterien zu betrachten sind und welcher der untersuchten Stähle danach als derzeit günstiger Hüllwerkstoff angesehen werden kann.

## 2. Kriterien für Hüllmaterialauswahl

### 2.1 Neutronenabsorption

Bei den zur Beurteilung anstehenden austenitischen Stählen ist der Unterschied in der Neutronenabsorption der einzelnen Stähle so gering, daß sich keine Präferenz für einen bestimmten Stahl hinsichtlich der Neutronenabsorption ergibt.

### 2.2 Festigkeit bei hohen Temperaturen (> 550°C)

Die Zeitstand- und Kriechfestigkeit austenitischer Stähle ist stark von der Zusammensetzung und dem Werkstoffzustand abhängig, so daß man hier ein echtes Auswahlkriterium vorliegen hat. Von den zur Auswahl stehenden Stählen weist der Stahl 1.4970 eindeutig die höchste Kriechfestigkeit auf. Dies gilt sowohl für den bestrahlten als auch für den unbestrahlten Werkstoff, wie in einem der vorausgegangenen Berichte gezeigt wurde /1/.

Neben der Zusammensetzung bestimmt der Werkstoffzustand ebenfalls maßgeblich das Kriechverhalten, wobei es von der Stahlzusammensetzung, insbesondere dem Kohlenstoffgehalt und der Stabilisierung abhängt, in welchen Grenzen die Kriecheigenschaften durch mechanisch-thermische Vorbehandlungen verändert werden können. Im allgemeinen steigt die Kriechfestigkeit in der Reihenfolge 1) lösungsgeglüht + ausgelagert, 2) lösungsgeglüht, 3) lösungsgeglüht + kaltverformt (+ ausgelagert).

Wird eine hohe Kriechfestigkeit angestrebt, so ist der Stahl 1.4970 im lösungsgeglüht - kaltverformten Zustand als derzeit optimal anzusehen. Erwähnt sei, daß die Neutronenbestrahlung das Kriechverhalten der Stähle im kaltverformten Zustand nicht nennenswert beeinflusst.

### 2.3 Festigkeit bei mittleren Temperaturen

Bei Temperaturen unterhalb 550°C ist die Kurzzeitfestigkeit für das mechanische Verhalten maßgebend. Sie wird, wie gezeigt wurde, weitgehend durch die Bestrahlungsverfestigung festgelegt, die dazu führt, daß bei Neutronenfluenzen  $> 3 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup> Streckgrenze und Duktilität der Stähle von der Zusammensetzung und Vorbehandlung praktisch unabhängig sind und allein durch die Höhe der Bestrahlungstemperatur bestimmt werden /1/.

Dieser nivellierende Einfluß der Bestrahlung bedeutet, daß die Festigkeitseigenschaften im mittleren Temperaturbereich kein echtes Auswahlkriterium darstellen, weil sich daraus keine Präferenz für einen bestimmten Stahl und Werkstoffzustand ableiten läßt.

#### 2.4 Bestrahlungsversprödung

Während die absolute Höhe der Bruchdehnung austenitischer Stähle bei mittleren Temperaturen und hohen Neutronenfluenzen, wie eben erwähnt wurde, praktisch allein durch die Bestrahlungstemperatur festgelegt wird, bestehen bei Temperaturen oberhalb etwa 550°C z.T. erhebliche Unterschiede in der Duktilität zwischen verschiedenen Stählen und Vorbehandlungen. Bei diesen Temperaturen führt die als Folge der He-Bildung auftretende Hochtemperaturversprödung zu einer drastischen Reduzierung der Bruchdehnung. Die Nachbestrahlungsduktilität ist dabei nicht nur von der Neutronenfluenz, der Bestrahlungs- und Prüftemperatur, der Dehnungsgeschwindigkeit und der Zusammensetzung abhängig, sondern in entscheidendem Maße auch vom Werkstoffzustand, wobei der kaltverformte Zustand wegen der sehr geringen Werte als ungünstig anzusehen ist.

Da der kaltverformte Zustand aber nicht nur vom Standpunkt der Kriechfestigkeit, sondern wie in einem vorangegangenen Bericht /2/ gezeigt wurde, insbesondere aus Gründen des Schwellverhaltens wünschenswert ist, mußte versucht werden, die Duktilität eines kaltverformten Stahles durch geeignete Behandlungen zu erhöhen. Unsere Ergebnisse zeigen, daß eine bestimmte Auslagerung des Stahls 1.4970 vor der Kaltverformung zu einer merklichen Erhöhung der Duktilität führt ohne das Schwellverhalten ungünstig zu beeinflussen. Damit erreicht man die bisher beste Kombination von Kriechfestigkeit, Hochtemperaturduktilität und Schwellverhalten.

Daß die Hochtemperaturversprödung im Gegensatz zur Bestrahlungsverfestigung nicht zu einer Nivellierung der Eigenschaften der verschiedenen Stähle führt zeigt Bild 1, in dem die Zeitstandbruchdehnung in Abhängigkeit von der 1000 Std.-Zeitstandfestigkeit bei 650°C für die Stähle 1.4988 und 1.4970 nach einer Bestrahlung mit  $10^{22}$  n/cm<sup>2</sup> aufgetragen ist. Man sieht, daß der Stahl 1.4970 in der Kombination von Zeitstandfestigkeit und Nachbestrahlungsduktilität dem Stahl 1.4988 (und 1.4981) deutlich überlegen ist.

Bei den vorangegangenen Ausführungen über die Bestrahlungsversprödung wurden zwei Bereiche angesprochen; a) der, in dem die Bestrahlungsverfestigung (durch Poren, Versetzungsringe etc.) überwiegt und b) derjenige, in dem die Duktilität primär durch die Hochtemperaturversprödung bestimmt wird.

Über den Übergangsbereich ( $\sim 550-600^{\circ}\text{C}$ ), in dem noch eine Bestrahlungsverfestigung vorliegt aber bereits eine Hochtemperaturversprödung auftritt, wissen wir derzeit noch zu wenig um genau sagen zu können, ob die Versprödung in diesem Gebiet in ähnlicher Weise von der Stahlzusammensetzung und dem Werkstoffzustand abhängt wie im Bereich der reinen Hochtemperaturversprödung.

### 2.5 Schwellverhalten

Die bestrahlungsinduzierte Porenbildung /2/ in den Brennstabhüllen und BE-Kästen spielt für das Brennelementverhalten eine sehr entscheidende Rolle.

Die umfangreichen Ergebnisse ausländischer und eigener Untersuchungen über das Schwellverhalten austenitischer Stähle bei hohen Neutronenfluenzen haben uns sowohl Aussagen über die Temperatur- und Dosisabhängigkeit des Schwellens geliefert als auch wichtige Hinweise auf die Abhängigkeit der Porenbildung von Werkstoffzusammensetzung und -zustand gegeben. Nach dem derzeitigen Kenntnisstand sollten von seiten der Stahlzusammensetzung die Porenbildung vermindern:

1. Ein Zustand mischkristallbildender Elemente mit möglichst großer Atomdifferenz und
2. eine Reduzierung der Menge an  $\text{M}_{23}\text{C}_6$ -Ausscheidungen, sei es durch Erniedrigung des C-Gehaltes (wie im Falle des 316 L) oder durch Stabilisierung.

Die von uns vorgesehenen Stähle erfüllen diese beiden Forderungen bereits weitgehend, die erste durch den Mo-Gehalt, die zweite durch die Ti- bzw. Nb-Stabilisierung.

Neben der Zusammensetzung beeinflusst sehr stark auch der Werkstoffzustand die Schwellrate. Hier ist es insbesondere die Kaltverformung, die, wie in

einem der vorangegangenen Berichte gezeigt wurde, sowohl den maximalen Schwellbetrag erniedrigt als auch die Temperaturabhängigkeit der Schwellrate positiv verändert.

Auf Grund von Bestrahlungsversuchen in Reaktoren und Beschleunigern haben wir einen guten Überblick über die Temperatur- und Dosisabhängigkeit unserer Stähle für den Temperaturbereich bis etwa 600°C. Das beste Verhalten zeigt dabei auch im Vergleich zum 20% kaltverformten AISI 316 der Stahl 1.4970 im kaltverformten (15%) Zustand.

Das Schwellverhalten bei Temperaturen dicht oberhalb 600°C, dessen Mechanismus von dem bei tieferer Temperatur abweicht, bedarf noch einer genaueren Untersuchung. Die Ergebnisse deuten darauf hin, daß ein Schwellen hier erst bei Neutronendosen  $\geq 5 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup> einsetzt, dann aber vermutlich mit einer stärkeren Dosis- und Temperaturabhängigkeit. Hierbei ist darauf hinzuweisen, daß die maximale Neutronendosis am heißen Ende der Brennstäbe erheblich niedriger liegt als in der Stabmitte.

## 2.6 Bestrahlungsinduziertes Kriechen

Das bestrahlungsinduzierte Kriechen /2/ spielt für die Brennelementkästen wegen des Spannungsabbaues eine größere Rolle als für die Hüllrohre. Trotzdem ist eine möglichst genaue Kenntnis der Kriechgeschwindigkeit und ihrer Abhängigkeit von Spannung, Temperatur, Neutronenfluß und -dosis sowie Werkstoffzusammensetzung und -zustand erforderlich. Hinsichtlich der für die Werkstoffauswahl maßgebenden Abhängigkeit des bestrahlungsinduzierten Kriechens von der Zusammensetzung und dem Werkstoffzustand lassen die bisherigen Ergebnisse an austenitischen Stählen keine nennenswerte, eindeutige Abhängigkeit von den Werkstoffparametern erkennen, so daß vom Standpunkt des bestrahlungsinduzierten Kriechens bisher keine Präferenz für einen bestimmten Stahl bzw. Vorbehandlungszustand angesprochen werden kann.

## 2.7 Korrosionsverhalten

Neben den bisher genannten mechanischen und physikalischen Eigenschaften spielt das Korrosionsverhalten der Brennstabhülle gegenüber dem flüssigen Natrium sowie die Verträglichkeit mit dem oxidischen Brennstoff und den Spaltprodukten eine wesentliche Rolle.

Die vorliegenden Ergebnisse, die im vorangegangenen Bericht /4/ ausführlich behandelt wurden, zeigen, daß die Korrosion der Hüllen im Natrium unter den vorgesehenen Betriebsbedingungen nicht standzeitbegrenzend ist.

Das Korrosionsverhalten der drei genannten Stähle in Na wurde bei Temperaturen bis 700°C, Strömungsgeschwindigkeiten bis 5 m/s und O<sub>2</sub>-Gehalten von 2 bis 25 ppm untersucht. Danach bewirkt strömendes Natrium mit 7 ppm O<sub>2</sub> bei 700°C einen jährlichen Abtrag von etwa 20 µm, die Bildung einer durchgehenden, festigkeitsmindernden Ferritschicht von 10 µm sowie einer Ferritisierung der Korngrenzen bis etwa 50 µm Tiefe, die jedoch keine Festigkeitsabnahme zur Folge hat.

Auch hier liegt keine so starke Abhängigkeit der Korrosionsraten von Stahlzusammensetzung und -zustand vor, daß man auf Grund des Korrosionsverhaltens einen bestimmten Stahl eindeutig bevorzugen würde.

### 2.8 Verträglichkeit mit Brennstoff und Spaltprodukten

Die letztgenannte Aussage gilt bei dem derzeitigen Stand unserer Kenntnisse auch für den chemischen Angriff der Hülle durch die Spaltprodukte, über die ebenfalls bereits ausführlich berichtet wurde /3/ und die zu einer wesentlich stärkeren Schädigung der Brennstabhülle führen kann, als die Korrosion durch das flüssige Natrium.

Trotz der in einigen Fällen sehr unterschiedlichen Angriffstiefenan Hüllen der verschiedenen Brennstabbestrahlungen, deren Ursache nicht immer klar ist, läßt sich derzeit kein eindeutiger Einfluß der Stahlzusammensetzung (im Bereich der untersuchten Stähle) bzw. des Vorbehandlungszustandes auf den chemischen Angriff der Hülle erkennen.

### 3. Abschließende Betrachtung

Aus den bisherigen Ausführungen ergibt sich, daß es im wesentlichen die Festigkeit bei höheren Temperaturen, die Hochtemperaturversprödung und das Schwellverhalten sind, die eine starke Werkstoffabhängigkeit aufweisen und nach denen der optimale Stahl auszuwählen ist, während die Bestrahlungsver-

festigung, das bestrahlungsinduzierte Kriechen, die Na-Korrosion und die Verträglichkeit in weit geringerem Maße von den Stahlparametern abhängig sind und damit in der Bedeutung als Auswahlkriterium beim Vergleich verschiedener Stähle zurücktreten.

Ein Vergleich der untersuchten Stähle in den verschiedenen Werkstoffzuständen führt unter den eben genannten Gesichtspunkten zu dem Ergebnis, daß der Stahl 1.4970 im lösungsgeglüht - kaltverformten Zustand oder noch besser im ausgelagert - kaltverformten Zustand als der für die Brennstabhüllen des SNR 300 derzeit am besten geeignete Werkstoff anzusehen ist.

Dies bedeutet keineswegs, daß nicht auch die anderen Stähle den für den ersten Kern des SNR 300 geforderten Bedingungen genügen. Man wird sie deshalb auch in Zukunft weiterhin als potentielle Hüllwerkstoffe in Betracht ziehen.

Zweifellos weisen unsere Kenntnisse über das Materialverhalten unter den komplexen, schwer überschaubaren Bedingungen des Reaktorbetriebes noch erhebliche Lücken auf, so daß man auch in Zukunft intensiv an der Weiterentwicklung der Hüllwerkstoffe arbeiten und dabei auch das Entwicklungspotential anderer Werkstoffe, insbesondere unter dem Gesichtspunkt der steigenden Anforderungen voll ausschöpfen muß. Hier sind insbesondere ferritische Stähle sowie Ni- und V-Legierungen zu nennen, die wir seit vielen Jahren intensiv untersuchen und entwickeln. Jeder dieser Werkstoffe ist den austenitischen Stählen in einzelnen Eigenschaften überlegen, bisher jedoch noch nicht in der Kombination der Eigenschaften.

Voraussetzung für sehr gezielte Werkstoffentwicklungen ist die klare Erkennung der standzeitbegrenzenden Größen sowie die weitere Aufklärung der zahlreichen Phänomene und Werkstoffeigenschaften wie Schwellverhalten bei höheren Temperaturen ( $> 600^{\circ}\text{C}$ ), Schwellverhalten bei Temperaturänderungen, mechanisches Verhalten unter transienten Bedingungen, Mechanismen der Strahlenversprödung, um nur einige Beispiele zu nennen.

Die vertieften Kenntnisse über die Auswahl und Entwicklungskriterien, der zunehmende Einblick in die komplexen Beanspruchungsvorgänge und das wachsende Verständnis der Werkstoffabhängigkeit des komplexen Bestrahlungsver-

haltens werden es uns jedoch ermöglichen, die bisher zwangsweise vorherrschende empirisch-analytische Arbeitsweise etwas zu verlassen und zu einer noch gezielteren Werkstoffentwicklung und -verbesserung kommen.

#### Literatur

- /1/ K.D. Cloß, L. Schäfer, M. Schirra, C. Wassilew:  
Einfluß der Bestrahlung auf die Festigkeitseigenschaften von Hüllwerkstoffen. Beitrag VII in diesem Bericht.
- /2/ K. Ehrlich, K. Herschbach, W. Schneider: Schwellen und Kriechen von Hüllwerkstoffen unter Bestrahlung. Beitrag VIII in diesem Bericht.
- /3/ O. Götzmann, P. Hofmann, H. Kleykamp: Chemische Wechselwirkung zwischen Brennstoff, Spaltprodukten und Hülle. Beitrag V in diesem Bericht.
- /4/ H.U. Borgstedt: Korrosionsverhalten von Hüllwerkstoffen.  
Beitrag IX in diesem Bericht.



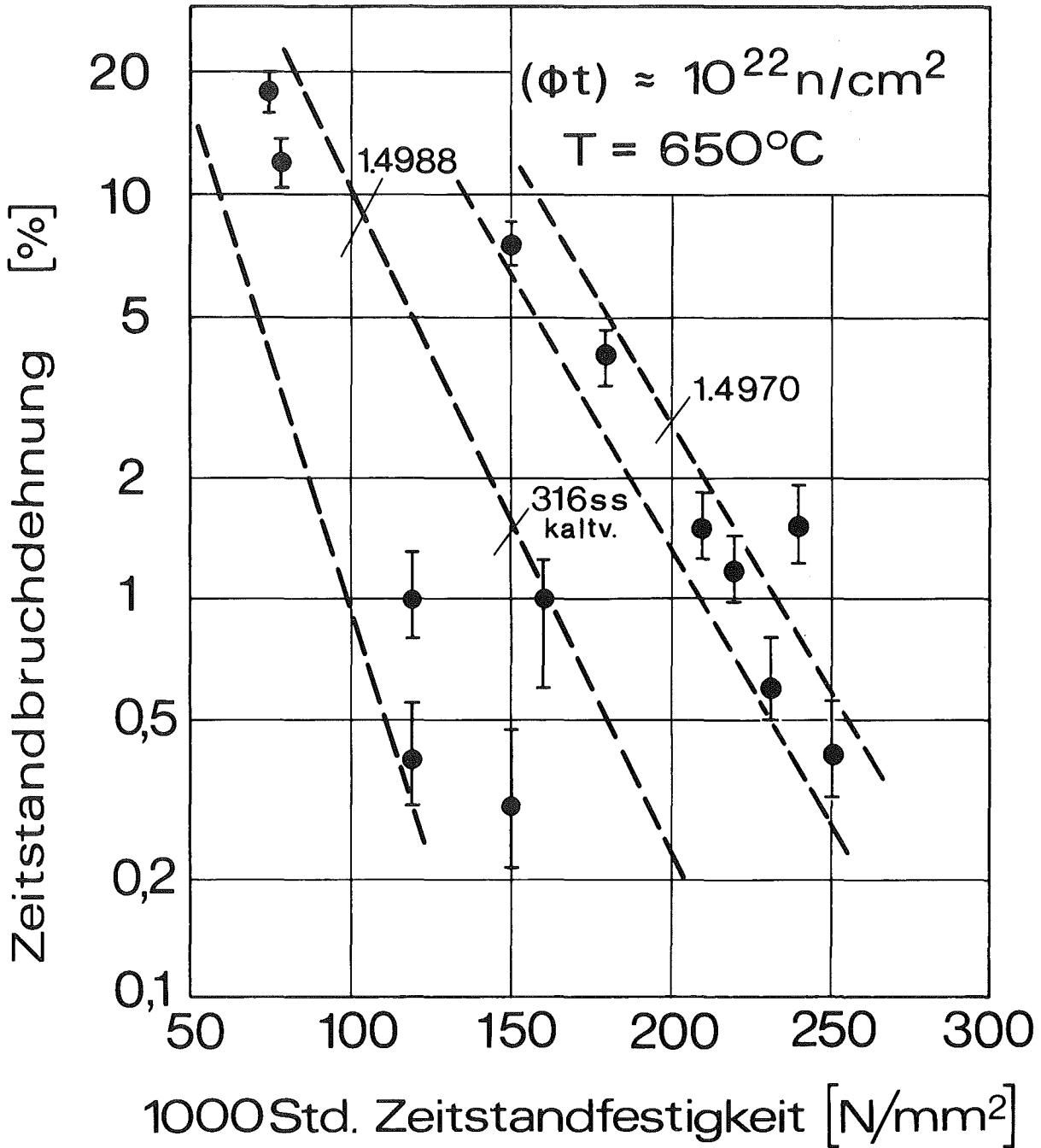


Bild 1: Zeitstandbruchdehnung in Abhängigkeit von der Zeitstandfestigkeit für verschieden vorbehandelte Zustände der austenitischen Stähle 1.4970 und 1.4988 bei 650 °C nach Bestrahlung im BR 2.  
(316ss im EBR-II bestrahlt, He-Gehalt sehr gering)



## XI. MODELLTHEORETISCHE BEHANDLUNG DES BRENNSTABVERHALTENS

von

H. Elbel

### Inhalt:

1. Einleitung
2. Aufgabenstellung
  - 2.1 Ziel
  - 2.2 Realisierung
3. Wesentliche Merkmale der SATURN-Programme
  - 3.1 Konzept
  - 3.2 Zeitstruktur
  - 3.3 Mechanisch-thermische Phasen
  - 3.4 Temperaturberechnung
  - 3.5 Charakterisierung
4. Ergebnisse modelltheoretischer Untersuchungen
  - 4.1 Temperaturverteilung im Brennstoff
  - 4.2 Umstrukturierung des Brennstoffes
  - 4.3 Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle
  - 4.4 Mechanische Belastung des Hüllrohrs
  - 4.5 Hüllschwellen
  - 4.6 Allgemeines Brennstabverhalten

## 1. Einleitung

Das Hüllrohr eines Brennstabes hat die Aufgabe, um den Brennstoff einen Schutzmantel zu bilden, dessen eine Funktion es ist, Brennstoff und Kühlmittel voneinander getrennt zu halten, und dessen zweite Funktion es ist, ein Entweichen der im Laufe des Abbrandes gebildeten radioaktiven Spaltprodukte in das Kühlmittel zu verhindern. Die während des Betriebes eines Reaktors auftretenden Belastungen des Hüllrohres sollen diese Schutzfunktion nicht beeinträchtigen. Es ist deshalb wichtig zu wissen, welche Ursachen zu einem Versagen des Hüllrohres führen können, ab wann mit einem möglichen Versagen zu rechnen ist und ob durch geeignete Vorkehrungen dieses Versagen vermieden werden kann.

Ursachen, die zu einer Beschädigung und damit zu einem Versagen des Hüllrohres führen können, sind:

- eine schnelle Änderung der Stableistung mit starker mechanischer Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle, die zum Überschreiten der Bruchfestigkeit des Hüllmaterials führen kann,
- die stationäre Belastung des Hüllrohres durch den wachsenden Spaltgasinnendruck und den stationären Festkörperdruck durch den Brennstoff, die mit der Zeit zu einem Überschreiten der Bruchdehnung führen kann und
- eine Veränderung der mechanischen Eigenschaften des Hüllmaterials durch wechselnde thermische und mechanische Beanspruchung, die zu einer Ermüdung des Materials führen kann.

Diese Ursachen für einen Bruch der Hülle werden umso wahrscheinlicher, je höher der Abbrand des Brennstabes ist, d.h. je stärker das Hüllmaterial unter dem Einfluß der Neutronenbestrahlung und unter Einwirkung der Temperatur in seinen Eigenschaften verändert wurde und je mehr durch die Korrosion der Hülle, von innen unter dem Einfluß der Spaltprodukte und von außen unter dem Einfluß des Kühlmittels, deren Festigkeit vermindert wurde.

Neben den drei erwähnten weitgehend von dem Verhalten der Hülle abhängigen und auf eine direkte Schädigung der Hülle hinauslaufenden Versagensursachen eines Brennstabes steht eine weitere, vierte Ursache:

- das Schmelzen des Brennstoffes.

Es führt zu einer axialen Verlagerung von Brennstoff und damit zu einer unkontrollierten örtlichen Reaktivitätsänderung im Reaktorkern.

Voraussagen über das mögliche Versagen eines Brennstabes setzen voraus, daß sein Verhalten unter den verschiedenen im Reaktor möglichen Betriebsbedingungen bekannt ist. Dieses Verhalten wird durch viele Einzelvorgänge bestimmt, wie z.B. das Schwellen und Kriechen von Brennstoff und Hülle, Ribbildung und Rißausheilung des Brennstoffes und viele andere mehr.

## 2. Aufgabenstellung

Eine wesentliche Aufgabe der Brennstabentwicklung besteht darin, durch qualitative und quantitative Analysen sowohl den Mechanismus der Einzelvorgänge als auch deren Einfluß auf das Gesamtverhalten des Brennstabes aufzuklären. Für die Durchführung einer quantitativen Analyse ist es notwendig, die einzelnen Vorgänge in Modellen zu erfassen und ihre Wechselwirkung bzw. gegenseitige Abhängigkeit durch eine geeignete Kopplung der einzelnen Modelle zu berücksichtigen. Diese modelltheoretische Behandlung des Brennstabes muß sowohl dem zeitlichen Ablauf der einzelnen Vorgänge als auch dem zeitlichen Wechsel der Betriebsbedingungen gerecht werden.

### 2.1 Ziel

Aufgrund der Vielfalt der zu berücksichtigenden Einzelphänomene und aufgrund der Kompliziertheit ihrer gegenseitigen Abhängigkeit ist die gestellte Aufgabe nur durch den Einsatz der durch elektronische Rechenanlagen gebotenen Möglichkeiten zu bewältigen. Das Ziel der Modelltheorie ist es deshalb, das komplexe Verhalten des Brennstabes auf einen Formalismus abzubilden, der auf Rechenmaschinenprogramme übertragen werden kann. Solche Rechenmaschinenprogramme sind in der Lage, das Verhalten eines Brennstabes unter den tatsächlich herrschenden Betriebsbedingungen zu simulieren. Dadurch werden sie in vielfältiger Weise anwendbar, wie z.B. zur

- Untersuchung des Einflusses einzelner Materialeigenschaften auf das Brennstabverhalten,

- Untersuchung des Einflusses bestimmter Betriebsbedingungen auf das Brennstabverhalten, z.B. mit dem Ziel, kritische Betriebszustände aufzuspüren,
- Untersuchung des Einflusses einzelner Auslegungsparameter auf das Brennstabverhalten, z.B. mit dem Ziel der Optimierung der Brennstabauslegung,
- Durchführung der Auslegungsrechnungen selbst,
- Überprüfung von Spezifikationen und Spezifikationstoleranzen,
- Nachuntersuchung von bestrahlten Brennstäben,
- Überprüfung und nötigenfalls Verbesserung bzw. Erweiterung der Modellvorstellungen zum Materialverhalten anhand der Ergebnisse aus Bestrahlungsversuchen und anderen experimentellen Untersuchungen,
- zur akkumulierenden Speicherung der experimentellen Erfahrung mit der Möglichkeit des raschen Zugriffs zu dieser Erfahrung bei der Anwendung des Rechenprogrammes und
- damit zur Interpolation und Extrapolation der gesammelten experimentellen Erfahrungen und schließlich zur
- Ableitung von Versagenskriterien.

## 2.2 Realisierung

Aus den aufgezählten unterschiedlichen Anwendungsmöglichkeiten leiten sich Forderungen ab, die von einem einzigen Rechenprogramm in sinnvoller Weise nicht gleichzeitig erfüllt werden können.

- Ein Rechenprogramm, das vorrangig zur Auslegung von Brennstäben verwendet wird, soll handlich und leicht überschaubar sein und vor allem mit kurzen Rechenzeiten auskommen. Diese Forderung läßt sich nur dann verwirklichen, wenn die Einzelmodelle, die das Materialverhalten beschreiben, auf ein noch zulässiges Maß vereinfacht werden. Zu den Rechenprogrammen dieser Kategorie ist z.B. das bei INTERATOM entwickelte Rechenprogramm IAMBUS zu zählen /1/.

- Eine genaue Untersuchung des Brennstabverhaltens erfordert eine detailliertere Beschreibung der Materialphänomene in Einzelmodellen und eine sorgfältigere Kopplung dieser Modelle. Rechenmaschinenprogramme mit diesem Anwendungszweck sind deshalb notwendigerweise umfangreicher und komplizierter und in manchen Fällen auch rechenzeitintensiver.

Die im IMF entwickelten Rechenprogramme, die unter dem Namen SATURN zusammengefaßt sind, gehören zu dieser zweiten Kategorie /2,3,4/.

- Die gezielte Untersuchung einzelner Materialphänomene ist im Rahmen solcher umfassender Rechenprogramme unzweckmäßig. Es empfiehlt sich stattdessen eigene unabhängige Rechenprogramme zu entwickeln, die wegen des eingeschränkten Umfangs im Detail noch genauer sein können. Die mit diesen Rechenprogrammen gewonnenen Erkenntnisse können auf einfachere Modelle übertragen und auf diese Weise in umfassendere Rechenprogramme bzw. Auslegungsprogramme integriert werden.

Ein Beispiel aus dieser Kategorie ist das Rechenprogramm PAUK, das auf die Behandlung der mechanischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle bei zyklischen Betriebsbedingungen spezialisiert ist /5/.

### 3. Wesentliche Merkmale der SATURN-Programme

#### 3.1 Konzept

Die im IMF entwickelten SATURN-Programme sind auf die Untersuchung des Brennstabverhaltens unter normalen Betriebsbedingungen ausgerichtet.

Sie bestimmen die thermische, mechanische und Strahlenbelastung des Brennstabes in direkter Abhängigkeit von den Verhältnissen, die während des Einsatzes dieses Stabes im Reaktor tatsächlich herrschen. Die wechselseitige Beeinflussung der im Brennstab auftretenden Materialphänomene wird durch die geeignete Verknüpfung von Modellvorstellungen, die diese Phänomene beschreiben, erfaßt.

Den verschiedenen Versionen des Rechenprogrammes SATURN-1 ist gemeinsam, daß ihr Formalismus auf die Behandlung einer Scheibe des Brennstabes beschränkt ist. Die Materialphänomene, die in dieser Scheibe auftreten, und die Größen, die den Zustand dieser Scheibe beschreiben, werden dabei nur in ihrer radialen Abhängigkeit erfaßt, wobei Axialsymmetrie vorausgesetzt ist. Es wird weiter angenommen, daß ebene Querschnitte bei einer Verformung in axialer Richtung eben bleiben.

Diese Näherung stellt für sehr viele und wesentliche Materialphänomene, deren azimutale und axiale Abhängigkeit vernachlässigbar ist, eine zutreffende und ausreichende Beschreibung dar.

Mit der aus dem Rechenprogramm SATURN-1 entwickelten Stabversion SATURN-2 kann auf der Basis der in SATURN-1 enthaltenen Modellvorstellungen das Verhalten eines Brennstabes unter Einbeziehung axialer Abhängigkeiten untersucht werden. Die wesentliche Erweiterung gegenüber SATURN-1 besteht darin, daß der Druckaufbau im Stab aus der in den verschiedenen axialen Zonen unterschiedlichen Spaltgaserzeugung und -freisetzung in Abhängigkeit von den Betriebsbedingungen berechnet wird.

Eine vollständige Erfassung der in einem Brennstab auftretenden axialen Phänomene wird mit dem Rechenprogramm SATURN-3 ermöglicht /6/. Sein wesentlicher Teil ist ein Mechanik-Programm, das neben der radialen auch die axiale Abhängigkeit der Mechanikgrößen in einem geschlossenen Formalismus behandelt.

### 3.2 Zeitstruktur

Das Konzept, nach dem die SATURN-Programme entwickelt wurden, erlaubt es, das Verhalten eines Brennstabes über dessen gesamte Einsatzzeit im Reaktor zu verfolgen. Jedem Zeitpunkt im Betriebsablauf des Reaktors entspricht ein bestimmter Zustand des Brennstabes, der von den Betriebsbedingungen, die bis dahin geherrscht haben, und von den bis dahin im Brennstab abgelaufenen Vorgängen abhängig ist. Zur Berechnung dieses zeitabhängigen mechanisch-thermischen Zustandes wird die vorgegebene Einsatzzeit in Rechenzeitintervalle eingeteilt. Für jedes dieser Zeitintervalle wird der jeweilige Zustand des Brennstabes prinzipiell in zwei Schritten bestimmt:



- Berechnung des Zustandes am Beginn des Rechenzeitintervalls, entsprechend der Änderung der Betriebsbedingungen, wie z.B. von Stableistung, Hülloberflächentemperatur und Kühlmitteldruck,
- Berechnung des Zustandes am Ende des Rechenzeitintervalls, unter Berücksichtigung der zeitabhängigen Materialphänomene, wie z.B. von Schwellen, Kriechen und Porenwanderung, wobei die Betriebsbedingungen konstant gehalten werden.

Der Zustand des Brennstabes ist dabei durch Temperatur-, Spannungs-, Verformungs-, Riß-, Porositäts-, Abbrandverteilung und andere Größenverteilungen charakterisiert.

### 3.3 Mechanisch-thermische Phasen

In SATURN wird zwischen vier verschiedenen mechanisch-thermischen Phasen unterschieden, die der Brennstab während seines Einsatzes im Reaktor durchlaufen kann:

- Phase 1:  
vollständig oder partiell gerissener freistehender Brennstoff und freistehende Hülle,
- Phase 2:  
vollständig oder partiell gerissener Brennstoff in Kontakt mit der Hülle ohne mechanische Wechselwirkung, Ausheilen der Risse im Brennstoff möglich,
- Phase 3:  
mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle,
- Phase 4:  
ungerissener Brennstoff und Hülle ohne Wechselwirkung.

Für jede dieser Phasen werden eigene Rechenverfahren eingesetzt.

Ein Brennstab kann im Verlauf seines Einsatzes im Reaktor die vier genannten Phasen mehrmals durchlaufen. Für die Steuerung des Rechenablaufes müssen deshalb die folgenden Entscheidungen getroffen werden:

- Ist der Brennstoff gerissen?
- Ist ein Spalt zwischen Brennstoff und Hülle vorhanden ?
- Besteht mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle ?
- Ist ein Zentralkanal vorhanden ?
- Ändern sich die Betriebsbedingungen ?

### 3.4 Temperaturberechnung

Eine zentrale Bedeutung für die in SATURN verwirklichte modelltheoretische Beschreibung des Brennstabverhaltens hat die Berechnung der Temperaturverteilung. Denn sowohl Materialeigenschaften als auch Geometrieänderungen und Transportvorgänge sind von der Temperatur bzw. vom Temperaturgradienten abhängig. Geometrieänderungen und Transportvorgänge beeinflussen aber ihrerseits wieder die Temperaturverteilung. Die Berücksichtigung dieser wechselseitigen Abhängigkeit findet ihren Niederschlag in zwei Iterationsschleifen. Die Berechnung der Temperaturverteilung selbst erfolgt unter der Voraussetzung von Axialsymmetrie, radialem Wärmefluß und quasi-stationären Verhältnissen.

### 3.5 Charakterisierung

Von den im Brennstab ablaufenden Vorgängen sind in SATURN zur Zeit durch Modelle über das Materialverhalten erfaßt:

- das Kriechen von Brennstoff und Hülle,
- das Schwellen des Brennstoffes durch feste und gasförmige Spaltprodukte
- die Spaltgasfreisetzung aus dem Brennstoff,
- das Schwellen der Hülle aufgrund von Porenbildung,
- die Poren- und Blasenwanderung im Brennstoff,
- die Sauerstoffumverteilung im Brennstoff,
- die Ribildung und die Rißausheilung im Brennstoff und
- die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle.

Als Eingabedaten werden benötigt:

- die Ausgangsverhältnisse des Brennstabes, wie z.B. die Startgeometrie, die Herstellungsporosität und die Materialzusammensetzung,
- die elementaren Daten für die einzelnen Materialphänomene, wie z.B. Wärmeausdehnung, Wärmeleitung, Kriechen und Schwellen, und
- die für den Betriebsablauf charakteristischen Daten, wie z.B. Stableistung, Hülloberflächentemperatur, Kühlmitteldruck und Neutronenfluß, in Abhängigkeit von der Zeit.

Die Materialdaten können entweder in Tabellenform oder durch analytische Beziehungen in Abhängigkeit von Temperatur, Spannung, Porosität, O/Me-Verhältnis und anderen Größen angegeben werden.

Als Ergebnisse stehen für die betrachtete Scheibe des Brennstabes als Funktion von der Zeit zur Verfügung:

- die Geometrie von Brennstoff und Hülle,
- die Temperaturverteilung in Brennstoff und Hülle,
- die Poren- bzw. Blasenverteilung, die Rißverteilung und die O/Me-Verteilung im Brennstoff,
- die Spannungs- und Dehnungsverteilung im Brennstoff und in der Hülle und
- der Kontaktdruck zwischen Brennstoff und Hülle.

#### 4. Ergebnisse modelltheoretischer Untersuchungen

Die SATURN-Programme sind bisher auf folgenden Gebieten zum Einsatz gelangt:

- zur thermischen und Strukturanalyse im Rahmen der Bestrahlungsnachuntersuchung von Schnellbrüterbrennstäben mit oxidischem und karbidischem Brennstoff,
- zur Analyse der Hüllrohrverformungen bei diesen Stäben,

- zur Untersuchung des Einflusses bestimmter Materialphänomene und Betriebsbedingungen auf das Verhalten des Schnellbrüter-Brennstabes,
- zur allgemeinen Analyse des Betriebsverhaltens von SNR-300 typischen Brennstäben mit oxidischem Brennstoff und Schnellbrüterbrennstäben mit karbidischem Brennstoff und
- zur Auslegung von Bestrahlungsexperimenten.

Die Ergebnisse aus den modelltheoretischen Untersuchungen über das Betriebsverhalten SNR-300-typischer Brennstäbe mit oxidischem Brennstoff lassen sich zu folgenden Aussagen zusammenfassen:

#### 4.1 Temperaturverteilung im Brennstoff

Die Zentraltemperatur erreicht, bezogen auf eine feste Stableistung, während der Startphase ihren höchsten Wert. Das Ergebnis einer Modellrechnung /7/ ist in den Abb. 1 bis 3 dargestellt. Die Ausbildung des Zentralkanals ist die Hauptursache für die Absenkung der Zentraltemperatur. Die durch die Verdichtung der inneren Brennstoffzone erzielte Verbesserung der Wärmeleitfähigkeit hat nur einen geringen Einfluß.

Die Brennstoffrandtemperatur zeigt mit zunehmendem Abbrand eine ansteigende Tendenz infolge der Verschlechterung des Wärmedurchgangs durch die Kontaktzone zwischen Brennstoff und Hülle. Das in der Abb. 2 dargestellte Beispiel berücksichtigt den Einfluß der Spaltgasfreisetzung und einer Veränderung der Randstruktur des Brennstoffes.

Während des Abbrandes wird der Temperaturgradient insgesamt geringer, wie der Vergleich der beiden in der Abb. 3 dargestellten radialen Temperaturprofile erkennen läßt, von denen bei jeweils gleicher Stableistung das eine dem Anfangszustand, das andere dem Endzustand des betrachteten Brennstabquerschnitts entspricht.

Die über den Querschnitt gemittelte Temperatur des Brennstoffs kann sich mit zunehmendem Abbrand infolge der schlechter werdenden Wärmeableitung aus dem Stab zu höheren Werten hin verschieben.

#### 4.2 Umstrukturierung des Brennstoffes

Die Ausbildung der Bereiche, die im erkalteten Zustand als Stengelkristallzone und als Zone mit gerichtetem Kornwachstum sichtbar sind, entstehen im wesentlichen während der Startphase. Die mit zunehmendem Abbrand erfolgende Änderung des Temperaturprofils hat auf die Lage der Grenzen, d.h. der Gefügeradien, jedoch noch beträchtlichen Einfluß.

#### 4.3 Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle

Der Fertigungsspalt kann bereits während der Startphase durch den Überhang der thermischen Ausdehnung des Brennstoffes über die der Hülle geschlossen werden. Ist der Fertigungsspalt größer, befindet sich der Brennstoff je nach Restspaltbreite und axialer Position jedoch nach längstens 2 % Abbrand in Kontakt mit der Hülle. Ursache dafür ist die Verlagerung des Brennstoffes in Richtung Hülle infolge der Bildung von Spaltgasblasen in der heißen Brennstoffzone und deren Wanderung zum Zentralkanal.

#### 4.4 Mechanische Belastung des Hüllrohres

Der durch das vorgegebene Stabplenium auf Werte um etwa 100 atm begrenzte Spaltgasdruck führt allein nicht zu einer kritischen Belastung der Hülle. Auch der im stationären Betrieb vom Brennstoff auf die Hülle ausgeübte Schwelldruck erreicht keine kritischen Werte, da das Kriechvermögen des porösen Mischoxid-Brennstoffes, bedingt durch den Einfluß der Bestrahlung, sehr gut ist /8/.

Eine zu bleibenden Verformungen führende Belastung der Hülle durch den Brennstoff kann jedoch bei Änderungen der Betriebsbedingungen auftreten. Die in Abb. 4 gezeigten Ergebnisse einer Modellrechnung /9/ sind dafür ein anschauliches Beispiel. Für die Rechnung wurde angenommen, daß bei der gewählten linearen Stableistung von 250 W/cm im Kontakt mit der Hülle ein mechanisch stabiler Brennstoffring vorliegt. Bei einer Erhöhung der Stableistung auf einen Wert von 450 W/cm, der dem Betrieb unter Vollast entsprechen soll, entsteht durch die in radialer und axialer Richtung behinderte thermische Geometrieänderung des Brennstoffes ein beträchtlicher Festkörperdruck auf die Hülle und

als Folge davon eine merkliche bleibende Verformung der Hülle. Die mehrmalige Wiederholung dieses Vorganges führt zu einer weiteren Zunahme der Verformung unter der Voraussetzung, daß die mechanische Festigkeit des Brennstoffrings erhalten bleibt.

Die Stärke der Belastung des Hüllrohres wird durch das Ausgangsniveau der Leistungsänderung, durch Änderungsgeschwindigkeit und den Betrag der Änderung bestimmt. Die Abb. 5 soll als Beispiel die in einer Modellrechnung /9/ untersuchte Abhängigkeit von dem Betrag der Änderung zeigen. Auffallend ist die bei größeren Leistungsänderungen sich abschwächende Zunahme der Hüllrohrverformung, die ihre Ursache in der thermisch bedingten Abnahme der Festigkeit des mechanisch belastbaren Brennstoffrings hat. In der Abb. 6 sind Ergebnisse der gleichen Modellrechnung dargestellt, die den Einfluß der Änderungsdauer auf den Festkörperdruck und die daraus resultierende Hüllrohrverformung zeigen: Je langsamer bei Vorliegen eines Kontaktes zwischen Brennstoff und Hülle die Leistungsänderung erfolgt, desto geringer ist die mechanische Belastung der Hülle.

#### 4.5 Hüllschwellen

Durch das Schwellen des Hüllmaterials und die dadurch verursachte Vergrößerung des Stabdurchmessers wird zusätzlich Raum für den schwellenden Brennstoff geschaffen. In den davon betroffenen axialen Bereichen des Brennstabes kann mit einer Verminderung der mechanischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle gerechnet werden, die umso größer ist, je größer der Schwelleffekt der Hülle und je kleiner der Schwelleneffekt des Brennstoffes ist.

#### 4.6 Allgemeines Brennstabverhalten

Der Brennstab zeigt unter Bestrahlung je nach dem betrachteten axialen Bereich ein unterschiedliches Verhalten. Es ist eine grobe Einteilung in drei axiale Bereiche möglich, die durch bestimmte Werte von Hülltemperatur und linearer Stableistung gekennzeichnet sind, nämlich durch

- niedere Hülltemperatur und niedere Stableistung,
- mittlere Hülltemperatur und hohe Stableistung und
- hohe Hülltemperatur und niedere Stableistung.

Diese drei Bereiche unterscheiden sich durch

- unterschiedliche thermische Ausdehnung,
- unterschiedliches elastisches, plastisches und Kriechverhalten und
- unterschiedliches Schwellverhalten

von Brennstoff und Hülle.

Am heißen Ende des Brennstabes ist eine Verformung der Hülle bei entsprechender Belastung am ehesten möglich. Der Brennstoff ist infolge des geringeren Temperaturgradienten und des geringeren Bestrahlungseinflusses mechanisch stabiler als in der Umgebung des Stableistungsmaximums. Bei Vorliegen eines Kontaktes zwischen Brennstoff und Hülle ist unter wechselnden Betriebsbedingungen eine starke mechanische Belastung der Hülle durch den Brennstoff zu erwarten.

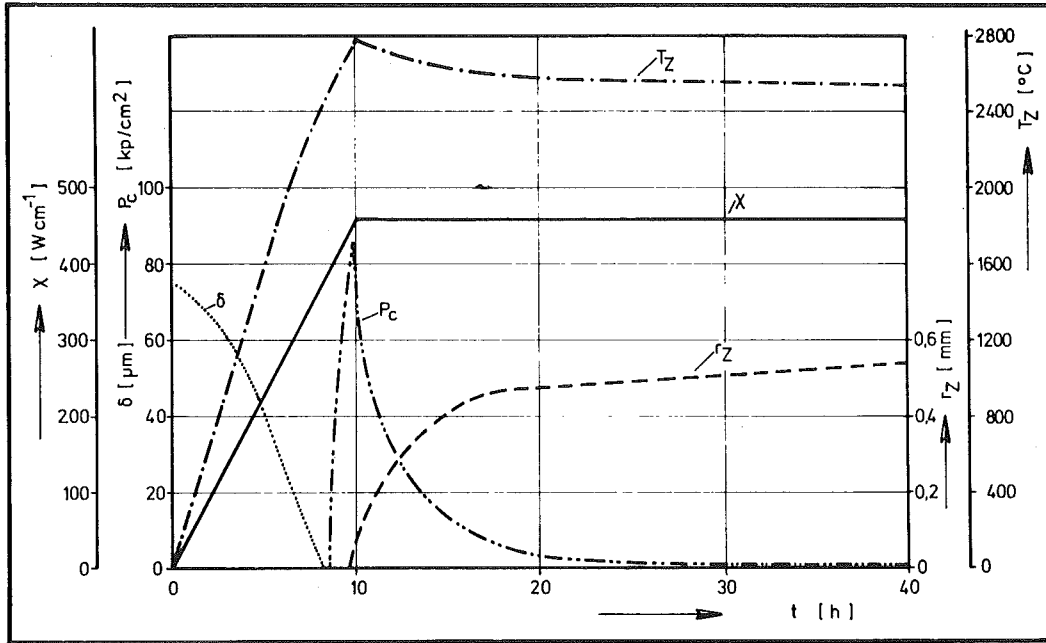
In der Umgebung des Stableistungsmaximums ist die thermische Ausdehnung des Brennstoffes relativ zu der der Hülle wesentlich größer als am heißen Ende des Brennstabes. Die Schwellrate des Brennstoffes hat ein Maximum. Aufgrund des größeren Temperaturgradienten und des stärkeren Bestrahlungseinflusses ist der Brennstoff mechanisch weniger stabil. Dagegen ist die Hülle wegen ihrer niedrigeren Temperatur stärker belastbar als am heißen Stabende. Eine starke mechanische Belastung durch den Brennstoff ist im allgemeinen dann zu erwarten, wenn sehr schnelle Leistungserhöhungen vorkommen. Eine solche Belastung kann bei entsprechender Auslegung bereits zu Beginn der Bestrahlung auftreten.

Von dem kalten Bereich des Brennstabes scheint nach der bisher vorliegenden Erfahrung keine negative Wirkung auf das Betriebsverhalten auszugehen.

Literatur:

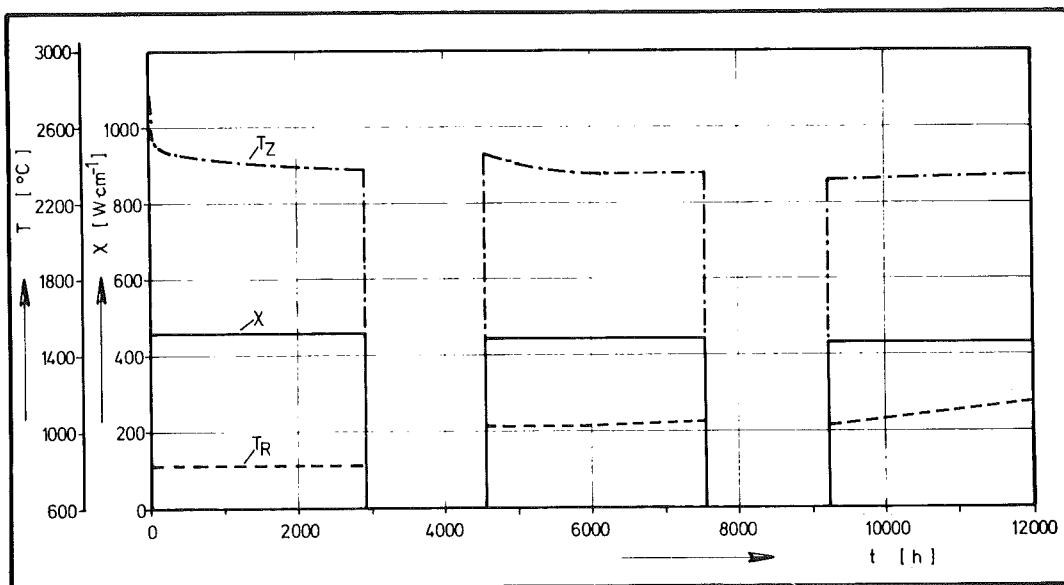
- /1/ H. Többe:  
Der Brennstab-Code IAMBUS, ITB 73.65, Dezember 1973
- /2/ H. Kämpf, H. Elbel, F. Depisch:  
Die Behandlung des mechanischen und thermischen Verhaltens von  
Brennstäben in SATURN-1, KFK 1477, November 1971
- /3/ H. Kämpf, H. Elbel, F. Depisch:  
Das Rechenprogramm SATURN-1a für Brennstäbe, KFK 1575, Sept. 1972
- /4/ H. Fiedler:  
Stabversion SATURN-2, Beitrag in KFK 1273/2, S. 112-12, Sept. 1973
- /5/ A. Gerken:  
Modelltheoretische Analyse der Brennstabbelastungen durch zyklischen  
Leistungsbetrieb anhand des experimentellen Datenmaterials der KVE  
Vg. 4a, 4b, 5b und Mol-8B, KFK 1913, Februar 1974
- /6/ K. Keller:  
Modelltheoretische Beschreibung der Brennstabmechanik in SATURN-3,  
Beitrag XII in KFK 1999
- /7/ K. Kummerer, H. Elbel:  
Experimental and Modeling Results Concerning the Operational  
Behaviour of a SNR-Type Fuel Pin, IAEA-SM-173/25, Wien, 1974
- /8/ D. Brucklacher, W. Dienst:  
Experimental Results on the Mechanical Interaction Between Oxide  
Fuel and Cladding, IAEA-SM-173/31, Wien, 1974
- /9/ H. Elbel, F. Depisch:  
Die Anwendung des Rechenprogramms SATURN-1 auf das Zeitverhalten  
von Schnellbrüter-Brennstäben unter zyklischer Belastung,  
Reaktortagung Hamburg 1972, S. 411





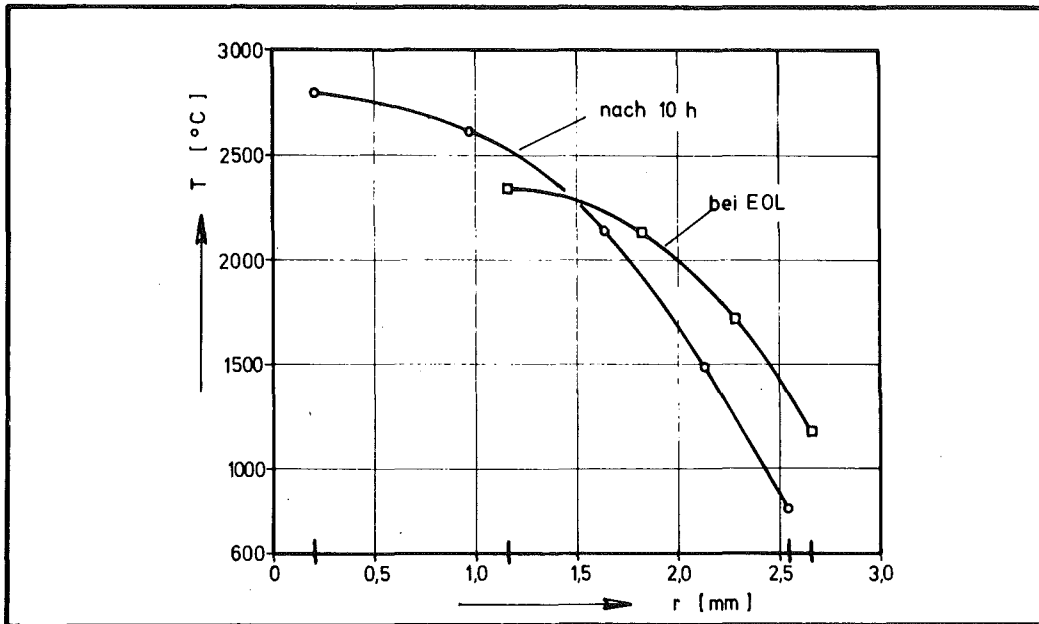
**Abb. 1** Zeitlicher Verlauf charakteristischer Brennstabgrößen eines SNR-300-Brennstabes zu Beginn der Bestrahlung. Ergebnisse einer Modellrechnung nach /7/

$T_Z$  = Zentraltemperatur       $r_Z$  = Zentralkanalradius  
 $\delta$  = Spaltbreite               $P_c$  = Kontaktdruck  
 $\chi$  = lineare Stableistung



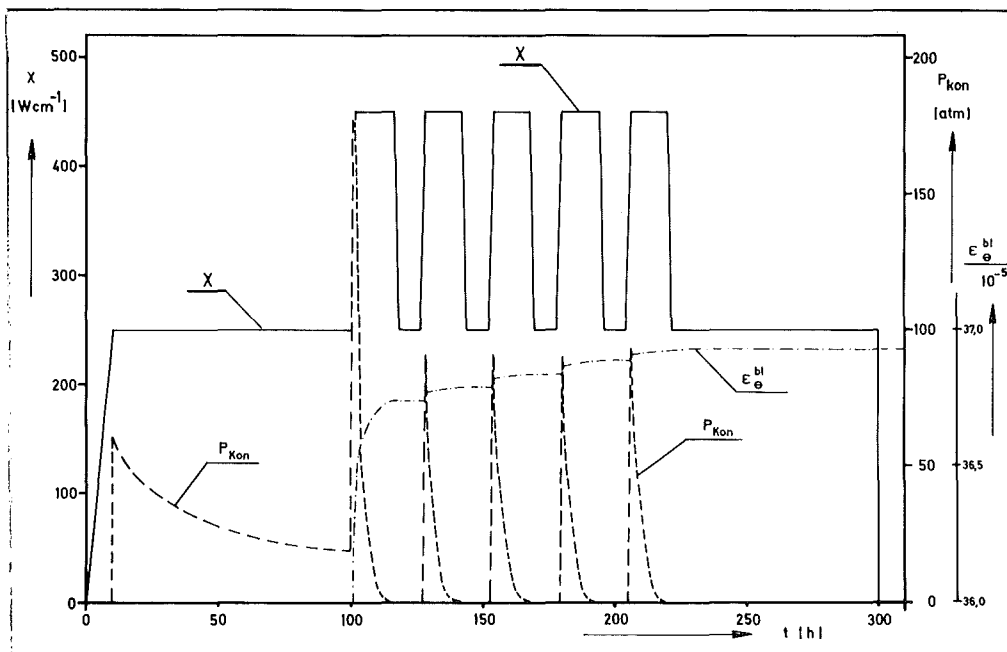
**Abb. 2** Zeitlicher Verlauf von Randtemperatur  $T_R$  und Zentraltemperatur  $T_Z$  eines SNR-300-Brennstabes während der Bestrahlung. Ergebnisse einer Modellrechnung nach /7/

$\chi$  = lineare Stableistung



**Abb. 3** Radiales Temperaturprofil eines SNR-300-Brennstabes zu Beginn und am Ende (EOL) der Bestrahlung. Ergebnisse einer Modellrechnung nach /7/

$\chi = 450 \text{ W/cm}$



**Abb. 4** Zeitlicher Verlauf charakteristischer Brennstabgrößen eines SNR-300-typischen Brennstabes. Ergebnisse einer Modellrechnung nach /9/

$P_{\text{Kon}}$  = Kontaktdruck       $\chi$  = lineare Stableistung  
 $\epsilon_{\theta}^{\text{bl}}$  = relative bleibende radiale Verformung des Hüllrohres

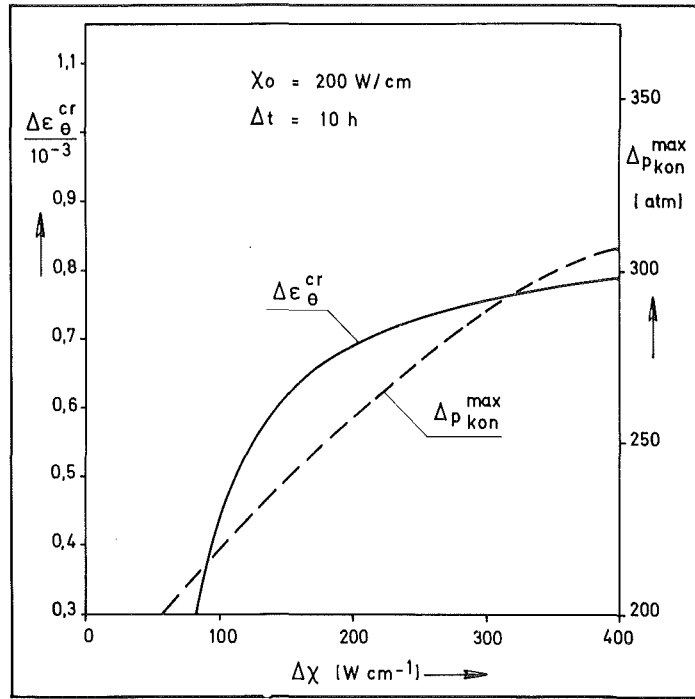


Abb. 5 Abhängigkeit des Kontaktdruck-Maximums  $\Delta p_{kon}^{max}$  und der relativen bleibenden radialen Verformung  $\Delta\epsilon_{\theta}^{cr}$  des Hüllrohres von dem Betrag der Leistungsänderung  $\Delta\chi$  bei einem SNR-300-typischen Brennstab. Ergebnisse einer Modellrechnung nach /9/

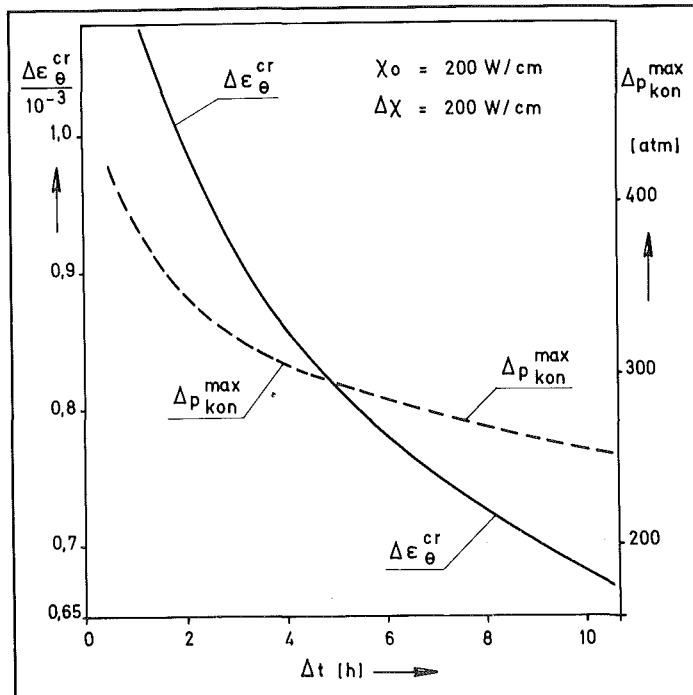


Abb. 6 Abhängigkeit des Kontaktdruckmaximums  $\Delta p_{kon}^{max}$  und der relativen bleibenden radialen Verformung  $\Delta\epsilon_{\theta}^{cr}$  des Hüllrohres von der Zeitdauer  $\Delta t$  der Leistungsänderung bei einem SNR-300-typischen Brennstab. Ergebnisse einer Modellrechnung nach /9/



XII. MODELLTHEORETISCHE BESCHREIBUNG DER BRENNSTABMECHANIK VON  
SATURN-3

von  
K. Keller

Inhalt:

1. Einleitung
2. Programmstruktur der Mechanik
3. Teilgebiete
  - 3.1 Temperaturverteilung im Brennstab
  - 3.2 Brennstoffmechanik
  - 3.3 Hüllmechanik
  - 3.4 Kriechen von Brennstoff und Hülle
  - 3.5 Spaltgasfreisetzen und Spaltgasschwellen
  - 3.6 Porenwanderung
  - 3.7 Die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes
  - 3.8 Wärmedurchgang Brennstoff-Hülle

Literatur

## 1. Einleitung

Allen SATURN-Rechenprogrammen ist gemeinsam, daß sie Rechenergebnisse über das Verhalten eines Brennstabes während seines Betriebes im Reaktor liefern.

Zwei wesentliche Nachteile der vorausgegangenen SATURN-Versionen ließen es wünschenswert erscheinen, eine von Grund auf neue Version (SATURN-3) zu entwickeln.

Der erste große Mangel der bisherigen SATURN-Programme ist der, daß sie nicht das Betriebsverhalten eines Stabes, sondern nur das einer Scheibe liefern. Axiale Einflüsse und die Verhältnisse (z.B. die mechanische Belastung der Hülle) an den Stabenden wurden dort nicht berücksichtigt. Der zweite wesentliche Nachteil dieser Programme ist verfahrenstechnischer Natur. Es wurden alle die einzelnen physikalischen Vorgänge beschreibenden Gleichungen von vornherein numerisch behandelt. Dadurch wurden die Programme mit zunehmender Anzahl der behandelten Effekte immer komplizierter, undurchsichtiger und somit immer schwerer zu handhaben. Eventuell notwendig gewordene Änderungen ließen sich damit nur noch sehr mühsam durchführen.

Alle diese Dinge ließen es sinnvoll erscheinen, in die zuletzt bestehende SATURN-Version (SATURN-2) keine weiteren physikalischen Effekte mehr in Form von Unterprogrammen einzubauen. Eine Neuentwicklung (SATURN-3) schien vernünftig.

Bei der Konzipierung des Rechenprogramms SATURN-3 wurden von vornherein folgende Bedingungen zugrunde gelegt:

Das Programm soll ein echtes Stabprogramm sein. Ferner sollen möglichst alle im Stab auftretenden Effekte berücksichtigt sein. Außerdem soll es leicht zu handhaben sein; d.h. es muß übersichtlich und damit möglichst kurz sein.

Letzteres wurde dadurch erreicht, daß wesentliche Teile, soweit es möglich war, nicht numerisch sondern analytisch behandelt wurden.

Der größte Teil der im Brennstabbetrieb auftretenden Effekte sind mechanischer Natur. Sie sollen hier, als Brennstabmechanik zusammengefaßt, behandelt werden.

## 2. Programmstruktur der Mechanik

Die Programmstruktur der Mechanik von SATURN-3 ist in Abb. 1 dargestellt. Mit den Eingabedaten wird zum Zeitpunkt  $t = 0$  die Temperaturverteilung, die Spannungsverteilung und der Radial- und Axialzuwachs in Brennstoff und Hülle und die eventuelle Riverteilung im Brennstoff berechnet.

Anschließend werden nach einem vorgegebenen Zeitschritt  $\Delta t$  dieselben nun zeitabhangig gewordenen Gren mit den anderen zeitabhangigen Gren wie Kriechen, Schwellen, Porenwanderung und Gasdruck (bei Anliegen des Brennstoffes an die Hulle, den Kontaktdruck) zusammen wiederum neu berechnet. Dies geschieht solange, bis die gewunschte Zeit (Eingabegre) erreicht ist.

## 3. Teilgebiete

### 3.1 Temperaturverteilung im Brennstab

Die Temperaturverteilung in Brennstoff und Hulle wurde als eine quasistationare angenommen. Dieser Fall ist dann gegeben, wenn sich die Warmeleitfahigkeit uber den Stabquerschnitt infolge Porenwanderung, Brennstoffentmischung oder Leistungsanderung im Reaktor mit der Zeit langsam andert. Unter langsam sei hier verstanden, da die Zeiten, innerhalb denen sich diese Vorgange abspielen, gro sind gegen die Zeitkonstante des Brennelementes (diese betragt bei einem Bruterelement etwa 1,5 bis 2 Sekunden).

Der Brennstoffzylinder wurde in  $i$ -Zonen unterteilt. In der  $i$ -ten Zone besteht an der axialen Stelle  $z$  die Warmeleitfahigkeit  $k_i(z)$  und die Warmeleistung  $q_i(z)$ . Damit ist die Temperaturverteilung in dieser Zone durch folgende Gleichung gegeben /1/:

$$\mathcal{T}_i(r) = - \frac{q_i(z) r^2}{4 k_i(z)} + c_{1i}(z) \ln r + c_{2i}(z)$$

Hierbei sind  $c_{1i}(z)$  und  $c_{2i}(z)$  in /1/ berechnete Funktionen, die neu berechnet werden mussen, wenn sich die Warmeleitfahigkeit oder die Warmeleistung in der betreffenden Zone geandert hat.

Die Temperaturverteilung in der Hülle ist durch folgende Gleichung gegeben /1/:

$$\mathcal{T}_n(z) = B_1(z) \ln r + B_2(z)$$

Hierbei sind  $B_1(z)$  und  $B_2(z)$  in /1/ berechnete Größen.

Die Temperaturerhöhung des Brennstoffes und der Hülle an der axialen Stelle  $z$  infolge Kühlmittelaufheizung ist /1/:

$$\Delta \mathcal{T} = \frac{U}{H} z$$

Hierbei ist  $U$  die Kühlmittelaustrittstemperatur,  $H$  die Brennstablänge.

### 3.2 Brennstoffmechanik

Aus den allgemeinen, erweiterten Hookeschen Spannungs-Dehnungsgleichungen wurden analytische, für Zylindergeometrie Gebrauchsgleichungen hergeleitet, die in übersichtlicher Weise die Spannungsverteilung und Radial- und Axialdehnungen im Brennstoff liefern /2/.

So ergab sich z.B. für die Radialspannung im Brennstoff folgender Ausdruck (für die übrigen Spannungen ( $\sigma_t$  und  $\sigma_z$ ) ergeben sich ähnliche Ausdrücke) /2/ :

$$\sigma_r = - p_i + (p_i - p_a) \frac{\phi_1(r)}{\phi_1(r_a)} + 2\phi_3(r_a) \left[ \frac{\phi_1(r)}{\phi_3(r_a)} - \frac{\phi_3(r)}{\phi_3(r_a)} \right]$$

Hierbei ist:  $p_i$  und  $p_a$  der Druck im Zentralkanal bzw. im Gasspalt Brennstoff-Hülle,  $r_i$  und  $r_a$  sind der Innen- bzw. der Außenradius des Brennstoffes;  $\phi_1(r)$  bzw.  $\phi_3(r)$  sind Ortsfunktionen und durch folgende Gleichungen gegeben:

$$\phi_1(r) = \int_{r_i}^r \frac{E}{(1+k E) r^3} dr$$

$$\phi_3(r) = \int_{r_i}^r \frac{E}{(1+k E) r^3} \left( \int r^2 \alpha \frac{d\mathcal{T}}{dr} dr \right) dr$$



Die in diesen Ausdrücken enthaltenen Materialgrößen, der Elastizitätsmodul des Brennstoffes E und die Wärmeausdehnungszahl  $\alpha$  wurden als Funktionen der Temperatur angenommen.

Sie haben folgende Form:

$$E = a_E + b_E \vartheta \quad (\text{Elastizitätsmodul})$$

$$\alpha = a_\alpha + b_\alpha \vartheta \quad (\text{Wärmeausdehnungszahl})$$

Hierbei sind  $a$  und  $b$  Konstanten;  $k$  ist Kriechfaktor (siehe 3.4).

### 3.3 Hüllmechanik

Da für das Verhältnis von Hüllwandstärke  $h$  zu Hüllmittenradius  $a$  stets gilt:

$$h/a < \approx 1/5$$

wurden für die Berechnung der Hüllbeanspruchung aus der allgemeinen Form des Hookeschen Gesetzes, unter Beachtung der in der Platten- und Schalentheorie üblichen Vernachlässigungen Gebrauchsgleichungen hergeleitet /2/. Sie liefern die Spannungsverteilung und die Radial- und Axialdehnung der Hülle.

So ergab sich z.B. für die Axialspannung folgende Gebrauchsgleichung (für die Tangentialspannung besteht eine ähnliche Gleichung):

$$\sigma_z(y, z) = \frac{E}{1-\nu^2} \left[ \frac{dw(z)}{dz} + \nu \frac{u(z)}{a} - y \left( \frac{d^2u(z)}{dz^2} + \frac{\nu}{a^2} u(z) \right) - (1+\nu) \alpha T \right]$$

Hierbei ist E und  $\alpha$  der Elastizitätsmodul bzw. der Wärmeausdehnungskoeffizient der Hülle,  $\nu$  der Querkontraktionskoeffizient, T die Temperatur,  $w(z)$  die Axialverschiebung an der Stelle z, y die Ordinate (der Ursprung befindet sich in Hüllmitte);  $u(z)$  ist die Radialverschiebung und durch folgende Differentialgleichung gegeben /2/:

$$\frac{d^4u(z)}{dz^4} + \frac{\nu}{a^2} \frac{d^2u(z)}{dz^2} + \frac{12(1-\nu^2)}{a^2 h^2} u(z) = - \frac{12(1-\nu^2)}{E h^3} \left[ p(z) + \frac{\nu}{a} N_z(z) \right]$$

Hierbei ist  $p(z)$  der Radialdruck auf die Hülle und  $N_z(z)$  ist die Axialschnittkraft (Kraft je Längeneinheit bezogen auf den mittleren Umfang der Hülle).

### 3.4 Kriechen von Brennstoff und Hülle

Die bleibenden Verformungen von Brennstoff und Hülle infolge Kriechens werden für den dreiachsigen Spannungszustand durch die Söderberg-Gleichung gegeben.

Sie lautet in Komponentenform (in Zylinderkoordinaten):

$$\Delta \epsilon_{rc} = \frac{\Delta \epsilon_{ec}}{\sigma_e} \left[ \sigma_r - \frac{1}{2} (\sigma_t + \sigma_z) \right]$$

$$\Delta \epsilon_{tc} = \frac{\Delta \epsilon_{ec}}{\sigma_e} \left[ \sigma_t - \frac{1}{2} (\sigma_r - \sigma_z) \right]$$

$$\Delta \epsilon_{zc} = - (\Delta \epsilon_{rc} + \Delta \epsilon_{tc})$$

Hierbei sind:  $\sigma_r$ ,  $\sigma_t$  und  $\sigma_z$  die Spannungen in radialer, tangentialer und axialer Richtung,  $\sigma_e$  ist die einaxiale Vergleichsspannung,  $\Delta \epsilon_{rc}$ ,  $\Delta \epsilon_{tc}$  und  $\Delta \epsilon_{zc}$  ist der in dem Zeitintervall  $\Delta t$  erfolgte Kriechzuwachs in radialer, tangentialer und axialer Richtung.  $\Delta \epsilon_{ec}$  ist die einaxiale Vergleichskriechdehnung. Es wird angenommen, daß sie durch folgende Gleichung gegeben ist:

$$\Delta \epsilon_{ec} = K \sigma_e^n f(t) \Delta t$$

Hierbei sind  $K$  und  $n$  Kriechparameter,  $f(t)$  ist eine Zeitfunktion.

Ist der Kriechparameter  $n = 1$  und die Zeitfunktion  $f(t) = \text{const.}$ , werden die Kriechdehnungsgleichungen linear. Damit gibt es bei der Kriechdehnungsberechnung keine Schwierigkeit. Ist  $n \neq 1$  und  $f(t)$  nicht konstant, sind die Gleichungen stückweise zu linearisieren; d.h. man hält den Faktor  $K \sigma_e^n f(t) \Delta t / \sigma_e = k$  während des Zeitschrittes  $\Delta t$  konstant und berechnet ihn am Ende mit den neu errechneten Spannungen neu. Damit wird der nichtlineare Teil der Spannungs-Dehnungskurve durch Geradenstücke mit verschiedenen Steigungen angenähert.

### 3.5 Spaltgasfreisetzen und Spaltgasschwellen

Der Berechnung der Spaltgaserzeugung in der zylindrischen Brennstoffsäule wurde folgendes Modell zugrunde gelegt:

Der Brennstoffzylinder wurde gedanklich in eine Anzahl von kreiszylindrischen Hohlzylinder unterteilt. Es wurde nun angenommen, daß die gesamte in einem solchen Zylinder stattfindende Spaltgaserzeugung nicht im Zylinder selbst, sondern in einem sehr schmalen, an ihn angrenzenden Band stattfindet. Weiter wird angenommen, daß die einzelnen "Bänder" durch Kanäle (Risse) sowohl untereinander als auch mit dem Spalt Brennstoff-Hülle in Verbindung steht. Das bedeutet, der Spaltgasdruck ist im Brennelement überall derselbe.

Das in den "Bändern" entstehende Spaltgas mit dem Druck  $p$  muß nun bei seiner Ausdehnung gegen seine Begrenzungen Arbeit verrichten. Die Begrenzungen sind die Zylinderwände. Am äußeren Zylinder sind sie die Zylinderwand und die Hüllinnenwand.

Nach dem Gasgesetz ist diese Arbeit:

$$A_G = p \, d v = p \, \dot{v} \, \Delta t = p \, R \, T \cdot \dot{u} \, \Delta t$$

Hierbei ist:  $dv$  das Gasvolumendifferential,  $R$  die Gaskonstante,  $\dot{v}$  das pro Zeiteinheit entstehende Gasvolumen,  $\Delta t$  ein Zeitintervall,  $\dot{u}$  ist  $0,26 \times \text{Spaltrate}/(\text{cm}^3 \text{sec})$  und  $T$  ist die Temperatur.

Andererseits ist die zwischen zwei Hohlzylindern zu verrichtende Arbeit (z.B. zwischen dem  $i$ -ten und  $(i + 1)$ -ten):

$$A_G = F \left\{ \int_{r_i}^{r_{i+1}} \sigma_r^* \epsilon_{rc}^* \, dr + \int_{r_{i-1}}^{r_i} \sigma_r^* \epsilon_{rc}^* \, dr \right\}$$

Hierbei ist  $\sigma_r^*$  der Radialspannungsanteil und  $\epsilon_{rc}^*$  der Kriechdehnungsanteil der vom Gasdruck  $p$  erzeugt wird,  $F$  ist die Begrenzungsfläche. Für das Schwellband zwischen Brennstoff und Hülle besteht eine ähnliche Gleichung.

Durch Gleichsetzen der beiden obigen Gleichungen und Auflösen nach dem Gasdruck kann man ihn berechnen /2/.

Sofern das Spaltgas nicht freigesetzt wird (unterhalb einer bestimmten Temperatur), bildet das Volumen  $\dot{v} \, \Delta t$  das Schwellvolumen.

### 3.6 Porenwanderung

Die Porosität im i-ten Brennstoffzylinder ist an der axialen Stelle z gegeben durch:

$$P_i = 1 - \frac{\rho_i}{\rho_{th,i}}$$

Hierbei ist  $\rho_i$  und  $\rho_{th,i}$  die tatsächliche bzw. theoretische Dichte.

In dem Zeitintervall  $\Delta t$  wandert vom i-ten Zylinder zum (i+1) (dem nächst heißeren) der Porenanteil:

$$\Delta P_i = P_i(t) \frac{\Delta t}{\Delta r_i} v_i$$

Hierbei ist  $\Delta r_i$  die Breite des i-ten Zylinders.

Die Porenwanderungsgeschwindigkeit in dem betreffenden Zylinder ist durch folgende Beziehung gegeben:

$$v_i = \frac{5,48 \cdot 10^8}{p \text{ (atm)}} \cdot \frac{1}{T(^{\circ}\text{K})^{3/2}} \exp\left(-\frac{7,17 \cdot 10^4}{T}\right) \frac{dT}{dr} \left(\frac{\text{cm}}{\text{sec}}\right)$$

Vom (i-1)-ten (dem nächst kälteren) zum i-ten wandert der Porenvolumenanteil:

$$\Delta P_{(i-1)} = P_{i-1}(t) \frac{\Delta t}{\Delta r_{i-1}} v_{i-1}$$

Die nach dem Zeitintervall  $\Delta t$  im i-ten Zylinder (an der axialen Stelle z) verbleibende Porosität ist damit:

$$P_i^* = P_i(t) + (\Delta P_{i-1} - \Delta P_i)$$

### 3.7 Die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes

Die Wärmeleitfähigkeit von stöchiometrischem  $\text{UO}_2$  und von  $(\text{U}_{0,8}\text{Pu}_{0,2})\text{O}_2$  ist als Funktion der Porosität durch die Gleichung gegeben /3/:

$$k_F = \left( \frac{9,82}{T+4,9} + 1,57 \cdot 10^{-13} T^3 \right) (1-P^{2/3}) \frac{\text{cal}}{\text{cm sec } ^{\circ}\text{K}}$$

wobei T die Temperatur (in  $^{\circ}\text{K}$ ) und P die Porosität bedeuten.

### 3.8 Wärmedurchgang Brennstoff-Hülle

Für den Wärmedurchgang Brennstoff-Hülle sind zwei Fälle zu unterscheiden:

- a) Zwischen Brennstoff und Hülle besteht ein Spalt. Für diesen Fall ist die Wärmedurchgangszahl durch folgende Gleichung gegeben /5/:

$$h_g = \frac{k_f}{C (R_1 + R_2) + (g_1 + g_2) + \delta D/2}$$

- b) Zwischen Brennstoff und Hülle besteht Kontakt. Für diesen Fall ist die Wärmedurchgangszahl durch folgende Gleichung gegeben /6/:

$$h_c = \frac{k_f}{C(R_1 + R_2) + (g_1 + g_2)} + \frac{k_m P}{a_o \sqrt{R^1 H}}$$

mit:

$$k_m = \frac{2 k_1 k_2}{k_1 + k_2}, \quad R = \sqrt{\frac{1}{2} (R_1^2 + R_2^2)}, \quad a_o = 1 \text{ cm}^{1/2}$$

In den Gleichungen bedeutet:  $k_f$  die Wärmeleitfähigkeit des Füllgases,  $k_1$  und  $k_2$  die Wärmeleitfähigkeit der Hülle bzw. des Brennstoffes,  $P$  der Kontaktdruck ( $\text{kp/cm}^2$ ),  $R_1$  und  $R_2$  arithmetisch gemittelte Rauhtiefe von Hülloberfläche bzw. Brennstoffoberfläche,  $H$  die Meyer-Härte der Hülle ( $\text{kp/cm}^2$ ),  $\delta D$  die Spaltbreite,  $g_1$  und  $g_2$  die mittleren Wärmeübergangslängen (Temperatursprungdistanz) an den beiden Oberflächen (cm).

$C$  und  $a_o$  sind empirische Konstanten, die experimentell bestimmt werden müssen. Es ergaben sich aus einigen Versuchen mit  $\text{UO}_2$ -Zircaloy-Paaren /6/ folgende Werte:

$a_o = 0,5 \text{ cm}^{1/2}$ ,  $C = 2,5$  bei niederen Drucken und  $C = 1,5$  bei hohen Drucken.

Bei Wärmeübergangsexperimenten /5/ wurden für die Wärmeübergangslängen ( $g_1 + g_2$ ) folgende Werte gemessen:

$$(g_1 + g_2) = \begin{cases} 10 \cdot 10^{-4} & \text{für Helium} \\ 5 \cdot 10^{-4} & \text{für Argon} \\ 1 \cdot 10^{-4} & \text{für Krypton} \\ < 1 \cdot 10^{-4} & \text{für Xenon} \end{cases}$$

### Literatur

- /1/ K. Keller:  
Temperaturverteilungen in einem Brennstab bei verschiedenen Belastungsarten, KFK 1916, Januar 1974
- /2/ K. Keller:  
Brennstabmechanik, KFK in Vorbereitung
- /3/ H. Kämpf, H. Elbel, K. Kummerer:  
Brennstabmodelltheorie, KFK 1400, Oktober 1971
- /4/ H. Hoffmann:  
Analyse der Leervolumenverteilung in Oxid-Brennstäben hoher Stableistung, KFK 1863, September 1973
- /5/ A.M. Ross, R.L. Stoute:  
Heat transfer Coefficient between  $UO_2$  und Zircaloy-2, AECL-1552 (1962)
- /6/ J.A.L. Robertson et al.:  
Temperature Distribution in  $UO_2$  Fuel Elements, J. Nucl. Mat., 7 (1962)

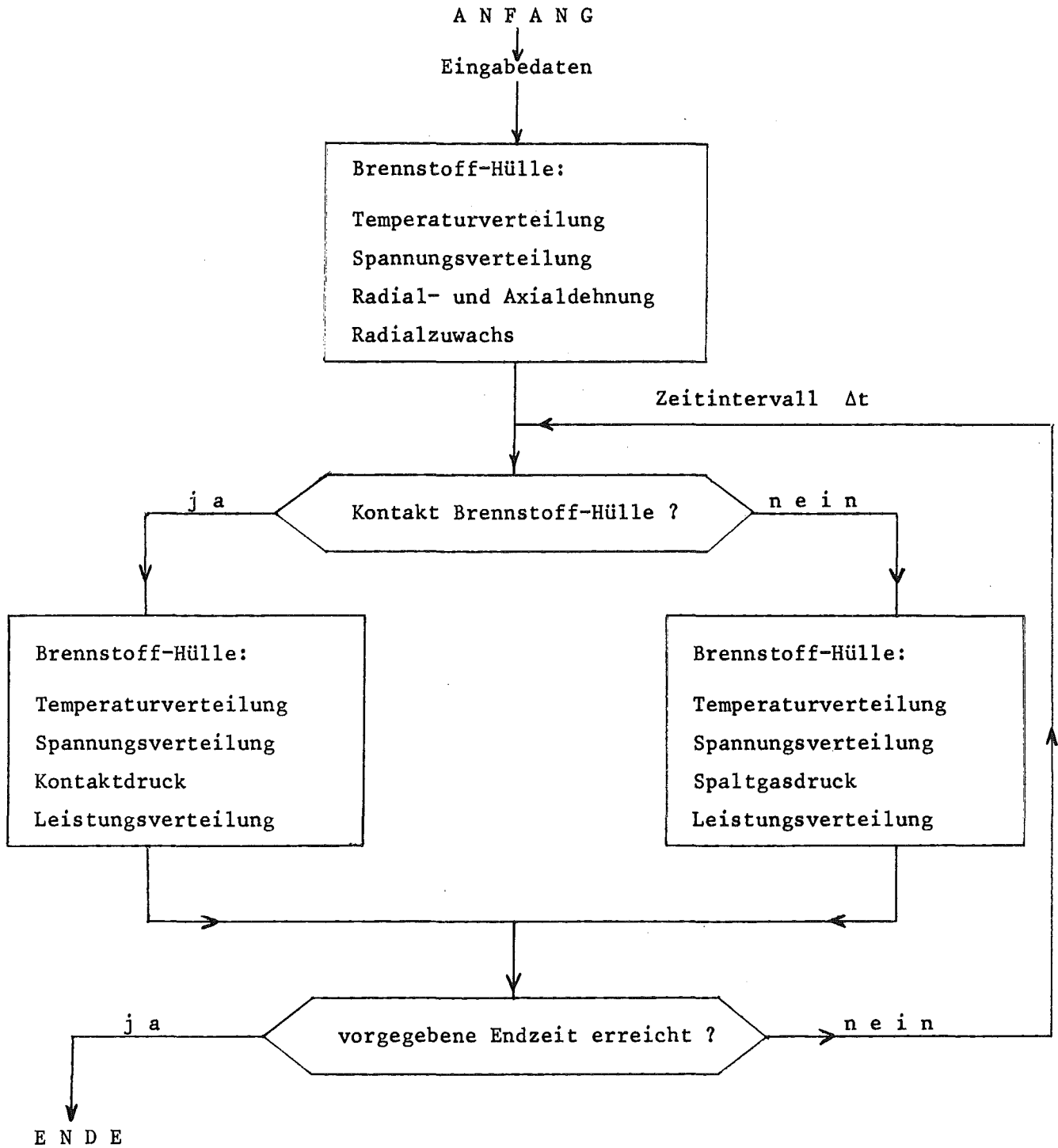
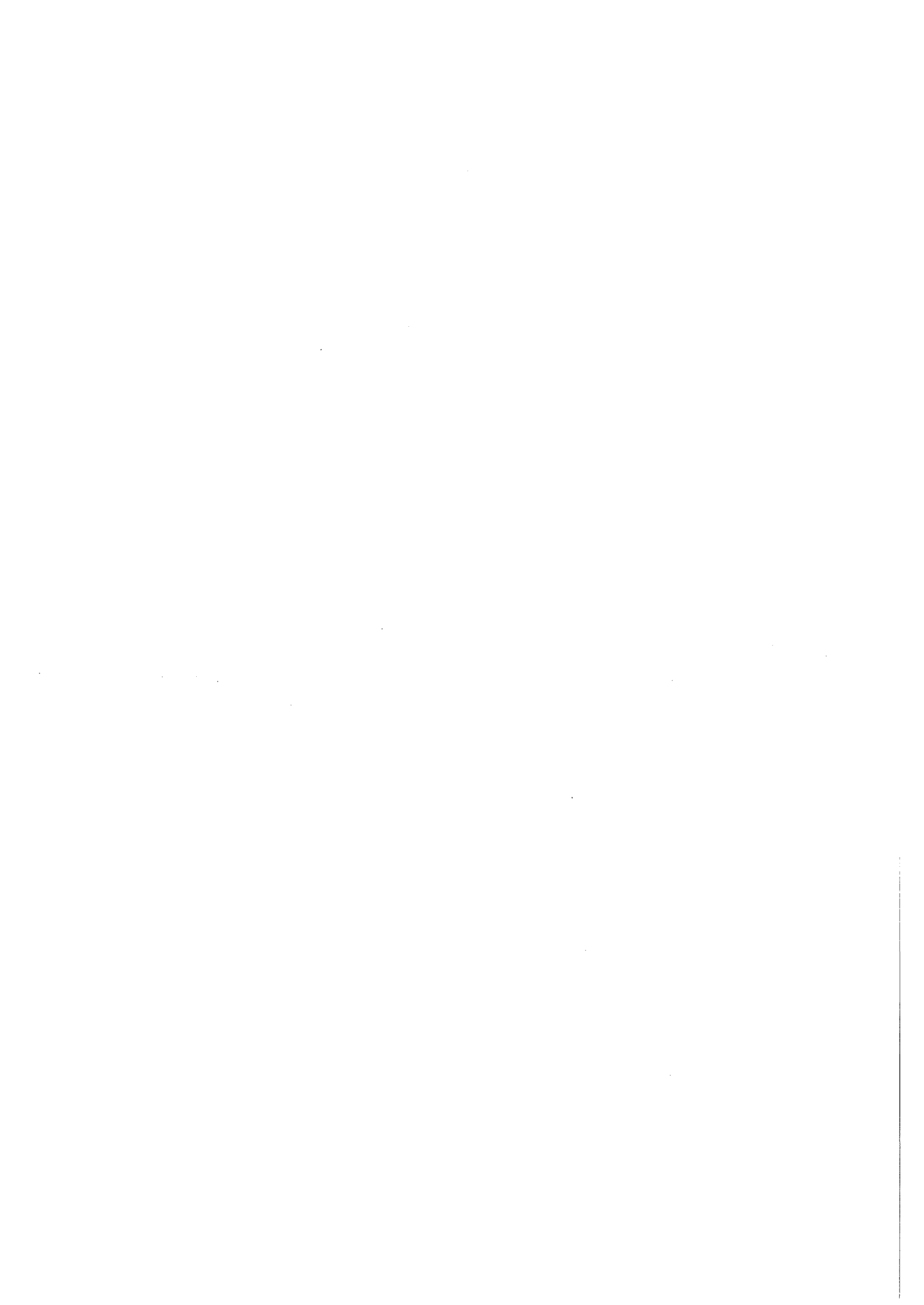


Abb. 1 Flußdiagramm der Mechanik in SATURN-3





XIII. BRENNSTABSPEZIFIKATIONEN UND IHRE BEWERTUNG

von  
D. Freund

Inhalt:

1. Einleitung
2. Bisheriger Stand der Spezifikation
3. Kritik an der Brennstabspezifikation
4. Anforderungen
5. Vorschläge

## 1. Einleitung

Der Ablauf von Bestrahlungsexperimenten ist - beginnend mit der Formulierung von Aufgabe und Ziel und endend mit der Bereitstellung von Ergebnissen - ein äußerst komplexer Vorgang. Die besonderen Schwierigkeiten liegen in der exakten Dokumentation aller Vorgänge, die räumlich und zeitlich voneinander getrennt ablaufen.

Für solche physikalisch-technischen Vorgänge, wie sie diese Experimente darstellen und für deren planmäßigen Verlauf immer eine Reihe von Institutionen zuständig ist - auch dies ist ein weiterer komplizierender Faktor - gilt es eine Systematik zu finden, welche den sicheren Ablauf des Experimentes garantiert.

Im Laufe der Zeit hat sich nun ein Ablaufschema eingebürgert, welches, bedingt durch die erwähnte Komplexität der Vorgänge, stark empirischen Charakter aufweist: In die Versuchsplanung und -durchführung fließen stetig neue technische Erfahrungen ein, die z.T. mathematisch-physikalisch nicht formulierbar sind und die zusammen mit den sich ebenfalls wandelnden modelltheoretischen Vorstellungen das zeitlich variable Gerüst des Experiments bilden.

In einem solchen System hat nun die Spezifikation eine Position inne, welche im folgenden analysiert werden soll. Die Forderung nach einer systemanalytischen Behandlung der Vorgänge wird schließlich zu einer Überprüfung der bisherigen Spezifikation und dann zu einer Erweiterung des Aufgabenbereiches dieses Teils des Experiments führen.

Schließlich sollen die bisherigen Erfahrungen und Vorstellungen zur allgemeinen Vorschlägen für Spezifikationen führen.

## 2. Bisheriger Stand der Spezifikation

Der Ablauf eines Bestrahlungsexperimentes kann vereinfachend in fünf Phasen eingeteilt werden (Abb. 1):

Phase I:       Definition von Aufgabe und Ziel des Experimentes und Erstellung der Grundausslegung,

- Phase II: Festlegung des Versuchskonzeptes, Herstellung des Bestrahlungsobjektes,
- Phase III: Bestrahlung,
- Phase IV: Nachuntersuchung,
- Phase V: Auswertung.

In diesem Schema steht die Spezifikation als Brennstabspezifikation, welche die Herstellungsvorschriften formuliert, in Phase II. Innerhalb des Herstellungsablaufes wird diese Spezifikation dann diskutiert und u.U. modifiziert, wenn die Anforderungen an die Komponenten nicht eingehalten werden können, ein Umstand, der bei besonders eng spezifizierten Parameterexperimenten auftreten kann.

Die Verknüpfung der Spezifikation zu dem Gesamtablauf besteht also im wesentlichen zur Auslegung (Phase I) über die zu spezifizierenden Parameter von Brennstoff, Brutstoff, Hülle und Brennstab. Gemessen am Gesamtablauf des Bestrahlungsexperimentes ist die bisherige Spezifikation nur in geringem Maß an der auslegungsgerechten Durchführung des Experimentes beteiligt.

### 3. Kritik an der Brennstabspezifikation

Um die Anforderungen an die Spezifikation möglichst vollständig auflisten zu können, wird im folgenden deren Inhalt kurz dargestellt. In der Spezifikation werden die einzelnen Material- und Konstruktionsnominalwerte, deren Toleranzen und Prüfungen festgelegt:

Für Brenn- und Brutstoff wird der physikalisch-chemische Zustand durch die Spezifikation von U/Pu-Verhältnissen, Sauerstoff- bzw. Kohlenstoffanteilen, Feuchtigkeit, Gasgehalt, Verunreinigungen, Isotopenvektoren, Homogenität der Brennstoffmischungen, Dichten, Geometrien usw. festgelegt. Die Brennstoffspezifikation kann als nicht vollständig angesehen werden, da genaue statistische Definitionen der Bezugspunkte einiger Spezifikationsgrößen (z.B. Pu-Gehalt, Homogenität) fehlen sowie Korrelationen zwischen einzelnen Größen nicht berücksichtigt werden (vergl. /1/). Weitere Schwächen der Spezifikation liegen in einigen unzulänglichen Nachweis- und Prüfmethode (Bestimmung von O/Me-Verhältnissen, Gasgehalt).

Die Spezifikationen des Hüllmaterials betreffen die Materialzusammensetzungen, den Behandlungszustand, die Qualität der Hülloberflächen, die Geometrie der Hüllrohre sowie die Materialfehlerprüfung. Auch hier gibt es Schwierigkeiten beim Nachweis des Zustandes der Hüllrohrinnenflächen sowie des Kaltverformungszustandes, der kontinuierlich und zerstörungsfrei nicht bestimmt werden kann.

Die eigentliche Brennstabspezifikation schließlich beschreibt den Zustand des fertigen Stabes, bestehend aus dem Hüllrohr mit den beiden Endstopfen, den Brenn- und Brutstoffsäulen sowie Strukturteilen wie Transportfeder, Stützrohr usw. Der Nachweis der axialen Spaltstoffverteilung, der Reinheit der Gasbindung sowie der Güte der Schweißnähte kann z.T. gar nicht oder nur sehr ungenau erbracht werden.

Schließlich werden bezüglich der Bestrahlungsbedingungen nur solche Größen wie Hülltemperatur, Stabileistung, Abbrand und Standzeit, teilweise nur als Richtwerte, angegeben. Nicht spezifiziert werden i.a. Anfahrbedingungen im Hinblick auf eventuelle kritische Abbrandzustände sowie thermische Zyklen.

Zum Schluß dieser Darstellung sind schließlich zwei wesentliche Punkte aufzuführen, die in keiner Brennstabspezifikation enthalten sind, die jedoch zur weiteren Beurteilung des Stabes, zur spezifikationsgerechten Qualitätssicherung sowie zur Interpretation des Stabverhaltens erforderlich sind:

- Exakte Vorschriften zur Manipulation von Brennstoff, Hülle und Brennstab,
- Spezifikationen zur Erstellung von Unterlagen zur Beschreibung des Stabzustandes und des Bestrahlungsablaufes.

#### 4. Anforderungen

Nach dem vorher Gesagten muß nunmehr die bisherige Spezifikation ersetzt werden durch eine den gesamten Ablauf kontrollierende Experimentspezifikation folgenden Aufbaus:

##### 1. Spezifikation der Auslegung

Festlegung von Standardrechnungen je nach Aufgabenstellung, Dokumentation der verwendeten Daten und der Rechenergebnisse.

2. Spezifikation des Brennstabes

Festlegung des physikalischen und chemischen Sollzustandes von Brennstoff und Hülle, Brennstab.

3. Spezifikation der Herstellung

Festlegung der Verfahren, Manipulationsvorschriften, Dokumentation des Brennstab-Istzustandes.

4. Spezifikation der Bestrahlung

Festlegung von Betriebsbedingungen und Vorschriften zur Beschreibung des Bestrahlungsablaufes.

5. Spezifikation der Nachuntersuchung

Festlegung von Standard- und experimentenspezifischen Untersuchungen (herzuleiten von Aufgabenstellung und Auslegung).

Mit Hilfe eines solchen Spezifikationssystems kann der eingangs erwähnte empirische Charakter eines Experimentablaufes durch quantitative Behandlung jedes Experimentteils beeinflusst werden. Im folgenden Kapitel werden einige Vorschläge zur Erfüllung der obigen Teilspezifikationen angeführt, welche den Weg zu einer systematischen Behandlung eines Experimentes aufzeigen.

5. Vorschläge

Ausgehend von den wesentlichen Auslegungs- und Bestrahlungsmerkmalen werden die in den obigen Teilspezifikationen geforderten Festlegungen detailliert: Der Bestrahlungsablauf kann durch drei Zeitpunkte charakterisiert werden, welche als Anfangszustand, Zustand des Beginns der mechanischen Wechselwirkung sowie als Endzustand (bei hohem Abbrand) bezeichnet werden. Es handelt sich um kritische Phasen, in welchen das sichere Verhalten des Brennstabes nachgewiesen werden muß. In Abb. 2 ist der Anfangszustand für das Experiment Mol-8D mit Hilfe des Rechenprogramms SATURN untersucht und dargestellt. Es sind die Zentraltemperaturen für zwei verschiedene Ausgangsspalte sowie Geometrieänderungen des Brennstoffes als Funktion der Zeit bei linearem Anstieg der Stableistung aufgezeichnet.

Die Festlegungen der Brennstabspezifikation, die bereits diskutiert wurden, müssen korrigiert und ergänzt werden.

In der Herstellungsspezifikation sind Vorschriften zur Handhabung, zur Dokumentation der Vermessungsergebnisse sowie Vergleichs- und Kontrollvorschriften festzulegen. In Abb. 3 ist als Beispiel zur Vermessungsdokumentation der Istzustand eines Stabes der Rapsodie-Bündelexperimente dargestellt, welcher über eine Datenverarbeitungsanlage erstellt wurde. Aus Parameterstudien zu Oxid- und Karbidbestrahlungsexperimenten resultieren Spezifikationen des Anfahrvorganges bei den Experimenten DFR-330, Mol-8D sowie Mol-15, ohne welche mit Sicherheit zentrales Brennstoffschmelzen aufgetreten wäre. In Abb. 4 ist schließlich ein Beispiel für die Darstellung eines Bestrahlungsablaufes, welche ebenfalls über eine Datenverarbeitungsanlage erstellt wurde, angeführt.

Die Festlegungen von Untersuchungen und Darstellungen bei der zerstörungsfreien und zerstörenden Nachuntersuchung lassen sich, wie aus den oben angeführten Beispielen erkennbar wird, gleich oder ähnlich treffen, so daß sich über ein Spezifikationssystem der vorgestellten Art eine systematische quantitative Durchführung des Experimentes erreichen läßt.

Ein solches Verfahren, in Verbindung mit noch zu entwickelnden Qualitätskriterien, führt, in Verbindung mit den Möglichkeiten der Datenverarbeitung, zu wesentlichen Erleichterungen bei der Durchführung von Bestrahlungsexperimenten und deren Beurteilung.

#### Literatur:

- /1/ D. Vollath, O. Jacobi:  
Qualitätskontrolle an Brennstoffen, Hüllrohren und Brennstäben,  
Beitrag XV in KFK 1999

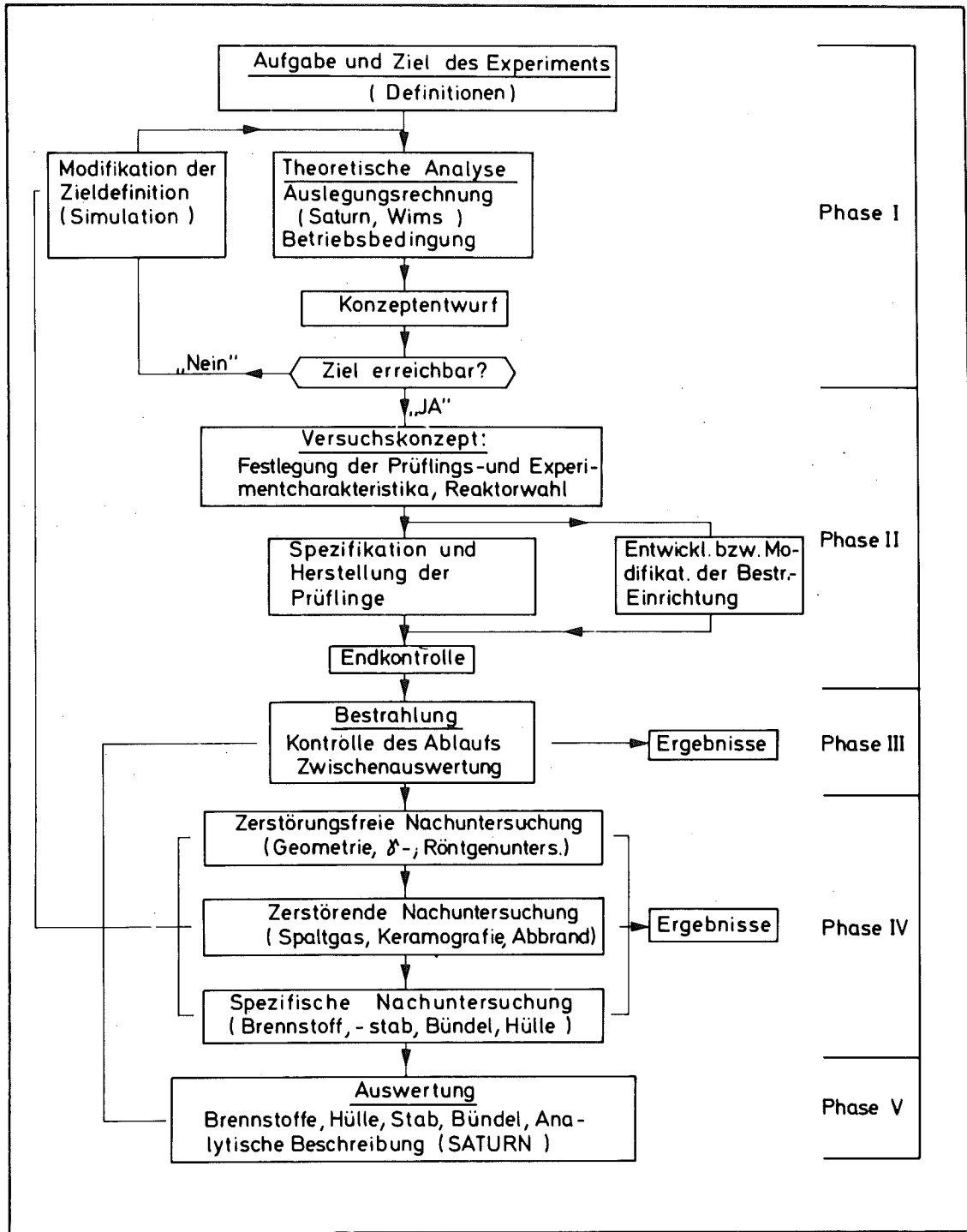


Abb. 1 Brennstab-Bestrahlungsexperiment (schematischer Ablauf)

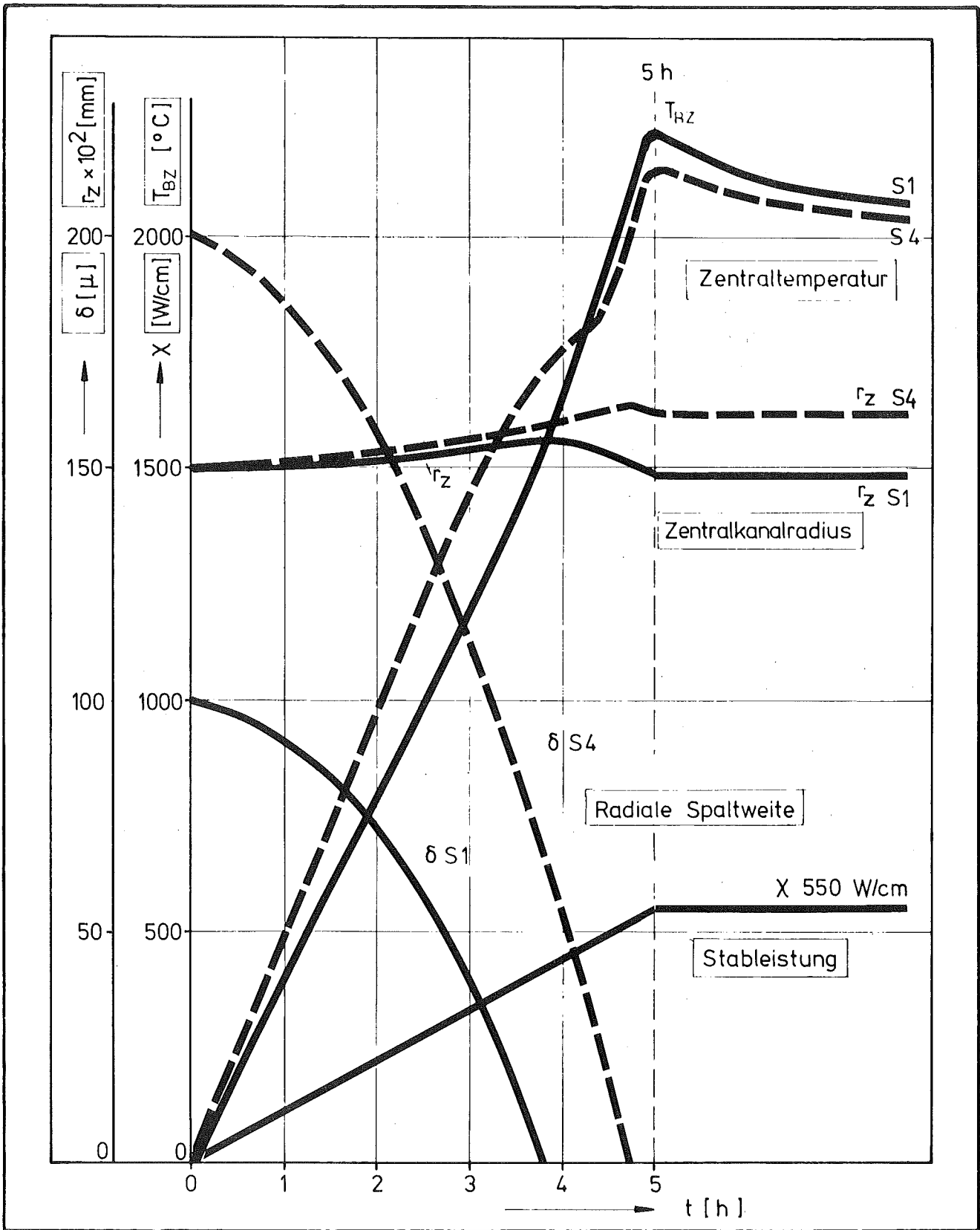


Abb. 2 Beispiel zur Spezifikation der Auslegung  
(Anfangszustand Mol-8D)



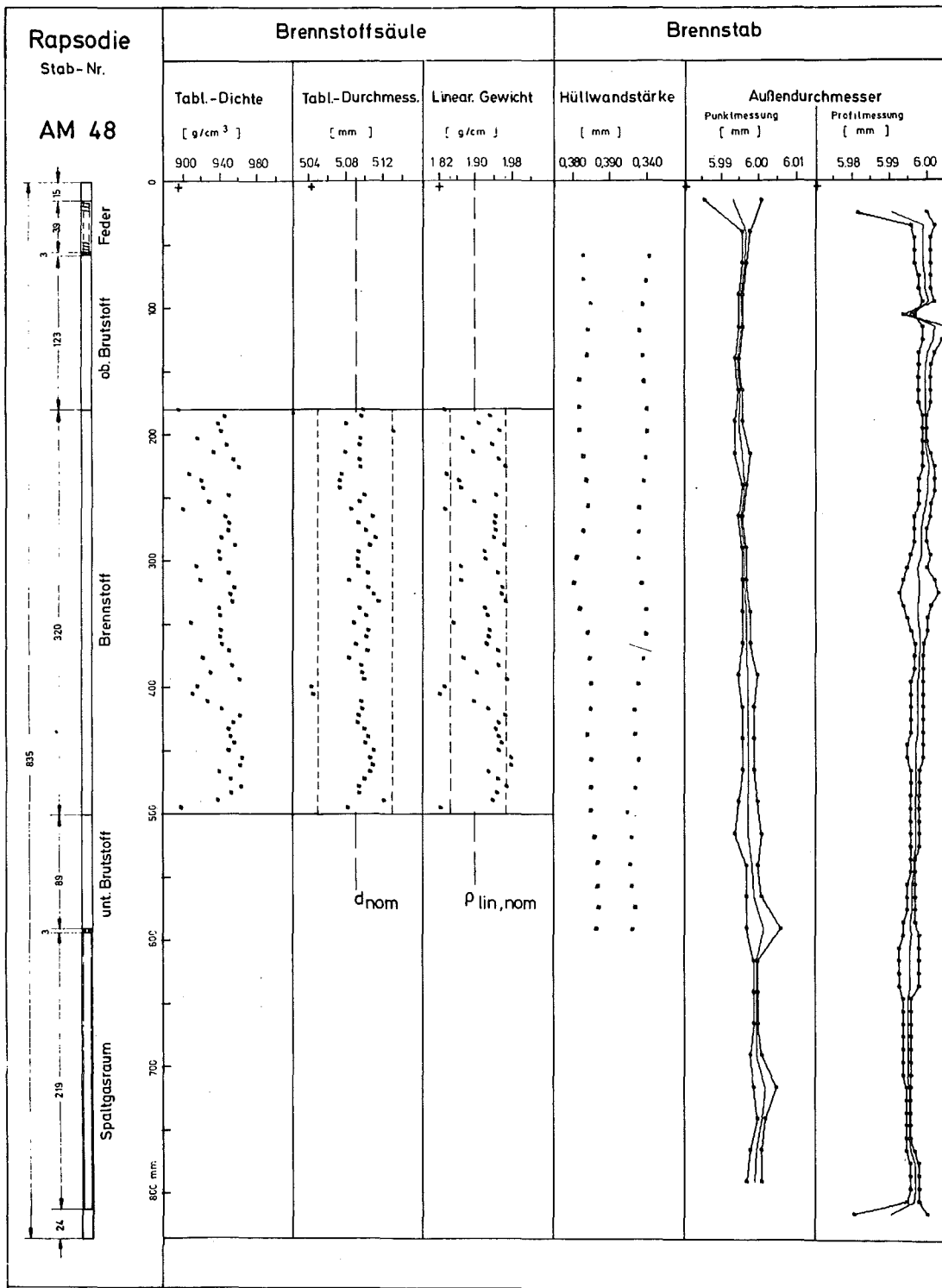


Abb. 3 Automatische Datenerfassung

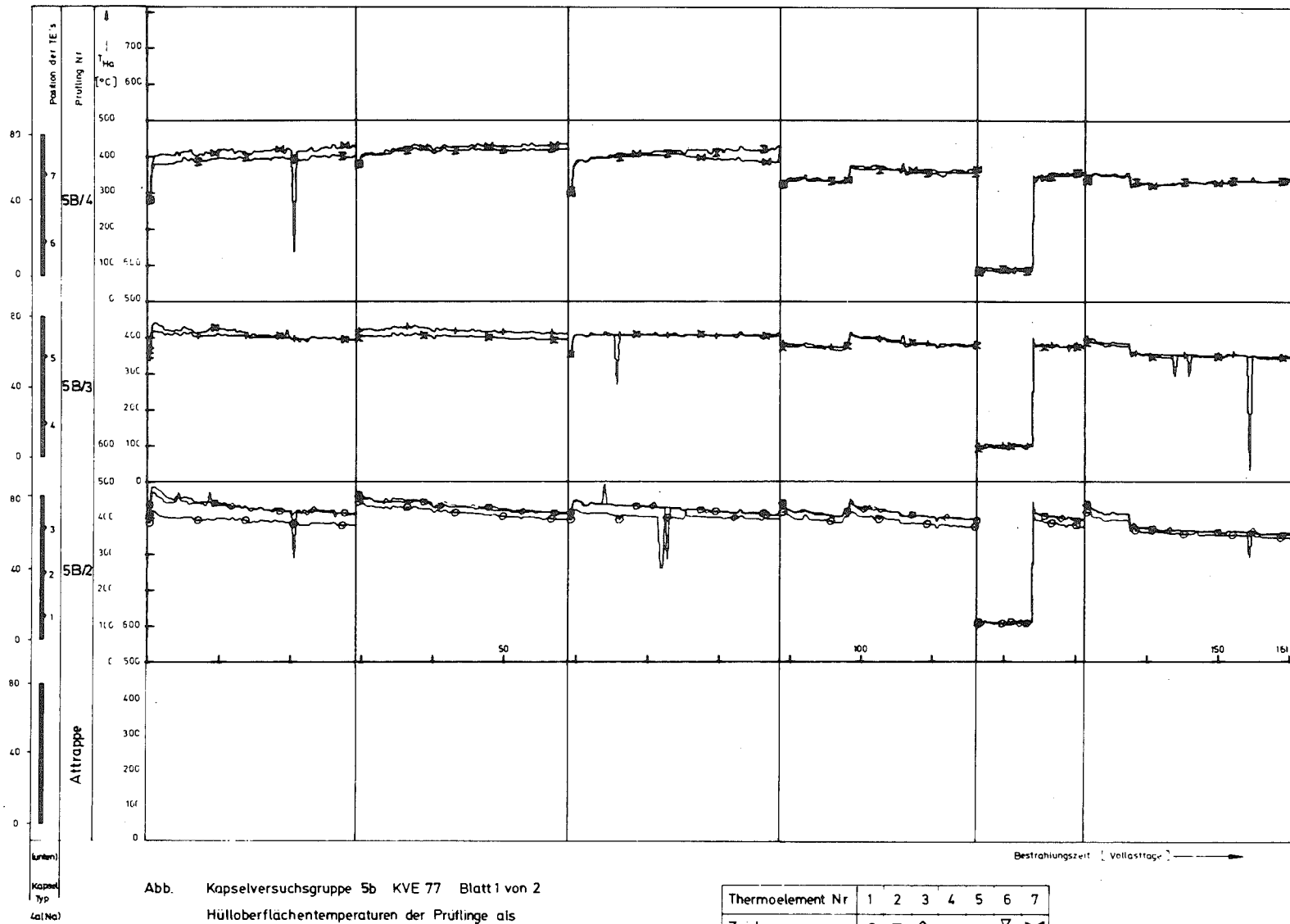


Abb. 4 Automatische Datenerfassung  
(Beispiel eines Bestrahlungsablaufs)

XIV. OXID-PROBENHERSTELLUNG FÜR DAS PSB-BESTRAHLUNGSPROGRAMM

von

H. Wedemeyer

Inhalt:

1. Aufgabenstellung
2. Auswirkungen der Spezifikation auf die Herstellung
3. Grundzüge der Brennstoffherstellung
4. Weiterführende Aufgaben der Brennstoffherstellung

## 1. Aufgabenstellung

Im Rahmen der Brennstoffentwicklung wird vom PSB ein umfangreiches Bestrahlungsprogramm abgewickelt, das von der Untersuchung einzelner Parameter in Kurzstabprüflingen bis hin zum Bündelverhalten assemblierter Stäbe in Originalgröße reicht. Diesem Programm entsprechen umfangreiche Brennstoff-Herstellungsaktivitäten, die sich ihrerseits vom Laborbetrieb bis zur industriellen Fertigung des  $UO_2/PuO_2$ -Tablettenbrennstoffes erstrecken, wobei die Hauptaufgabe des Laborbetriebes die Herstellung von Kurzstabprüflingen für Parameteruntersuchungen ist, d.h. die Herstellung kleinerer Brennstoffmengen meist ausgefallenerer Spezifikationen oder Provenienzen.

Aus dieser Aufgabenstellung ergeben sich zum Teil wesentliche Unterschiede zwischen der Herstellung im Laborbetrieb und der industriellen Fertigung - einer individuellen Herstellung spezieller Prüflinge zum einen und einer auf technologischer und wirtschaftlicher Rationalisierung basierenden Produktion zum anderen. In den Tabellen 1 und 2 sind nachfolgend die wichtigsten Brennstoff- und Brennstabprüflinge, die im Plutonium-Labor des IMF hergestellt worden sind, zusammengestellt.

## 2. Auswirkungen der Spezifikation auf die Herstellung

Grundlage der Herstellung und Fertigung von Brennstoff- und Brennstabprüflingen ist ihre Spezifikation. Das bedeutet aber zugleich: Der hergestellte Brennstoff ist nur so gut wie die Spezifikation selber. Die gegenwärtigen Spezifikationen für den im Labor hergestellten Brennstoff enthalten fünf wesentliche Forderungen, die für die Fertigung entscheidend sind:

- 1.) Die Verunreinigungen sollen so gering wie möglich sein !

Als wesentliche Verunreinigungen sind hierbei die chemischen mit Kohlenstoff  $< 1000$  ppm, Chlor  $< 10$  ppm und Fluor  $< 1$  ppm sowie die durch den Sinterprozeß und evtl. Lagerung bedingten Verunreinigungen mit Restwassergehalt  $< 100$  ppm und Restgasgehalt  $< 0,1$  Ncm<sup>3</sup> einzeln spezifiziert. Die zu erwartende Verschärfung der Spezifikationen hinsichtlich

der Restgehalte an Kohlenstoff (etwa  $< 50$  ppm), adsorbiertem Wasser (etwa  $< 50$  ppm) sowie des Restgasgehaltes (etwa  $< 0,09$  Ncm<sup>3</sup>/g) haben auf die Fertigung einen unmittelbaren Einfluß. Unter den verschärften Bedingungen sind die Pulver bindemittelfrei zu pressen, nach dem Sintervorgang unmittelbar im Hochvakuum bei Temperaturen oberhalb 1000°C zu entgasen und möglichst ohne längere Zwischenlagerung unter Luft ausgeheizt in die Hüllrohre abzufüllen.

- 2.) Die Verteilung des Plutoniums im Brennstoff soll homogen sein !

Angestrebt wird eine weitgehend homogene Plutoniumverteilung in den Brennstofftabletten. Wird, was nicht unwahrscheinlich erscheint, eine statistische Verteilung in jedem beliebigen Querschnitt einer Brennstofftablette bei einer Teilchengröße von  $< 100$  µm gefordert, so muß bei nicht kopräzipitierten Pulvern nach dem mechanischen Mischvorgang zusätzlich ein weiterer Verfahrensschritt, ein mehrstündiges Mahlen der gemischten Pulver angeschlossen werden.

- 3.) Der Brennstoff soll nachsinterstabil sein !

Entsprechend der Definition der Nachsinterstabilität beträgt bei Wiederholung des Sinterns die weitere Verdichtung des Brennstoffes etwa 0,75 bis 1,0 % th.D.. Diese Werte werden durch entsprechend hohe Kalzinations-Temperaturen erreicht. Geringere Nachsinterraten von z.B.  $< 0,5$  % th.D. sind wohl nur durch eine Änderung des Herstellungskonzeptes zu erreichen, etwa durch Verwendung hochsinterfähiger Brennstoffpulver unter Zugabe porositätsfördernder Substanzen wie Ammoniumdiuranat oder Uranyloxalat. Damit würde das Leervolumen gezielt in eine hochdichte Brennstoffmatrix eingebracht werden.

- 4.) Der Brennstoff soll maßgesintert sein !

Der maßgesinterte Tablettenbrennstoff wird gegenwärtig nur für die Herstellung im Labormaßstab gefordert. Die bei der maßgesinterten Tablette unvermeidlich auftretenden Abweichungen von der Rotationssymmetrie wie Ovalitäten des kreisförmigen Querschnittes bedingen eine vollständige Vermessung der Tabletten zur genauen Bestimmung der Dichte. Neben der Erfassung von Höhe und Durchmesser ist unbedingt das Ausmessen der Ovalität an beiden Tablettenenden notwendig. Dieses beinhaltet zugleich einen erheblichen Aufwand an Meßtechnik sowie Speicherung und Verarbeitung der Meßdaten.

- 5.) Die Verteilung der Porosität soll bekannt sein !

Der Einfluß der Porosität auf das in-pile-Verhalten des Tablettenbrennstoffes führt möglicherweise zu einer engeren Fassung der bisherigen Spezifikationen. Eine homogene Porenverteilung im Sinterling bei definierter Porengrößenverteilung ist anzustreben. Dieses führt ebenso wie die Forderung nach sehr hoher Nachsinterstabilität zu einem Herstellungskonzept, bei dem die Porosität gezielt durch porositätsfördernde Substanzen eingebracht werden muß.

3. Grundzüge der Brennstoffherstellung

Neben den in Abschnitt 2 beschriebenen, als Grundspezifikation anzusehenden Vorschriften sind im Laborbetrieb häufig Sonderwünsche zu realisieren, wie etwa die Anfertigung axialer Bohrungen spezifizierter Durchmesser, extremer Unterstöchiometrien oder die Assemblierung spezieller Prüflinge.

Zur Herstellung der Brennstofftabletten gehören aufgrund der Aufgabenstellung, trotz meist geringer Brennstoffmengen, häufig umfangreiche Vorversuche, anhand derer die Fertigung vorgenommen wird. Hierzu gehören z.B. Versuche zur Nachsinterstabilität des Brennstoffes, Versuche zur Einstellung des  $H_2/H_2O$ -Verhältnisses zum Maßsintern bei vorgegebener Stöchiometrie und Dichte oder Versuche zum Rißverhalten beim Anbringen einer zentralen, axialen Bohrung.

Der endgültigen Fertigung der Brennstofftabletten liegt das in der Abb. 1 wiedergegebene Herstellungsschema zugrunde. Hiernach werden die analysierten und mechanisch gemischten Pulver entsprechend der spezifizierten Tablettendichte und um eine hohe Nachsinterstabilität zu erreichen, bei Temperaturen um  $1200^{\circ}C$  kalziniert und anschließend, um ein frei fließendes Pulver für die weitere Verarbeitung zur Verfügung zu haben, granuliert. Nachdem die Pulver zu sinterfähigen Preßkörpern verdichtet worden sind, erfolgt das Sintern der Tabletten bei Temperaturen um  $1600$  bis  $1700^{\circ}C$  unter strömendem Argon/Wasserstoffgemisch. Im Laborbetrieb erfolgt das Sintern im "Batch-Verfahren", wobei die Sinterzeiten zwischen 4 und 8 Stunden variieren können. Die ausgesinterten Tabletten werden sodann bezüglich Dichte, Stöchiometrie sowie der geforderten chemischen Analysen

ausgewertet, zu Brennstoffsäulen sortiert und in die zuvor gereinigten Hüllrohre kontaminationsfrei abgefüllt. Die Fertigung der Brennstabprüflinge wird mit dem Verschweißen und der Endkontrolle der Prüflinge abgeschlossen.

#### 4. Weiterführende Aufgaben der Brennstoffherstellung

Aus der unterschiedlichen Aufgabenstellung der industriellen Brennstoffherstellung und der Fertigung im Laborbetrieb ergeben sich ebenso unterschiedliche Aufgaben für die zukünftige Weiterentwicklung. Während im industriellen Bereich die Herstellung des Massenproduktes Tablettenbrennstoff den Aufbau einer weitgehend automatisierten Herstellungslinie und die Rationalisierung aller Verfahrensschritte erforderlich macht, wird im Laborbetrieb die Weiterentwicklung des Brennstoffes im Vordergrund stehen. Hierzu gehören die Erfassung und Verarbeitung aller der Messung zugänglicher Daten, die Erprobung verschiedener Varianten zur Optimalisierung der bisherigen Herstellungsschemata sowie das Erarbeiten neuer Brennstoffkonzepte.

Tabelle 1 Im Plutonium-Labor des IMF hergestellte Prüflinge  
- Bestrahlungsversuche im BR 2 in Mol -

Vers.Gr.	V e r s u c h	Prüflinge	Brennst.-Säule
Mol-7A	Abbrandversuch	9 Stäbe	500 mm
Mol-7B	Brennst. Varianten 14-Stab-Bündel	3 Stäbe	500 mm
Mol-8A/B	Spaltgasdruck	4 Stäbe	500 mm
Mol-8C	Spaltgasdruck	10 Stäbe	520 mm
Mol-8D	Temp. Zentralkanal	13 Stäbe	80 mm
Mol-12B	Brennstoff-Kriechen	40 gebohrte Tabletten-Scheiben	
Mol-10	Brennstoff-Schwellen	noch nicht durchgeführt	
Mol-16/I	Verträglichkeit	8 Stäbe	72 mm
	Brennstoff-Hülle	8 Stäbe	30 mm
Mol-17	Brennstoff-Tabletten mit größerem Durchmesser	noch nicht spezifiziert	
Mol-16/II	Verträglichkeit	in Planung	

Tabelle 2 Im Plutonium-Labor des IMF hergestellte Prüflinge  
- Bestrahlungsversuche im FR 2 -

Vers.Gr.	V e r s u c h	Prüflinge	Brennst.-Säule
Loop-Vg. 3	Anfahrverhalten	34 Stäbe	140 mm
Loop-Vg. 5	mechanische Wechselwirkung Brennstoff-Hülle	44 Stäbe	40 mm
Vg. 4a	Brennstoffkonzept	28 Stäbe	80 mm
Vg. 4b	Brennstoffkonzept	35 Stäbe	80 mm
Vg. 4c	Hüllrohrtest	12 Stäbe	80 mm
Vg. 5a	integrierte Dichte	6 Stäbe	80 mm
Vg. 5b	Konzept FR 3	18 Stäbe	80 mm
Vg. 5c	Konzept Vanadium (V-3 Ti-1 Si)	12 Stäbe	80 mm
Vg. 8/I	Verträglichkeit	noch nicht spezifiziert	
Vg. 73d	Brennstoff-Kriechen	60 gebohrte Tabletten-Scheiben	
Vg. 8/II	Verträglichkeit	in Planung	



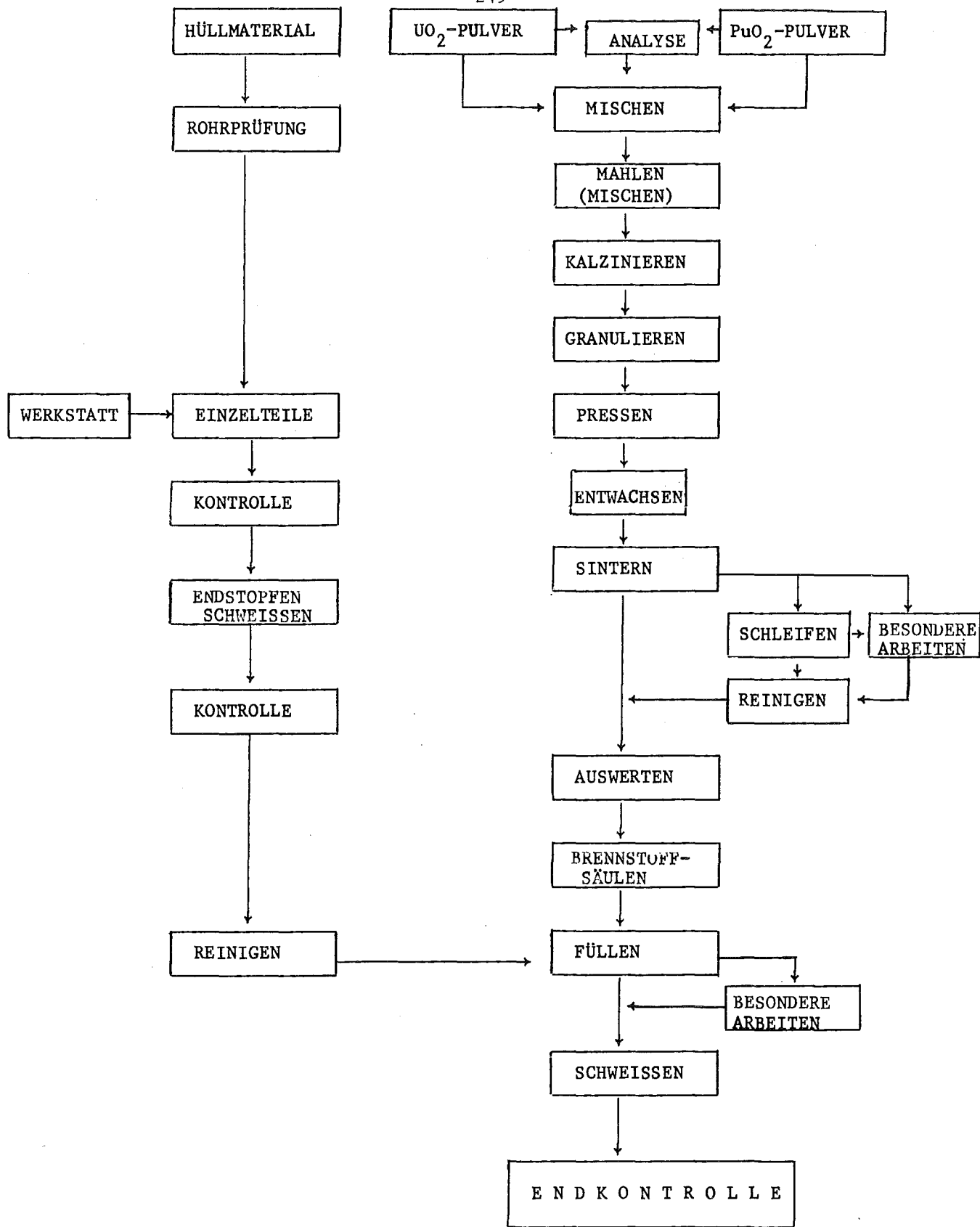


Abb. 1 Herstellung der Oxidprüflinge



XV. QUALITÄTSKONTROLLE AN BRENNSTOFFEN, HÜLLROHREN und BRENNSTÄBEN

von

D. Vollath, O. Jacobi

Inhalt:

1. Umfang der Kontrolle
2. Verfahren zur Qualitätskontrolle des Brennstoffes
  - 2.1 Bestimmung des Sauerstoff/Metall-Verhältnisses
  - 2.2 Bestimmung der Plutoniumhomogenität
  - 2.3 Bestimmung der Plutoniumteilchengrößen
3. Verfahren zur Qualitätskontrolle der Hüllrohre und Brennstäbe

## 1. Umfang der Kontrolle

Die Qualitätskontrolle von Schnellbrüter-Brennstäben muß alle Teile eines Brennstabes und den Brennstab selbst umfassen. Zu diesen Teilen des Brennstabes gehören

- der Brennstoff
- das Hüllrohr
- die Strukturteile.

Die Tabelle 1 gibt eine Übersicht über alle Größen, die beim Brennstoff überwacht werden müssen. Die in Tabelle 1 aufgezeigten Größen zerfallen in zwei Gruppen:

- Größen, die während der Tablettenfertigung durch Änderung einzelner Verfahrensschritte beeinflusst werden können und
- Größen, die während der Tablettenfertigung nicht mehr beeinflusst werden können.

Mit Ausnahme des Pu/U+Pu-Verhältnisses, den Verunreinigungen und dem Isotopengehalt gehören alle anderen Größen der ersten Gruppe an. Bei unseren eigenen Arbeiten zur Entwicklung von Prüfverfahren für Kernbrennstoffe beschränken wir uns auf ausgewählte Größen der ersten Gruppe.

In Tabelle 2 sind die Größen zusammengestellt, die an den Hüllrohren geprüft werden müssen. Die in der Gruppe "Geometrie des Hüllrohres" zusammengestellten Größen Außendurchmesser, Innendurchmesser und Wandstärke sind keine geometrische Überbestimmung, da man nicht davon ausgehen darf, daß die äußere und die innere Mantelfläche des Hüllrohres konzentrische Kreise bilden. Ein Problem, das bei der Hüllrohrprüfung in Zukunft an Bedeutung gewinnen wird, ist die Messung des Kaltverformungsgrades eines Hüllrohres sowie die Bestimmung der Verteilung der Kaltverformung über die Hüllrohrlänge.

Am fertigen Brennstab sollen - soweit es möglich ist - alle an den Einzelteilen durchgeführten Prüfungen noch einmal wiederholt werden. Die im einzelnen wünschenswerten Prüfungen sind in Tabelle 3 zusammengestellt. Man darf nicht annehmen, daß die Wiederholung von Prüfungen, die an den Einzelteilen schon einmal durchgeführt wurden, unnötige Arbeit wäre. So ist es von entscheidender Bedeutung, die Ovalität des Hüllrohres am fertigen Brennstab nachzuweisen, um Brennstäbe, die während der Fertigung

deformiert wurden, aussondern zu können (s.a. Abb. 12). Eine besonders wesentliche, bisher noch nicht durchgeführte Prüfung am Brennstab ist die Prüfung auf Plutoniumgehalt und Plutoniumverteilung.

Es muß sichergestellt werden, daß keine Vertauschungen von verschiedenen Tablettenarten, insbesondere von Brut- und Brennstofftabletten stattgefunden haben. Es ist durch administrative Maßnahmen nicht unbedingt sichergestellt, daß in jedem Stab auch wirklich die geforderte und dokumentierte Anzahl von Tabletten ist. Daß man grundsätzlich damit rechnen muß, daß in den Stäben etwas anderes ist, als auf den Fertigungsprotokollen vermerkt wurde, sei an folgenden Beispielen aufgezeigt:

- in einem Stab des Versuches DFR-350 fehlte eine Tablette,
- in einem Stab für einen Rapsodie-Versuch war eine Tablette zuviel,
- bei der Herstellung des SEFOR-Kernes war in einer größeren Zahl von Stäben weniger Plutonium als spezifiziert.

## 2. Verfahren zur Qualitätskontrolle des Brennstoffes

### 2.1 Bestimmung des Sauerstoff/Metall-Verhältnisses

Die bisher angewandten Verfahren zur Messung des O/Me-Verhältnisses von Kernbrennstoffen befriedigen nicht. Diese Verfahren sind im allgemeinen langsam, zerstören die Proben und sind nicht automatisierbar. Das sind Eigenschaften, die ein eine größere Produktion begleitendes Verfahren nicht haben sollte. Welches sind nun die Eigenschaften eines "Idealverfahrens" ?

- Es soll schnell sein, so daß die Meßergebnisse so schnell wie möglich zur Steuerung des Produktionsprozesses zur Verfügung stehen.
- Es soll nicht zerstörend sein, daß man seinen statistisch relevanten Querschnitt jeder Charge - bzw. Schiffchens - durchmessen kann.
- Es soll automatisierbar sein, um die obigen Vorteile auch ausnützen zu können.

- Es soll genau sein. Hier muß man allerdings einschränkend fragen, ob nicht eine hohe Relativgenauigkeit ausreichend ist. Schließlich sind wir ja nur an der Schwankungsbreite einer Charge interessiert.
- Das Verfahren soll überprüfbar sein.

Wenn man sich überlegt, wie man die bestehenden Meßverfahren modifizieren muß, um die oben genannten Bedingungen zu erfüllen, so wird man bald merken, daß man auf grundsätzliche Schwierigkeiten stößt. Es ist also ein neuer Ansatz notwendig. Dieser Ansatz darf allerdings nicht zu neu sein, da in endlicher Zeit ein Verfahren mit endlichen Mitteln eingeführt werden sollte. Aus diesem Grunde haben wir uns für die elektrochemische Messung des Sauerstoffpotentials der Brennstoffproben entschieden. Bei diesem Verfahren handelt es sich um ein relatives Meßverfahren, das entweder über die Thermodynamik oder mit Hilfe von Vergleichsmessungen geeicht werden kann. Im Prinzip mißt man dabei die Differenz zweier chemischer Potentiale auf elektrischem Wege. Eines der beiden Potentiale wird mit Hilfe eines gut bekannten Metall-Metalloxid-Gemisches aufgebaut. Hier haben sich die Mischungen Fe/FeO und Ni/NiO besonders gut bewährt. Diese beiden Oxide haben noch den weiteren Vorteil, daß ihre thermodynamischen Daten sehr gut bekannt sind. Aus diesem Grunde eignen sich diese beiden Oxide auch zur Überprüfung der Funktionsfähigkeit der Anlage. Damit konnten wir auch ein Verfahren festlegen, mit dem die Anlage regelmäßig überprüft werden kann. Wegen der starken Streuung der Literaturwerte für die thermodynamischen Daten oxidischer Kernbrennstoffe ist eine experimentelle Eichung der Anlage notwendig.

Die Abb. 1 zeigt die technische Realisierung dieses eben geschilderten Konzeptes. In dieser Abb. ist links der Meßschrank und rechts die Box, in der die eigentliche Meßapparatur untergebracht ist. Im Meßschrank sind alle Stromversorgungseinheiten, der Temperaturregler und ein als Prozeßrechner geschalteter Rechner mit der dazugehörigen Magnetbandeinheit und der Interface für das Digitalvoltmeter untergebracht.

Das stark vereinfachte Flußdiagramm des Rechenprogrammes, das zur Steuerung und Auswertung der Versuche benutzt wird, ist in Abb. 2 dargestellt.

Die Abb. 3 zeigt eine Zeichnung des Meßsystems. Man sieht eine Anordnung, bei der die zu messende Probe und die Standardprobe durch einen  $ZrO_2$ -Tiegel räumlich voneinander getrennt sind. Innerhalb und außerhalb des  $ZrO_2$ -Tiegels liegt eine dotierte  $ThO_2$ -Scheibe. Die Spannung wird an den beiden Elektroden mit Platindrähten abgegriffen.

Stellt man die Frage, ob die eingangs aufgestellten Bedingungen für ein neues Verfahren von dem vorgestellten elektrochemischen Verfahren auch erfüllt werden, so findet man die Antwort am besten, indem man dieses Verfahren mit dem eingeführten gravimetrischen Verfahren vergleicht. In Tabelle 4 sind die entsprechenden Daten gegenübergestellt. Wir sehen, daß das elektrochemische Meßverfahren alle Anforderungen erfüllt, mit Ausnahme der Absolutmessung. Daher kann auch bei der hohen relativen Genauigkeit, die dieses Verfahren hat, keine bessere absolute Genauigkeit erzielt werden, wie beim thermogravimetrischen Verfahren, da dieses zur Eichung herangezogen werden muß.

## 2.2 Bestimmung der Plutoniumhomogenität

Hier schreibt die Spezifikation beispielsweise  $30 \pm 1 \%$  Pu vor. Verschärfend kommt hinzu, daß nach Ansicht des Spezifikateurs diese Spezifikation auch für Teile einer Tablette gelten soll. Selbstverständlich wird dieses Teilen dort sinnlos, wo man in die atomaren Dimensionen kommt. Wir wollen nun prüfen, ob eine Spezifikation  $30 \pm 1 \%$  für alle Tabletten in der Praxis erfüllt werden. Dazu haben wir von einer Tablette eine Autoradiografie angefertigt und diese dann mit einem automatischen Bildanalysator ausgewertet. Das Ergebnis zeigt Abb. 4. In dieser Abb. sind die relativen Konzentrationsabweichungen von der mittleren Pu-Konzentration der Probe eingetragen. Die Größe der Felder ist  $500 \times 500 \mu m^2$ . Man erkennt, daß die größten Abweichungen im Bereich von  $\pm 18$  rel. % liegen. Das ist wesentlich mehr, als es der Wunschspezifikation von  $\pm 3,3$  rel. % entspricht. Man kann nun einwenden, daß diese Felder unsinnig klein gewählt wurden. Um diesem Einwand zu begegnen, wurden für die nächste Abb. 5 je 9 Felder zu einem neuen Feld zusammengefaßt. Jetzt beträgt die Feldgröße  $1500 \times 1500 \mu m^2$ . Wie man aber sieht, kann selbst bei diesen doch sehr großen Feldern die Wunschspezifikation nicht eingehalten werden. Es ist also notwendig, entweder die Herstellungsmethoden zu verbessern,

oder aber eine den Realitäten angepaßte Spezifikation zu machen. Man sollte die Spezifikation im Sinne des Herstellers vielleicht so ändern, daß man davon ausgeht, daß die zulässigen  $\pm 1\%$  die maximal zulässige Schwankung eines Mittelwertes ist, welches durch eine Mittelung über alle Teile einer Probe gewonnen wurde. Dann ist die zulässige Schwankung der einzelnen Felder  $\sigma_E$

$$\sigma_E = \sigma_M \cdot \sqrt{n} \quad .$$

In dieser Formel ist  $n$  die Zahl der Felder und  $\sigma_M$  die Schwankung des Mittelwertes.

Wenden wir diese Überlegungen auf die in den vorhergehenden Abb. 4 und 5 gezeigten Messungen an, so erhalten wir für neun Messungen ein zulässiges Streuband von  $10\%$ , während  $12,8\%$  gefunden wurde. Bei 81 Messungen ist dann das zulässige Streuband  $30\%$ ,  $23,5\%$  wurden aus den Meßwerten errechnet.

Es ist nun interessant zu bemerken, daß der Wert für 81 Messungen innerhalb und der für 9 Messungen außerhalb der Spezifikation liegt. Für den Hersteller heißt das, daß zwar die Teilchengrößen hinreichend klein sind, um der Spezifikation im Mikrobereich zu entsprechen, aber diese Teilchen nicht hinreichend gut vermischt wurden, so daß nach dem Mischen Mikroinhomogenitäten zurückgeblieben sind.

Überlegt man sich, bei welchen Feldgrößen Plutoniumkonzentrationen zwischen  $90$  und  $100\%$  auftreten können, so kommt man bei  $30 \pm 1\%$  Pu (bezogen auf den  $3\sigma$  Streubereich) auf eine maximale Teilchengröße von etwa  $110\ \mu\text{m}$  Durchmesser.

### 2.3 Bestimmung der Plutoniumteilchengrößen

Aus Sicherheitsgründen ist die Größe der Plutoniumteilchen in den Brennstofftabletten begrenzt. Aus diesem Grunde muß die Größe der Plutoniumteilchen vermessen werden. Wenn man eine Teilchengrößenverteilung messen will, so muß man sich zuerst darüber klar werden, was eine Teilchengröße ist. Im Falle eines kugelförmigen Teilchens ist die Sache klar. Wie aber ist es im Falle eines stark elliptisch geformten Teilchens? Soll man die große Sehnenlänge als Teilchengröße nehmen? Einen aus einer



Flächenmessung gewonnenen mittleren Radius ? Es gibt noch eine Reihe verschiedener Definitionen für Teilchengrößen. Will man sich für eine entscheiden, so muß man die Frage stellen, woher im vorliegenden Fall die Begrenzung der Teilchengröße kommt. Da nun die Begrenzung der Teilchengröße im wesentlichen ein Problem der Wärmeleitung ist, ist für die Begrenzung der Teilchengröße in erster Näherung der größte einschreibbare Kreis zu wählen, da für alle anderen Punkte eines Teilchens günstigere Voraussetzungen für die Ableitung der Wärme vorliegen. Die Abb. 6 zeigt ein experimentelles Ergebnis einer Klassierung nach Sehnenlängen und nach eingeschriebenen Kreisen. Man erkennt deutlich, daß die Definition des eingeschriebenen Kreises als Maß für die Teilchengröße einen großen Vorteil für den Hersteller darstellt, da man nach dieser Methode bei der vorliegenden Probe eine maximale Teilchengröße von etwa 150  $\mu\text{m}$  findet. Bei einer Klassierung nach Sehnenlängen findet man Teilchengrößen von bis zu 250  $\mu\text{m}$ .

Wenn man dem Hersteller bei der Definition der Teilchengröße hier sehr weit entgegenkommen kann, so muß sich aber der Hersteller andererseits die Frage noch gefallen lassen, ob sich nicht etwa in der Umgebung eines großen Teilchens ein weiteres großes Teilchen befindet.

An dieser Stelle muß aber darauf hingewiesen werden, daß die Plutoniumhomogenität und die Teilchengrößen miteinander über statistische Funktionen korreliert sind. Wenn eine Spezifikation  $30 \pm 1 \%$  (im  $3 \sigma$  Streubereich) lautet und eine maximale Teilchengröße von 300  $\mu\text{m}$  zugelassen ist, so wird der Hersteller bei der Einhaltung des Plutoniumgehaltes von Tablette zu Tablette in Schwierigkeiten geraten, wenn die maximal zulässige Teilchengröße ausgeschöpft wird.

### 3. Verfahren zur Qualitätskontrolle der Hüllrohre und Brennstäbe

Die wichtigste bei der Qualitätskontrolle des Hüllrohres angewandte Einrichtung ist die in Abb. 7 dargestellte Universalprüfbank. Das zu prüfende Hüllrohr bzw. der einseitig verschweißte Brennstab bewegt sich, durch die beiden Transportköpfe angetrieben, schraubenförmig durch die Meßanordnung, die in einem Durchgang die Wanddicke und den Außendurchmesser kontinuierlich

mißt. Gleichzeitig erfolgt eine zerstörungsfreie Prüfung mit Wirbelstrom und Ultraschall (US) auf Materialfehler. In der Abb. 7 erkennt man unterhalb der Meß- und Registriergeräte die beiden Antriebsköpfe. Links neben dem linken Antriebskopf befinden sich die induktiven Wegaufnehmer für die Außendurchmesserkontrolle. Zwischen beiden Antriebsköpfen befindet sich das große Wasserbad für die Ultraschallrißfehlerprüfung, die mit einem US-Meßkopf für Wanddickenmessung (links vom Wasserbad) ergänzt wird.

Bei der Innendurchmesserprüfung wird die pneumatische Methode angewandt. Dabei fährt ein Düsendorn mit zwei diametral angeordneten Bohrungen in das langsam rotierende Rohr (Abb. 8). Der Druckabfall zwischen den Austrittsdüsen und den Hüllinnenflächen ist in den geforderten Toleranzbereichen von  $\pm 30 \mu\text{m}$  linear proportional zur diametralen Spaltweite zwischen Düsendorn und Hülle. Dieser Druckabfall wird am Ende des Düsendornträgerrohres gemessen.

Zur Prüfung der Oberflächenqualität werden die Hüllrohr- und Brennstabinnen- und -außenflächen mit einer feinen Tastnadel abgefahren. Als Ergebnis erhält man quantitative Daten für die Mikrogestalt dieser Flächen. Im wesentlichen sind dies die Werte für die Rauhtiefe und die Welligkeit. Ebenso können die Rechenwerte des arithmetischen und des quadratischen Mittenrauhwertes ermittelt werden.

Eine wichtige Ergänzung der zerstörungsfreien Prüfmethode auf Materialfehler an Hüllrohren und Brennstäben ergibt sich durch die Anwendungsmöglichkeiten von Wirbelstrommeßverfahren. Während bislang für den SNR-300 sowie für die Verwendung von Hüllmaterial für Bestrahlungsexperimente nur die Ultraschall-Prüfung auf Materialfehler vorgeschrieben war, können seit der Entwicklung gleichstromgekoppelter Meßapparaturen ergänzend Wirbelstromprüfungen durchgeführt werden.

Gleichstromgekoppelte Wirbelstromprüfanlagen haben gegenüber den wechselstromgekoppelten Anlagen den Vorteil, daß sie das Fehlersignal nicht differenzieren. Dadurch wird die Größe der Fehleranzeige unabhängig von der Prüfgeschwindigkeit. Die ersten Betriebserfahrungen mit einer gleichstromgekoppelten Wirbelstrom-Meßapparatur zeigen die zwingende Notwendigkeit, neben einer US-Rißfehlerprüfung eine Wirbelstromprüfung zu etablieren.

Die für die Prüfung als Fehlerdetektor benutzte Spule trägt den Namen: "Koaxial-Durchlauf-Differenzspule". Die Anwendung der Spule in Verbindung mit dem Wirbelstromgerät führt zu einem Selbstvergleichsverfahren.

Die linke koaxial gewickelte Spule vergleicht die elektromagnetischen Daten mit denen der rechten Spule, wobei z.B. Fehlstellen im Hüllrohr zu Unsymmetrien führen. Die entstehende Differenzspannung ist verstärkt und gleichgerichtet ein Maß für die Störung bzw. Fehlergröße im Hüllmaterial.

In Abb. 9 ist die Notwendigkeit einer zusätzlichen Wirbelstromprüfung an einem besonders markanten Beispiel gezeigt. Während es bei der Ultraschall-Längs- und Querfehlerprüfung zu keiner Anzeige kommt, weist die Wirbelstromprüfung eine Fehlstelle aus. Da diese Fehlstelle reproduzierbar angezeigt wird, jedoch in dem betreffenden Bereich an der Außenfläche des Rohres keine Fehlstelle sichtbar ist, folgte die zerstörende Untersuchung des Rohres. Bei dieser Untersuchung wurde die in der Fotografie sichtbare Fehlstelle an der Rohrinne mit ca. 100  $\mu\text{m}$  Tiefe gefunden. Sehr interessant ist es, daß auch bei der Wanddickenmessung und bei der Innendurchmesserprüfung diese hier gezeigte Fehlstelle registriert wurde. Bei der Wanddickenmessung wurde der Meßbereich überschritten, so daß es zu einem "Aussetzer" bei der Registrierung kommt. An der Fehlstelle weist die Innendurchmesserprüfung einen größeren Durchmesser aus. Dieser Sachverhalt bestätigt, daß die Dimensionkontrolle der Hüllrohre und Brennstäbe Bestandteil der zerstörungsfreien Prüfung sein muß.

Überlegungen zu Möglichkeiten der quantitativen Datenerfassung an Brennstäben geben Veranlassung, an den Brennstäben im unteren Endstopfen eine punktförmige Markierung anzubringen (Abb. 10). Diese Markierung wird mit einem Spezial-Bohrer angebracht und hat einen Durchmesser von 0,2 mm bei einer Tiefe von ebenfalls 0,2 mm. Diese Markierung dient nun für alle weiteren Vermessungen als räumliche Ortskoordinate "0". Alle axialen und azimutalen Abstände beziehen sich auf diesen Nullpunkt.

Eine Prototyp-Meßbank, die bereits Bezug auf diesen 0-Punkt nimmt, ist in Abb. 11 dargestellt. Der axiale und azimutale Abstand der Meßposition von dem Nullpunkt wird mit den beiden Zählern direkt alphanumerisch angezeigt, so daß jeder Meßwert exakt seinem Raumkoordinaten zugeordnet werden kann. Diese Methode soll in Zukunft den Wendelschrieb ablösen, bei dem bislang die Zuordnung der Meßwerte zur exakten räumlichen Meßposition nicht möglich war. Ebenso läßt die Nullpunktmarkierung im unteren Endstopfen eine exakte Zuordnung der Meßwerte, für z.B. Außendurchmesser, auch nach der Bestrahlung zu.

Die Abb. 12 zeigt ein Beispiel für die Anbringung einer  $0^{\circ}$ -Markierung auf dem Registrierstreifen, wobei die  $0^{\circ}$ -Markierung auf dem Diagramm (rechts) mit der azimutalen Position der Nullmarke am Brennstab übereinstimmt. Technisch wird dieses Problem einfach dadurch gelöst, daß immer dann ein Markierungsschalter betätigt wird, wenn die azimutale Position " $0^{\circ}$ " erreicht ist. Der Übersicht halber zeigt die rechte Leiter hier nur jede fünfte  $0^{\circ}$ -Markierung. Während hier noch der Stab abgewendet wird, sollen in Zukunft von den Brennstäben die Meßwerte rasterförmig abgefragt werden, d.h. mit definierten axialen Wegschrittweiten und exakten azimutalen Winkelschrittweiten. Daraus ergeben sich dann Wertetripel, die aus den beiden Ortskoordinaten und dem Meßwert selbst bestehen.

Die Darstellung des Brennstab-Ist-Zustandes erlaubt eine schnelle objektive Beurteilung des Stabes vor der Bestrahlung. Bei Anwendung des gleichen Verfahrens am bestrahlten Brennstab können dann ebenfalls quantitativ sämtliche Änderungen erfaßt werden. Daraus resultiert wiederum eine quantitative Bewertung eines Bestrahlungsexperimentes mit der direkten Kopplung an bestehende Rechenprogramme im Hinblick auf Auslegung und Modelltheorie.

Tabelle 1: Prüfungen am Brennstoff

Geometrie	Struktur und Homogenität	Chemische Zusammensetzung
Durchmesser Länge Parallelität der Stirnfläche Konizität Risse Abplatzungen	offene - geschlossene Porosität Dichte (Porengrößenverteilung) räumliche Porositätsverteilung räumliche Pu-Verteilung Pu-Teilchengrößenverteilung	Pu/U+Pu-Verhältnis Verunreinigungen Isotopengehalt O/Me-Verhältnis Wassergehalt Gasgehalt

Tabelle 2: Prüfungen am Hüllrohr

Geometrie	Materialfehler	Werkstoff
Außendurchmesser (Ovalität) Innendurchmesser Wandstärke Rauigkeit	Risse Einschlüsse Riefen Oxidschichten	Chemische Zusammensetzung Korngröße Ausscheidungen Grad der Kaltverformung Festigkeit

Tabelle 3: Prüfungen am fertigen Brennstab

Geometrie	Röntgenprüfung	Sonstige
Außendurchmesser (Ovalität) Länge Schweißnaht-Durchmesser Durchbiegung Zapfenschlag	Säulenlänge Innerer Aufbau Abplatzungen und Risse der Tabletten Schweißnähte	He-Lecktest Kontamination Gewicht Gesamter Pu-Gehalt Pu-Verteilung

Tabelle 4: Charakterisierung der O/Me-Meßverfahren

	Thermogravimetrisch	Elektrochemisch
Absolutmessung	ja <sup>+</sup>	nein
Absolute Genauigkeit	$\pm 5 \times 10^{-3}$ O/Me	$\pm 5 \times 10^{-3}$ O/Me
Relative Genauigkeit	$\pm 5 \times 10^{-3}$ O/Me	besser $1 \times 10^{-3}$ O/Me
Zerstörungsfrei	nein	ja
Geschwindigkeit	4 h/Messung	1 min/Messung <sup>++</sup>
Automatisierbar	nein	ja
Prüfbarkeit	schlecht	gut

<sup>+</sup>) bei Definition des O/Me-Verhältnisses von 2

<sup>++</sup>) bei einer automatischen Anlage und geringem Wassergehalt der Proben

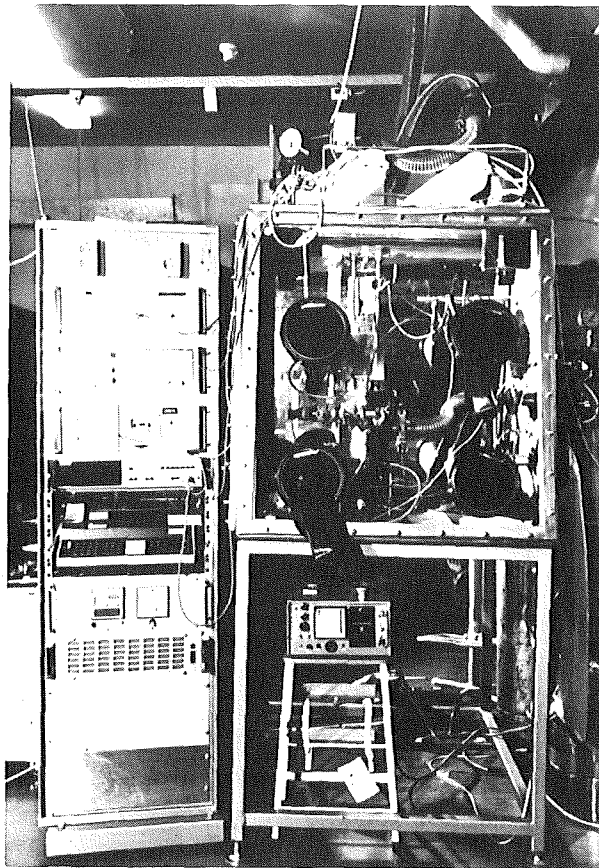


Abb. 1 Ansicht der O/Me-Meßanlage, die nach dem elektrochemischen Verfahren arbeitet

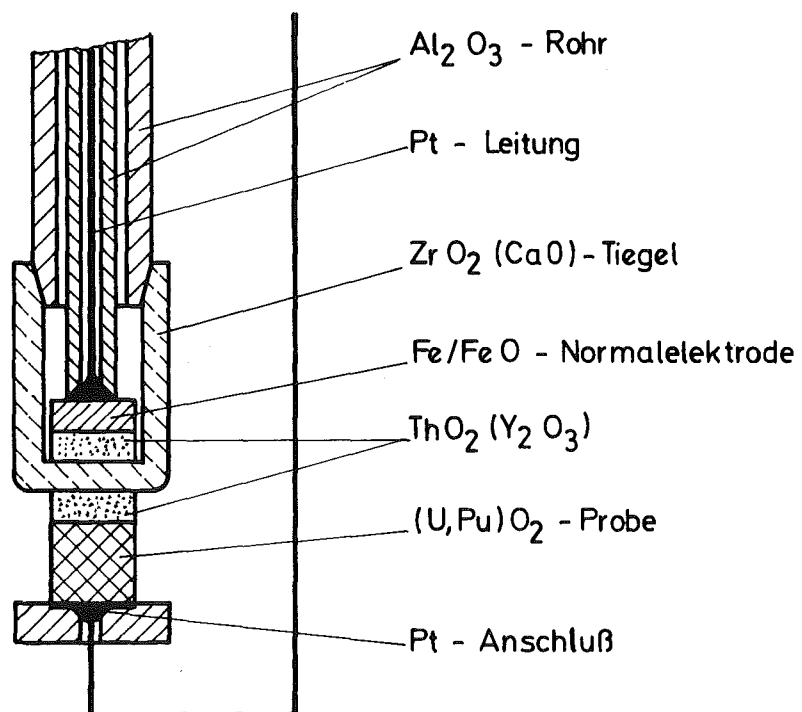
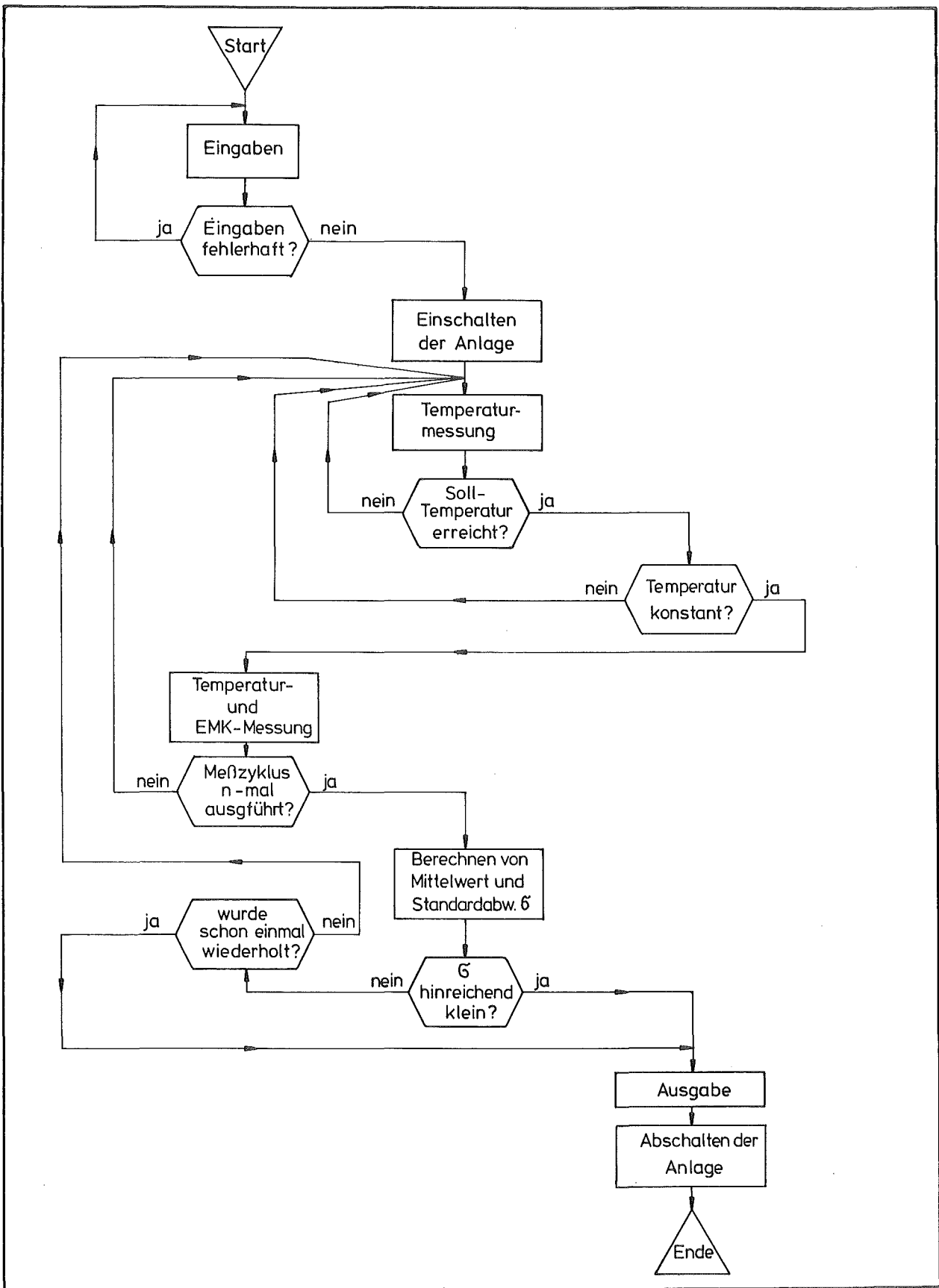


Abb. 3 Anordnung von Proben und Elektrolyten in der Meßzelle für die elektrochemische O/Me-Messung



**Abb. 2** Flußdiagramm für das Rechenprogramm zur Steuerung und Auswertung der O/Me-Messungen



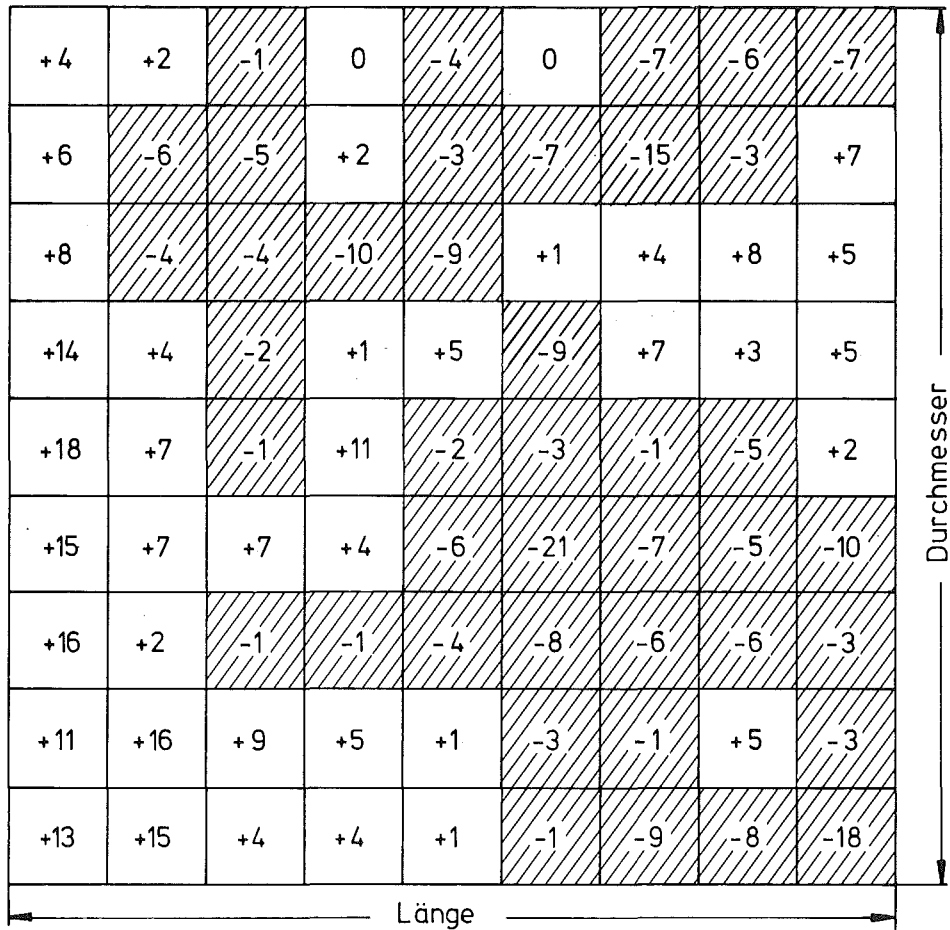


Abb. 4 Abweichung der Plutoniumkonzentrationen in Prozent vom Mittelwert. Feldgröße 500 x 500  $\mu\text{m}^2$

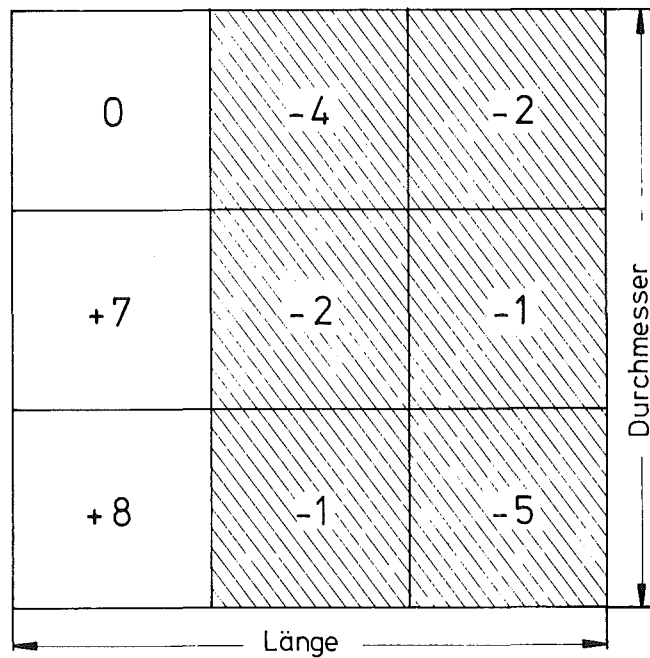
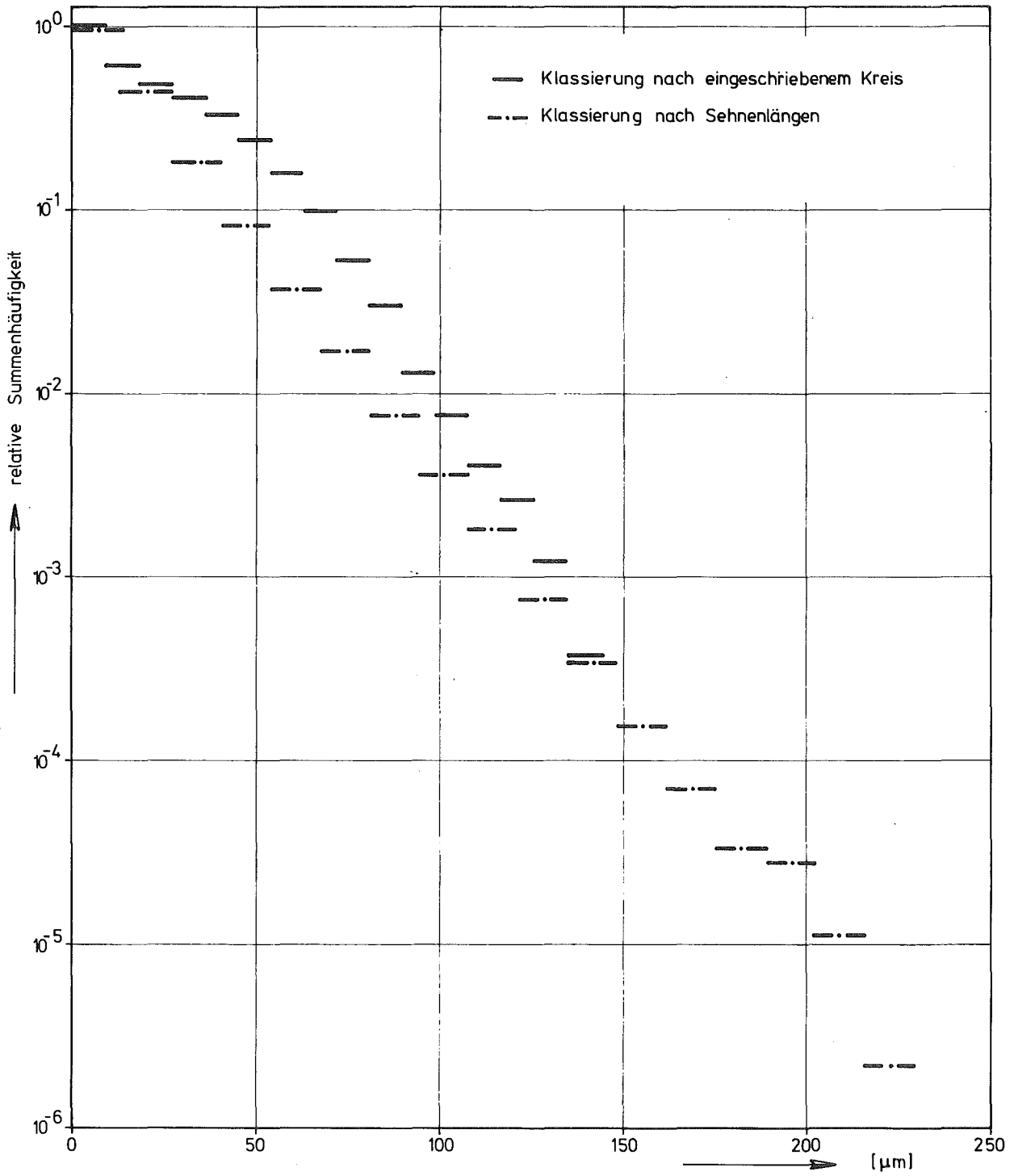


Abb. 5 Abweichung der Plutoniumkonzentrationen in Prozent vom Mittelwert. Feldgröße 1500 x 1500  $\mu\text{m}^2$



**Abb. 6** Plutonium-Teilchengrößenverteilung  
Gegenüberstellung einer Klassierung nach Sehnenlängen und einer  
Klassierung nach eingeschriebenem Kreis

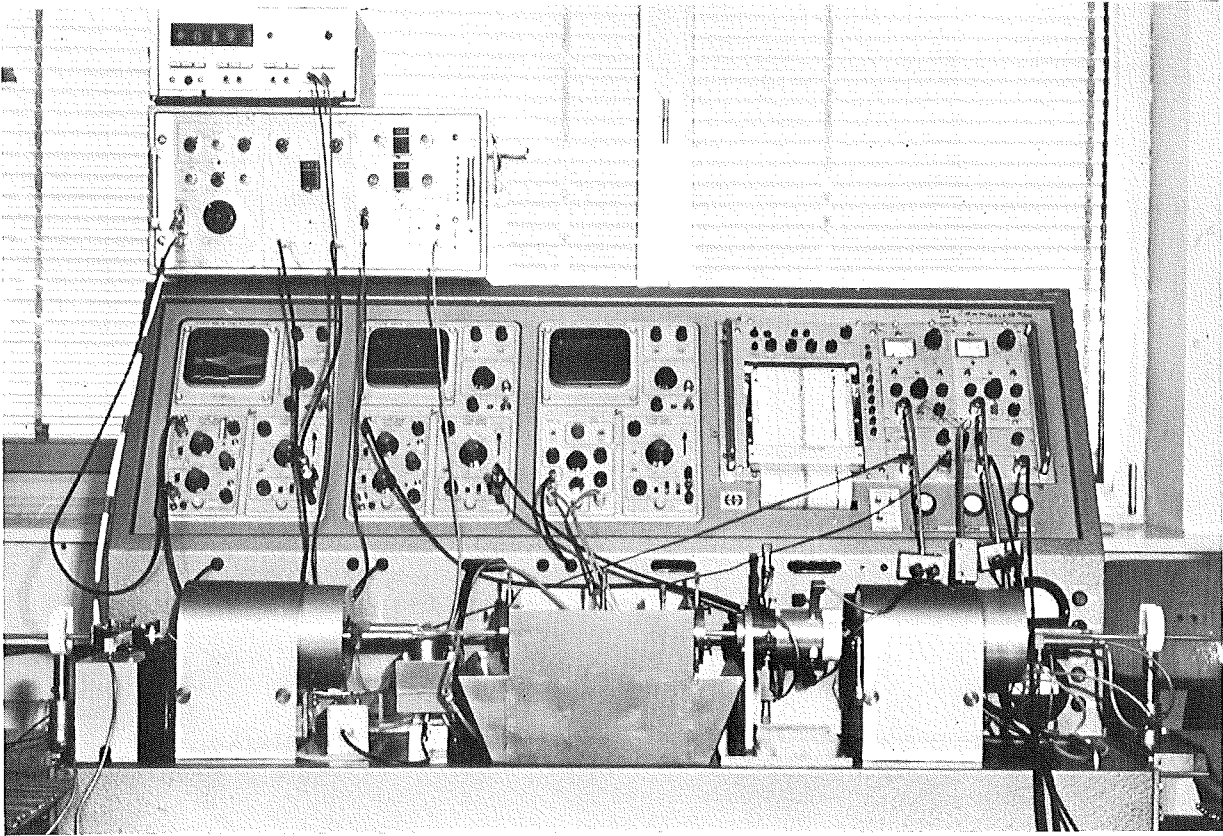


Abb. 7 Universalprüfbank

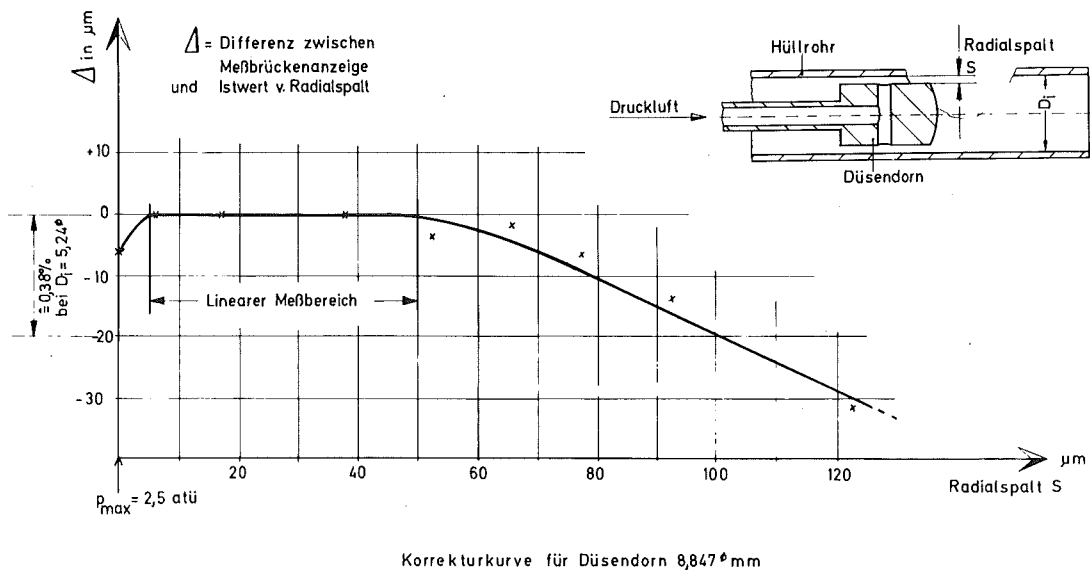
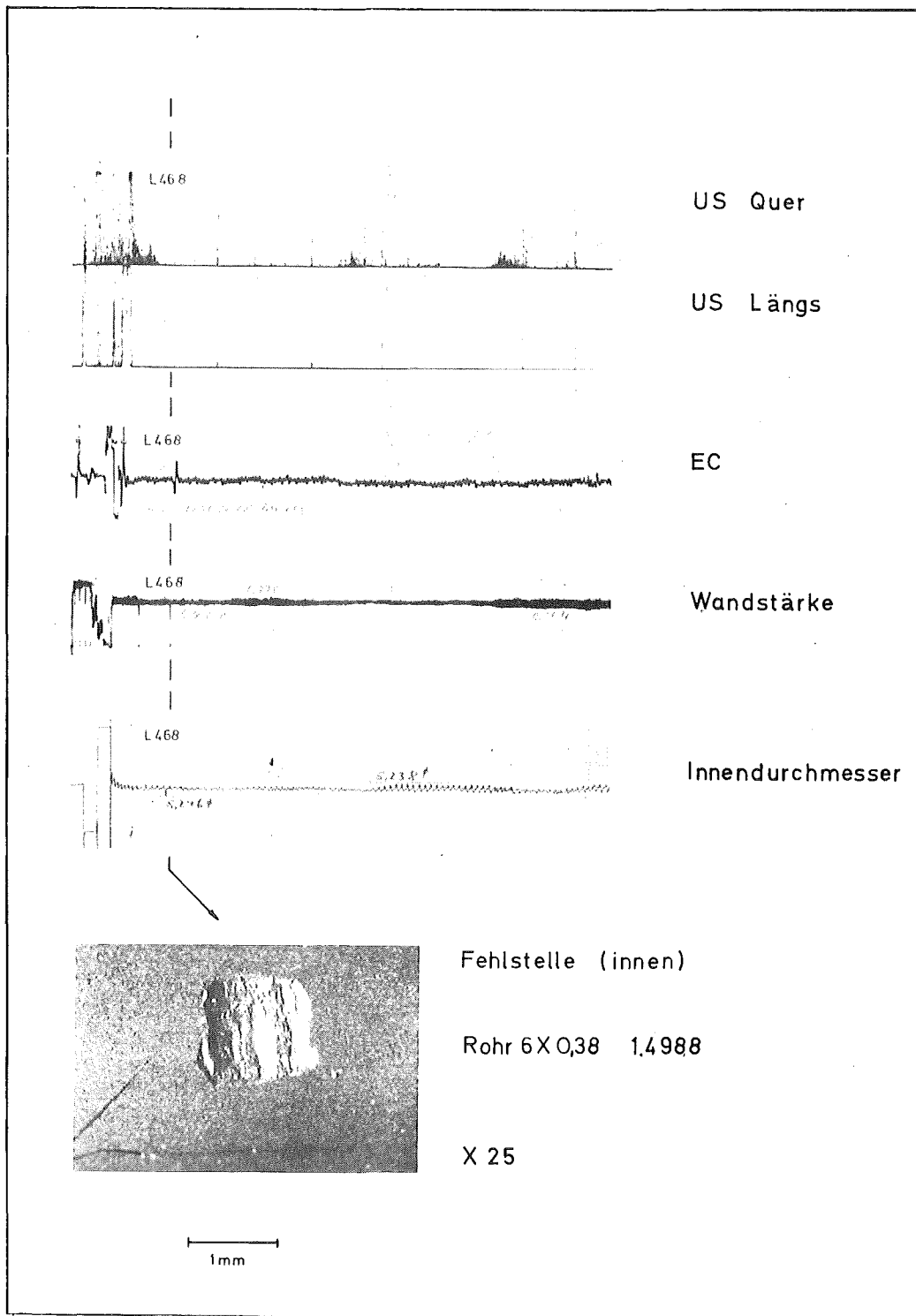


Abb. 8 Eichkurve für die pneumatische Innendurchmesserprüfung



**Abb. 9** Vergleich der Nachweisbarkeit einer Fehlstelle mit  
Ultraschall-(US) und Wirbelstrom-(EC) Prüfverfahren

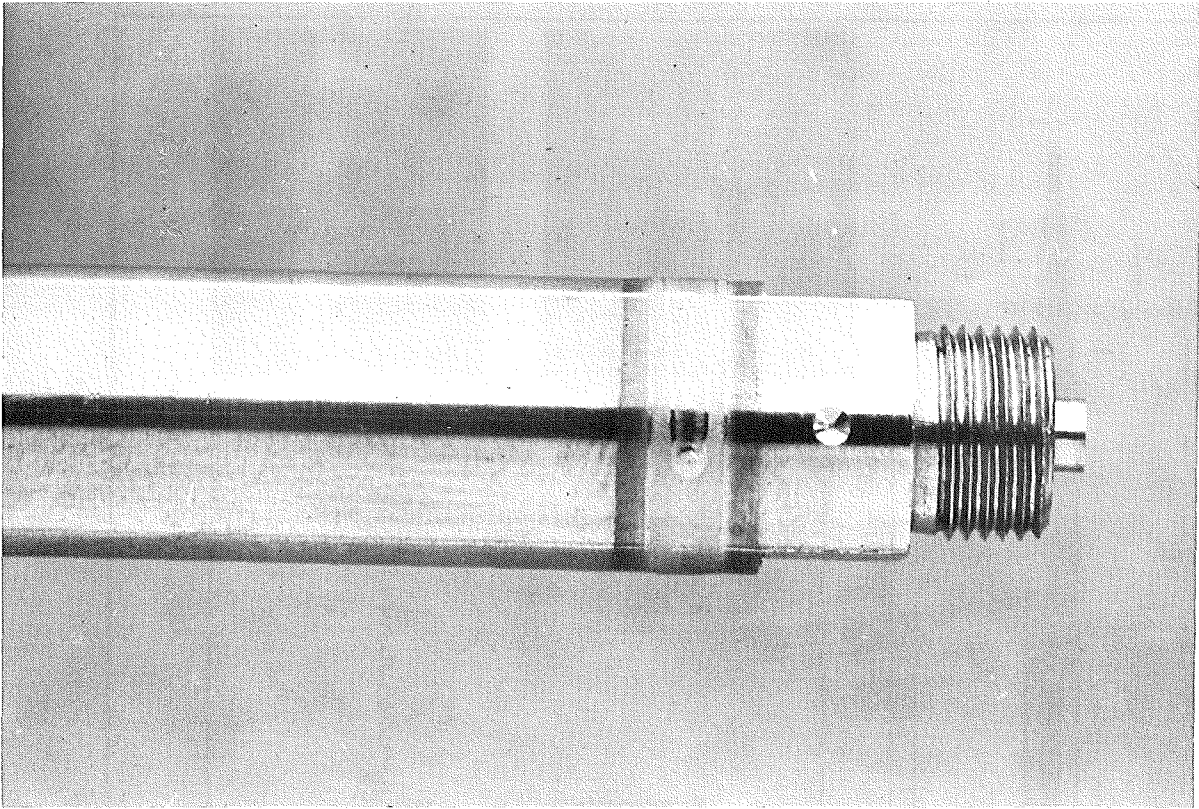


Abb. 10 Bohrung am Stopfen als Bezugspunkt für alle Messungen am Brennstab

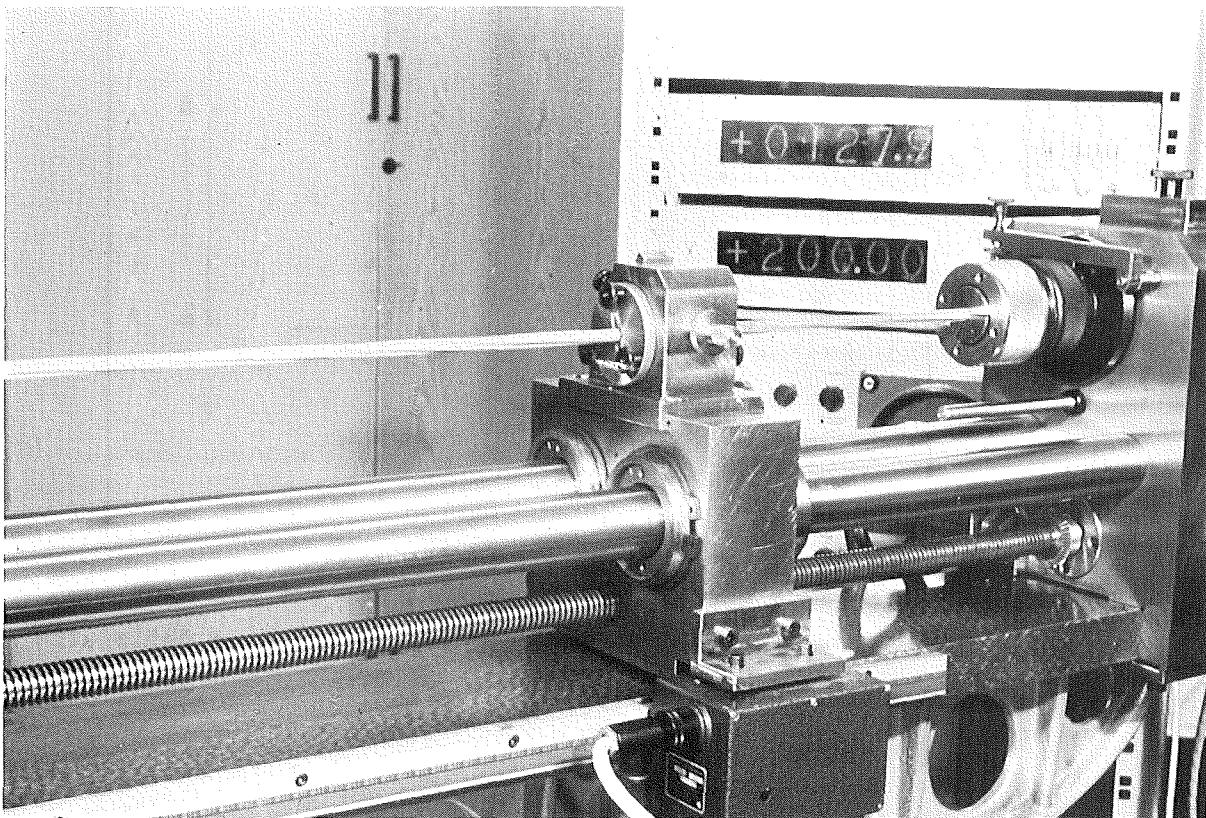
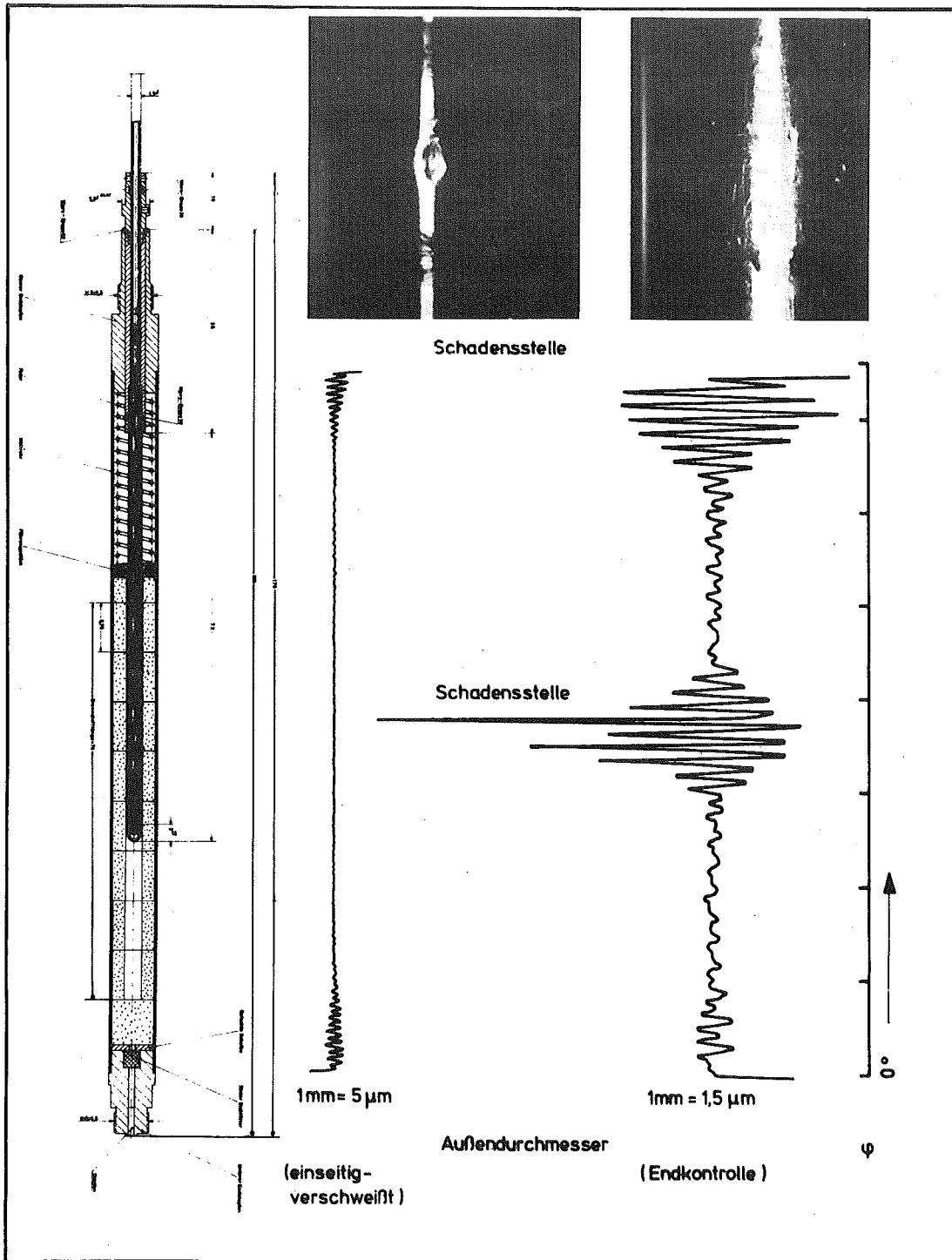


Abb. 11 Prototyp einer Meßbank mit digitaler Anzeige der Ortskoordinaten, bezogen auf einen Bezugspunkt



**Abb. 12** Gegenüberstellung zweier Wendelschriebe, die vor und nach dem letzten Verschweißen aufgenommen wurden und eine definierte Anfangskoordinate besitzen

XVI. DIE WESENTLICHEN BRENNSTAB- UND BÜNDELEXPERIMENTE

von  
D. Freund

Inhalt:

1. Einleitung
2. Brennstab-Bestrahlungsexperimente (Oxid)
3. Bündel-Bestrahlungsexperimente (Oxid)
4. Brennstab-Bestrahlungsexperimente (Karbid)
5. Bündel-Bestrahlungsexperimente (Karbid)

## 1. Einleitung

Eine der wesentlichen Aufgaben zur Entwicklung und Beurteilung von Brennstabkonzepten für den Schnellen Natriumgekühlten Reaktor (SNR) ist die Durchführung von Bestrahlungsexperimenten.

Diese Aufgabe kann in zwei Teile gegliedert werden:

- Untersuchung von Einzelphänomenen zum Brennstoff- und Brennstabverhalten durch die Bestrahlung von Einzelstäben.
- Untersuchung des Verhaltens eines Brennstabverbandes in sogenannten Bündelexperimenten.

Während der erste Teil mehr grundlegenden Charakter hat und zu einer detaillierten Beschreibung des Verhaltens von Einzelstäben führt, stellen die Bündelexperimente eine Konzepterprobung dar, welche im wesentlichen den Nachweis einer sicheren Funktionsweise eines solchen Verbandes zu erbringen hat.

Die in der ersten Phase eines umfangreichen Bestrahlungsprogrammes durchgeführten Bestrahlungen im FR 2 sind in /1/ bereits zusammengestellt und erläutert. Im vorliegenden Bericht wird ein kurzer Überblick über die wesentlichen Brennstab- und Bündelexperimente der zweiten Phase gegeben.

## 2. Brennstab-Bestrahlungsexperimente (Oxid)

In Tabelle I sind die Brennstab-Bestrahlungsexperimente mit oxidischem  $UO_2/PuO_2$ -Mischbrennstoff zusammengefaßt. Bei diesen Experimenten werden Einzelstäbe einmal im FR 2-Heliumloop, zum anderen in sogenannten Bestrahlungskapseln im FR 2 und BR 2 bestrahlt.

Die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle ist Thema des Experiments FR 2-Loop-Versuchsgruppe 5 /2/. Nach heutiger Kenntnis treten Hüllrohraufweitungen durch instationäre Effekte (ratcheting oder Rib-Rast-Mechanismen) bei mittleren und höheren Abbränden verstärkt auf. Durch Simulation des Abbrandes (heißer Nullspalt, hohe Tablettendichte, höhere thermische Differenzdehnung zwischen Brennstoff und Hülle) werden bei den Kurzzeitversuchen dieser Gruppe tatsächlich solche Effekte beobachtet /3/.



Die Kenntnis des Spaltgasdruckaufbaus im oxidischen Brennstab ist für die Hüllrohrauslegung von Bedeutung. In der Versuchsgruppe Mol-8C wurden Brennstäbe mit Mischbrennstoff verschiedener Schmierdichten im epithemischen Fluß bis zu hohen Abbränden ( $A_{\max}$  ca. 120 MWd/kg M) bei Stableistungen von 350 und 550 W/cm (max) bestrahlt /4/. Wie die bisherigen Zwischenauswertungen zeigen, liegen die Gesamtfreisetzungsraten des Spaltgases zwischen 55 und 88 %.

Eine der wichtigsten Größen bei der Auslegung von Brennstäben ist die Brennstoffzentraltemperatur. Es muß gewährleistet sein, daß diese Temperatur während des Betriebes unter der Schmelztemperatur des Brennstoffes liegt, da es sonst zu axialer Brennstoffumlagerung und u.U. zu einer Zerstörung des Brennstabes kommen kann. Die Messung der Zentraltemperatur als Funktion der Zeit ist Aufgabe der Versuchsgruppe Mol-8D /5,6/. Die Bestrahlung der ersten Prüflinge hat im Juli d. Jahres begonnen.

Zur Untersuchung der chemischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle dienen die Experimente Mol-16 und FR 2-Versuchsgruppe 8. Hierbei werden Prüflinge mit Mischbrennstoffen verschiedener O/Me-Verhältnisse (1,93; 1,98) und verschiedenen Brennstoffsäulenlängen unter bestimmten Betriebsbedingungen bestrahlt, um den chemischen Angriff des Hüllmaterials als Funktion von Temperatur und Abbrand zu bestimmen. Bei einigen dieser Prüflinge werden lokale Sauerstoffgetter (Zr-Patronen) eingesetzt, um deren Wirksamkeit zu untersuchen.

In der Versuchsgruppe Mol-17, welche sich im Stadium der Planung befindet, soll schließlich das Brennstabkonzept mit einem Stabdurchmesser von 7,6 mm erprobt werden.

### 3. Bündel-Bestrahlungsexperimente (Oxid)

Die im Rahmen des Projektes Schneller Brüter durchgeführten bzw. in Vorbereitung befindlichen Bündel-Bestrahlungsexperimente sind in Tabelle II zusammengefaßt. Die Aufgaben dieser Experimente, die in den Reaktoren BR 2, DFR und RAPSODIE durchgeführt werden, werden im folgenden kurz umrissen.

Im Bestrahlungsexperiment Mol-7A wurden sieben hexagonal angeordnete Brennstäbe mit  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstoff im Na-Loop MFBS-5 des BR 2 bestrahlt. Dieser Bündelversuch stellt eine Art "Brauchbarkeitstest" für Schnellbrüterbrennstäbe dar /7/. Bei einem Abbrand von ca. 45 MWd/kg M wurde die Bestrahlung infolge eines Defektes, der bereits bei ca. 35 MWd/kg M detektiert wurde, abgebrochen. Die Schadensursache ist unbekannt, es wird jedoch angenommen, daß dieser Schaden nicht konzeptbedingt ist. Eine detaillierte Auswertung dieses Experimentes liegt in /8/ vor.

Das Bestrahlungsexperiment Mol-7B gehört mit den Experimenten DFR-350, DFR-455 und RAPSODIE zu den Demonstrations- und Optimierungsexperimenten für SNR-Bündel /9/. Seine Aufgabe ist die Bestrahlung eines 18-Stabbündels unter Heißkanalbedingungen. Nach einem Abbrand von ca. 40 MWd/kg M wurde ein Schaden detektiert, das Bündel jedoch bis zu seinem Zielabbrand von 80 MWd/kg M weiterbestrahlt. Die bisherigen theoretischen Überlegungen lassen einen oder mehrere Hüllschäden, hervorgerufen durch mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle, vermuten /10/.

Der Bestrahlungsversuch DFR-304 umfaßt die Bestrahlung von drei Brennstäben, zusammengefaßt in einem sogenannten "Trefoil", unter NaK-Kühlung im schnellen Fluß des DFR. Er ist als Vorläufer des Experimentes DFR-350 zu verstehen. Das wichtigste Ergebnis war der Nachweis des sicheren Funktionierens des Stabkonzeptes bis zu einem Abbrand von ca. 50 MWd/kg M /11/.

Die Bestrahlung des 77-Stabbündels DFR 350 stellt schließlich eine sehr weitgehende Simulation der Verhältnisse in einem prototypischen Brutreaktor wie dem SNR-300 dar. Alle 77 Stäbe haben den Zielabbrand von ca. 50 MWd/kg M ohne Schäden erreicht /12/.

Nachdem die zerstörungsfreie Nachuntersuchung der DFR-350-Stäbe gezeigt hatte, daß in keinem Fall ein bevorstehendes Stabverdagen zu erkennen war, wurden insgesamt 9 Stäbe (plus 3 Reservestäbe) in drei Trefoils weiterbestrahlt. Von den insgesamt 8 eingesetzten GfK-Stäben wurden 5 im Laufe des Experimentes defekt, was vermutlich auf einen DFR-spezifischen Effekt, das sogenannte gas-blanketting, zurückzuführen ist /13/. Der Endabbrand der Trefoils liegt zwischen 65 und 90 MWd/kg M.

Das Experiment DFR-455 dient, wie bereits erwähnt, der Optimierung der früheren Spezifikationen von DFR-350 und RAPSODIE-I sowie der Untersuchung der in der Tabelle angegebenen verschiedenen Stähle. Weiterhin ist dieses

Experiment als Test für verschiedene Abstandshaltertypen konzipiert /14/. Das Bündel wurde trotz eines zu Beginn der Bestrahlung aufgetretenen Defekts, dessen Ursache bisher unbekannt ist, bis zu einem Abbrand von ca. 40 MWd/kg M bestrahlt und dann zur Untersuchung des Schadens ausgebaut. Unter der Bezeichnung RAPSODIE-I wurden im RAPSODIE-Reaktor zwei Brennstabbündel mit  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstoff bestrahlt, um einmal die Ergebnisse des Experimentes DFR-350 zu bestätigen, zum anderen, um die Erfahrungen durch Verwendung eines weiteren Hüllmaterials (1.4970) zu erweitern. Schließlich sollte ein typischer SNR-Abbrand mit diesen Bündeln realisiert werden /15/. Die Nachuntersuchung der Bündel, die mit einem Abbrand von ca. 90 MWd/kg M ohne Stabschäden entladen wurden, ist in vollem Gange /16,17/.

#### 4. Brennstab-Bestrahlungsexperimente (Karbid)

Uran-Plutonium-Karbid als Hochleistungsbrennstoff für den Schnellen Brüter steht nach eingehender Diskussion der Brütarten dieses Reaktortyps wieder im Mittelpunkt der Untersuchungen. Den Bestrahlungsexperimenten mit (U,Pu)C-Brennstoff kommt daher wieder besondere Bedeutung zu. Die im Bestrahlungsprogramm des Projektes Schneller Brüter konzipierten Experimente werden im folgenden vorgestellt (Tabelle III).

In den ersten Kurzzeitbestrahlungen (FR 2-Loop-Versuchsgruppe 4a) wurden 8 Prüflinge mit (U,Pu)C-Brennstoff kurzzeitig zur Untersuchung der thermischen Zustände im Brennstab sowie des Verhaltens bei Lastwechseln bestrahlt /18/. Trotz zentralen Brennstoffschmelzens bei einigen Prüflingen traten keinerlei Stabschäden auf. Durch die Lastwechsel traten bei diesen Kurzzeitbestrahlungen deutliche Rißstrukturen im Brennstoff auf /19/.

In einem breit angelegten Parametertest werden in der FR 2-Kapselversuchsgruppe 6 /20/ Untersuchungen zum Schwellverhalten des Brennstoffes, zur Spaltgasfreisetzung, zur Verträglichkeit sowie zum Bindungsverhalten (He, Na) durchgeführt.

Ergänzend zur Versuchsgruppe 6 werden im Rahmen des Experiments Mol-11 Brennstäbe mit UC- und (U,Pu)C-Brennstoffen im epithermischen Fluß bestrahlt, um weitere Informationen über das Verhalten unterschiedlicher Stabkonzepte zu erhalten /21,22/. Die bisherigen Ergebnisse zeigen, daß

mit He-Bindung und niederdichtem Brennstoff (83 % th.D.) Abbrände bis 70 MWd/kg M bei Stabileistungen zwischen 1000 und 1300 W/cm erreicht werden können /23/.

Schließlich werden im Experiment Mol-15/I (U,Pu)C-Brennstoffe verschiedener  $M_2C_3$ -Anteile (10 und 80 Gew.-%) mit Na-Bindung bestrahlt, um weitere Aussagen zum Brennstoffschwellen sowie zur Verträglichkeit zu erhalten.

#### 5. Bündel-Bestrahlungsexperimente (Karbid)

Das Bestrahlungsexperiment DFR-330 (Tabelle IV) im Bestrahlungsprogramm des Projektes Schneller Brüter umfaßt die Bestrahlung von drei 7-Stab-Bündeln mit voll angereichertem (U,Pu)C-Brennstoff im Dounreay Fast Reactor.

Das Hauptziel dieser Experimente ist der Vergleich verschiedener Hochleistungs-Brennstabkonzepte bei repräsentativen SNR-Hülltemperaturen. Mit diesen Bündeln werden erstmals von deutscher Seite Mischkarbidstäbe unter Betriebs- und Kühlbedingungen eines schnellen Brutreaktors bestrahlt /24,25,26/.

Während das erste Bündel DFR-330/1 bei etwa 50 MWd/kg M wegen eines Defektes entladen wurde und zur Nachuntersuchung ansteht, werden die Bündel DFR-330/2 und DFR-330/3 zur Zeit weiterbestrahlt.

#### Literatur:

- /1/ D. Freund:  
Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der Oxidbrennstabproben im FR 2, KFK 1376, Mai 1972
- /2/ D. Brucklacher, D. Freund, A. Gerken, K. Laßmann:  
Bestrahlungsexperiment zur Untersuchung des integralen Kriechens und des instationären Betriebsverhaltens von Mischoxidbrennstäben, Interner Bericht, unveröffentlicht
- /3/ D. Brucklacher, W. Dienst, H. Zimmermann:  
Die mechanische Belastung der Hülle durch den Brennstoff, Beitrag IV in KFK 1999
- /4/ A. Gerken, K. Kummerer:  
Auslegung und Spezifikation des  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstab-Bestrahlungsversuches Mol-8C im BR 2, Interner Bericht, unveröffentlicht

- /5/ D. Freund, Th. Dippel, H. Lehning:  
Auslegung und Spezifikation des  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstabbestrahlungs-  
experimentes Mol-8D im BR 2, Interner Bericht, unveröffentlicht
- /6/ D. Freund:  
Brennstabspezifikationen und ihre Bewertung, Beitrag XIII in  
KFK 1999
- /7/ K. Kummerer, D. Geithoff, P. Weimar:  
Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung des  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brenn-  
stabbündels Mol-7A, KFK 1522, November 1972
- /8/ W. Dienst et. al.:  
 $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstabbündel-Bestrahlung Mol-7A, Auswertung der Unter-  
suchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben, KFK 1736, Juni 73
- /9/ J. van Miegroet, J. Dewandeleer, A. Michel, K. Kummerer, G. von  
Massenhove:  
Design and Preparation of the Mol-7B Irradiation Experiment,  
IAEA-SM-173/50, Brüssel, Juli 1973
- /10/ A. Gerken:  
Einfluß des zyklischen Betriebes auf das Standzeitverhalten der  
Brennstäbe bei Mol-7B, Interne Notiz, unveröffentlicht
- /11/ K. Kummerer, D. Geithoff:  
Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstab-  
Prüflinge im Versuch DFR-304, KFK 1814, Januar 1974
- /12/ D. Geithoff, K. Kummerer:  
Auslegung, Bestrahlung und zerstörungsfreie Nachuntersuchung des  
 $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstab-Bündels DFR-350, KFK 1377, Mai 1972
- /13/ D. Geithoff, W. Ernst:  
Bestrahlungsablauf der GfK-Trefoils DFR-435, Interner Bericht,  
unveröffentlicht
- /14/ H. Többe, H. Mayer:  
Pin Design for the DFR-455 Irradiation Experiment, Interner Bericht,  
unveröffentlicht
- /15/ D. Haas:  
RAPSODIE, two mixed oxide fuel subassemblies irradiation report,  
Interner Bericht, unveröffentlicht
- /16/ D. Geithoff:  
Nachuntersuchung der RAPSODIE-Bündel 102 und 103, I. Brennstoff-  
säulenlänge, Interner Bericht, unveröffentlicht
- /17/ K. Ehrlich, K. Herschbach, W. Schneider:  
Schwellen und Kriechen von Hüllwerkstoffen unter Bestrahlung,  
Beitrag VIII in KFK 1999
- /18/ R.v. Jan, K. Kummerer:  
Auslegung und Spezifikation des (U,Pu)C-Bestrahlungsversuches im  
Rahmen der FR 2-Loop-Vg. 4, Interner Bericht, unveröffentlicht

- /19/ P. Weimar, H. Kleykamp, C. Politis:  
Über das Bestrahlungsverhalten von Mischkarbid in der Anfahrphase, ATW Jg. XIX, Nr. 5, Mai 1974, S. 235-237
- /20/ A. Gerken, R. v. Jan, H. Meisner, K. Richter:  
Auslegung und Spezifikation des UC/PuC-Brennstabbestrahlungsversuches im FR 2 im Rahmen der Versuchsgruppe 6, Interner Bericht, unveröffentlicht
- /21/ H. Pollanz, K. Kummerer:  
Auslegung und Spezifikation des UC-Bestrahlungsversuches Mol-11/K1 im BR 2, Interner Bericht, unveröffentlicht
- /22/ H. Pollanz:  
Auslegung und Spezifikation des UC-Bestrahlungsversuches Mol-11/K2 im BR 2, Interner Bericht, unveröffentlicht
- /23/ D. Freund, H. Fiedler:  
Erste experimentelle und modelltheoretische Ergebnisse, Reaktortagung Berlin 1974
- /24/ R.v. Jan:  
Auslegung und Spezifikation des Bestrahlungsversuches DFR-330/1 mit Na-gebundenen (U,Pu)C-Brennstäben, Interner Bericht, unveröffentlicht
- /25/ H. Plitz, G. Senski:  
Auslegung und Spezifikation der He-gebundenen Karbid-Brennstäben für das Bestrahlungsexperiment DFR-330/2a,b, Interner Bericht, unveröffentlicht
- /26/ D. Freund, O. Jacobi, G. Mühling, H. Plitz:  
DFR-330/3 Specification of Mixed Carbide Fuel Pins with Sodium Bond, Interner Bericht, unveröffentlicht

Tabelle I:

## Brennstab-Bestrahlungsexperimente (Oxid)

Bezeichnung	Aufgabenstellung	Anzahl Stäbe	Brennstoff-		Stabaufbau	
			Dichte (% th.D.)	Pu (Gew.-%)	Gesamtlänge (mm)	Hülle
FR 2-Loop- Vg. 5	Untersuchung der mecha- nischen Wechselwirkung Brennstoff-Hülle	20	85 93	6 18	ca. 100	7 $\phi$ x 0,4 (Zr-2 Inc. 800)
Mol-8C	Bestimmung der Spaltgasfreisetzung	10	87 90 95	20	ca. 1000	6 $\phi$ x 0,38 (1.4988)
Mol-8D	Bestimmung der Brennstoff- zentraltemperatur als Funktion der Zeit	8	85 92	20	ca. 160	8 $\phi$ x 0,45 (1.4988)
Mol-16 FR 2-Vg.8	Untersuchung der Verträglichkeit	14 4	86	30 (35)	80, 160 ca. 1000	6 $\phi$ x 0,38 (1.4988)
Mol-17	Untersuchung des 7,6 mm $\phi$ -Brennstab- konzeptes	4	86,3	30	1024	7,6 x 0,5 (1.4970)

Tabelle II:

## Bündel-Bestrahlungsexperimente (Oxid)

Bezeichnung	Aufgabenstellung	Anzahl Stäbe	Brennstoff-		Stabaufbau	
			Dichte (% th.D.)	Pu (Gew.-%)	Gesamtlänge (mm)	Hülle
Mol-7A	Untersuchung des Verhaltens eines Kleinbündels	7	87,5	20	1080	6 $\emptyset$ x 0,38 (1.4988, 1.4961)
Mol-7B	Erprobung von SNR-typischen Stäben unter Heißkanal-Bedingungen	18	87	30	1080	6 $\emptyset$ x 0,38 (1.4988, 1.4970)
Mol-7D (Vorläufer für KNK-II)	Erprobung eines Bündels mit 6-Rippenrohren	19	86,5	30	1080	6 $\emptyset$ x 0,40 Kopfkreis 7,9 $\emptyset$ (1.4988)
(DFR-304 Monitor) DFR 350 (+Folgebest. DFR-435)	Erprobung eines Prototyp-Bündels im schnellen Fluß	77 (39)	89	20	510	6 $\emptyset$ x 0,38 (1.4988, 1.4961)
DFR 455	Erprobung eines Prototyp-Bündels mit verschiedenen Abstandshaltern	60 (IA)	84 86,5 89	30	900	6 $\emptyset$ x 0,38 (1.4988, 1.4970, 1.4981)
RAPSODIE-I (2 Bündel)	Erprobung von prototypischen SNR-Bündeln (parallel zu DFR 350 und 455)	2 x 34	86,8	30	832	6 $\emptyset$ x 0,38 (1.4988, 1.4970)



Tabelle III: Brennstab-Bestrahlungsexperimente (Karbid)

Bezeichnung	Aufgabenstellung	Anzahl Stäbe	Brennstoff-		Stabaufbau	
			Dichte (% th.D.)	Pu (Gew.-%)	Gesamtlänge (mm)	Hülle
FR 2-Loop- Vg. 4a	Untersuchung des Anfahr- verhaltens	8	86	15	210	10 $\emptyset$ x 0,55 (1.4988)
FR 2-Vg. 6	Untersuchungen zum Schwel- len, zur Gasfreisetzung und zur Verträglichkeit	20	86 93	15	475	10 $\emptyset$ x 0,55 (1.4988)
Mol-11/K1 /K2 /K3	Untersuchung des Verhal- tens verschiedener Stab- konzepte (Y, He, Na)	8	83 90 94	(0) 15	1022	8 $\emptyset$ x 0,45 (1.4988)
Mol-15/I	Untersuchung zum Schwellen und zur Verträglichkeit verschiedener Brennstoffe (M <sub>2</sub> C <sub>3</sub> -Anteile)	4	90 93	25	93	5,6 $\emptyset$ x 0,3 (1.4988)

Tabelle IV:

## Bündel-Bestrahlungsexperimente (Karbid)

Bezeichnung	Aufgabenstellung	Anzahl Stäbe	Brennstoff-		Stabaufbau	
			Dichte (% th.D.)	Pu(Gew.-%)	Gesamtlänge (mm)	Hülle
DFR 330/1	Vergleich verschiedener Hochleistungs- Brennstabkonzepte bei repräsentativen SNR-Hülltemperaturen	7	96	20	790, Na	9,5 $\emptyset$ x 0,5 (1.4988, 1.4970, 1.4919)
DFR 330/2		7	83, 90	20	790, He	9,5 $\emptyset$ x 0,5 (1.4988)
DFR 330/3		7	90	20	790, Na	9,5 $\emptyset$ x 0,5 9,5 $\emptyset$ x 0,35 (1.4988)

## XVII. BESTRAHLUNGSEINRICHTUNGEN

von

E.Bojarsky, H. Deckers, H. Häfner, H. Lehning, H. Reiser, L.Schmidt

### Inhalt:

1. Allgemeines und Randbedingungen
2. BR 2-Einsätze für Hüll- und Strukturmaterial
3. FR 2-Kapseln für Brennstoffe und Brennstäbe
4. FR 2-Heliumloop

## 1. Allgemeines und Randbedingungen

Wenn man sich die verschiedenen in pile-Experimente zur SNR-Brennelemententwicklung vor Augen führt, so kann man grob folgende Einteilung erkennen:

Eine erste große Gruppe, die die Grundlagenuntersuchungen und Parameter-tests an Hüllmaterial, Brennstoffen und Brennstäben umfaßt, und daneben eine zweite Gruppe, die die Performancetests an Brennstäben und Bündeln bis zur SNR-Originalgröße enthält.

Diese zweite Gruppe, die mehr auf die Bestätigung von Kenntnissen und Modellvorstellungen zum Brennelementverhalten hinzielt, sollte sinnvollerweise unter möglichst SNR-nahen Betriebsbedingungen durchgeführt werden. Sie erfordert also schnelle, natriumgekühlte Reaktoren.

Die Experimente der ersten Gruppe mit überwiegend Grundlagencharakter können dagegen auch in thermischen Forschungs- und Materialtestreaktoren ausgeführt werden, also in unserem FR 2 und im belgischen BR 2. Ich will mich auf diese beiden Reaktoren beschränken, für die wir eine Reihe von Bestrahlungseinrichtungen entwickelt haben.

Welche Experimentiermöglichkeiten und Randbedingungen sind für uns in den genannten Reaktoren vorhanden?

In beiden wird Wasser als Kühlmittel und Moderator verwendet, und zwar mit Temperaturen unter 100 °C. Der FR 2 ist ein Schwerwasserreaktor mit einem relativ großen Core (Abb. 1). Bestrahlungseinsätze können z.B. anstelle eines Brennelementes installiert werden oder auf Zwischengitterpositionen anstelle von Isotopenkanälen. Im Zentrum ist ein durchgehender größerer Bestrahlungskanal für Loopeinsätze vorhanden. In jedem Falle sind die Versuchseinsätze von einer recht großen Moderatorschicht umgeben. Der Neutronenfluß hat dort also ein sehr weiches Energiespektrum. Den ungestörten maximalen thermischen Neutronenfluß kann man mit knapp  $1 \cdot 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>s angeben, der schnelle Fluß liegt fast 2 Größenordnungen darunter.

Der BR 2 in Mol ist dagegen als Hochflußreaktor zu bezeichnen (Abb. 2). Sein Core wird von Leichtwasser durchströmt und ist sehr kompakt. Die Brennelemente sind aus rohrförmig gebogenen, dünnen Brennstoffplatten aufgebaut, so daß die Versuchseinsätze in das Innere jedes Brennelementes eingebracht werden können. Dort findet man Neutronenflüsse bis zu etwa  $4 \cdot 10^{14}$  therm. Neutronen/cm<sup>2</sup>s und etwa  $6 \cdot 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>s mit  $E > 0,1$  MeV. Bei 6 Brennelementpositionen sind übrigens

nicht nur oben, sondern auch unten Tankdurchführungen vorhanden, so daß die Möglichkeit besteht, Bestrahlungseinsätze auch von unten her zu instrumentieren. Das bietet bei Langzeitbestrahlungen den Vorteil, den normalen Brennelementwechsel ohne Demontage des Bestrahlungseinsatzes vornehmen zu können.

## 2. BR 2-Einsätze für Hüll- und Strukturmaterial

Für die Bestrahlung von unbelasteten Materialproben ohne Instrumentierung steht ein einfacher Probenträger zur Verfügung, den wir mit Typ Mol 1 bezeichnen (Abb. 3). Der Einsatz faßt eine Vielzahl von Proben, die normalerweise direkt von Reaktorkühlwasser umströmt werden. Die Probentemperaturen liegen damit unter  $100^{\circ}\text{C}$ . Die Proben können auch einzeln gekapselt werden. Durch die Ausbildung eines definierten Gasspaltes zwischen Probe und Kapselrohr lassen sich mit Hilfe der  $\gamma$ -Heizung - also der Absorption von Core- $\gamma$ -Strahlung - auch höhere Temperaturen erreichen, max. etwa  $450^{\circ}\text{C}$ . Die Aktivierung von feinen Co- und Fe-Drähten gestattet die Ermittlung der thermischen und schnellen Neutronendosis.

Wesentlich aufwendiger ist dagegen die Bestrahlungseinrichtung Mol 2 (Abb. 4), mit der kurze Brennstab-Hüllrohre bei höheren Temperaturen und unter mechanischer Belastung durch Gas-Innendruck bis zum Bruch getestet werden können. Der Bestrahlungseinsatz, der 8 Prüflinge aufnehmen kann, wird in einen durchgehenden BE-Kanal des BR 2 eingebaut, so daß die Instrumentierungs- und Versorgungsleitungen von unten her im sub pile-Raum angeschlossen werden können. Die zugehörigen out of pile-Anlagen zur Temperaturregelung, Druckgasversorgung und Druckmessung sind für den gleichzeitigen Betrieb von 2 Reaktoreinsätzen ausgelegt. Für jeden Prüfling können unabhängig voneinander der He-Gasdruck bis zu ca. 500 at eingestellt und die Rohrtemperatur automatisch sehr genau auf einen vorgegebenen Wert - bis maximal  $800^{\circ}\text{C}$  - eingeregelt werden (Abb. 5). Der gewendelte elektrische Heizer liegt an der Rohrrinnenwand an. Außen sind mehrere Thermoelemente angebracht. Diese Bestrahlungseinrichtung hat sich seit Jahren sehr gut bewährt.

In der Materialtesteinrichtung Mol 3 (Abb. 6) können relativ viele unbelastete Rund- oder Flachproben bei hohen Temperaturen bestrahlt werden. Um eine möglichst gleichmäßige Temperaturverteilung in den Prüflingen zu

erreichen, liegt die ganze Probenkette in flüssigem Natrium. Zwischen der Natriumkapsel und dem äußeren Rohr ist ein definierter Gasspalt vorgesehen, in dem ein Helium-Neon-Gemisch zirkuliert. Durch Veränderung der Gaszusammensetzung und damit seiner Wärmeleitfähigkeit können die Temperaturen in gewissen Grenzen geregelt werden. Das relativ steile axiale Flußprofil im BR 2-Core würde zu einem analog steilen axialen Temperaturverlauf in den Proben führen, da hier nur die  $\gamma$ -Heizung ausgenutzt wird. Um dem entgegenzuwirken, hat man die Gasspaltbreite axial der Energieerzeugung angepaßt.

Im Verlaufe des Abbrandes über jeden Reaktorzyklus bewegen sich die Regelstäbe nach oben und damit verschiebt sich das Flußprofil insgesamt nach oben. Deshalb besitzt jeder Bestrahlungseinsatz oben einen Mechanismus zur axialen Bewegung des Einsatzes. Mit der Mol 3-Einrichtung können also die gewünschten Probertemperaturen von z.B. 650 °C auch über längere Bestrahlungszeiten hinreichend gut konstant gehalten werden.

Soll übrigens der thermische Neutronenfluß abgeschirmt werden, so kann außen um den Einsatz herum ein auswechselbares Cadmiumrohr angeordnet werden.

Als letzte der Material- Bestrahlungsanlagen für den BR 2-Reaktor möchte ich noch 2 Kriechkapselbauarten kurz vorstellen. Es handelt sich hier um die schwierige Aufgabe, die relativ kleinen Materialdehnungen bei einachsiger Beanspruchung und definierter Temperatur direkt während des Reaktorbetriebes sauber zu messen.

Eine französische Entwicklung (Mol 5B) hat zur Anwendung des sogenannten Hohlraum-Resonanzverfahrens für die Dehnungsmessung geführt (Abb. 7). Dabei werden elektromagnetische Wellen im Gigahertzbereich durch einen Hohlleiter in einen Zylinder eingeleitet. Im Zylinder ist ein Kolben angeordnet, der mit dem Prüfling verbunden ist. Eine Längenänderung des Prüflings verändert also das Volumen des Zylinders und damit seine charakteristische Resonanzfrequenz. Diesen Resonanzzustand kann man mit demjenigen eines out of pile-Systems vergleichen, dessen Kolbenbewegung konventionell meßbar ist (Abb.8). Die Meßgenauigkeit dieser Methode beträgt etwa  $\pm 2 \mu\text{m}$ . Die Probe hat eine Meßlänge von 40 mm und einen Durchmesser von 2 mm. Das Belastungssystem arbeitet mit He-Druckgas. Die Probe ist in flüssiges NaK eingebettet. Elektrische Heizungen ermöglichen die Temperaturregelung von etwa 400 bis 700 °C mit einer Genauigkeit von  $\pm 2$  °C.

In unserer selbstentwickelten Kriechkapsel (Mol 5C) haben wir ein induktives Meßsystem - einen sogenannten Differentialtransformer - angewendet (Abb. 9). Das Meßprinzip ist einfach: Durch eine Wechselspannung in der Primärspule werden in zwei Sekundärspulen Spannungen induziert, die von der Stellung des magnetischen Kerns abhängig sind. Wird die Probendehnung auf diesen magnetischen Kern übertragen, erhält man also ein klares Meßsignal. Die Genauigkeit dieses Meßsystems kann mit etwa  $\pm 3 \mu\text{m}$  angegeben werden. Etwas unangenehm ist dabei die Temperaturabhängigkeit. Deshalb werden für jeden Transformator vor dem Einbau die optimale Spannung und Speisefrequenz ermittelt. Andererseits bietet diese Bauart den Vorteil, daß mehrere Proben - z.B. 2 oder 3 - unabhängig voneinander in einem Einsatz getestet werden können.

Die Prüflingstemperaturen können etwa zwischen 400 und 800°C mit Hilfe eines Dreizonenheizers eingestellt werden. Das Belastungssystem arbeitet wieder pneumatisch mit Helium-Druckgas.

### 3. FR 2-Kapseln für Brennstoffe und Brennstäbe

Im Prinzip setzen sich die Kapselversuchseinsätze aus drei Bauteilen zusammen (Abb. 10), der eigentlichen Bestrahlungskapsel mit den Prüflingen, dem Oberteil und der Wasserführung. Die leichte Demontierbarkeit gestattet übrigens die wiederholte Verwendung des Oberteils, das im wesentlichen zur Core-Abschirmung und zur Übertragung der Meßleitungen dient. Der Kapseldurchmesser ist durch die gegebenen Einbaumaße auf max. etwa 32 mm begrenzt. Die untere Grenze liegt bei etwa 20 mm, da sonst unerwünscht starkes Sieden des Kühlwassers auftreten könnte. Es ist also zwischen Brennstab und Kühlwasser eine geeignete Materialschichtung anzubringen, in der gerade der gewünschte Temperaturabfall von z.B. 500 °C bei der betreffenden Stableistung eintritt. Eine besondere Temperaturregelung ist im allgemeinen nicht erforderlich, da in dem großen FR 2-Core durch die Wahl der Bestrahlungsposition eine Temperatureinstellung über die Prüflingsleistung in relativ weiten Grenzen möglich ist.

Auf der Suche nach geeigneten wärmeübertragenden Medien hat sich bei näherer Betrachtung herausgestellt, daß für derartige Brennstab-Kapselexperimente Flüssigmetalle am geeignetsten sind gegenüber Pulverschüttungen usw.

Seit Jahren haben wir eine Natrium-Bleiwismut-Doppelkapselbauart für oxidische Brennstabproben eingesetzt (Abb. 11). Die Ausführung sieht - vereinfacht dargestellt - folgendermaßen aus: Jede Brennstabprobe ist in einer inneren, nach allen Regeln sorgfältig geprüften Edelstahlkapsel eingebaut, die mit Natrium ausgefüllt wird. Bei einem Außendurchmesser von 20 mm beträgt ihre Wanddicke 1 mm. In den oberen Kapselstopfen sind bis zu 6 Tauchröhrchen zur Aufnahme von Thermoelementen eingeschweißt. 3 bis 4 solcher Kapseln werden zu einer Kette verbunden und koaxial in die äußere Kapsel eingebaut. Diese besteht aus Zircaloy 2, hat eine Wanddicke von 1,5 mm und einen Außendurchmesser von 26 mm. Der Ringraum zwischen beiden Kapselwänden ist mit Bleiwismut ausgefüllt.

Die Erfahrungen mit dieser Kapselbauart sind sehr gut. Wir haben keine größeren Betriebsstörungen gehabt, schon gar nicht irgendein Kapselleck bzw. Bruch im Reaktor.

Anstelle von mehreren kurzen Innen-Kapseln übereinander kann auch eine einzige innere Edelstahlkapsel eingesetzt werden, in die dann ein Brennstab mit einer Länge von ca. 1 m hineinpaßt. In diesem Falle ist es vorteilhafter, nicht Natrium, dessen Schmelzpunkt bei  $98^{\circ}\text{C}$  liegt, sondern die eutektische NaK-Legierung (Schmelzpunkt  $-11^{\circ}\text{C}$ ) zu nehmen. Dann gibt es in der inneren Kapsel keinen Phasenwechsel des wärmeübertragenden Mediums mehr.

Als neben Oxidbrennstoff auch Karbid und Nitrid als Hochleistungsbrennstoff ins Blickfeld traten, haben wir einen Kapseltyp gebaut, der für Brennstoffbestrahlungen mit Stableistungen um  $1000\text{ W/cm}$  bei einem Brennstoffdurchmesser von 10 mm und einer Brennstoffzentraltemperatur um  $1500^{\circ}\text{C}$  ausgelegt war (Abb. 12). In dieser sogenannten Gasspalt-Doppelkapsel wird die Brennstoffsäule von einem sehr starken Mantel aus hochtemperaturbeständigem Material - z.B. Molybdän - umschlossen. Zwischen diesen dickwandigen Hüllrohr und dem äußeren Kapselrohr aus Edelstahl ist ein Gasspalt vorhanden. Sowohl im Brennstoffzentrum als auch im Molybdänrohr ist eine Temperaturmessung möglich. Während in dieser Kapsel für Brennstoff-Grundlagenexperimente nur relativ kurze Pellet-Säulen eingesetzt werden können, ist in der folgenden Kapsel der Einsatz von Hochleistungsbrennstäben bis zu etwa einem halben Meter Länge möglich (Abb. 13).

Das Charakteristische bei diesem Kapseltyp ist, daß nur eine Trennwand zwischen dem Prüfling bzw. dem Flüssigmetall und dem Reaktorkühlwasser vorhanden ist. Der Prüfling ist in diesem Falle von NaK umgeben. Das Kapselrohr



mit z.B. 27 mm  $\emptyset$  und 1,5 mm Wanddicke besteht aus einer Niob-1 % Zr-Legierung, die eine gute Wärmeleitfähigkeit bei hoher Festigkeit aufweist. Im NaK-Raum befindet sich ein Zwischenrohr, das zwei Funktionen hat: Einmal wird dadurch eine nennenswerte Konvektion im NaK vermieden und zum anderen ist durch Veränderung des Materials für das Zwischenrohr und dessen Wanddicke die Brennstabtemperatur in relativ weiten Grenzen einstellbar. Für z.B. 1150 W/cm Stableistung und 630 °C Hüllrohrroberflächentemperatur verwendet man ein Zwischenrohr auch aus Nb-1 % Zr mit 3 mm Wanddicke, das also den 7 mm breiten Ringraum fast zur Hälfte ausfüllt.

Die Sicherheitsbetrachtungen für diese einwandige Kapselbauart waren natürlich von besonderer Bedeutung. In einer out of pile-Versuchsreihe sind verschiedene Kapselleckagen simuliert worden mit dem Ergebnis, daß durch die NaK-Wasser-Reaktionen in unmittelbarer Umgebung der Kapsel - also im Wasserführungsrohr - maximale Druckspitzen von 70 bis 100 at auftraten. Um nun zu verhindern, daß unzulässige Druckstöße auf benachbarte Brennelemente und den Reaktortank übertragen werden, haben wir das Wasserführungsrohr doppelwandig ausgeführt. Der Gasspalt zwischen beiden Rohren ist in der Lage, die Verformung des inneren Rohres aufzunehmen und den Druckpuls genügend zu dämpfen. Diese Kapselversuchseinsätze werden seit 3 Jahren im FR 2 verwendet. Auch sie haben sich gut bewährt.

Zum Schluß dieses Kapitels möchte ich drei FR 2-Kapseltypen vorstellen, die zur Untersuchung des Brennstoffschwellens und -kriechens dienen.

In der ersten Bauart, die seit 1970 eingesetzt wird, kann das Brennstoffkriechen unter einachsiger Druckbelastung verfolgt werden (Abb. 14). Die Probeneinheit besteht aus einem Stapel von Brennstoff-Ringtabletten und Molybdänringen in abwechselnder Anordnung. Sie wird unmittelbar von Natrium oder NaK umgeben. Die innere Probenkapsel wird über einen Faltenbalg oben von einem Druckübertragungsstück abgeschlossen, so daß der einstellbare Gasdruck in der äußeren Kapsel zur Belastung des Probenstapels führt. Durch den unteren Boden der Probenkapsel werden mehrere Thermoelemente eingeführt. Zur Dehnungsmessung wird ein induktiver Wegaufnehmer verwendet, wie auch in unserer vorhin beschriebenen Mol 5C-Kriechkapsel. Im äußeren Kapselrohr werden 2 solche Kriechprobeneinsätze übereinander angeordnet.

Während in dieser Versuchseinrichtung bei Brennstofftemperaturen bis 1000 °C das bestrahlungsinduzierte Kriechen verfolgt werden kann, will man in der nächsten Bauart (Abb. 15) das Brennstoffschwellen bei höheren Temperaturen unter bestimmter mechanischer Belastung kontinuierlich im Reaktor messen.

Dazu wird eine Brennstoffsäule von z.B. 4 mm  $\emptyset$  und 40 mm Höhe in eine dickwandige Molybdänhülle eingeschlossen. Die axiale Belastung wird wieder mit Hilfe des Gasdruckes in der äußeren Kapsel eingestellt. Auch die Dehnungsmessung ist im Prinzip die gleiche wie vorher. Wieder können 2 Schwellprobeneinsätze übereinander in das äußere Kapselrohr eingebaut werden. Seit kurzem liegen erste in pile-Erfahrungen mit dieser Bauart vor, die recht positiv sind.

Zur Zeit wird an der Entwicklung einer sogenannten Hochdruck-Schwellkapsel gearbeitet (Abb. 16). Mit dieser Versuchseinrichtung soll der Wunsch nach einer hohen allseitigen Druckbelastung von Brennstoffproben verwirklicht werden. Dafür ist Druckgas vorgesehen bis zu 500 at. Dieser hohe Druck und die relativ hohen Temperaturen des Brennstoffes und der inneren Kapsel machen große Wanddicken erforderlich. Es ergeben sich erhebliche Probleme mit den Werkstoffen, den Schweißungen, den Montagen usw. Wir hoffen jedoch, noch in diesem Jahr alle Auslegungs-, Herstellungs- und sicherheitstechnischen Fragen lösen zu können.

#### 4. FR 2-Heliumloop

Neben Kapselversuchseinsätzen sind Bestrahlungsloops für Brennstäbe recht wertvolle Einrichtungen. Sie stellen geschlossene unabhängige Kühlsysteme dar und bieten somit weitgehende Freiheiten bezüglich der Betriebsbedingungen, der Aktivitätsfreisetzung usw. Ein Beispiel für eine solche Einrichtung ist unser Helium-Loopsystem im FR 2.

Wir haben Heliumgas als Kühlmittel anstelle von Natrium oder Druckwasser aus folgenden Gründen gewählt:

- Die Radioaktivität des Kühlmittels ist sehr gering, dadurch wird insbesondere das Auswechseln der Proben relativ einfach, was für Kurzzeitbestrahlungen besonders wichtig ist.
- Die Brennstab-Oberflächentemperaturen können in einem weiten Leistungsbereich recht leicht auf den gewünschten Wert eingeregelt werden.

- Die Prüflinge können direkt vom Kühlmittel umströmt werden und brauchen nur in Sonderfällen eingekapselt zu werden.

Hauptteil der Bestrahlungseinrichtung ist das Helium-Kreislaufsystem (Abb. 17). Der normale Betriebsdruck beträgt 30 at, der Heliumdurchsatz 360 kg/h und die Kühlleistung 45 kW. Das Loopsystem hat zwei hintereinandergeschaltete Verdichter, Filter, Kühler, Meß- und Regeleinrichtungen im Hauptkühlkreis sowie eine umfangreiche Gasreinigungsanlage im Nebenkreis. Der Bestrahlungseinsatz mit den instrumentierten Prüflingen im Reaktorcore ist als besonderes, hochwertiges Bauteil zu betrachten. Daneben sind mehrere Hilfs- und Zusatzeinrichtungen für den Loopbetrieb erforderlich. Für den Fall einer Kühlungsstörung ist z.B. eine eigene Notkühlung vorhanden. Das Auswechseln des Bestrahlungseinsatzes wird vom sub pile-Raum aus vorgenommen (Abb. 18). Es geschieht teilweise fernbedient. Dafür ist eine besondere Auswechselmaschine mit einer abgeschirmten Transportflasche, Hubwerken usw. gebaut worden.

Wir haben zuerst einen Loop-Einsatz für normale Langzeitbestrahlungen gebaut, in welchem 4 kurze Prüflinge parallel zueinander etwa in Core-Mitte fest angeordnet werden konnten. Doch schon nach kurzer Zeit wurde dieser durch einen speziellen Einsatz für Kurzzeitversuche ersetzt, der hier vereinfacht dargestellt ist (Abb. 19) .

Das Wesentliche bei dieser Einrichtung ist es nun, daß der Brennstabprüfling während des vollen Betriebes von Reaktor und Loop-System in die Bestrahlungsposition eingefahren und wieder herausgezogen werden kann. Damit kann der Prüfling auch jederzeit innerhalb des Reaktors zum Zwecke der Leistungsänderung vertikal verschoben werden.

Aufbau und Funktion dieses Loopeinsatzes sind - grob skizziert - folgendermaßen:

Das äußere umhüllende Teil mit den Rohrleitungsanschlüssen ist das Druckrohr, das bis zu 40 at Innendruck sicher erträgt. Es bleibt im allgemeinen fest im Reaktor installiert. Dort hinein paßt der einigermaßen komplizierte Versuchseinsatz. Dieser ist so gebaut, daß es bei voll eingefahrener und mit Hilfe einer fernbedienbaren Conosealkupplung angeschlossenen Probenhalterung einen gasdichten Behälter ergibt. Damit ist es möglich, auch einen beschädigten Prüfling gefahrlos abzutransportieren. Normalerweise bleibt jedoch diese Kupplung offen, so daß die Brennstabhalterung mit dem internen Hubwerk der abgeschirmten Transportflasche vertikal frei bewegt werden kann.

Der Kühlgasstrom wird mit einer Temperatur von etwa 50 °C zugeleitet, tritt durch ein federbelastetes Plattenventil in den inneren Versuchseinsatz ein, um dann im äußeren Ringspalt hochzuströmen. Hier oben wird das Kühlgas umgelenkt in das zentrale Rohr hinein. Sehr wesentlich für die Funktion der Einrichtung ist nun der frei verschiebbare Gasführungskolben. Er sorgt in jeder Stellung zwischen Coremitte und unterem Coretrand dafür, daß der Kühlgasstrom wirklich am Brennstab entlanggeführt wird.

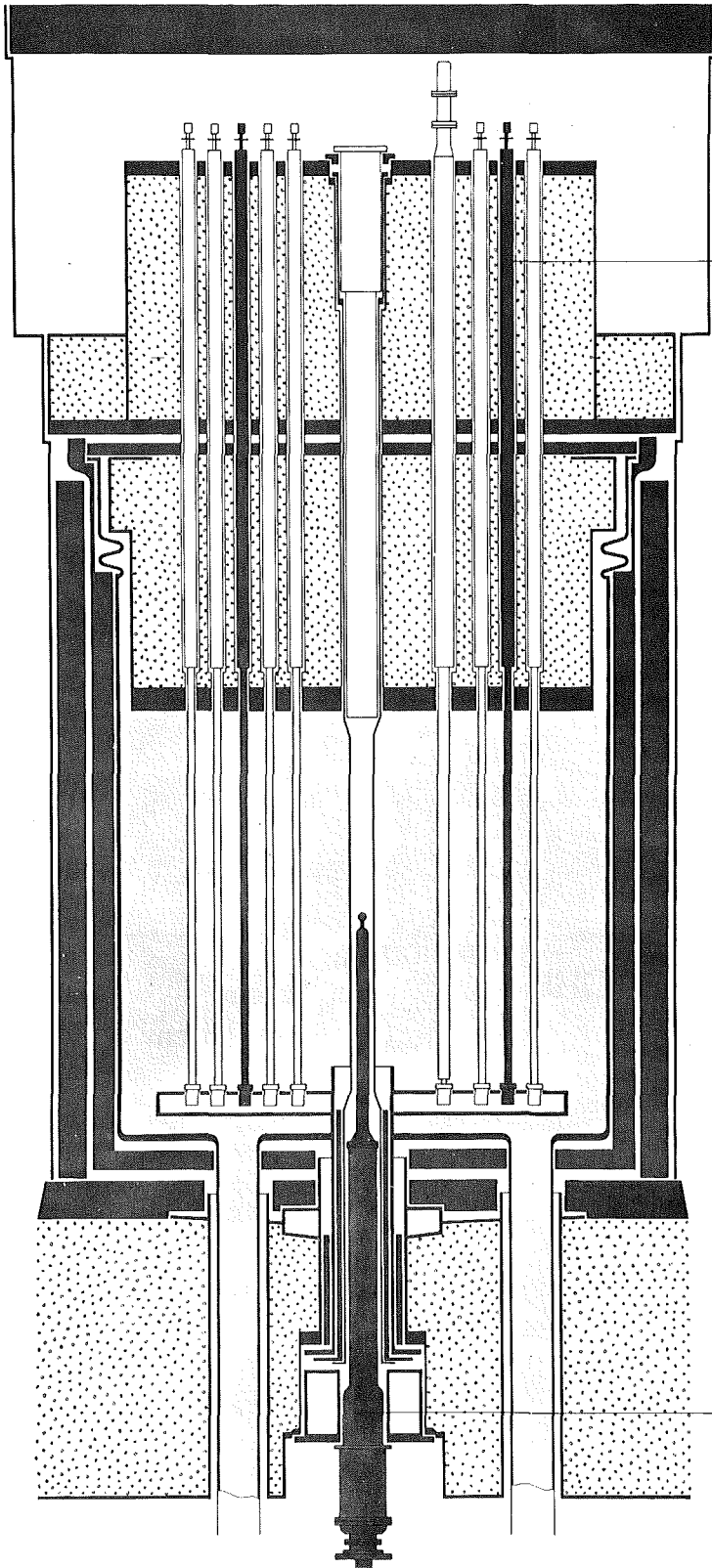
Hinter dem Brennstab und der Gasmischstrecke ist eine Meßblende eingebaut, um den wirksamen Gasstrom möglichst genau erfassen zu können. Das ist wichtig für die Leistungsbestimmung des Prüflings, wozu übrigens ein kleiner kontinuierlich arbeitender Rechner eingesetzt wird. Das erwärmte Helium hat dann noch eine Staub- und Halogenfilterkombination mit Silberwollefüllung zu passieren, durchströmt das Auslaßventil und verläßt unten seitlich den Loopeinsatz.

Um die Probenhalterung in den unter Gasdruck stehenden Versuchseinsatz hineinzubekommen, benötigt man eine im unteren Teil eingebaute Kombination von Stopfbuchsen und Schleusenkammern. Die Probenhalterung ist natürlich rohrförmig ausgebildet, so daß die Meßleitungen vom Prüfling im Innern hindurchgeführt werden können zu einem Stecker. Wir haben damit die Möglichkeit, die Meßwerte während der vertikalen Bewegungen und auch noch nach dem völligen Herausziehen während des horizontalen Verfahrens der Transportflasche permanent zu überwachen.

Diese Versuchseinrichtung ist nunmehr seit über 7 Jahren im Einsatz, ohne daß ein einziger ernster Störfall eingetreten ist.

#### Literatur:

Bestrahlungseinrichtungen für Brennstoff und Strukturmaterial,  
KFK 1985, Mai 1974



KAPSEL -  
VERSUCHSEINSATZ

CORE

H = 2160 mm

$\varnothing = 2400$  mm

$\Phi_{th \max} \approx 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup> s

He-LOOPEINSATZ

Abb.1

GfK  
IMF

FORSCHUNGS-  
REAKTOR FR2

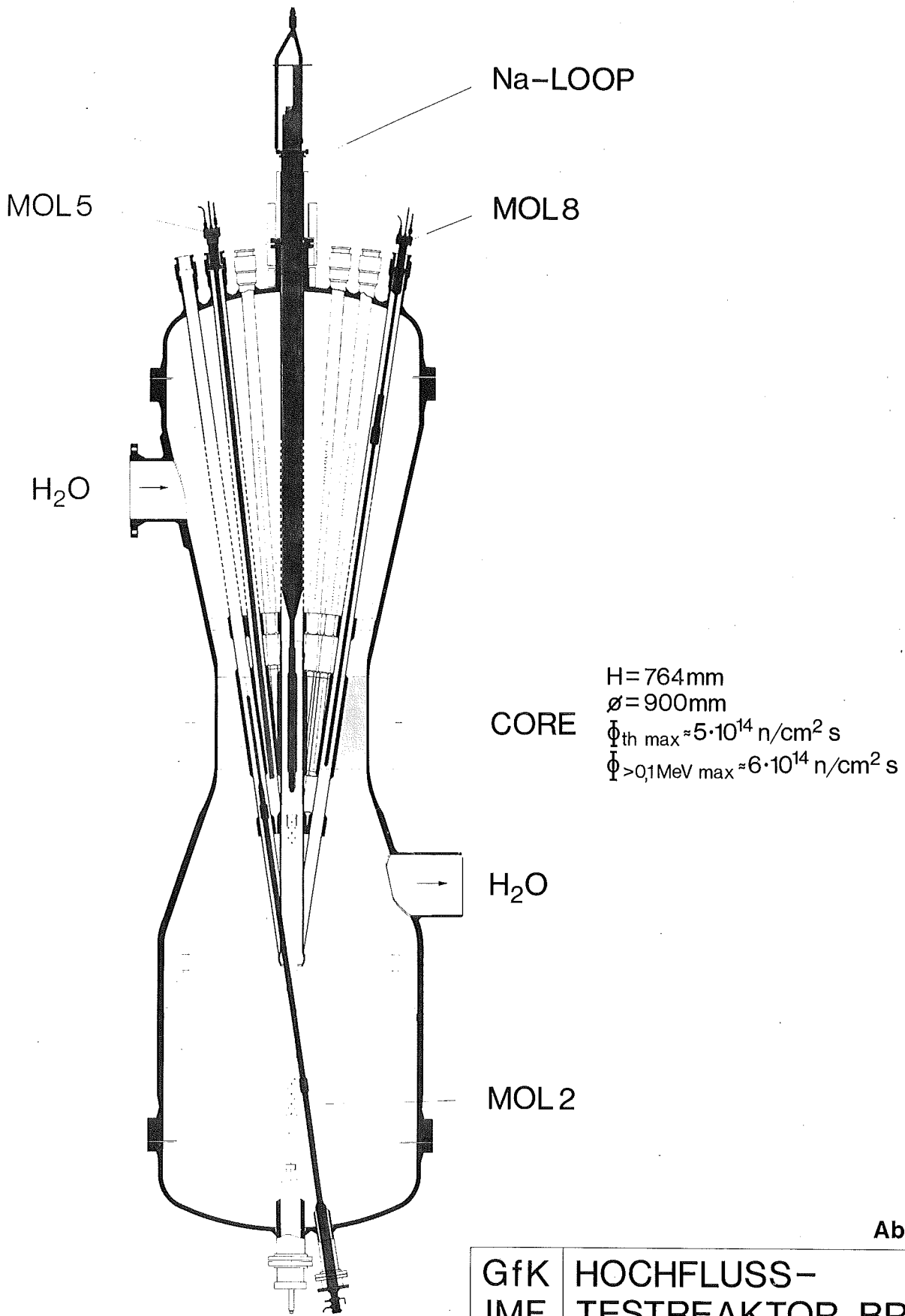
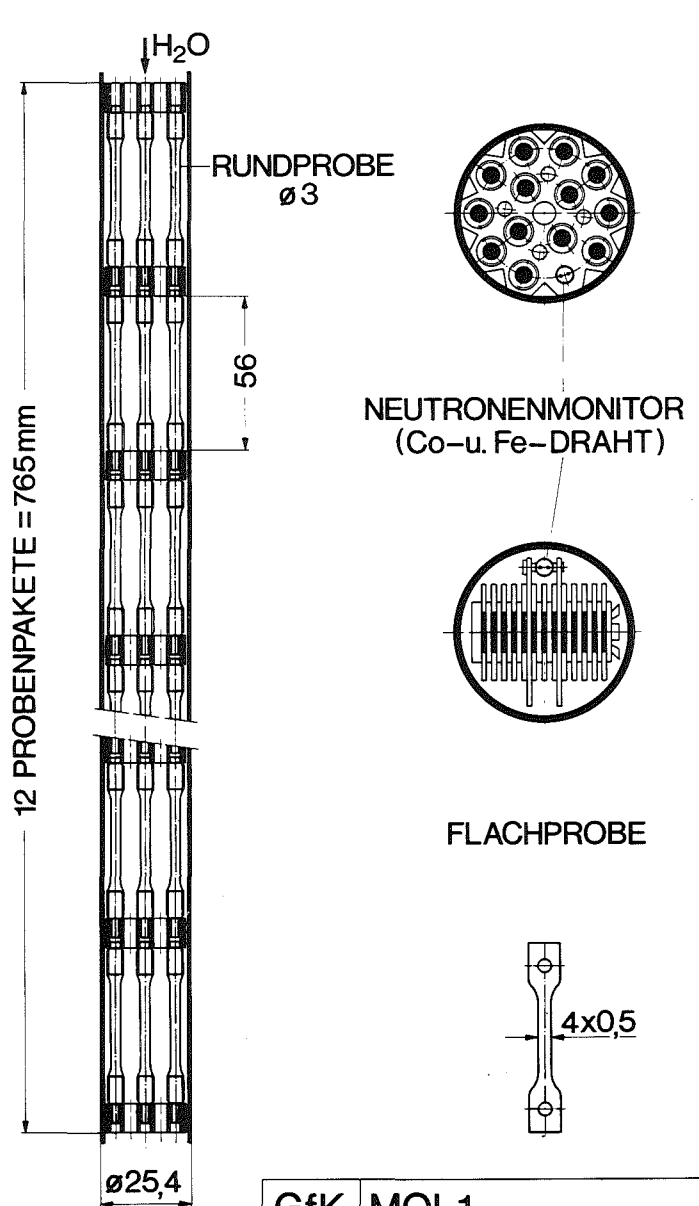


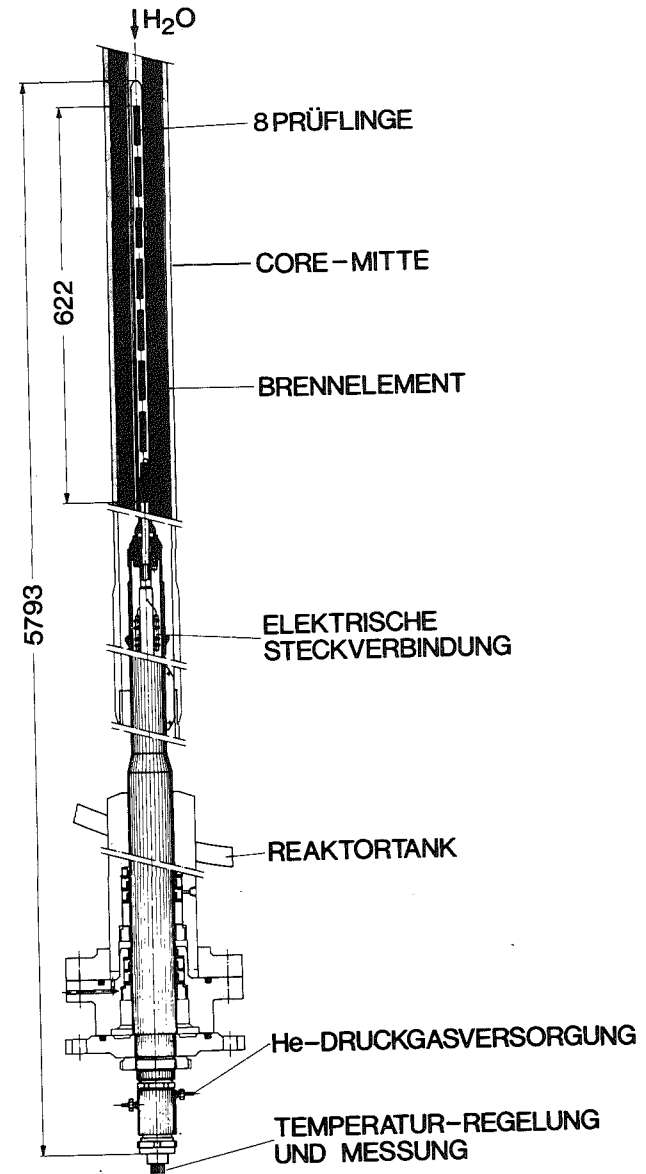
Abb.2

GfK	HOCHFLUSS-
IMF	TESTREAKTOR BR2



GfK	MOL 1
IMF	PROBENTRÄGER

Abb. 3



GfK	MOL 2
IMF	BESTRAHLUNGSEINSATZ

Abb. 4

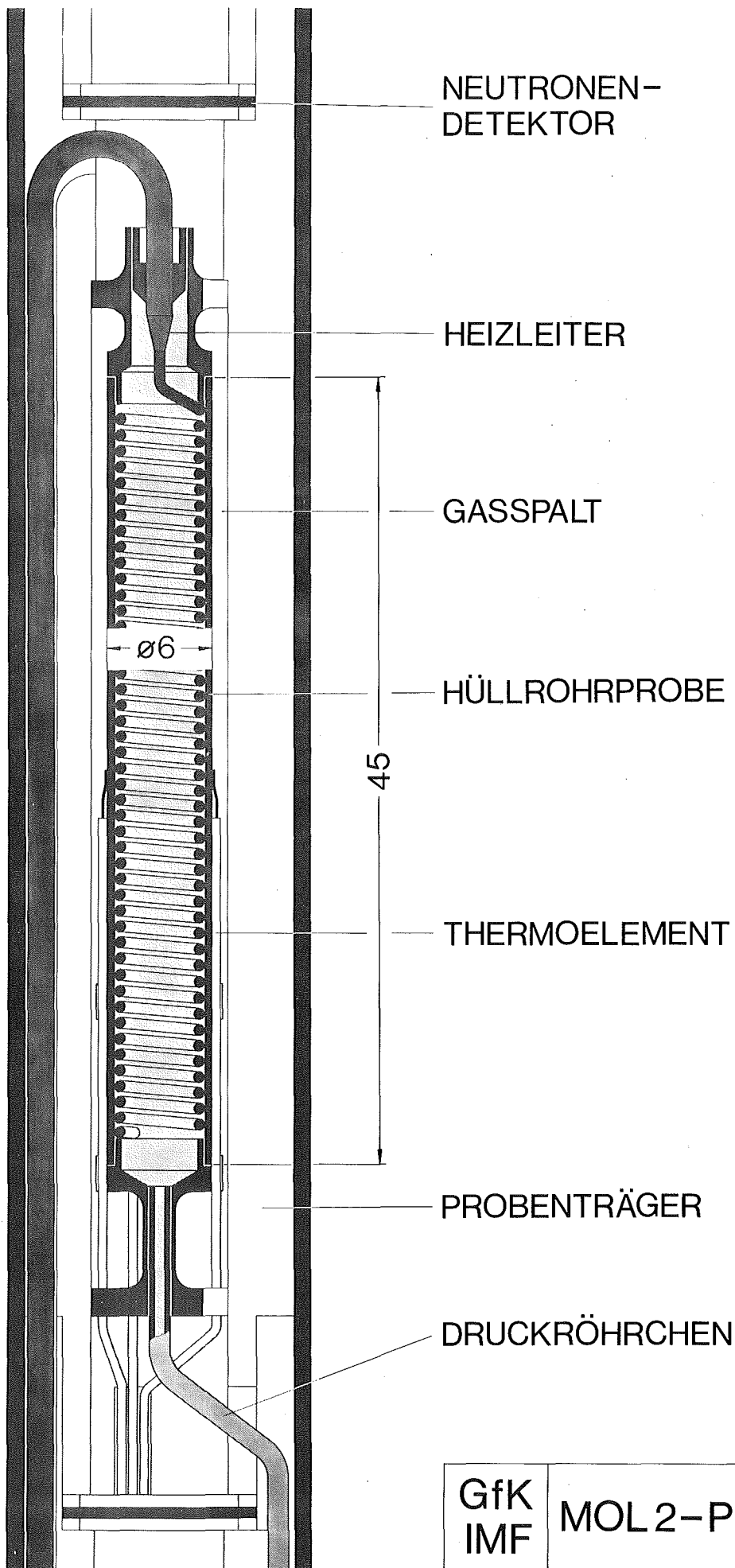


Abb.5

GfK IMF	MOL 2-PRÜFLING
------------	----------------



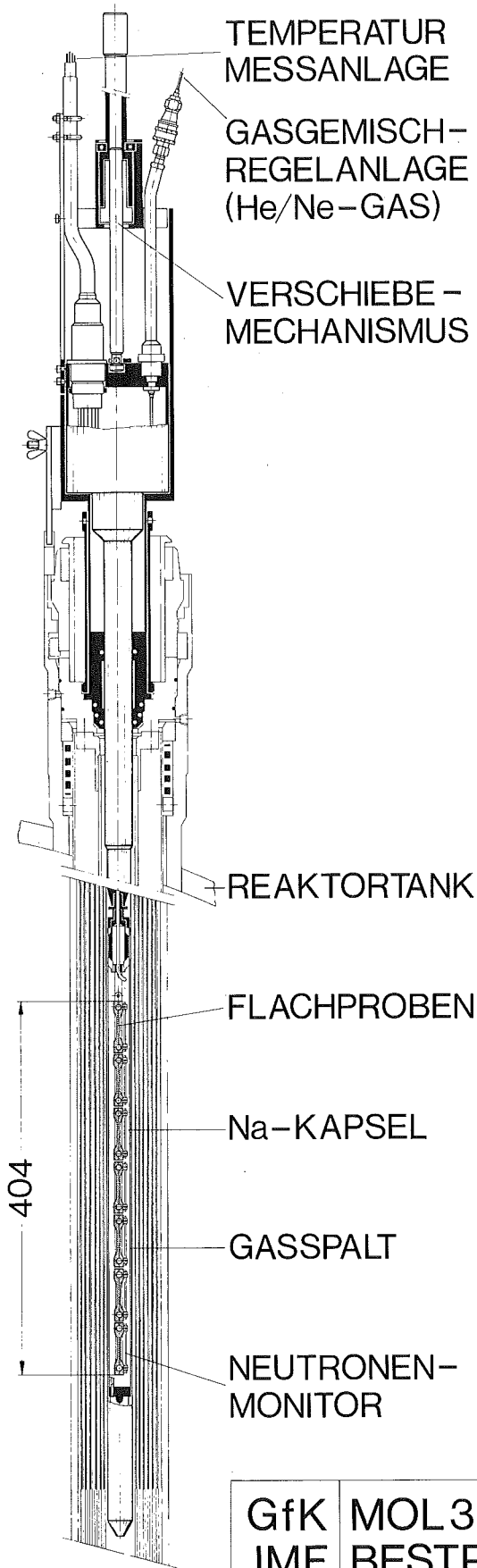


Abb. 6

GfK	MOL3
IMF	BESTRAHLUNGSEINSATZ

Abb. 7 Hohlraum - Resonanzmessung

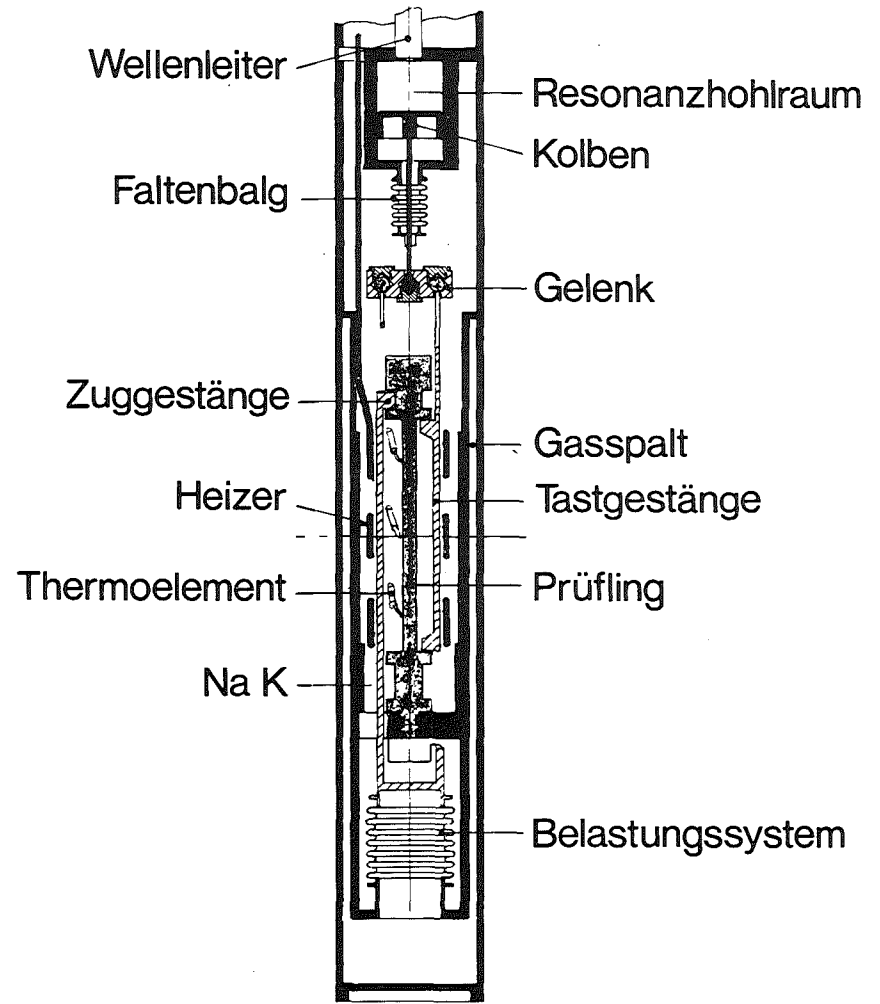
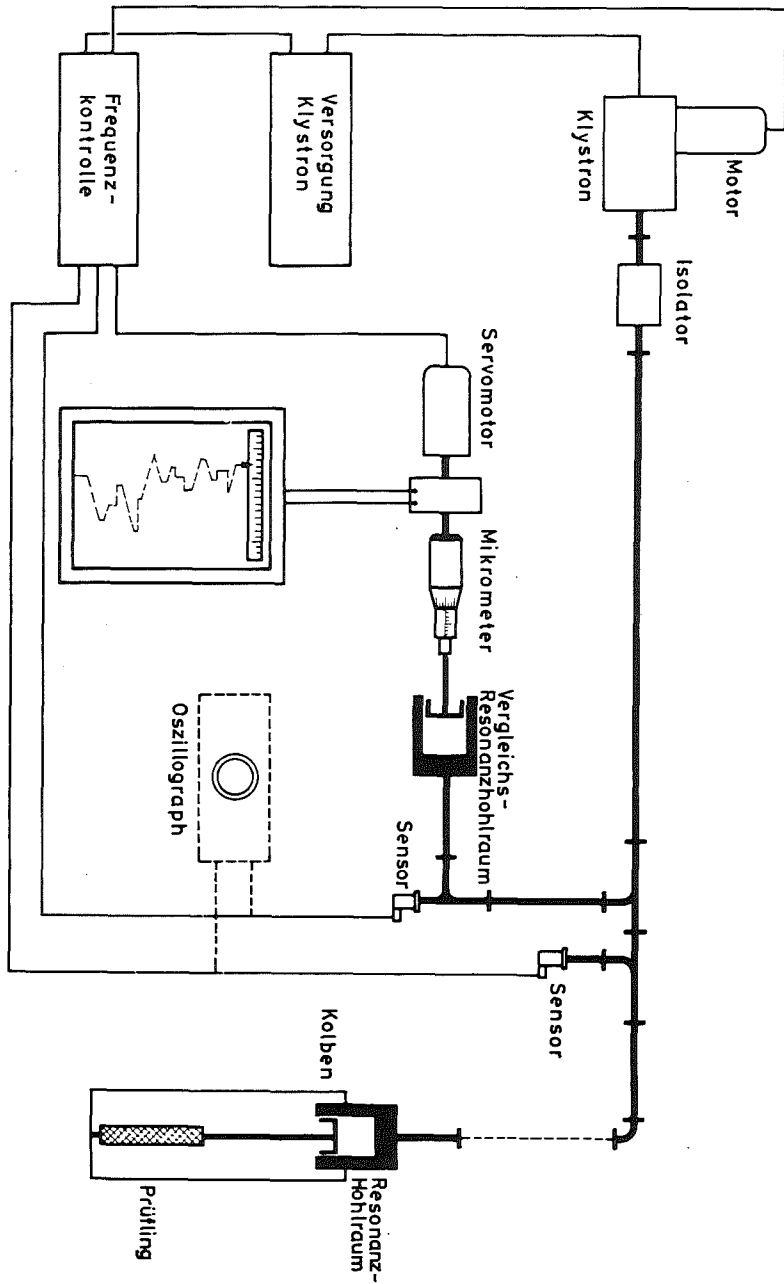


Abb.8

GfK	MOL 5 B
IMF	KRIECHKAPSEL

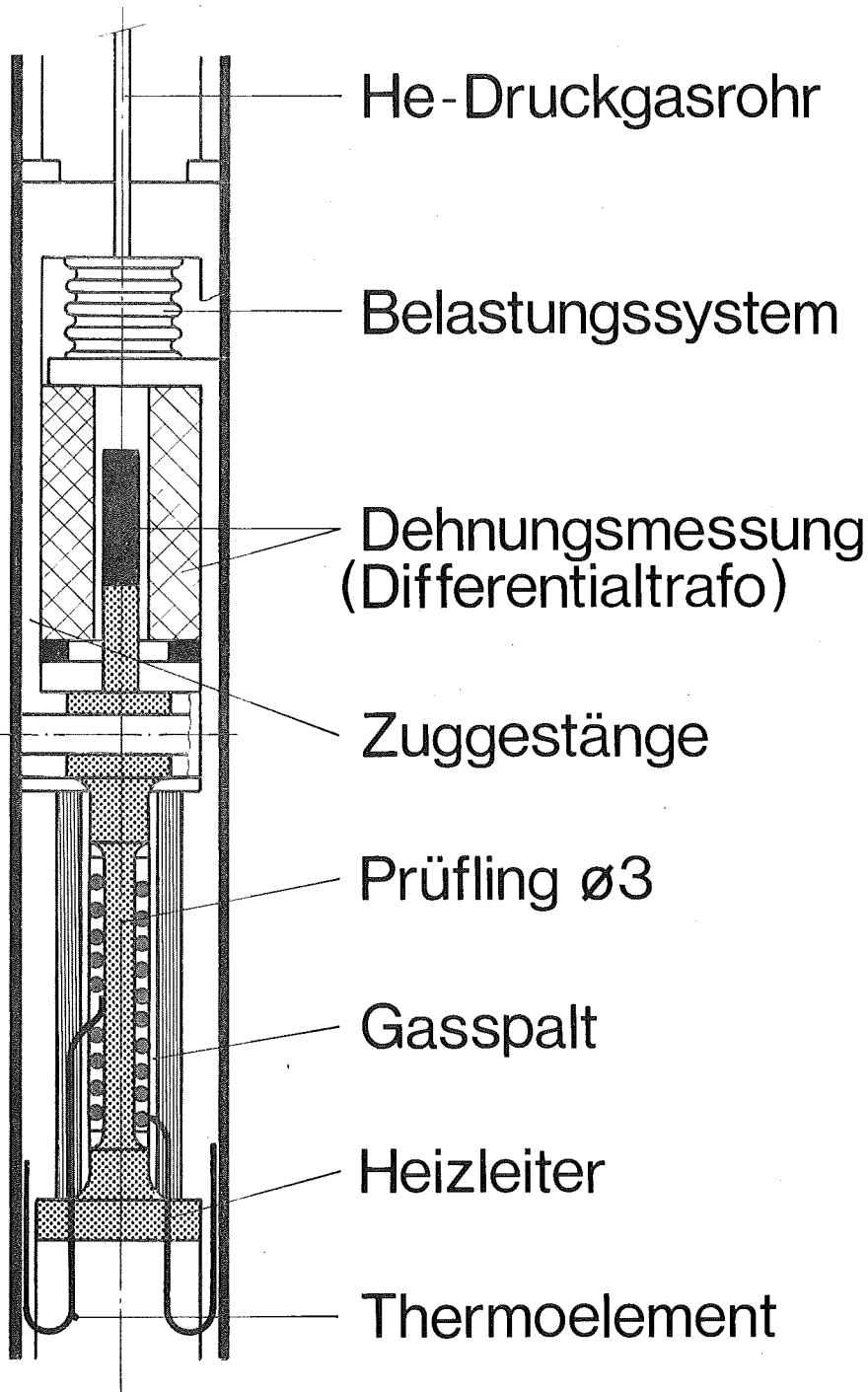
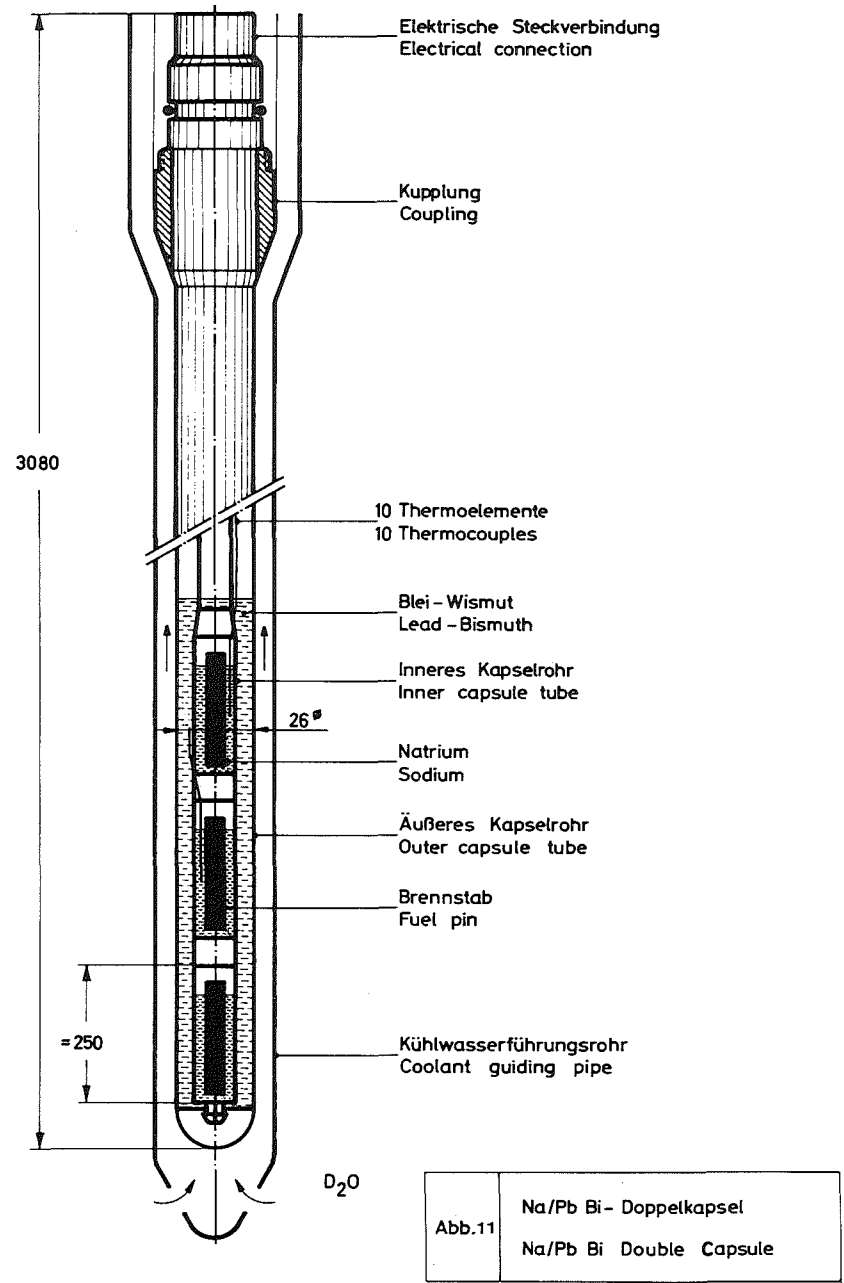
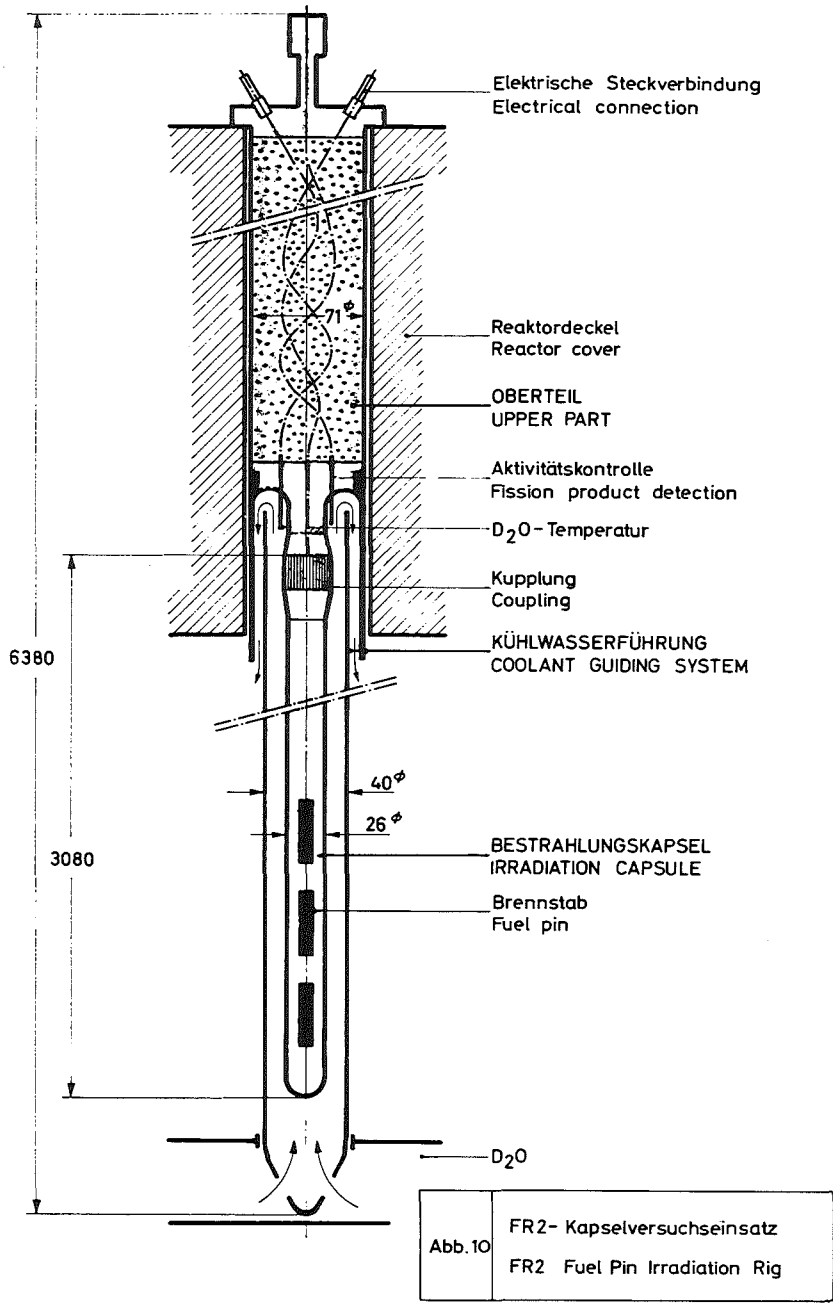


Abb. 9

GfK  
IMF

MOL 5 C

KRIECHVORRICHTUNG



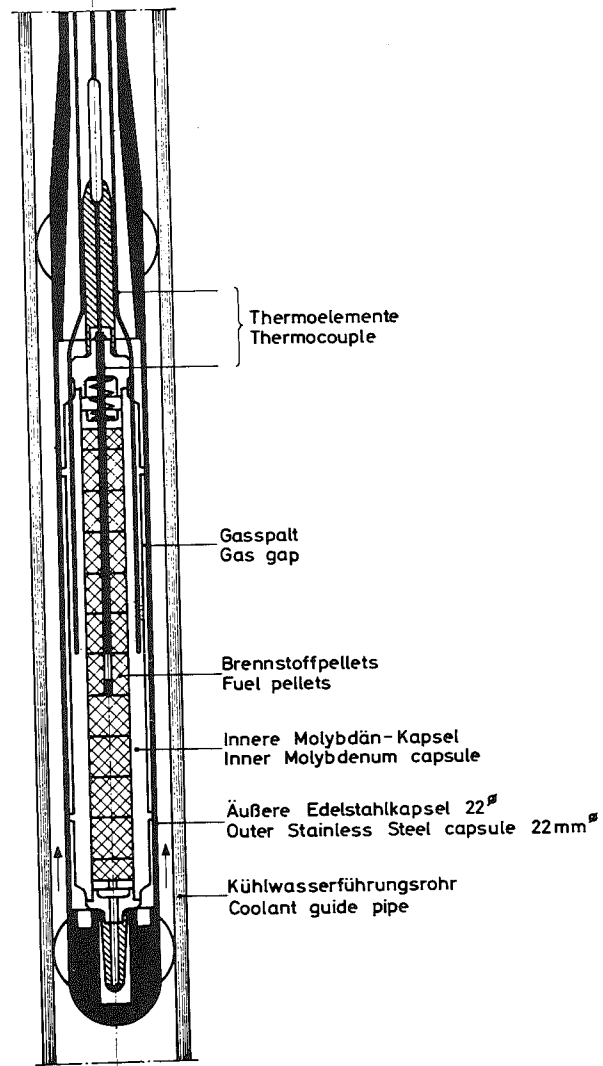


Abb.12	Gasspalt-Doppelkapsel Gas Gap Double Capsule
--------	---

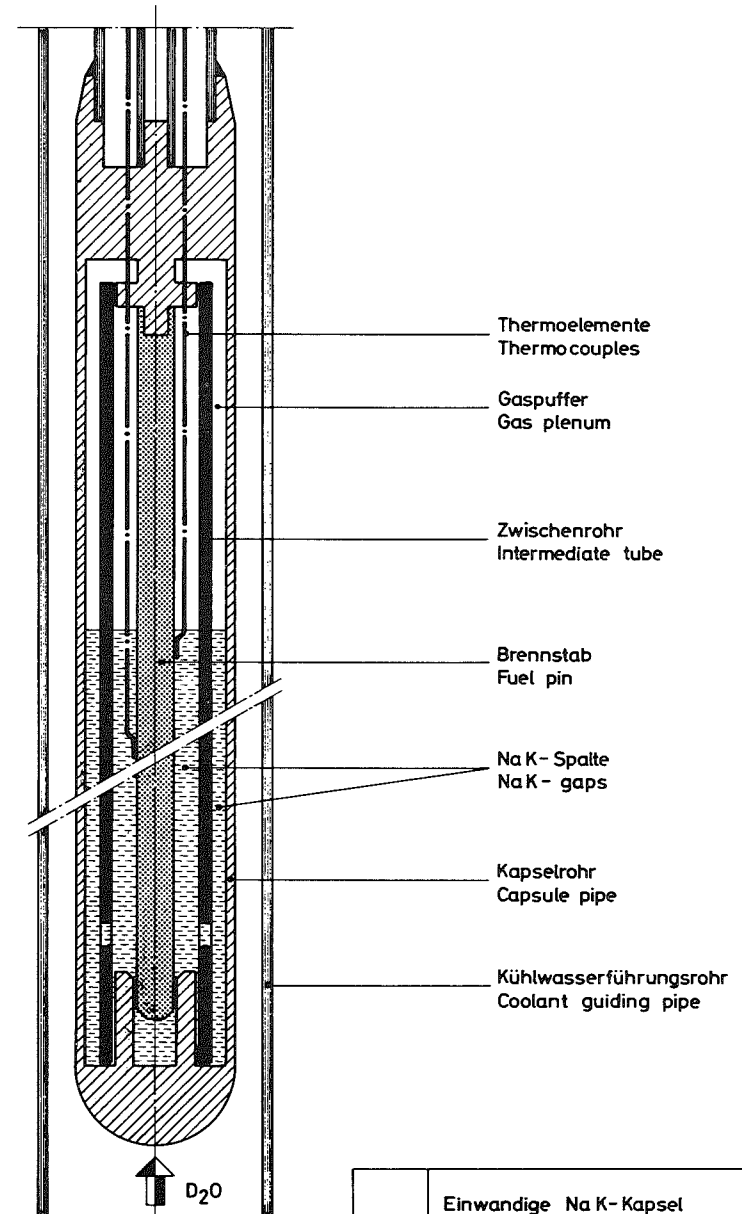


Abb.13	Einwandige Na K-Kapsel Single Walled Na K-Capsule
--------	--

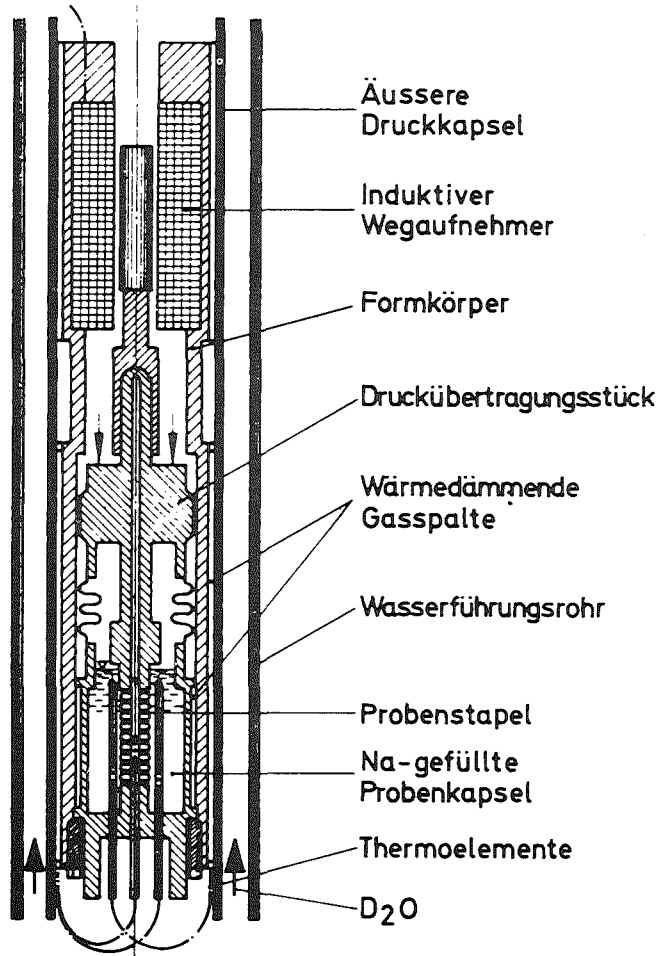


Abb.14 : FR2-Brennstoff - Kriechprobeneinsatz

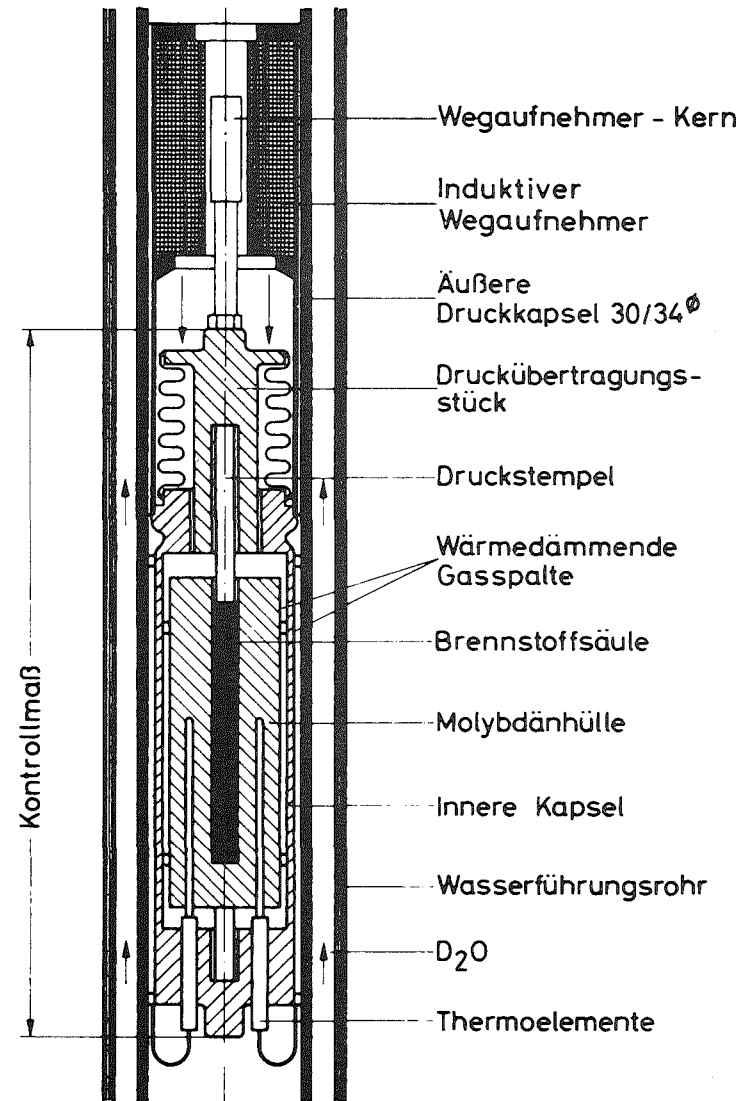
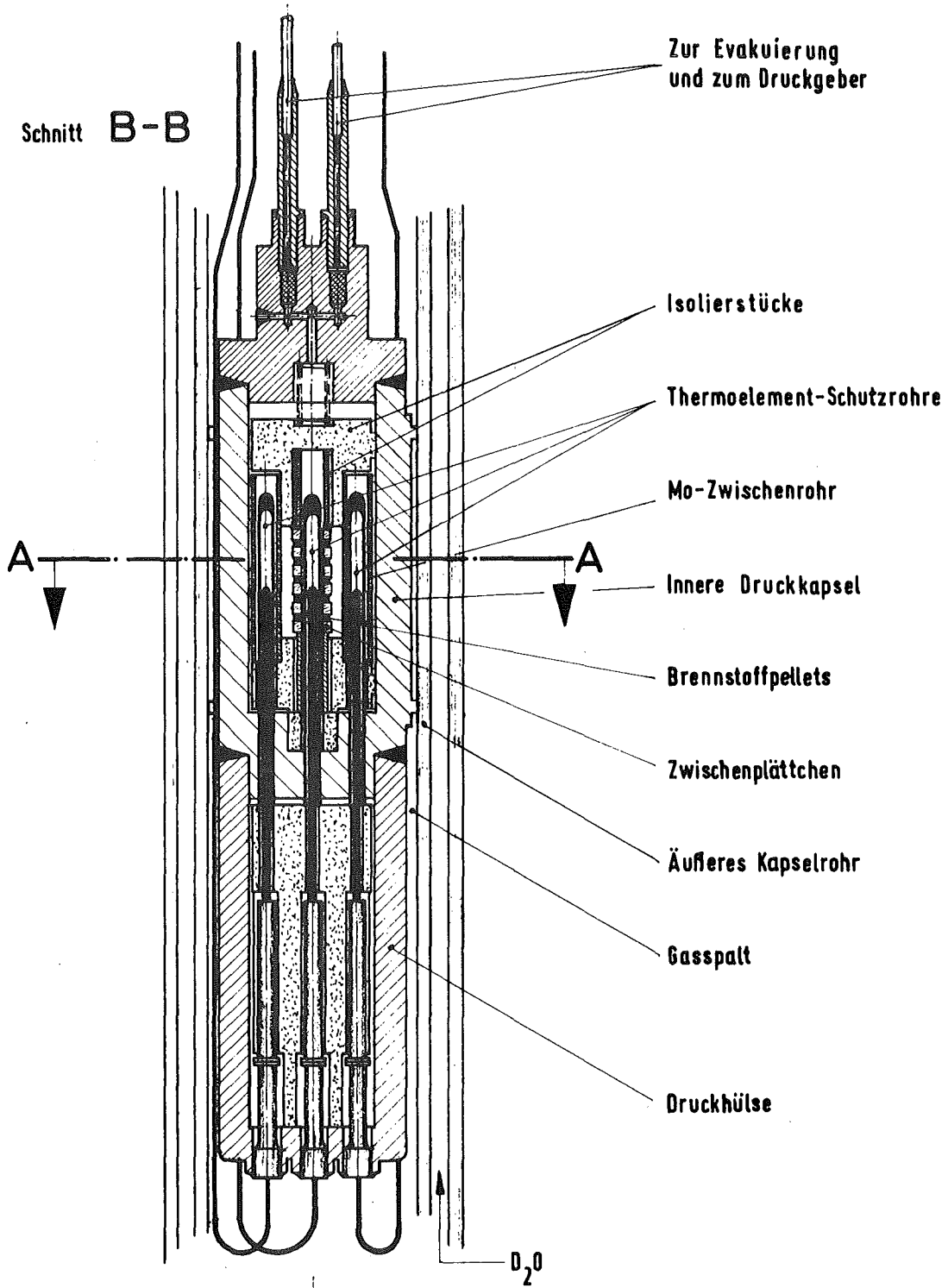


Abb.15 : Schematische Darstellung einer Druckschwellkapsel mit kontinuierlicher Dehnungsmessung für den FR2.



Schnitt A-A

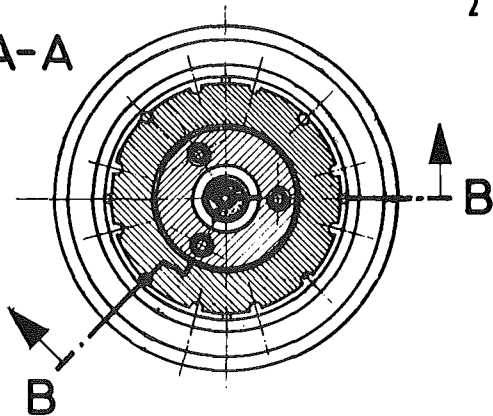


Abb. 16 : Hochdruck-Schwellkapsel

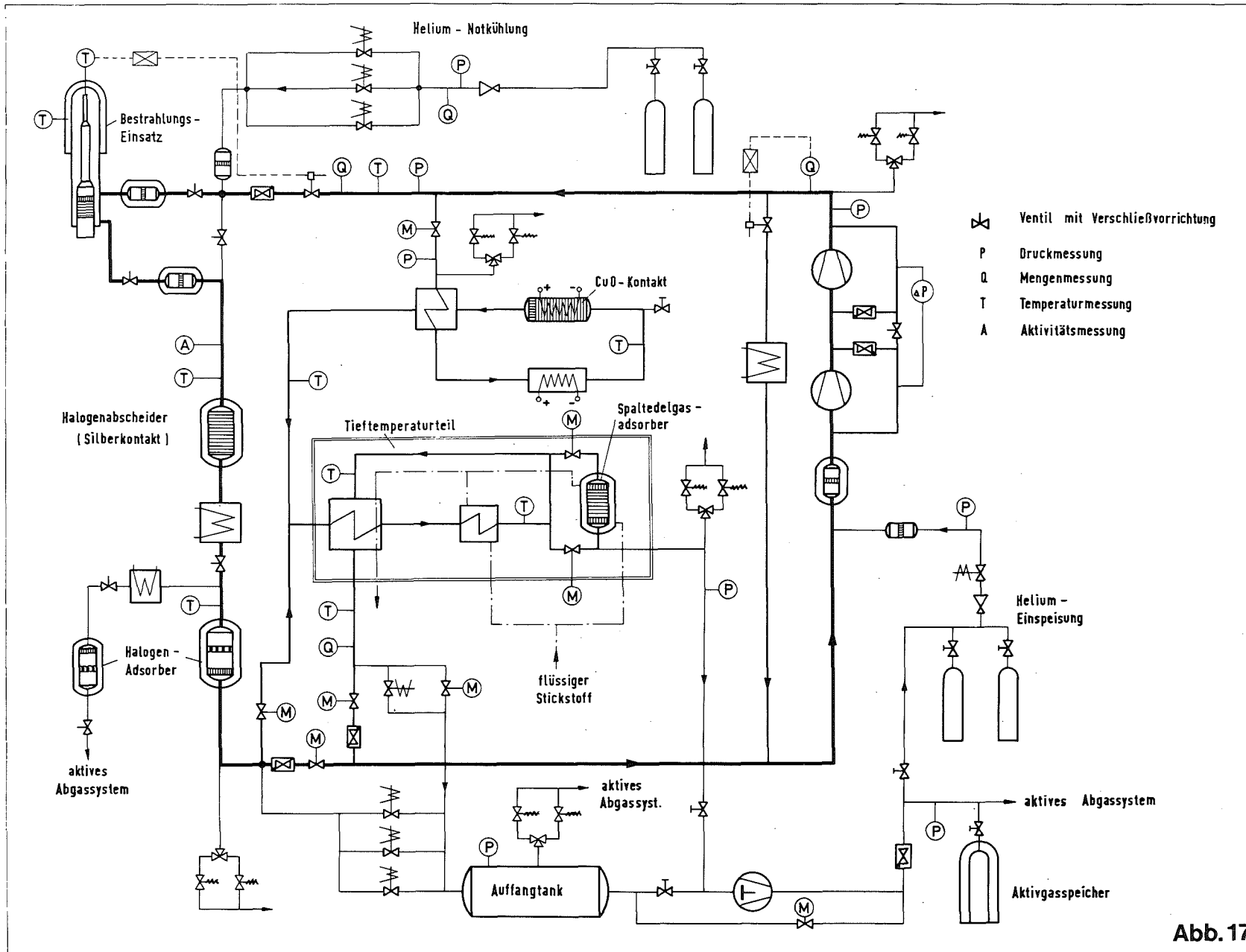
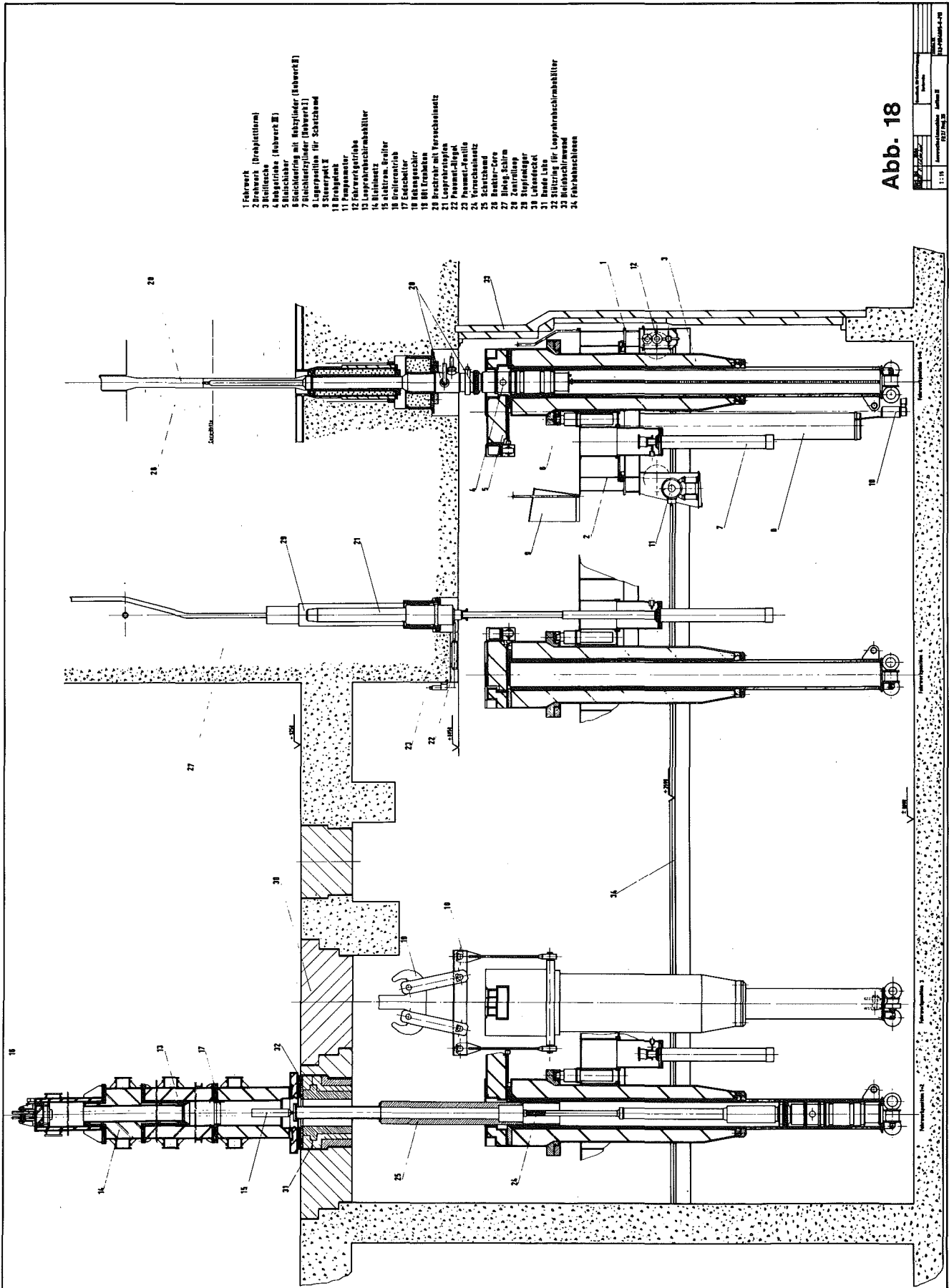


Abb. 17

FR 2 - Helium - Loop





- 1 Fahrbrett
- 2 Bremsen (Bremseplatte)
- 3 Kegelröhre
- 4 Kegelröhre (Kegelröhre)
- 5 Kegelröhre
- 6 Kegelröhre mit Hauptfeder (Hauptfeder)
- 7 Kegelröhre mit Hauptfeder
- 8 Kegelröhre für Schaltmechanismus
- 9 Kegelröhre
- 10 Kegelröhre
- 11 Kegelröhre
- 12 Kegelröhre
- 13 Kegelröhre
- 14 Kegelröhre
- 15 Kegelröhre
- 16 Kegelröhre
- 17 Kegelröhre
- 18 Kegelröhre
- 19 Kegelröhre
- 20 Kegelröhre
- 21 Kegelröhre
- 22 Kegelröhre
- 23 Kegelröhre
- 24 Kegelröhre
- 25 Kegelröhre
- 26 Kegelröhre
- 27 Kegelröhre
- 28 Kegelröhre
- 29 Kegelröhre
- 30 Kegelröhre
- 31 Kegelröhre
- 32 Kegelröhre
- 33 Kegelröhre
- 34 Kegelröhre

Abb. 18

1:18	1:18	1:18
1:18	1:18	1:18
1:18	1:18	1:18

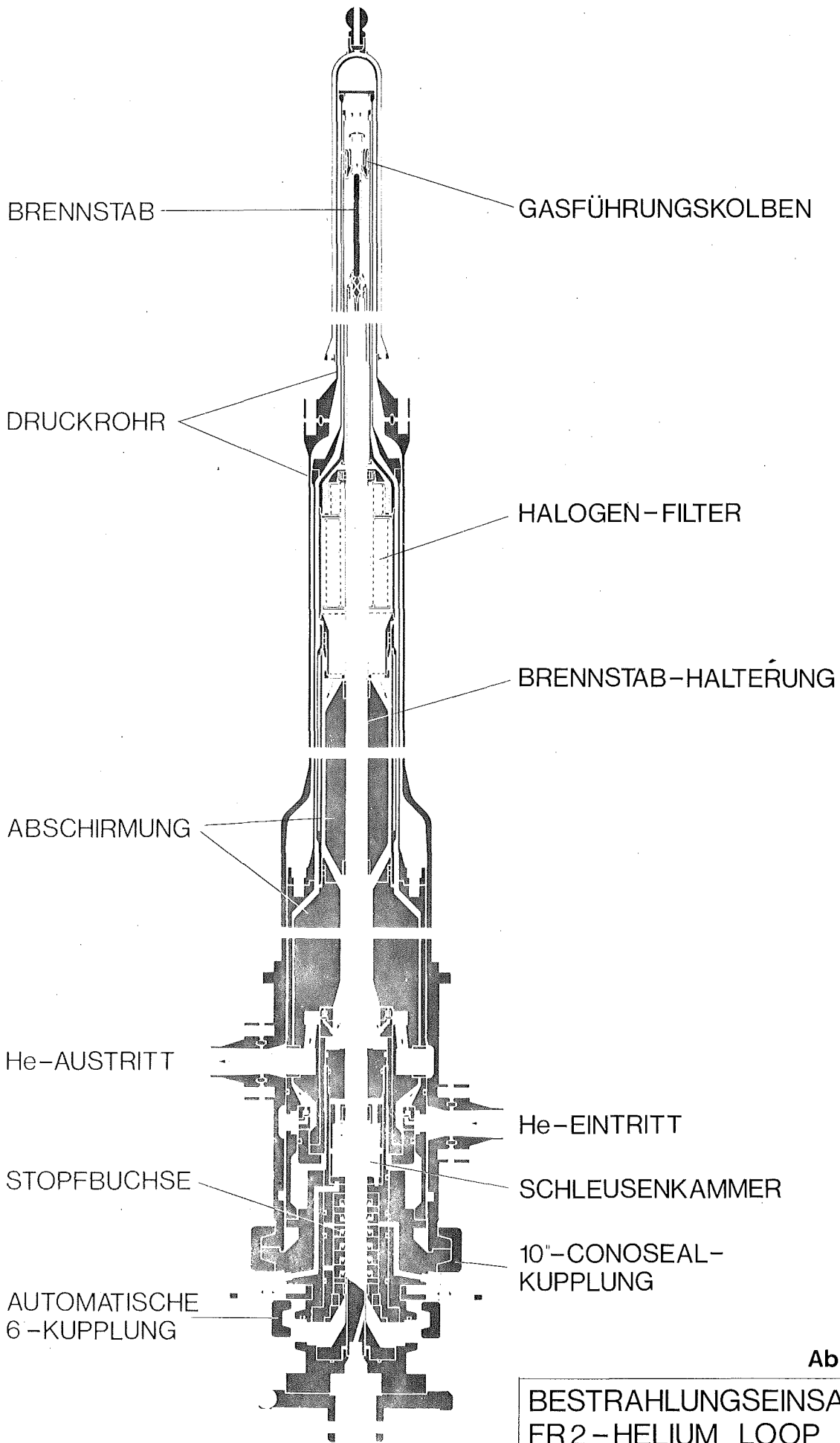


Abb. 19

BESTRAHLUNGSEINSATZ  
FR2-HELIUM LOOP

## XVIII. ZERSTÖRUNGSFREIE NACHUNTERSUCHUNG

von

D. Geithoff

### Inhalt:

1. Allgemeines
2. Visuelle Inspektion und Dokumentation
3. Äußere Vermessung
4. Durchleuchtung
5. Gamma-Spektrometrie

## 1. Allgemeines

Die Bestrahlungs-Nachuntersuchung ist ein sehr umfangreiches und weitverzweigtes Arbeitsgebiet, das insbesondere mit seinen Spezialuntersuchungen tief in andere Fachbereiche hineinreicht, über die schon berichtet wurde. Eine Gesamtdarstellung würde in diesem Seminar erheblich über den hier gestellten Rahmen hinausgehen. Daher wird in diesem Beitrag lediglich die zerstörungsfreie Nachuntersuchung behandelt. Sie stellt die Untersuchungsphase dar, die von allen bestrahlten Brennstab-Prüflingen durchlaufen wird, bevor eine Auffächerung in spezielle Untersuchungslinien erfolgt.

Mitunter hat man den Eindruck, daß die Arbeitsmethoden der Nachuntersuchung etabliert und damit längst Routine geworden sind. Das ist zu einem Teil auch der Fall. Jeder Stab wird schließlich seit Jahren visuell begutachtet, vermessen, durchleuchtet und  $\gamma$ -spektroskopiert. Eine Entwicklung hin zur Verfeinerung hat jedoch jede Einzelstufe durchgemacht und wenn auch ihr Verlauf nicht im einzelnen dargestellt wird, soll doch die bisherige Entwicklung in einigen Fällen kurz erwähnt werden.

Zunächst einmal muß gesagt werden, daß wenn hier in diesem Brennelement-Seminar von Nachuntersuchung gesprochen wird, nicht die Brennelement-Nachuntersuchung gemeint ist, sondern erst eine Vorstufe davon, die Brennstab-Nachuntersuchung.

Zwar sind innerhalb des PSB-Bestrahlungsprogrammes schon eine Reihe von Bündeln, also Brennelement-ähnliche Konfigurationen bestrahlt worden, aber dabei war entweder das Bündelgerüst vorgegeben und für die Untersuchung nicht zugänglich (wie beim Experiment DFR-350) oder aber das Bündel wurde nicht in unseren Heißen Zellen sondern am Ort der Bestrahlung untersucht. Das Kleinbündel Mol-7A mit seinen 7 Stäben zählt in diesem Zusammenhang nicht. Es wurde nur zur Gewinnung der Stäbe zerlegt und nicht eigens als Bündelindividuum untersucht.

In dieser Hinsicht haben wir also noch eine Entwicklungsstufe vor uns, denn die Untersuchung von Brennstab-Bündeln bis hin zu wirklichen Brennelement-Dimensionen erfordert tatsächlich eine ganz andere Arbeitstechnik, wo wir Erfahrungen erst noch sammeln müssen.

## 2. Visuelle Inspektion und Dokumentation

Es ist im Prinzip trivial, daß ein zur Untersuchung angelieferter Stab zunächst genau und eingehend angeschaut wird. Was allerdings von diesem komplexen Eindruck als Bild oder auch als Meßwert festgehalten werden soll, ist bereits eine Frage, die unterschiedlich beantwortet werden kann. In der Praxis ist es sinnvoll, zwischen intakten und defekten Stäben zu unterscheiden.

Zunächst der häufigere Fall, die Untersuchung der äußerlich unversehrten Stäbe: Nach einer Inspektion der gesamten Staboberfläche mit Hilfe eines Periskopes werden die Eindrücke fotografisch festgehalten. Bei langen Stäben ist es arbeitstechnisch unsinnig, die gesamte Staboberfläche zu kartografieren. Um die Bilder aussagekräftig zu machen, müßten sie in einer gewissen Vergrößerung hergestellt werden, was zu einer enormen Zahl von Bildern führen würde, mit entsprechenden Kosten und entsprechender Arbeitszeit. Kurze Stäbe von 20 cm Länge wurden früher bei uns vollständig, allerdings nur mit geringer Vergrößerung abgebildet. Heute sind die Fotos sehr selektiv. Fotografiert werden das heiße Ende mit Schweißnaht, das kalte Ende mit Schweißnaht und auffällige Besonderheiten (Abb. 1).

Der Grund für das starke Zurücknehmen der Bilderzahl liegt darin, daß der Aussagewert einer Kartografie aus Erfahrung kleiner ist als früher angenommen. Auffällige Merkmale sind häufig durch Handhabung nach der Bestrahlung hervorgerufen (Manipulatorkratzer, Meßwerkzeugspuren) und haben für das vorherige Bestrahlungsverhalten keine Bedeutung.

Deutlich anders ist die Lage bei defekten Stäben. Hier ist eine ausgedehnte Dokumentation nötig.

Risse oder durchgeschmolzene Hüllrohre sind nicht gut durch reine Meßdaten wie Durchmesser, Rißlänge, Rißbreite wiederzugeben. Hier ist das Foto Hauptträger der Information (Abb. 2). Die Abbildung zeigt in ihren Detailaufnahmen den üblichen Umfang der Dokumentation eines schadhafte Stabes.

Da sich Defekte oft zeitlich verändern, sind mitunter mehrfache Dokumentationen notwendig.

### 3. Äußere Vermessung

Eine Information, die heutzutage nach Bestrahlungsende am dringendsten verlangt wird, ist die Veränderung der äußeren Dimensionen, insbesondere die des Stabdurchmessers. Nun ist der Stabdurchmesser einmal entlang der Stabachse sehr unterschiedlich verändert und weiterhin auch noch einmal quer zur Stabachse in Form der Ovalität. Es ergibt sich damit die Frage nach einem geeigneten und ausreichenden Meßraster, mit dem diese Stabveränderungen beschrieben werden sollen. Dieser Meßraster hat bei unseren Stabuntersuchungen eine Entwicklung durchgemacht, wobei eine verbesserte Meßtechnik ebenso wie eine wachsende Erfahrung in der Auswertung diese Entwicklung getragen haben.

Die Rapsodie-Stäbe,<sup>+)</sup> die augenblicklich in Arbeit sind, werden folgendermaßen vermessen: Der Durchmesser entlang der Stabachse wird zwischen zwei Meßschneiden kontinuierlich abgetastet und zwar entlang einer bzw. zweier gegenüberliegender Mantellinien. Die eine Meßschneide liefert dabei über einen induktiven Wegaufnehmer die Meßsignale, während die andere als Gegenlager mitgeführt wird. Eine eingehende Beschreibung dieser Meßtechnik ist kürzlich in einem Sammelbericht der Heißen Zellen /1/ veröffentlicht worden. In Abb. 3 sehen wir diese Abtastlinien im Stabquerschnitt durch Pfeile angedeutet. Die Durchmesser werden in vier jeweils um  $45^{\circ}$  verdrehten Ebenen vermessen. Auf diese Weise finden wir auf unseren 6 mm Durchmesser-Stäben am Zylindermantel die Meßlinien im Abstand von 2,2 mm. Lokale Dimensionsveränderungen, die zufällig zwischen diese Linien fallen, werden damit nicht erfaßt. Natürlich könnte man die Linien noch enger legen, müßte dann aber einen zusätzlichen Arbeits- und damit besonders Zeitaufwand in Kauf nehmen. So stellt diese Lösung mit 4 Abtastzügen einen Kompromiß dar.

Daß man sich allerdings nicht andererseits mit nur zwei Mantelschrieben begnügen darf, kann man leicht an diesem Bild erkennen. Die Spitze im Bereich der oberen Brutstoffsäule müßte aufgrund von zwei Linienschrieben in  $90^{\circ}$  Abstand als eine wulstförmige, also allseitige Durchmesserergrößerung angesehen werden. Erst die dritte Kurve zeigt, daß sich an der gleichen Längenposition auch eine Kerbe befindet. Der Stab ist also einseitig eingedrückt. Somit kann diese Verformung als erhöhte Ovalität bezeichnet werden. Die Ursache ist vermutlich eine mechanische Mißhandlung im Laufe der Handhabung nach der Bestrahlung.

+)

gemeint sind Brennstäbe aus dem Bündelexperiment Rapsodie I

Ergänzt wird dieser längsgestreifte Meßraster noch durch einige Querlinien, d.h. durch Ovalitätsbestimmungen des Zylindermantels und zwar bevorzugt an solchen Orten, die eine erhöhte Ovalität erwarten lassen.

Etwas unvollkommener wird die sogenannte Stabdurchbiegung aufgenommen. In nur einer festgelegten Ebene wird längs der Stabachse die Durchbiegung mit Hilfe eines induktiven Wegaufnehmers gemessen. Da der Stab aber nicht nur wie ein Fidelbogen in zwei Dimensionen, sondern auch wie ein Korkenzieher verzogen sein kann, gibt diese Messung nur ein unvollkommenes Bild der Verbiegung. Auch hier ist wieder der Zeitaufwand die Ursache für die Beschränkung.

Schließlich ist noch zu erwähnen, daß natürlich auch die Länge des Stabes bestimmt wird, eine vergleichsweise problemlose Messung. In Abb. 4 sind nochmals die Einzelmessungen der Dimensionskontrolle aufgeführt. Sie alle sind nötig, um ein möglichst vollständiges Bild von der äußeren geometrischen Veränderung des Stabes wiederzugeben.

Die hier vorgestellte Vermessungsmethode ist erst jüngst in genau dieser Art eingeführt worden. Bis vor kurzem wurde der Stabdurchmesser noch in einer wendelförmigen Bahn abgetastet. Diese sogenannten Wendelschriebe (s. Abb. 5) vereinigen Durchmesser- und Ovalitätswerte in einer Darstellung. Der Meßraster kann durch die Steigung der Wendel verengt oder erweitert werden. Bei unseren Stäben wurde üblicherweise eine Wendelsteigung von 5 mm benutzt. Der Abstand der Tastlinien ist damit 2,5 mm, also vergleichbar den 2,2 mm am derzeitigen Mantelschrieb-Raster.

Die Kombination von Durchmesser und Ovalität im Wendelschrieb bringt allerdings in gewissen Fällen Schwierigkeiten bei der Auswertung, wenn dann beide Meßwerte wieder voneinander getrennt werden müssen. Abb. 6 zeigt das Problem schematisch. Eine lokale Ausbauchung ist im Mantelschrieb gut erkennbar, im Wendelschrieb dagegen, wo diese Ausbauchung nur einmal von der Wendellinie überfahren wird, ist sie unter dem Auf und Ab der Ovalität nur schwer auszumachen. Da aber in jüngster Zeit gerade solche lokalen Durchmesseränderungen Bedeutung erlangt haben, werden die zur Zeit untersuchten Rapsodie-Stäbe nicht "gewendelt".

Auf eine Schwäche der Durchmesser-Meßtechnik sollte ich noch hinweisen und diese Schwäche besteht eben darin, daß man Durchmesser bestimmt, also die Summe zweier Radien und damit einseitige Veränderungen des Radius nicht als solche identifizieren kann. Eine praktikable Lösung wurde bisher noch nicht gefunden.

#### 4. Durchleuchtung

Die Durchleuchtung ist eine sehr ergiebige Untersuchungsmethode, da sie ein Gesamtbild von der inneren Geometrie der Brennstoffsäule gibt, das auf andere Art nur viel unklarer erhalten wird.

Nur ganz kurz etwas zum Grundsätzlichen:

Die übliche Röntgendurchleuchtung mit Bromsilber-Filmen als Bildfixierer scheitert bekanntlich bei stark radioaktiven Körpern deshalb, weil diese selbst elektromagnetische Strahlen aussenden, die ebenso wie die Röntgenstrahlen die Filme schwärzen. Bei den hochaktiven Brennstäben kann diese Beeinträchtigung nur mit größerem Aufwand unterlaufen werden. Es gibt im wesentlichen drei Methoden, die für die Stabdurchleuchtung in Frage kommen und alle drei werden auch bei unseren Nachuntersuchungen praktiziert.

Als erstes die Durchleuchtung mit dem Betatron. Sie ist die Methode unserer ersten Wahl in den Heißen Zellen der GfK. Das Gerät liefert hochenergetische Gamma-Strahlen mit einer mittleren Energie von ca. 10 MeV. Die harten Gamma-Strahlen sind sehr durchdringend und erzeugen selbst in einem mit dicken Stahlplatten gegen die radiaktive Strahlung abgeschirmten Röntgenfilm ein genügend kontrastreiches Bild. Ein Beispiel zeigt Abb. 7 wo Hohlräume in einem Oxid-Brennstab sichtbar gemacht wurden.

Auch mit niederenergetischer Röntgenstrahlung, die genau im Energiegebiet der radioaktiven Strahlen liegt, also z.B. bei 400 keV, kann man hochabgebrannte Stäbe durchleuchten. Hier muß nur dafür gesorgt werden, daß die Röntgenstrahlung in der Intensität überwiegt. Außerdem muß der Aufnahmefilm sofort nach der Exposition gegen die weiterleuchtende radioaktive Gamma-Strahlung abgeschirmt werden. Eine Anlage nach diesem Prinzip wird im Europäischen Institut für Transurane in Karlsruhe betrieben, die auch für unsere Untersuchungen zur Verfügung steht. Abb. 8 zeigt eine Röntgenaufnahme von einem der zur Zeit untersuchten Rapsodie-Stäbe. Die Detailerkennbarkeit ist in dieser Aufnahme trotz hohen Abbrands, also hoher Aktivität, sehr gut.

Die Neutronografie bildet insofern eine Ausnahme unter den Durchleuchtungsmethoden, als man hier eine qualitativ andere Strahlenart, die Neutronen und einen anderen Bildtyp - eine aktivierbare Folie - einsetzt. Damit ist sie vollkommen unabhängig von der Höhe der Radioaktivität des Untersuchungsobjektes. Allerdings muß die Intensität der Strahlung hoch sein, wenn man bei vernünftigen Expositionszeiten bleiben will. In Abb. 9 ist



die Neutronografie einer Anzahl von Rapsodie-Stäben zu sehen. Gegenüber dem vorhergezeigten Bild ist die Detaillierkennbarkeit deutlich geringer. Obgleich in den gezeigten Bildern wesentliche Qualitätsunterschiede erkennbar sind, ist die Frage, welche denn nun die beste Durchleuchtungsmethode sei, nicht eindeutig zu beantworten. Vielmehr gibt es für jede Technik optimale Einsatzgebiete (Abb. 10). Bei dicken Stäben lassen sich besonders gute Aufnahmen mit dem Betatron erzielen, während dünne Stäbe mit der Röntgenanlage bessere Bilder liefern. Die Neutronografie findet dort ihre Stärken, wo auch neutronenphysikalisch die größten Kontraste auftreten, zum Beispiel bei unterschiedlichen Spaltstoff-Konzentrationen und Materialpaarungen, die einteilig Wasserstoff enthalten. Das Paradebeispiel ist hier immer die verirrte Brutstofftablette in der Brennstoffsäule, die man mit Betatron oder Röntgendurchleuchtung nicht eindeutig erkennen würde.

In unserem Nachuntersuchungsprogramm werden alle drei Durchleuchtungen praktiziert, wobei wir nicht immer in der Lage sind, die beste Methode zu wählen, insbesondere wenn die Untersuchungen am Bestrahlungsort durchgeführt werden. Aber selbst nicht optimale Bilder bringen noch soviel Information, daß wir darauf nicht verzichten können.

## 5. Gamma-Spektrometrie

Bei der Gamma-Spektrometrie benutzt man nicht eine externe Strahlenquelle, um in die Stäbe hineinzusehen, sondern die Stäbe "leuchten" selbst. Freilich sehr selektiv, es leuchten nur gewisse Bestandteile. Von der Vielzahl der radioaktiven Stoffe, die sich in einem Brennstab nach der Bestrahlung vorfinden - es werden ja Hunderte von Spaltnukliden gebildet - bleibt jedoch nur ein kleines Grüppchen übrig, wenn es darum geht, bei der Nachbestrahlungsuntersuchung einzelne Nuklide durch ihre Strahlung zu identifizieren. Das liegt zum einen daran, daß aufgrund ihrer kurzen Halbwertszeit bis zur Nachuntersuchung viele Nuklide bereits zerfallen sind. Andere wieder - unter ihnen das bekannte Sr-90 - senden nur eine uncharakteristische  $\beta$ -Strahlung aus, die dazu noch weitgehend vom Stab selbst absorbiert wird. In einigen Fällen, leider auch bei den ja ebenfalls radiaktiven Kernbrennstoffen, hat die emittierte Gamma-Strahlung eine so geringe Energie, daß auch sie durch Selbstabsorption für die Messung von außen praktisch verloren geht.

Was dann noch übrig bleibt sind etwa ein Dutzend Nuklide, die in Abb. 11 aufgelistet sind. Die Hauptvertreter bezüglich der Aktivität sind Spaltprodukte, die je nach Abklingzeit die eine oder aber beide Untergruppen umfassen.

Wesentlich geringer in ihrer Aktivität, aber noch deutlich identifizierbar findet man dann noch die Aktivierungsprodukte des Hüllmaterials.

Bei der von uns praktizierten Gamma-spektrometrischen Analyse wird ausschließlich die Verteilung der Spaltprodukte entlang der Stabachse bestimmt. Im Prinzip wäre es möglich, für alle neun hier aufgelisteten Nuklide eine Verteilungskurve zu messen, aber die Praxis gebietet gewisse Einschränkungen, auf die hier nicht näher eingegangen werden kann.

Ein typisches Gamma-Spektrum aus der Brennstoffregion eines Rapsodie-Stabes ist in Abb. 12 zu sehen. Nach etwa 500 Tagen Abklingzeit sind als Hauptbestandteile die Gamma-Linien des Zr/Nb-95, des Ru/Rh-106 und des Cs/Ba-137 zu erkennen. Allein bei ihnen ist die Aufnahme eines besonderen Profils ohne Schwierigkeiten möglich.

Es ist üblich, zunächst alle Gamma-Strahler in einem sogenannten integralen Gamma-Profil zusammenzufassen. Eine solche Kurve gibt bereits Hinweise auf die Verteilung ihrer Einzelbestandteile. Abb. 13 zeigt ein solches Profil, aus dem auf eine extensive Cäsium-Wanderung sowie auf Ruthenium-Ansammlungen geschlossen werden kann. In Abb. 14 ist das zugehörige differentielle Profil der Cs-137-Gamma-Linie dargestellt. Man findet darin für verschiedene Bereiche die Struktur des integralen Profils wieder.

Das entsprechende Ruthenium-Profil gehört zur Zeit nicht zur Routine-Untersuchung, da sich in der Vergangenheit gezeigt hat, daß die aufgefundenen Ruthenium-Ansammlungen geringe Bedeutung für das Stabverhalten haben.

Des weiteren wird noch die Zr/Nb-95-Verteilung aufgenommen. Sie liefert eine gute Aussage über die axiale Brennstoffverteilung. Das Nuklidpaar dient sozusagen als Indikator für den Brennstoff, da es sich von ihm nicht entmischt. Axiale Brennstoffverdünnungen, also Spalte und Risse in der Säule sind als Aktivitätssenken gut erkennbar. In günstigen Fällen kann man auf diesen Effekt aufbauend sogar die Brennstofftabletten zählen und abschnittsweise vermessen. Abb. 15 zeigt ein Zr/Nb-Profil an dem solche Messungen möglich waren.

Schließlich ist noch zu sagen, daß zu unserer Gamma-spektrometrischen Analyse auch das Aufnehmen einer Reihe von Spektren an bevorzugten Punkten auf der

Stabachse gehört. Eines der Spektren aus dem Brennstoffbereich war in Abb. 12 zu sehen. Mit diesen Punktanalysen könnten sonstige Aktivitätsansammlungen identifiziert werden.

Mit der Gamma-Spektrometrie ist in unserem Untersuchungsgang die zerstörungsfreie Stab-Analyse abgeschlossen. Bis dahin ist der Stab unversehrt geblieben und kann gegebenenfalls wieder in den Reaktor zurückgehen, um erneut bestrahlt zu werden. Von jetzt an beginnt die Untersuchung irreversibel zu werden.

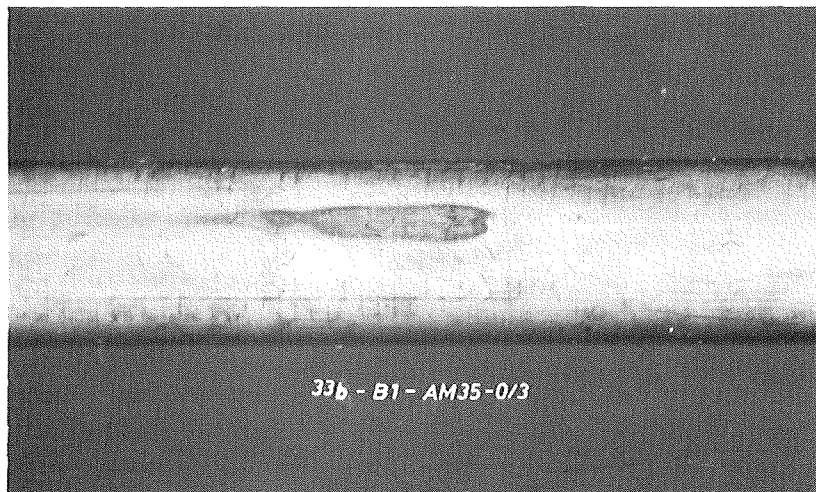
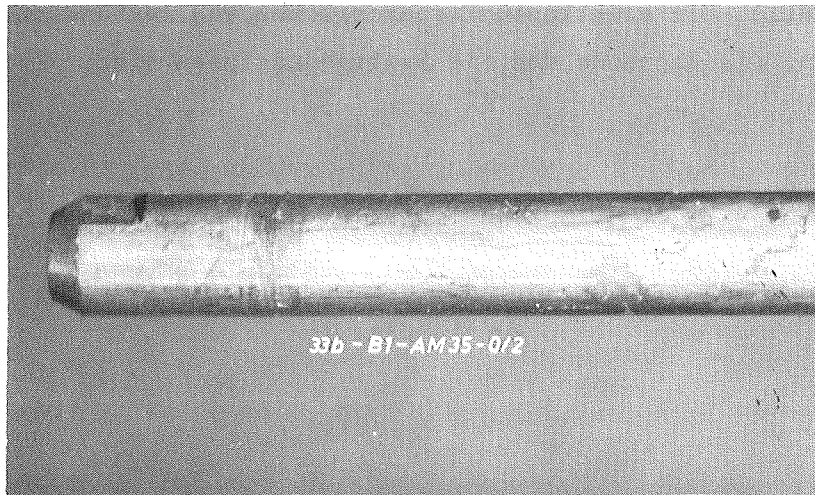
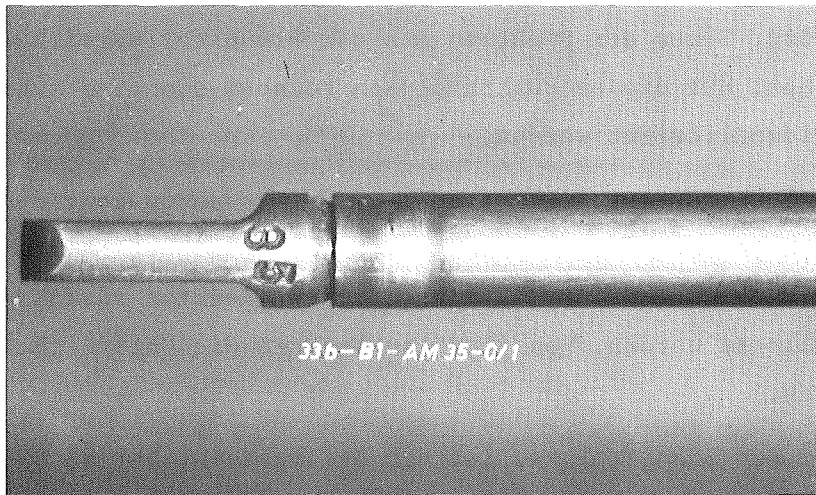
Die Erstellung des Schnittplanes ist der Meilenstein, der am Eingang dieser Untersuchungsphase steht. Die einzelnen Stababschnitte wandern nun in verschiedene Untersuchungskanäle, von denen die wichtigsten die Keramografie mit Metallografie, die elektronenmikroskopischen und mechanischen Hüllrohruntersuchungen, die Abbrand- und die Spaltgasanalysen sind.

#### Literatur:

/1/ H. Enderlein:

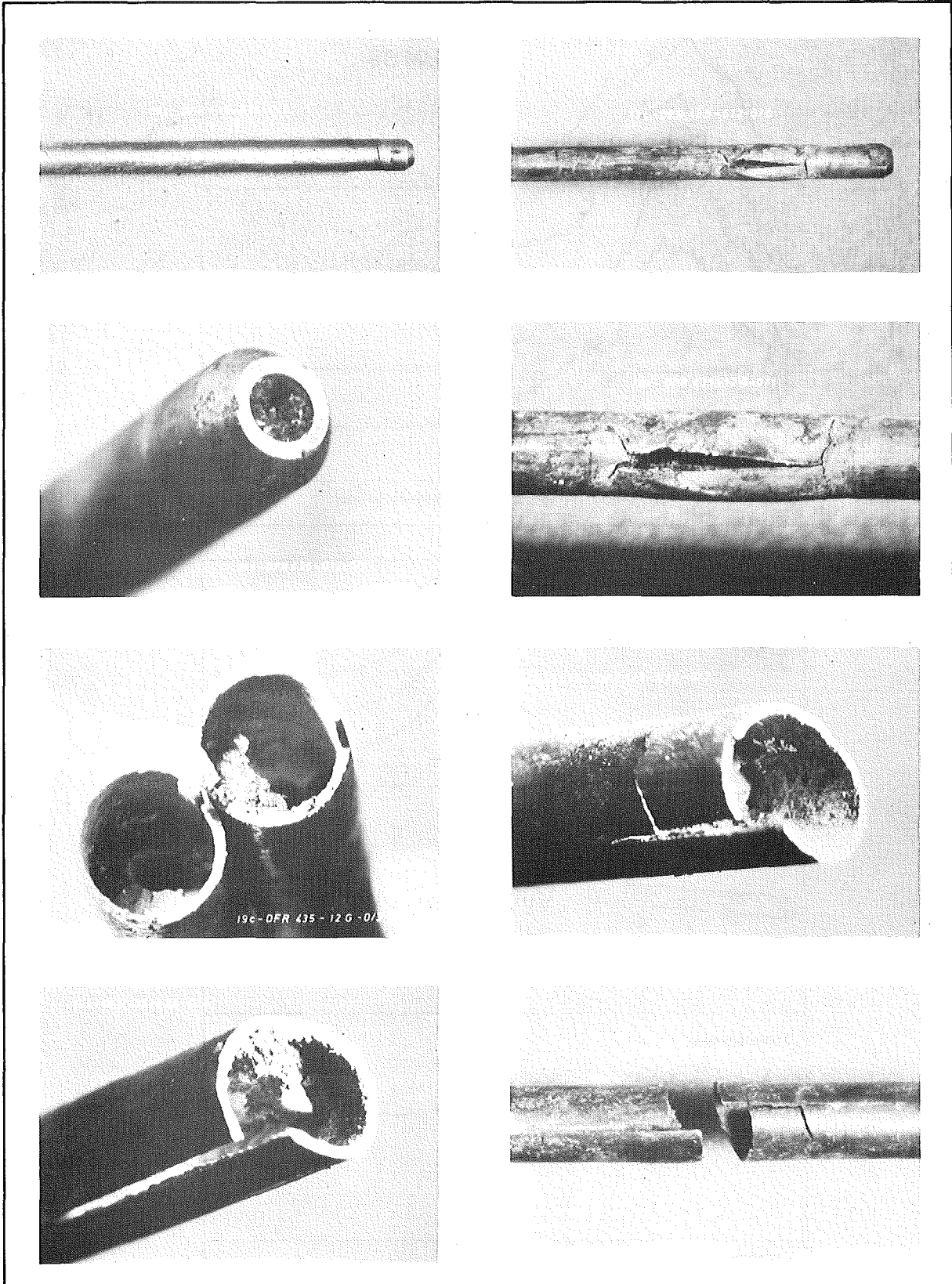
Methoden der Dimensionskontrolle von bestrahlten Brennstoffprüflingen  
in den Heißen Zellen,

Beitrag Nr. 4 in Berichte aus den Heißen Zellen, GFK 1974



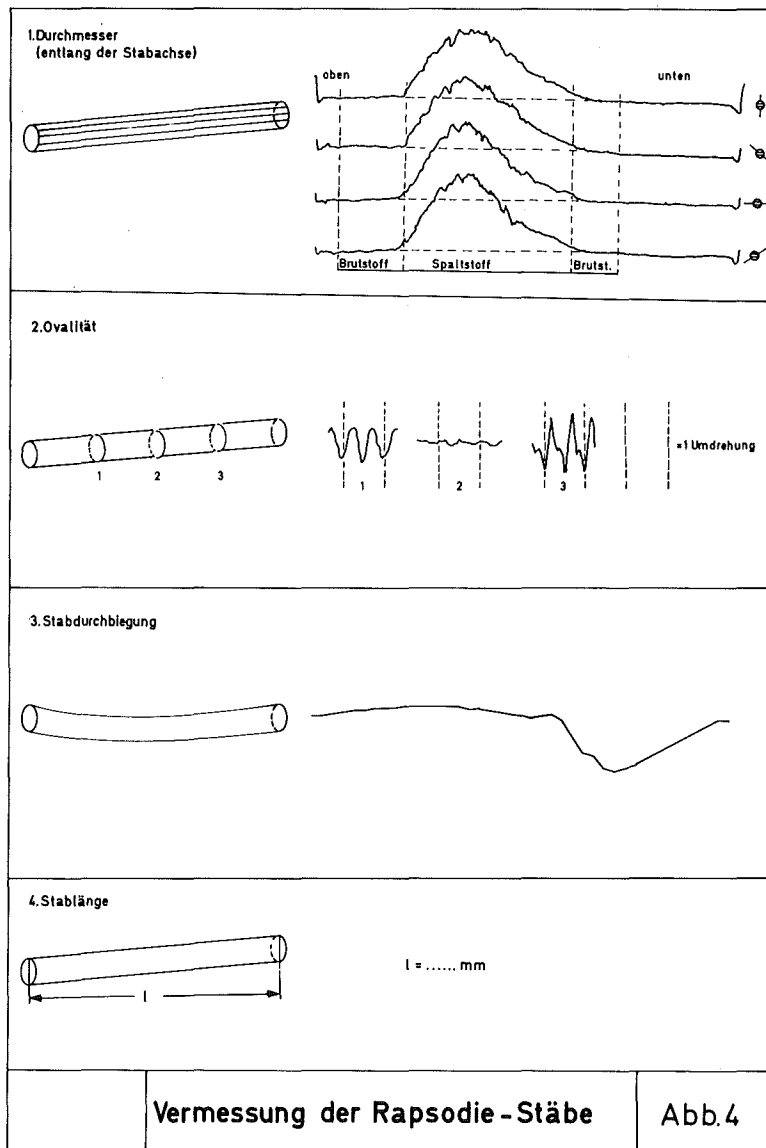
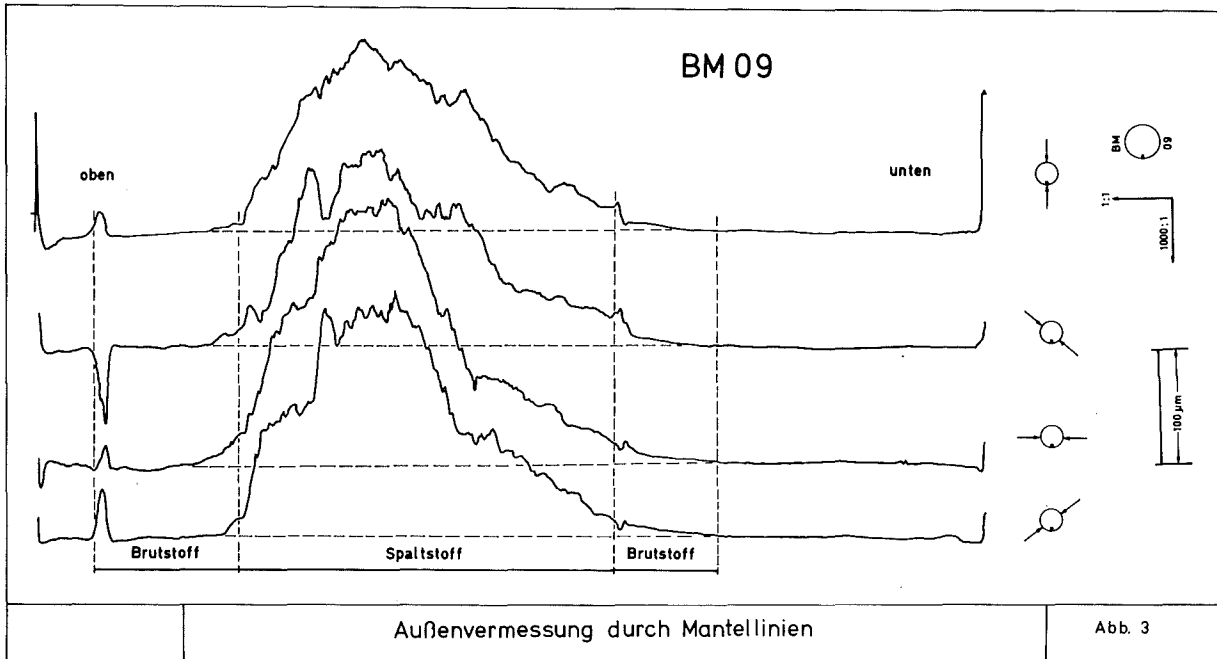
RAPSODIE      Stab AM 35  
Visuelle      Inspektion

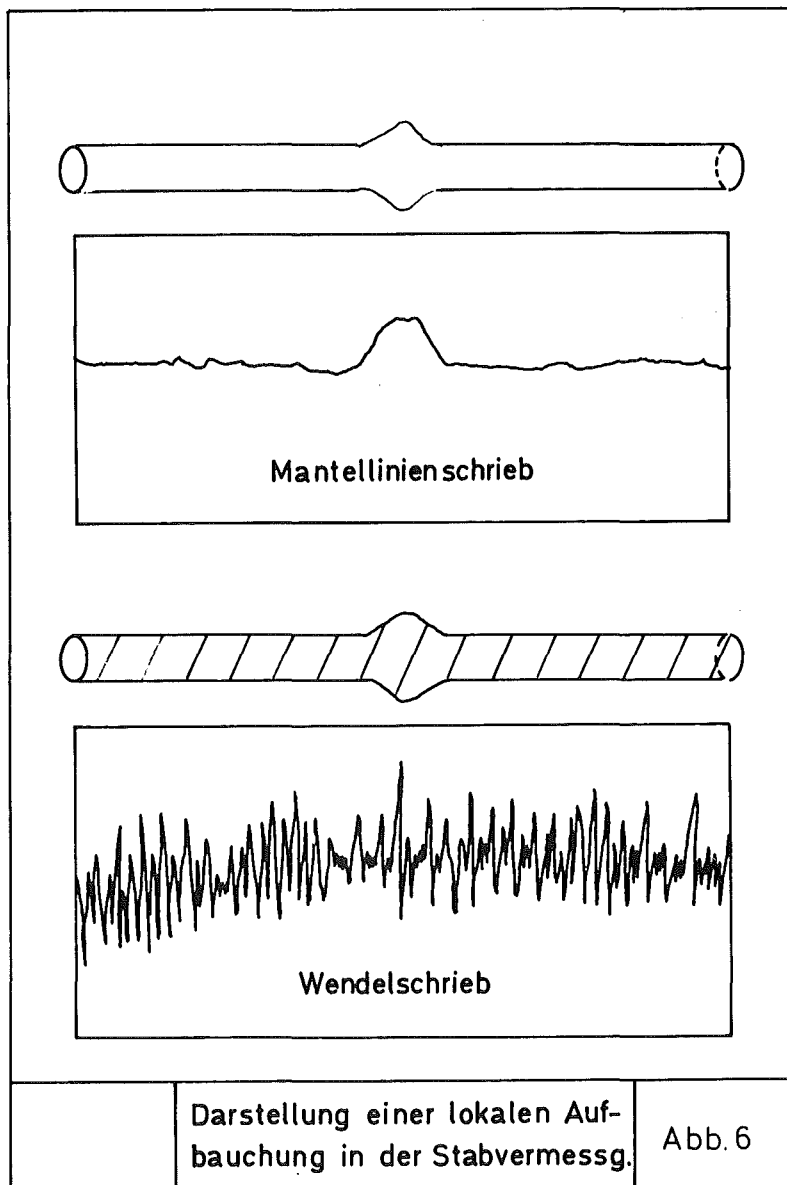
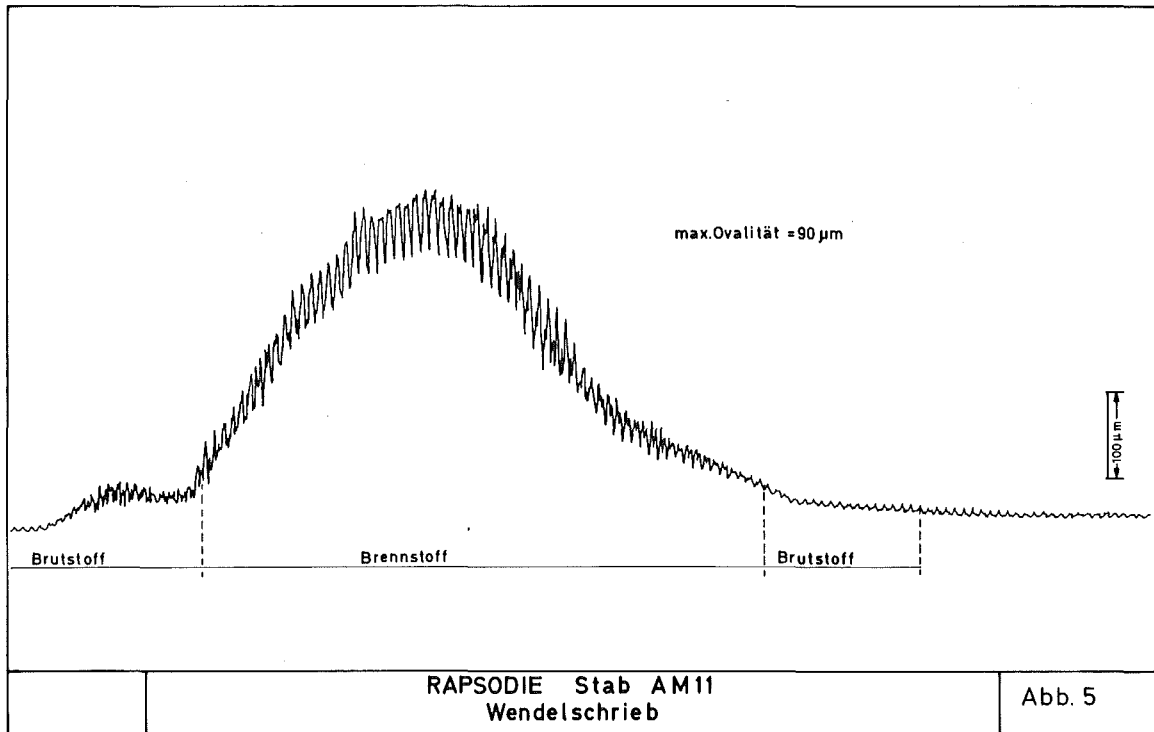
Abb. 1

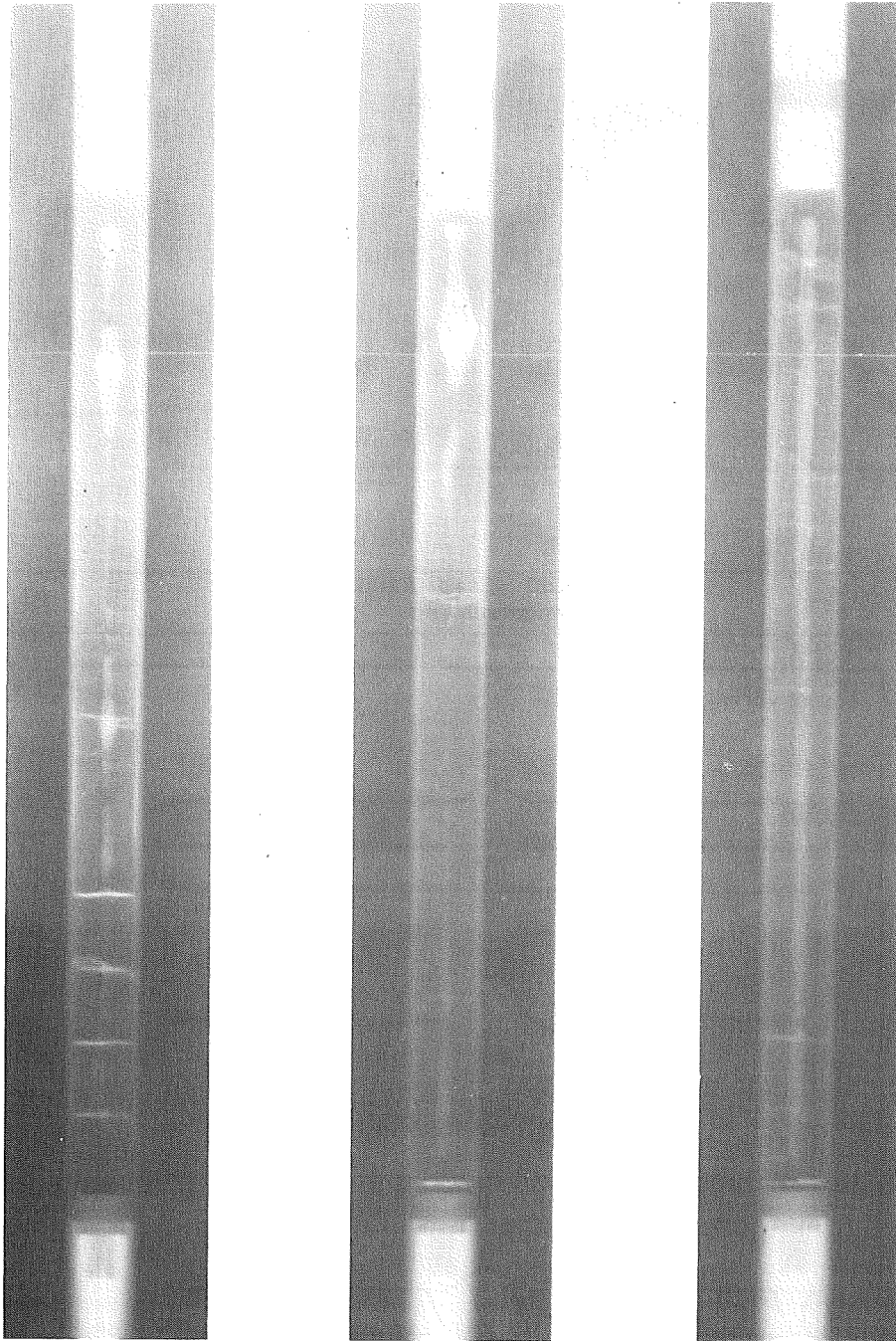


DFR-435 Stab G 8  
Visuelle Inspektion

Abb. 2







Prüflg. L 1

L16

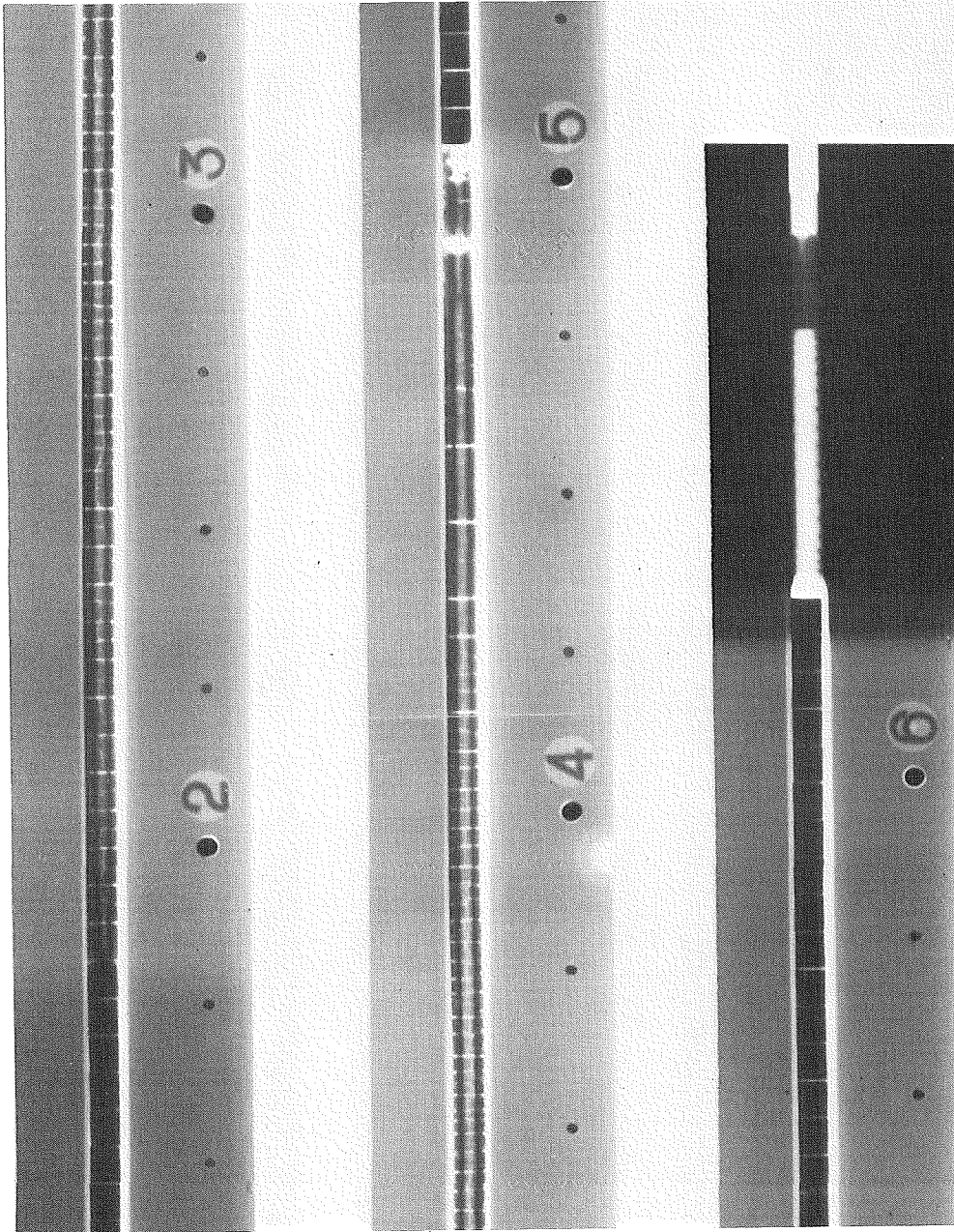
L18

Stab-außen Ø 10 mm

Betatron Durchleuchtung  
FR 2 Loop-Versuchsgruppe 3

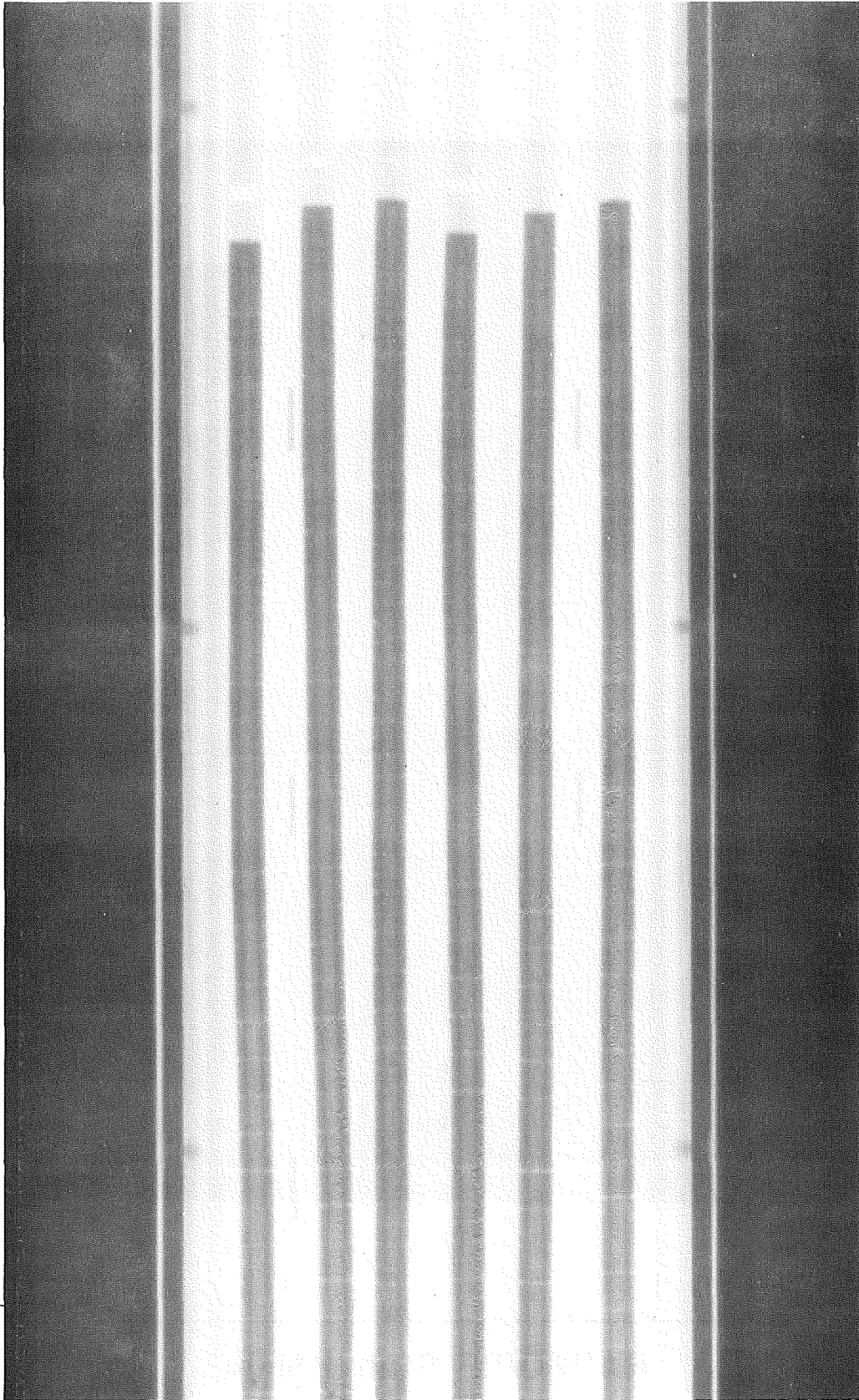
Abb. 7





RAPSODIE Stab BM 04  
Röntgen-Durchleuchtung

Abb. 8

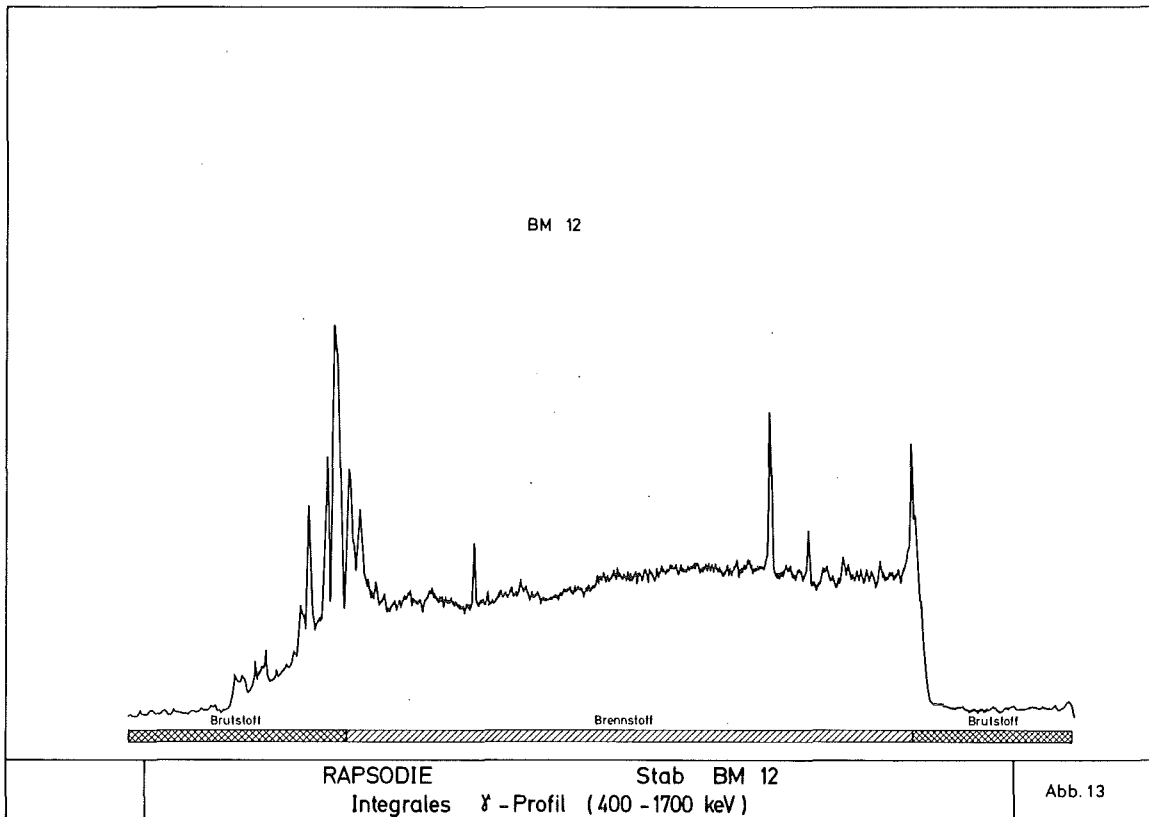
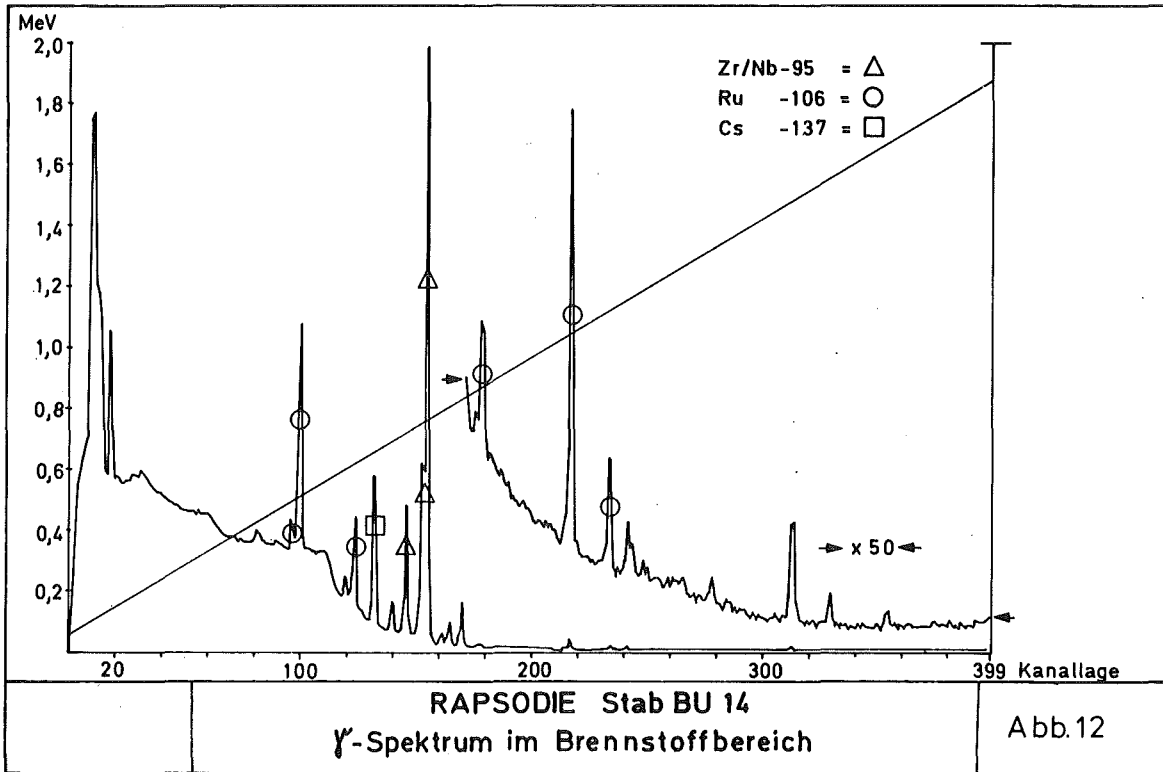


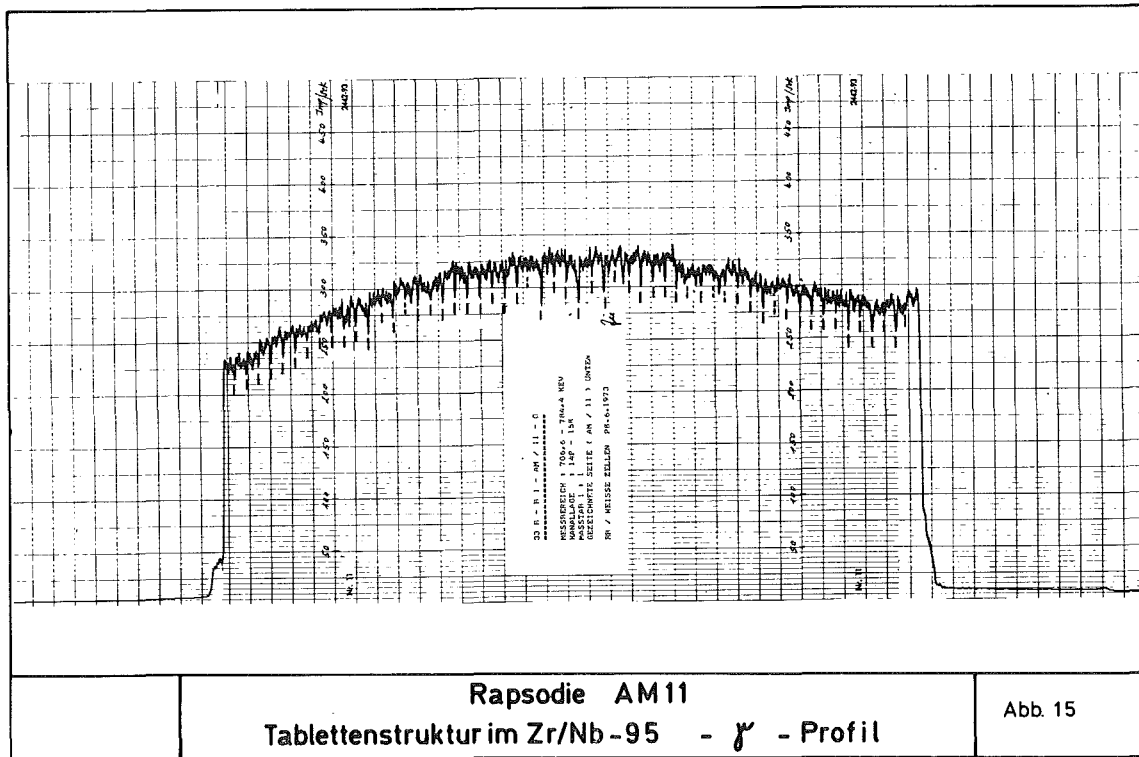
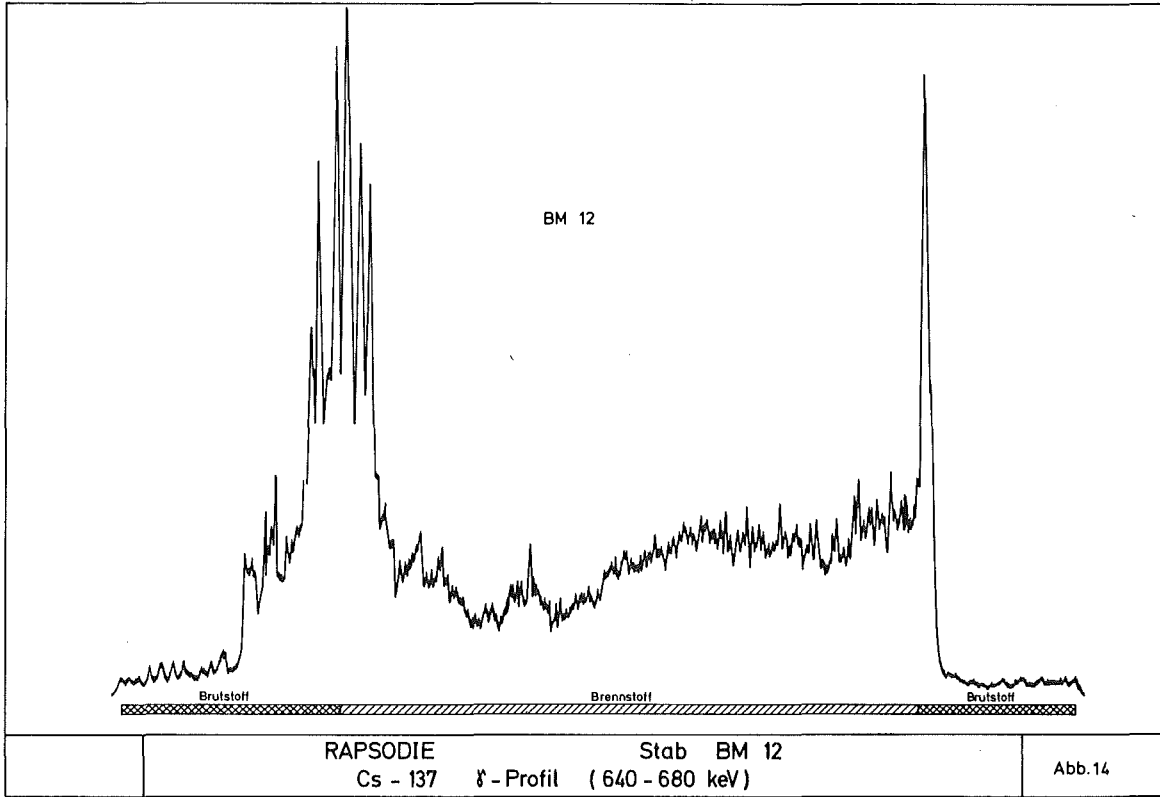
**RAPSODIE Brennstäbe  
Neutronografie**

**Abb.9**

Durchstrahlungsart	Spezifische Eigenschaft.	Optimales Einsatzgebiet
Betatron	Energie hoch ( $\sim 10\text{MeV}$ ) Für Abschirmmaterialien weitgehend transparent.	Brennstäbe $\varnothing 10\text{mm}$ und größer
Röntgenröhre	Intensität hoch ————— Nur kurze lokale Bestrahlung.	Brennstäbe $\varnothing 6\text{mm}$ und kleiner
Neutronenstrahl	Strahlenart verschied. ————— Aktivierungsfolie als Bildträger.	Brennstäbe mit unterschiedl. Anreicherung, Brennstoff-Brutstoff
Durchleuchtungsmethoden		Abb. 10

	<u>Spaltprodukte</u>	<u>Aktivierungsprodukte</u>
HWZ 20 Tage - 5 Jahre	Zr-95 Nb-95 Ru-103 Ru-106 Cs-134 Cs-137 Ce/Pr-144	Cr-51 Mn-54 Co-58 Co-60
HWZ 5 Tage - 20 Tage	J - 131 Ba/La-144	
Haupty-Strahler in bestr. Brennstäben		Abb. 11







XIX. DER BEITRAG DES IMF ZUR BRÜTER-BRENNELEMENTENTWICKLUNG

von

F. Thümmel

Inhalt:

1. Allgemeines
2. Brennstoff
  - 2.1 Schwellen und Kriechen
  - 2.2 Verträglichkeit mit dem Hüllmaterial
  - 2.3 Uran-Plutonium-Entmischung
  - 2.4 Gefügeänderungen und Leervolumenumverteilung
  - 2.5 Gasförmige Spaltprodukte
3. Hüllmaterial
4. Brennstab und Brennelement
  - 4.1 Bestrahlung und Nachuntersuchung
  - 4.2 Spezifikationen
  - 4.3 Modelltheorie
5. Zukünftige Aufgaben

## 1. Allgemeines

Das zu Ende gehende Seminar über die Entwicklung von Brennelementen für schnelle Brutreaktoren wurde angesichts eines bestimmten Entwicklungsstandes auf diesem Gebiet abgehalten. Es wurden bevorzugt die technologisch bedeutsamen Fragestellungen der Brennelemententwicklung und ihre derzeit erkennbaren Lösungen behandelt. Das Institut für Material- und Festkörperforschung der GfK kann jetzt auf langjährige eigene Arbeiten auf diesem Gebiete zurückblicken. In den 18 Einzelbeiträgen konnten deshalb im Gegensatz zu früheren Veranstaltungen dieser Art überwiegend eigene Ergebnisse dargestellt werden. Wenn hier der Versuch unternommen wird, eine abschliessende Wertung des Dargebotenen vorzunehmen, so besteht die Möglichkeit, neben einer kritischen Würdigung auch die zukünftigen Erfordernisse der Brennelement-Entwicklung anzusprechen. Auch sollen einige derzeit noch kaum zu beantwortende Fragen angedeutet werden.

Trotz der Unsicherheit aller langfristigen Vorhersagen darf zunächst mit einer bisher wohl unbestrittenen Prognose begonnen werden: Der künftige Zuwachsbedarf an Energie muss im wesentlichen durch Kernenergie gedeckt werden. Hierbei müssen in den nächsten Jahrzehnten zunehmend solche Reaktoren eine grosse Rolle spielen, die die Brennstoffreserven langfristig schonen. Dies sind Anlagen, die eine hohe Konversionsrate zeigen und natürlich noch besser die brütenden Reaktoren.

Die gegenwärtig und in den nächsten Jahren hierzu laufende Entwicklung ist in jeder Hinsicht als eine Vorphase zu betrachten. Sie spielt sich im Vorfeld der noch für lange Zeit expansiven Entwicklung der Energieerzeugung durch fortgeschrittene Leistungsreaktoren ab. In dieser Phase müssen aber besonders wichtige Fragestellungen bearbeitet werden, deren Lösungen für die weitere technologische Entwicklung entscheidend sind, wie z.B. Brennelemententwicklung, die Gewährleistung der Sicherheit, Fragen der Wiederaufarbeitung und Abfallbeseitigung und nicht zuletzt und damit zusammenhängend, die Wirtschaftlichkeit der Anlagen. Dabei rechtfertigt sich die häufige Betonung der Brennelemententwicklung aus ihrer enormen Bedeutung für den gesamten Reaktorbetrieb. Das Verhalten und die Lebensdauer der Brennelemente bestimmen entscheidend die Sicherheit und den technisch-wirtschaftlichen Erfolg der Anlagen.



Je mehr wir uns mit dem Verhalten der Brennelemente während des Abbrandes beschäftigen, um so mehr finden wir, dass sich dies ausserordentlich komplex darstellt. Es werden immer neue Phänomene gefunden, deren Verstehen und Einschätzung uns beschäftigt. Das Verhalten solcher Brennelemente setzt sich aus zahlreichen Einzelvorgängen zusammen, insbesondere aber ist das Verhalten eines Bündels nicht die Summe des Verhaltens seiner Einzelteile. Der Übergang vom Brennstoff bzw. vom Hüllwerkstoff zum Brennstab und vom Brennstab zum Bündel bringt jeweils neue Problemkategorien mit sich. Es erübrigt sich hier, dies an Beispielen zu belegen.

Hieraus entsteht die Erwartung, dass die Entwicklung der Brutreaktor-Brennelemente für Jahrzehnte ein permanenter Prozess sein wird, der sich später aus zahlreichen kleinen Optimierungsschritten zusammensetzen wird. Eine Reihe von Stufen dieser Entwicklung sind absehbar: Gegenwärtig ist für uns die Bestrahlung in ausländischen Reaktoren ein wesentlicher Bestandteil der Entwicklung. Ab etwa 1976 kommen Bestrahlungsuntersuchungen im KNK II hinzu. Etwa ab 1980 wird der SNR-300 selbst als Testbett für seine eigenen Brennelemente zur Verfügung stehen. Wenn alles planmässig läuft, wird man etwa ab 1982/83 das Verhalten des gesamten ersten Cores des SNR-300 einschätzen können. In den folgenden Jahren und Jahrzehnten geht es um das Verhalten der Folgecores, schliesslich um das Verhalten des Cores des SNR 2. Schon die Aufzählung dieser Stufen zeigt den langfristigen Charakter der Entwicklung. Dabei ändert sich deren Charakter naturgemäss im Laufe der Zeit. Während wir derzeit noch ein tragfähiges Grundkonzept eines oxidischen Brennelementes anstuern und dies in der nächsten Zeit auch für ein karbidisches Element tun werden, wird es sich in späteren Jahren und Jahrzehnten (hoffentlich) nicht mehr um Grundfragen handeln, sondern um die Fragen der oben angesprochenen Optimierungsschritte, wie Herabsetzung des Anteils defekter Elemente, technische und wirtschaftliche Optimierung der Serienfertigung u.a.m.

Gemäss der Bedeutung dieser Entwicklung ist der in unserem Institut betriebene Aufwand recht gross. Allerdings gilt diese Aussage nur, wenn man sie am Gesamtaufwand des Instituts misst. Im Vergleich zu anderen Ländern sind eingesetzte Mittel und Personal eher bescheiden. Immerhin

werden in den Jahren 1974 und 1975 von etwa 130 mit Forschungs- und Entwicklungsaufgaben betrauten Mitarbeitern etwa 100 für das Projekt Schneller Brüter eingesetzt, das sind etwa 77%. Angesichts der Tatsache, dass im Institut auch andere Projekte und Institutsvorhaben bearbeitet werden (z.B. für Projekt Nukleare Sicherheit und Arbeiten für Leichtwasserreaktor-Brennelemente), ist dies ein ausserordentlich hoher Einsatz, der an der Grenze des Möglichen liegt.

Die Arbeiten der letzten Jahre bezogen sich überwiegend auf das sogenannte bauzugehörige Forschungs- und Entwicklungsprogramm zum SNR-300. In diesem Zusammenhang mussten unsere schon früher begonnenen Arbeiten zum Hochleistungsbrennstoff reduziert werden, da dem oxidischen Brennelement die höhere Priorität beigemessen werden musste. Als Ergebnis dieser Arbeiten wurden in diesem Seminar u.a. Vorschläge zur Spezifikation des Brennelementes für den SNR-300 mitgeteilt. Diese sind in den Einzelbeiträgen nachzulesen und es ist hierauf im allgemeinen Zusammenhang später noch zurückzukommen.

## 2. Brennstoff

Von den unter Bestrahlung ablaufenden physikalischen, mechanischen oder chemischen Einzelvorgängen wurden die wichtigsten, d.h. die möglicherweise lebensdauerbegrenzenden, im IMF eingehend untersucht.

### 2.1 Schwellen und Kriechen

Zum Schwellen und Kriechen unter stationären Bedingungen wurden in den letzten Jahren wichtige Ergebnisse gewonnen und gesichert, zunächst an  $UO_2$  und später an  $(U,Pu)O_2$ . Der auftretende stationäre Schwelldruck kann für einen oxidischen Brennstoff als unbedeutend angesehen werden. Die hierdurch bewirkten Hüllrohrinnenbelastungen liegen in der Größenordnung von 1 bis 10 Atmosphären und können unter den Betriebsbedingungen des SNR-300 keine nennenswerten Hüllrohraufweitungen ergeben. Dies liegt an der relativ hohen Kriechgeschwindigkeit des Mischoxides unter Bestrahlung, schon bei niedrigen Spannungen.

Die Untersuchungen des IMF zu diesem Gebiet laufen etwa seit 1968. Die ersten theoretischen Abschätzungen, die in dieser Zeit gewonnen wurden,

konnten im wesentlichen durch die Experimente bestätigt werden. Das IMF gehörte mit zu den ersten, die die Bedeutung dieses Gebietes erkannten und experimentell bearbeiteten. Der Abschluss dieser Untersuchungen an oxidischem Brennstoff ist für das Jahr 1975 vorgesehen.

Nach den oben erwähnten Ergebnissen müssen die in der Praxis beobachteten Hüllrohraufweitungen an bestrahlten Brennelementen andere Ursachen haben als das stationäre Brennstoffschwellen. Während des normalen, teilweise instationären Betriebes der Brennelemente, d.h. während Leistungszyklierungen, kommen andere Prozesse hinzu. Abhängig von den Zyklrierbedingungen entstehen örtliche, radiale Hülldehnungen und Hüllrisse, die auf irreversible Rissentstehung und Ausheilung innerhalb des Brennstoffes zurückzuführen sind. Die hierdurch bedingten lokalen Änderungen des Brennstoffvolumens, des Temperaturprofiles und der thermischen Ausdehnung erzeugen viel stärkere Beanspruchungen des Hüllrohres als der stationäre Schwelldruck. Diese Belastungen sind gefährlich für eine strahlenversprödete Hülle und stellen einen der möglichen Versagensmechanismen dar. Das Gebiet des Brennstabverhaltens unter nichtstationären Bedingungen verdient unsere volle Aufmerksamkeit in den nächsten Jahren, wobei ausführliche Parameterstudien vorgesehen sind. Ich erinnere an die ersten Ergebnisse, nach denen relative Durchmesseränderungen des Hüllwerkstoffes von ca. 1% schon nach einigen Teillastzyklen beobachtet worden sind.

## 2.2 Verträglichkeit mit dem Hüllmaterial

Das Gebiet der Verträglichkeit zwischen Brennstoff und Hülle wird im IMF seit 1966 bearbeitet, das des Spaltprodukteinflusses auf die Verträglichkeit seit 1968. Diese Untersuchungen wurden auch frühzeitig als gravierend erkannt und in das bauzugehörige Forschungs- und Entwicklungsprogramm aufgenommen. In den letzten Jahren wurde ein umfangreiches in-pile- und out-of-pile-Forschungsprogramm durchgeführt. Es beinhaltete u.a. Untersuchungen von Einzelspaltprodukten und Spaltproduktmischungen, und wir sprechen in diesem Zusammenhang von teil- und vollsimulierten Abbrandsystemen. Auch die out-of-pile Untersuchungen haben ganz entscheidend zur Erkenntnis auf diesem Gebiet beigetragen.

Wir sind heute in der Lage, das chemische Verhalten aller wichtigen Spaltprodukte innerhalb des Brennstoffes und gegen den Hüllwerkstoff qualitativ und zum Teil quantitativ anzugeben. Als für die Hülle gefährliches Spaltprodukt wurde insbesondere das Cäsium erkannt, aber auch Jod und Tellur müssen als reaktiv betrachtet werden. Unterhalb 500°C findet praktisch kein Angriff statt. Für die Auslegungsrechnungen darf, wie in einem der Vorträge erwähnt, eine lineare Steigerung der Angriffstiefe zwischen 500 und 650°C angenommen werden.

Trotz dieses ziemlich umfassenden Bildes ist nicht zu übersehen, dass das in-pile Verhalten doch noch nicht voll verstanden wird. Als offene Fragen möchte ich erwähnen:

- Die starken Unterschiede in den lokalen Eindringtiefen (Angriffsnester). Wie sind die bis ca. 230 µm tiefen lokalen Angriffe zu erklären? Warum treten sie gerade an der betroffenen Stelle auf? Handelt es sich um einen Angriff in der Nähe grösserer Plutonium-Oxid-Partikel mit einem erhöhten Sauerstoffangebot während des Abbrandes?
- Welche Bedeutung hat die Absenkung des Anfangs-O/U im Brennstoff? Wird dadurch nur die mittlere oder auch die maximale Angriffstiefe oder auch die Anzahl der Stellen maximaler Eindringtiefe verringert?
- Wie sind die Unterschiede des Angriffes bei den verschiedenen Stählen zu deuten? Welche Unterschiede treten bei verschiedenen Bearbeitungszuständen auf?
- Welches sind die Gesetzmässigkeiten des radialen und axialen Cäsiumtransportes (axial über grosse Entfernungen)? Der axiale Cäsiumtransport ist insofern besonders wichtig, als hierdurch sowohl chemische als auch mechanische Schäden am Hüllwerkstoff hervorgerufen werden können.

In jedem Falle bedeutet eine Innenkorrosion einen Zeitstandfestigkeitsverlust des Hüllwerkstoffes. Dieser kann sehr gravierend sein und muss mindestens entsprechend dem Hüllrohrwanddickenverlust angesetzt werden. Eine besondere Gefahr für das Brüterbrennelement könnte beim Zusammenwirken mit ungünstigen Lastwechselzyklen liegen.

Wir haben im Jahre 1972 vorgeschlagen, die Verwendung von Gettern in Betracht zu ziehen. Es gelingt durch Anteile von Niob oder Zirkonium, die eine gezielte Absenkung des Sauerstoffpotentials im Brennstoff ergeben, die Reaktionen mit den Spaltprodukten fast vollständig zu unterdrücken. Insbesondere treten keine Cäsiumchromate mehr auf, die sowohl in den Korngrenzen als auch als Schicht ein wesentliches Reaktionsprodukt darstellen. Auch Uranmetall könnte, an geeigneten Stellen hinreichend niedriger Temperatur eingesetzt, einen brauchbaren Getter darstellen. Von den verschiedenen Möglichkeiten haben wir die Innenbeschichtung von Hüllrohren, die Beschichtung von Brennstoffpellets und den Einsatz von Getterpellets in Betracht gezogen. Wir möchten aus gegenwärtiger Sicht die Hüllrohrinnenbeschichtung ausschließen und den lokalen Gettern den Vorzug geben. Ein Einsatz von Gettern würde allerdings in jedem Falle neue Fragen für die Brennelementauslegung aufwerfen, andererseits könnten Getter für die Erzielung höchster Abbrände wirklich nötig werden. Wir plädieren für die Erprobung der Konzepte des lokalen Getters in Bestrahlungsversuchen, wobei die Getter insbesondere in den kritischen Zonen des Überganges Brennstoff/Brutstoff eingesetzt werden sollen.

### 2.3 Uran-Plutonium-Entmischung

Das Auftreten der steilen Temperaturgradienten innerhalb des Brennstoffes bringt Verdampfungs- und Thermodiffusionsprozesse mit sich, die eine Plutonium-Uran-Entmischung in Abhängigkeit vom Uran-Sauerstoff-Verhältnis zur Folge haben. Mit Hilfe der Elektronenstrahlmikrosonde wurden Plutoniumanreicherungen in der Nähe des Zentralkanales um 50% und mehr des Ausgangswertes festgestellt, besonders bei relativ hohem Ausgangs-O/M-Verhältnis des Brennstoffes. Solche Anreicherungen bedeuten eine Temperaturerhöhung im Zentrum von etwa 100°C, was eine unerwünschte Begrenzung der Stableistung mit sich bringt. In Fällen defekter Brennstäbe wurden noch erheblich höhere Anreicherungen gefunden.

Bei unseren bisherigen Untersuchungen lag bei einem Ausgangs-O/M von etwa 1,97 die Grenze, bei der die Entmischungen nicht mehr so gravierend sind. Es muss aber darauf hingewiesen werden, dass die bisherigen Untersuchungen an einem Brennstoff erfolgten, der an  $U^{235}$  hoch angereichert

war. Es ist möglich, dass beim Brüterbrennstoff mit natürlichem oder abgereichertem Uranoxid, d.h. praktisch reiner Plutoniumspaltung, diese Entmischungerscheinungen ausgeprägter sein werden.

#### 2.4 Gefügeänderungen und Leervolumenumverteilung

Während des Abbrandes des oxidischen Brennstoffes treten zahlreiche komplizierte Vorgänge der Wanderung von Poren, der Poreneubildung, der Rissentstehung und Rissausheilung, Änderungen des Spaltes sowie Nachsintereffekte im Brennstoff auf. Dabei ändern sich die Leervolumenanteile sowohl radial als auch axial. Zur Erfassung dieser Vorgänge wurden Verfahren der quantitativen Gefügeanalyse erarbeitet und an die Probleme des abgebrannten Brennstoffes angepasst. Wir haben die Leervolumenprofile in zahlreichen hochabgebrannten Brennstäben quantitativ erfasst. Dies erfordert allerdings einen beträchtlichen Aufwand und die Abweichungen zwischen einzelnen Messungen sind trotz einer hinreichenden Reproduzierbarkeit des Verfahrens ziemlich gross.

Nichtsdestoweniger konnte ein repräsentatives Porositätsprofil erarbeitet werden, anhand dessen wichtige Feststellungen getroffen werden können. So finden sich steile Gradienten der Porosität in der Nähe des Hüllrohres und des Zentralkanals, dazwischen stellt sich eine mittlere Porosität von etwa 6 bis 7% ein. Die Rechnungen haben ergeben, dass die Temperaturverteilung im Brennstoff nur wenig abhängig ist von der Porositätsverteilung, hingegen natürlich von der mittleren Porosität. Das bedeutet, dass für die Ermittlung des Temperaturprofiles die Wärmequellendichte mit ihrer porositätsbedingten Ortsabhängigkeit zu berücksichtigen ist, die Wärmeleitfähigkeit hingegen in der durch einen Porositätsmittelwert korrigierten Form eingehen kann.

#### 2.5 Gasförmige Spaltprodukte

Unsere umfangreichen Untersuchungen zum Verhalten der gasförmigen Spaltprodukte haben in den vergangenen Jahren zu einem guten Verständnis dieses Gebietes beigetragen. Insbesondere wurden Daten über die temperaturabhängige Spaltgasrückhaltung und über die temperaturabhängige spaltgasbedingte Schwellung des Brennstoffes gewonnen. Hierbei zeigen sich oberhalb 1000°C sehr starke Temperatureinflüsse auf das Schwellverhalten

mit maximalen Schwellwerten bei etwa 1800°C, die über 10%/ Abbrand hinausreichen. Da man für die Brennstabauslegung in jedem Falle mit einer weitgehenden Abgabe der gasförmigen Spaltprodukte aus dem Brennstoff zu rechnen hat, haben diese Ergebnisse keinen wesentlichen Einfluss auf die Auslegung. Sie sind jedoch für Sicherheitsbetrachtungen von grossem Interesse, da im Falle von Leistungsexkursionen der zusätzliche Druckaufbau durch die im Normalbetrieb zurückgehaltenen Spaltgasanteile bekannt sein muss.

### 3. Hüllmaterial

Die Beanspruchung des Hüllmaterials unter den Betriebsbedingungen eines schnellen Brutreaktors erfolgt sozusagen von allen Seiten: Es muss den chemischen und mechanischen Attacken des Brennstoffes widerstehen und die korrosiven Einflüsse des Kühlmittels sowie die durch die hohe Neutronenfluenz erlittenen Änderungen der physikalisch-mechanischen Eigenschaften ertragen. Die Beanspruchung durch Kühlmittel und Neutronenstrahlung stand lange Jahre im Mittelpunkt des Interesses. Erst später traten die Beanspruchungen durch den Brennstoff, die oben besprochen wurden<sup>+)</sup> bezüglich ihres Stellenwertes gleichrangig hinzu.

Bezüglich der Eigenschaftsänderungen des Hüllwerkstoffs steht folgendes im Vordergrund:

- möglichst niedriger Schwellwert
- möglichst hohe Restduktilität sowie
- möglichst hohe Warm- und Zeitstandfestigkeit.

Die Optimierung dieser Eigenschaften durch thermomechanische Vorbehandlungen war in der letzten Zeit ein wichtiges Arbeitsgebiet des Institutes. Hierbei befanden sich in der Vorauswahl nur stabilisierte austenitische Stähle, nämlich die Werkstoff-Nummern 1.4970, 1.4981 und 1.4988.

Bezüglich des Schwellverhaltens ist z.Zt. der Stahl 1.4970 favorisiert, insbesondere nach einer Kaltverformung von 15 bis 20%. Die relativ ge-

---

<sup>+) Die Besprechung dieses Gebietes unter dem Abschnitt "Brennstoff" ergibt sich aus der Arbeitsteilung innerhalb des IMF.</sup>

ringen Schwellwerte werden offensichtlich durch die in diesem Stahl in geringerem Umfang als in anderen Stählen vorhandenen  $M_{23}C_6$ -Ausscheidungen hervorgerufen. Wahrscheinlich wirken auch das Stabilisierungselement (Titan) und der Stabilisierungsgrad positiv, was jedoch z.Zt. noch nicht eindeutig belegt werden kann. Die angegebene Kaltverformung verbessert auch das out-of-pile Kriechverhalten des Stahles. Bezüglich des Kriechens unter Reaktorbedingungen und bezüglich der Festigkeit unter  $550^{\circ}C$  ergibt sich keine Präferenz für einen der genannten Stähle. Eine Festigkeitserhöhung durch blosse Kaltverformung wirkt allerdings ungünstig auf die Restduktilität nach hoher schneller Neutronendosis. Dieses Problem ist durch die Erarbeitung einer geeigneten thermomechanischen Behandlung angegangen und zum erheblichen Grade gelöst worden: Durch eine bestimmte Auslagerung vor der Kaltverformung werden nun Restduktilitäten von mehreren Prozent erzielt. Der Stahl 1.4970 scheint nach optimaler thermomechanischer Behandlung eine hinreichende Restduktilität aufzuweisen.

In diesem Zusammenhang sei auch darauf hingewiesen, dass die Gesamtdehnungen, die eine Brennstabhülle nach einer schnellen Neutronenfluenz von z.B.  $1 \times 10^{23}/cm^2$  erträgt, offenbar doch wesentlich grösser sind, als es dem Wert der nach dem Bestrahlungsexperiment gemessenen Restduktilität entspricht, d.h. dass die in-pile ablaufenden plastischen Vorgänge (Kriechen) offenbar ohne negativen Einfluss auf die Restduktilität sind und praktisch nicht "angerechnet" werden.

Das Korrosionsverhalten gegen Natrium unter den Bedingungen der errechneten hot spot-Temperatur zeigt, dass nicht nur der Abtrag beachtet werden muss, sondern auch die Ferritisierung einer bestimmten Oberflächenschicht und der Korngrenzen infolge selektiver Lösungsprozesse. Die genannten Prozesse (ohne die Korngrenzenferritisierung) spielen sich etwa in einem Oberflächenbereich bis  $40 \mu m$  ab, die dabei in Rechnung zu stellende Festigkeitsminderung ist unbedeutend. Insgesamt gesehen, sind die durch die Korrosion in Natrium hinreichender Reinheit betroffenen Schichtdicken gering gegen die bei der Innenkorrosion in Rechnung zu stellenden Eindringtiefen. Auch muss durch die Korngrenzenferritisierung keine zusätzliche Festigkeitsminderung in Betracht gezogen werden.



Insgesamt darf aus der Sicht der Festigkeits- und Duktilitätsänderung infolge Bestrahlung sowie korrosiver Einflüsse des Natriums festgestellt werden, dass den für das erste Core des SNR-300 zu stellenden Forderungen durch Verwendung des Hüllmaterials 1.4970 entsprochen werden kann. Ob dies auch unter Berücksichtigung der durch den Brennstoff hervorgerufenen Innenkorrosion zusammen mit den unvermeidlichen und nicht vorhersehbaren Lastwechseln behauptet werden kann, entzieht sich z.Zt. der Beurteilung.

#### 4. Brennstab und Brennelement

##### 4.1 Bestrahlung und Nachuntersuchung

Wie erwähnt, lässt sich das Verhalten von Brennelementen unter Reaktorbetriebsbedingungen nicht aus dem Bestrahlungsverhalten der Einzelkomponenten herleiten. Darüber hinaus besteht auch keine unmittelbare und vollständige Übertragbarkeit der Ergebnisse ausländischer Brennelementbestrahlungen auf die eigenen Brennelemente und deren Werkstoffe. Dies ist durch die Unmöglichkeit der quantitativen Erfassung und Extrapolierbarkeit aller Einzelphänomene sowie des Einflusses aller Einzelbestandteile und Zustände gegeben. Das bedeutet, dass selbst im Falle einer vollständigen Kopierung der Spezifikationen eines ausländischen Schnellbrüter-Brennelementes die eigene Fertigung hinreichend unter möglichst praxisnahen Bedingungen erprobt werden muss. Es erscheint z.Zt. nicht gesichert, ob eine Qualitätskontrolle alle für das Bestrahlungsverhalten bedeutsamen Parameter erfasst. Dies führt unmittelbar zur Notwendigkeit eigener grösserer Bestrahlungsvorhaben.

Es sei hier darauf verzichtet, die im Rahmen der Brennelemententwicklung für den SNR-300 durchgeführten, laufenden und geplanten Bestrahlungstests aufzulisten. Dies ist mehrfach an anderer Stelle geschehen. Es sei nur erwähnt, dass man die Experimente in zwei Gruppen einteilen kann, nämlich

- Untersuchung von Einzelphänomenen (bevorzugt im FR 2 und im BR 2 in Mol, z.B. mechanische und chemische Wechselwirkungen, Zentraltemperatur, Abgabe von Spaltgasen usw.)

- Untersuchung von prototypischen Brennelementbündeln (bevorzugt im DFR- und Rapsodie-Reaktor).

Im Rapsodie-Reaktor wurden bisher erfolgreich Abbrände von mehr als 10% erzielt, wenn auch nicht unter Bedingungen, die für den SNR-300 als weitgehend relevant angesehen werden können. Die noch laufenden Experimente werden weitere Daten zur Einschätzung des Standes der Brennentwicklung geben.

Angesichts der viel umfangreicheren Bemühungen im Ausland entsteht die Frage, ob für den SNR-300 rechtzeitig genügend eigene Bestrahlungsergebnisse vorliegen werden. Diese Frage kann nicht mit einem einfachen ja oder nein beantwortet werden. Da, streng genommen, z.Zt. keine voll SNR-300-repräsentativen Bestrahlungsergebnisse vorliegen und auch bei den noch laufenden Experimenten die Bedingungen des SNR-300 nur näherungsweise erfüllt sind, wird die letzte Aussage über die Leistungsfähigkeit der Brennelemente vom SNR-300 selbst kommen müssen. Dieser Sachverhalt ist seit längerem innerhalb und ausserhalb der GfK er-  
kannt.

Es bleibt für die nächsten Jahre eine der Hauptaufgaben der GfK, hinreichend und qualifiziert auf die zukünftigen Bestrahlungsvorhaben Einfluss zu nehmen. Der hier zunehmend entwickelte Sachverstand muss in vollem Umfange auch in die von der Industrie konzipierten Bündelversuche einfließen, nicht zuletzt deshalb, da es sich hier mit um die kostspieligsten Entwicklungsschritte der Brüterentwicklung überhaupt handelt. Die Qualität der Auslegung, Verfolgung, Untersuchung und Auswertung der grossen Bestrahlungsexperimente bestimmt entscheidend, ob die erforderlichen Informationen auch erhalten werden können und ob die aufgewendeten hohen Kosten sich schliesslich rechtfertigen.

Das IMF ist in besonderem Umfange an der Nachuntersuchung und Auswertung bestrahlter Brennelemente beteiligt. Es darf hier festgestellt werden, dass die Zusammenfassung aller Nachuntersuchungsaktivitäten im Jahre 1971 in einer horizontal durch das ganze Institut angesiedelten Gruppe sich bewährt hat. Es wurden in enger Zusammenarbeit mit den Mitarbeitern der Heissen Zellen zahlreiche Untersuchungsmethoden

etabliert und z.T. neu entwickelt. Die Intensivierung der Tätigkeit auf diesem Gebiet erfolgte noch rechtzeitig, um die seit einiger Zeit zahlreich auf das Institut zukommenden Anforderungen bewältigen zu können. Hierbei ist die Phase der blossen Sammlung von Ergebnissen längst vorüber, und die Untersuchungen haben zunehmend tiefe Einblicke gegeben und zahlreiche Zusammenhänge erkennbar werden lassen. Sie haben in bemerkenswertem Umfang zum Verständnis des Bestrahlungsverhaltens beigetragen. Insofern hat auch die Nachuntersuchung und Auswertung bestrahlter Brennelemente mit Oxidbrennstoff noch zum grossen Teil Entwicklungscharakter und ist nur zum kleineren Teil als Routinearbeit anzusehen. Das Institut ist deshalb auch weiter an solchen Arbeiten interessiert. Hier ist auf den grossen Erfahrungsschatz hinzuweisen, der sich auf diesem Gebiete im IMF angesammelt hat und der unseren Industriepartnern in der Vergangenheit stets nutzbar gemacht worden ist und auch weiterhin zur Verfügung steht. Diese Erfahrungen kommen zweifellos in Zukunft auch der Untersuchung von defekten Brennelementen zunutze, einem Gebiet, das zunehmend Bedeutung erhalten dürfte. Wir werden dabei von Zeit zu Zeit zu überprüfen haben, ob nicht Teile der Brennelementnachuntersuchung so weit zur Routine werden, dass sie schliesslich nicht mehr in das IMF gehören.

Bei der Herstellung von Brennelementprüflingen hat in der Vergangenheit eine sinnvolle Arbeitsteilung stattgefunden. Es ist unbestritten, dass für die grossen Bestrahlungsexperimente ein bedeutender Teil der Prüflinge von der Industrie selbst gefertigt werden muss. Dennoch war es von grösstem Nutzen, dass wir auch selbst in der Lage waren, Bestrahlungsproben herstellen und vor allem auch prüfen zu können. Die betreffenden Experten mögen überprüfen, ob sie auch regelmässig im Gespräch gewesen sind und einen Problem- und Ergebnisaustausch in hinreichendem Umfange durchgeführt haben. Man kann davon ausgehen, dass eine Konkurrenzsituation nicht nur unsinnig ist, sondern auch zu keinem Zeitpunkt bestanden hat.

Es war weiter sehr nützlich, dass der Entwurf, die Konstruktion und die Bereitstellung von Bestrahlungseinrichtungen z.T. innerhalb der GfK erfolgen konnte und die erforderliche Zusammenarbeit erfreulich war.

Dennoch war es nötig, Bestrahlungseinrichtungen, besonders für ausländische Reaktoren, auch von auswärtigen Stellen konstruieren und herstellen zu lassen.

#### 4.2 Spezifikationen

Ein Hauptziel einer jeden Brennelemententwicklung ist naturgemäss die Erarbeitung vernünftiger Spezifikationen. Hierbei interessiert zunächst die Frage, wie solche Spezifikationen zustande kommen. In den frühen Phasen einer Reaktorentwicklung, in denen die Materialforschung u.U. noch gar nicht hinreichend eingeschaltet ist, werden solche Spezifikationen durch Angaben der Reaktorphysiker erstellt. Dies ist voll gerechtfertigt z.B. für Angaben, die mit der Core-Geometrie oder mit nuklearen Daten, wie der parasitären Neutronenabsorption, zusammenhängen. Andere Forderungen sind naturgemäss weniger fundiert und oft durch den Wunsch gekennzeichnet, auf der sicheren Seite zu liegen. Später kommen dann ggf. Spezifikationswünsche durch die Hersteller zustande, gekennzeichnet durch Erfahrungen über die technologische Realisierbarkeit und Wirtschaftlichkeitsbetrachtungen. Natürlich haben solche Aussagen auch ihre Berechtigung. In einem fortgeschrittenen Stadium der Brennelemententwicklung müssen aber Spezifikationen vom Materialverhalten her abgeleitet und begründet werden. Wenn diese Anforderungen aufgrund anderer Zwänge in bestimmten Punkten nicht realisierbar sind, müssen sie entsprechend korrigiert werden. Diese Korrekturen müssen eindeutig begründbar sein.

Somit sind die ersten im Laufe einer Brennelemententwicklung angegebenen Spezifikationen selten sehr tiefgründig. Sie müssen einen jahrelangen z.T. recht mühsamen Iterationsprozess durchmachen. Wir werden aller Voraussicht nach im Laufe dieses Jahres die Spezifikationsangaben für das SNR-300 Brennelement seitens der Industrie zu erwarten haben. Es würde sich sicher lohnen, diese einer kritischen Analyse zu unterziehen, um die darin befindlichen "weichen Stellen" klar zu erkennen. Es ist fast überflüssig, zu erwähnen, dass von der Schärfe der Spezifikationen für Technologie und Wirtschaftlichkeit ausserordentlich viel abhängt und dass eine unnötige Schärfe gravierende Erschwernisse technologischer oder wirtschaftlicher Art mit sich bringen kann. Bei aller

Anerkennung der Notwendigkeit für die Ausarbeitung von Spezifikationen zum jetzigen Zeitpunkt möchte ich doch betonen, dass sich der Praktiker darauf einstellen sollte, dass die SNR-Brennelementspezifikationen 1974 sicher keine endgültigen sein werden. Neue Bestrahlungsergebnisse und die zu erwartenden vertieften Einblicke in das Brennelementverhalten werden voraussichtlich weitere Erkenntnisse mit sich bringen, wonach eine Überprüfung mancher Spezifikation erforderlich werden könnte.

#### 4.3 Modelltheorie

Es ist hier nicht das erste Mal, dass versucht wird, die Bedeutung und den Stellenwert der Modelltheorie zu betrachten. Dieses Thema gehört aber in den Rahmen eines solchen Berichtes. Zunächst kann man Wesen und Anliegen einer Brennstabmodelltheorie kennzeichnen als den Versuch, das Brennstabverhalten durch mathematische Formalismen möglichst weitgehend zu approximieren. Es entsteht die Frage, warum wir solche Versuche un-

- zum quantitativen Verstehen der während der Bestrahlung ablaufenden wichtigen Einzelvorgänge,
- zur Einschätzung der Bedeutung einzelner Spezifikationen (die Variation von Parametern bei modelltheoretischen Rechnungen lässt die Bedeutung dieser Parameter sichtbar werden),
- als Auslegungshilfe für neue Bestrahlungsexperimente,
- als Erklärungshilfe für im Bestrahlungsversuch auftretende Brennelementdefekte (ungünstiges Zusammentreffen von Spezifikationsabweichungen, d.h. Einzelfaktoren, ebenfalls durch theoretische Parametervariation erfassbar).

Die Modelltheorie lebt naturgemäss grossenteils von der Bereitstellung hinreichend gesicherter Materialdaten. Dies führte im Jahre 1971 zur Einsetzung eines Arbeitskreises Brennstabmodelltheorie, in dem in Zusammenarbeit zwischen Theoretikern und Experimentatoren die erforderlichen Arbeiten konzipiert wurden.

Es kann festgestellt werden, dass die modelltheoretischen Bemühungen der letzten Jahre erfolgreich gewesen sind, wobei dies besonders im

Hinblick auf den geringen Personaleinsatz in der theoretischen Gruppe (2 Mann) betont werden muss. Es wurden die verschiedenen SATURN-Rechenprogramme (SATURN 1, 2,3) entwickelt, die aus bescheidenen Anfängen mit SATURN 1 schliesslich zu einem Programm führten, mit Hilfe dessen das Brennstabverhalten in vieler Hinsicht nicht nur radial sondern auch axial über die gesamte Reaktoreinsatzzeit beschrieben werden kann. In diesem Programm sind mechanische Wechselwirkungen enthalten, nicht hingegen die mit den Spaltprodukten zusammenhängenden chemischen Effekte. Das Programm erlaubt Interpolationen und kleinere Extrapolationen. Vorschläge für die Vervollkommnung der modellmässigen Beschreibung wurden während des Seminars verschiedentlich gemacht.

Das Ziel der weiteren Arbeit ist natürlich ein noch weitergehendes quantitatives Verstehen des Brennelementverhaltens und der wichtigen Einzelvorgänge. Würden alle wichtigen Details eines Bestrahlungsexperimentes mit den Rechnungen hinreichend übereinstimmen, dann wäre ein weitgehendes quantitatives Verständnis erzielt. Daraus wäre als letztes Ziel die Vorhersage des Brennelementverhaltens unter variablen Bestrahlungsbedingungen abzuleiten, was schliesslich zur Einsparung von Bestrahlungsexperimenten führen müsste. Es ist offen, wann und in welcher Annäherung ein solches Ziel erreicht werden kann. Man kann aber die Modelltheorie als eine Art Indikator für die gesamte Brennelemententwicklung betrachten, auf den unter keinen Umständen verzichtet werden sollte. Bei dem Einsatz von Millionenbeträgen für jedes Bestrahlungsexperiment ist der Aufwand für die Modelltheorie im IMF fast vernachlässigbar.

##### 5. Zukünftige Aufgaben

Die Brennelemententwicklung befindet sich z.Zt. in verschiedener Hinsicht in einer Übergangsphase: Wir stehen am Übergang von der Laboratoriums- zur technologischen Entwicklung, gekennzeichnet durch die Herstellung verschiedener Bündel und deren Bestrahlung. Es erfolgt der Übergang der Entwicklung vom Mischoxid- zum Hochleistungsbrennelement (Mischkarbid), zumindest was den Schwerpunkt der Entwicklung anbetrifft. Schliesslich befindet sich das bauzugehörige Forschungs- und Entwicklungsprogramm SNR-300 in seiner Endphase und es werden Arbeiten für die

Folgecores und den SNR-2 geplant. Man darf aber nicht davon ausgehen, dass wir die Arbeiten am Oxidbrennelement rasch und vollständig aufgeben können, vielmehr sollen die freiwerdenden Kapazitäten für das Karbidprogramm eingesetzt werden.

In den vorhergehenden Abschnitten wurden bereits Gebiete erwähnt, die beim Oxidbrennelement weiterer Bearbeitung bedürfen. Im folgenden werden Themen zusammengefasst, an denen das IMF mitzuarbeiten beabsichtigt:

- Betriebsverhalten unter instationären Bedingungen mit ausführlichen Parameterstudien,
- Verhalten von Mischoxidbrennstäben unter Verwendung von natürlichem oder abgereichertem Uranoxid, wobei besonders der Einfluss der reinen Plutoniumspaltung mit dem dabei auftretenden höheren Sauerstoffpotential während des Abbrandes auf das Verhalten des Hüllwerkstoffes zu beachten ist,
- weitere Untersuchung und Einschätzung von Entmischungsvorgängen (U/Pu; O; Spaltprodukte, radial und axial),
- Einbeziehung des Einflusses der Plutoniumverteilung auf die in-pile Verträglichkeit (Einfluss der Plutoniumoxidteilchengrösse im Mischbrennstoff, kopräzipitierter gegen gemischten Brennstoff),
- Bestrahlungsuntersuchungen an gezielt hergestellten Hüllmaterialchargen bestimmter Zusammensetzung,
- Beobachtung und Einschätzung der im CEN Mol entwickelten dispersionsgehärteten ferritischen Stähle.

Beim Karbidbrennstoff müsste auch die Frage der grundsätzlich möglichen Brennstoffvarianten neu betrachtet werden, z.B. ob Karbonitrid gegenüber Karbid Vorteile ergeben könnte. Nach dem derzeitigen Kenntnisstand ist das unwahrscheinlich. Auch das Oxikarbid bzw. stärker sauerstoffhaltiger Karbidbrennstoff bedarf der Einschätzung, ebenso die Frage besonderer Pelletformen und besonderer Uran-Plutonium-Verteilung, letzteres wegen der hohen Plastizität des reinen PuC. Bei diesen grundsätzlichen Fragestellungen sollten wir auch an die Ergebnisse des 1969 im IMF abgehaltenen Karbid-Seminars anschliessen, an das hier erinnert werden soll. Das IMF ist seit mehreren Jahren auf dem Gebiet der Hochlei-

stungsbrennstoffe tätig und hat, unter Berücksichtigung der Ergebnisse auch anderer Forschungsstellen, zu einer Reihe von Einzelfragen vorläufige Antworten geben können.

Kürzlich wurde im IMF eine Liste der zu bearbeitenden Themen auf dem Karbidgebiet ausgearbeitet, die z.T. an bisherige Arbeiten anschliesst und auch neue Themen beinhaltet. Sie enthält Arbeiten wie

- stationäres und instationäres Kriechen und Schwellen, einschliesslich der Hüllrohraufweitungen,
- Nachbestrahlungsuntersuchungen,
- Herstellung und Qualitätskontrolle bestrahlungsfähiger Proben einschliesslich der Natriumbindung und der Weiterentwicklung des im IMF ausgearbeiteten Oxalatverfahrens,
- chemisch-analytische Fragen u.a.m.

Die Konsolidierung und Prioritätenfindung innerhalb des Karbidprogrammes, zusammen mit der Projektleitung und den Industriepartnern, ist mit den noch anstehenden Arbeiten auf dem Oxidgebiet, ein Anliegen der nächsten Monate.

Es ist offensichtlich, dass das IMF auch in den nächsten Jahren für die Arbeiten des Projektes Schneller Brüter mit einem grossen Teil seiner Kapazität zur Verfügung stehen wird. Dabei sind wir daran interessiert, die Kontakte zur einschlägigen Industrie zu intensivieren und zu optimieren, sowohl im Hinblick auf die Abstimmung der Problemformulierung und der Prioritäten als auch auf die Erläuterung und Deutlichmachung unserer eigenen Ergebnisse. Auch die Modalitäten der Zusammenarbeit sollten weiter entwickelt werden. Es ist verständlich, dass für das IMF die Bearbeitung grösserer gut definierter Problemkreise als besonders günstig anzusehen ist, während z.B. Tagesfragen der Industrie hier nur in geringem Umfange angegangen werden können. Auch kann die GfK in manchen Fällen als eine neutrale Instanz genutzt werden, wie dies im Zusammenhang mit der Brennelemententwicklung für den Höchstflussreaktor in Grenoble bei der Beurteilung gefertigter Brennelemente geschehen ist. Die Struktur des IMF mit seinen in ihrer Arbeit untereinander gut abgestimmten Teilinstituten gestattet die Bearbeitung zahlreicher Probleme.



Es besteht kein Zweifel, dass es ausserordentlicher Anstrengungen bedarf, um den vor uns liegenden Beitrag zur Brennelemententwicklung des Schnellen Brüters erfolgreich leisten zu können, besonders nach Wirksamwerden gewisser Restriktionen. Die Mitarbeiter haben in der vergangenen Zeit sehr viel auf sich genommen. Angesichts der bisherigen Arbeit und ihrer Ergebnisse darf man jedoch der Bearbeitung zukünftiger Aufgaben optimistisch entgegensehen.