

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

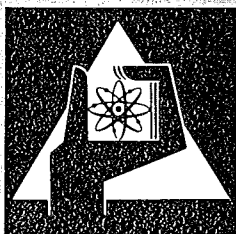
Oktober 1974

KFK 2057

Institut für Material- und Festkörperforschung  
Projekt Schneller Brüter

**Spaltgasverhalten in Oxid-Brennelementen für Schnelle Brüter**

H. Zimmermann



**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

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 2057

Institut für Material- und Festkörperforschung

Projekt Schneller Brüter

Spaltgasverhalten in Oxid-Brennelementen für Schnelle Brüter

von

H.Zimmermann

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe



Dieser Bericht beruht auf Bestrahlungsdaten und Untersuchungsergebnissen aus den Heissen Zellen, für deren Zusammenstellung und Aufbereitung bzw. Erarbeitung von Vorauswertung ich allen beteiligten Mitarbeitern von IMF und RBT danke, im besonderen den Herren E.Ernst, D.Geithoff (IMF/III), H.Enderlein und H.Gräbner (RBT).

Als Manuskript eingereicht am 2.9.1974

## Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Brennstoff- und Bestrahlungsdaten	1
2.1 Bestrahlungen im FR 2	3
2.2 Bestrahlungen im BR 2	13
2.3 Bestrahlungen im DFR	15
2.4 Bestrahlungen im Rapsodie	18
3. Experimentelle Ergebnisse	19
3.1 Verfahren der Spaltgasbestimmung	19
3.2 Spaltgasdaten	20
3.2.1 FR 2-Bestrahlungen	20
3.2.2 BR 2-Bestrahlungen	20
3.2.3 DFR-Bestrahlungen	30
3.2.4 Rapsodie-Bestrahlungen	34
4. Diskussion	35
4.1 Spaltgasfreisetzung	35
4.2 Spaltgasrückhaltung	41
4.3 Einfluss des gebundenen Spaltgases auf die mechanische Wechselwirkung Brennstoff-Hülle	47
4.4 Zusammenfassung	49
5. Literatur	51

## Zusammenfassung

Im Rahmen der Nachbestrahlungsuntersuchungen an den im Projekt Schneller Brüter des Kernforschungszentrums Karlsruhe bestrahlten Oxid-Brennstäben wurden die gemessenen Spaltgasdaten ausgewertet. Die Brennstäbe waren in den Reaktoren FR 2 in Karlsruhe, BR 2 in Mol, DFR in Dounreay und Rapsodie in Cadarache bestrahlt worden. Die Spaltgasmengen wurden in drei Stufen als freigesetztes Spaltgas, als in Blasen und Poren zurückgehaltenes Spaltgas (Porensplattgas) und als in sehr kleinen intragranularen Blasen und im Kristallgitter zurückgehaltenes Spaltgas (Gittersplattgas) bestimmt. Das geschah durch Anbohren der Brennstabhülle, durch Mahlen des Brennstoffes sowie durch chemisches Auflösen des gemahlten Brennstoffs.

Unter den Betriebsbedingungen schneller Brutreaktoren liegt die Spaltgasfreisetzung nach mittleren und hohen Abbränden bei 90% oder darüber. Die Freisetzungsrates ist nicht konstant, sondern es treten sogenannte break-away-Freisetzungen auf.

Das gebundene Spaltgas erreicht Konzentrationen von ca.  $1,5 \cdot 10^{-2}$  Gasatomen pro U+Pu-Atom in Brennstoffbereichen mit Temperaturen unter  $1100^{\circ}\text{C}$ . Die Konzentration nimmt ab mit steigender Temperatur. Oberhalb  $1500^{\circ}\text{C}$  beträgt sie nur noch ca.  $2 \cdot 10^{-4}$  Gasatome pro U+Pu-Atom. Die Konzentration des Porensplattgases ist je nach Temperaturbereich bis zu fünfmal höher als die des Gittersplattgases. Es existiert eine Beziehung zwischen Hülldehnung und dem Gehalt an Porensplattgas.

Es wird eine einfache empirische Formel zur Beschreibung der Spaltgasfreisetzungsrates angegeben, für deren Anwendung der Brennstoff in drei Temperaturzonen eingeteilt wird.

## Fission Gas Behaviour in Oxid Fuel Elements of Fast Breeder Reactors

### Abstract

The fission gas behaviour in oxide fuel elements irradiated within the irradiation programme of the Fast Breeder Project at the Karlsruhe Nuclear Research Centre is reported and discussed. The fuel elements

were irradiated in the reactors FR 2 in Karlsruhe, BR 2 in Mol, DFR in Dounreay, and Rapsodie in Cadarache. The amount of fission gas was measured in 3 steps as released fission gas, fission gas retained in bubbles and pores, and fission gas retained in very small intragranular bubbles and crystal lattice sites. This was done by piercing the fuel rods, by grinding the fuel, and by chemical solution of the powdered fuel, respectively.

Under the conditions prevailing in fast breeder reactors the fractional fission gas release is about 90% or more after medium and high burnups. The release rate is not constant, but there are periods with high release rates (break away releases).

The retained fission gas reaches concentrations of about  $1,5 \cdot 10^{-2}$  gas atoms per U and Pu atom in fuel regions with temperatures below  $1100^{\circ}\text{C}$ . The concentration decreases with increasing temperature. At temperatures above  $1500^{\circ}\text{C}$  the concentration of the retained gas is about  $2 \cdot 10^{-4}$  gas atoms per initial metal atom. Up to five times more fission gas is retained in bubbles and pores than in solution (fission induced) and in very small intragranular bubbles. There is a relation between the deformation of the cladding and the concentration of fission gas in bubbles.

A simple formula describing fission gas release rates in 3 temperature regions was obtained on the basis of measured release rates and concentrations of the retained fission gas.



## 1. Einleitung

Die Edelgase Xe und Kr stellen ca. 15% aller bei Kernspaltungen entstehenden Spaltprodukte. Ihr Verhalten wird weitgehend bestimmt durch ihre geringe Löslichkeit im Brennstoff, die bei Temperaturen, bei denen die thermische Diffusion grösser wird als die bestrahlungsbedingte, zur raschen Freisetzung aus dem Brennstoff oder zu einer Ausscheidung in Blasenform im Brennstoff führt. Im ersten Fall baut sich im Brennelement ein Spaltgasdruck auf und im zweiten Fall kommt es zu einer temperatur- und druckabhängigen Volumenzunahme des Brennstoffes, dem Spaltgasschwellen. Die genaue Kenntnis des Spaltgasverhaltens ist deshalb wichtig für die Brennelementauslegung und für die Vorhersage des Brennstabverhaltens sowohl im stationären Zustand als auch vor allem beim instationären Betrieb und bei Betriebsstörungen.

Das Ziel dieser Arbeit ist die Aufstellung von Spaltgasbilanzen für verschiedene Abbrandzustände des Brennstoffes, wobei unterschieden wird zwischen freigesetztem und gebundenem Spaltgas. Im Hinblick auf Sicherheitsfragen bei einer Brennstabüberhitzung wird besonderes Gewicht auf das gebundene Spaltgas gelegt. Als experimentelles Material standen die Spaltgasdaten der im Rahmen des Projektes Schneller Brüter bestrahlten Brennstäbe zur Verfügung. Ausgewertet wurden die Spaltgasdaten aller Brennstäbe mit Oxidtabletten, soweit die Ergebnisse bis zum Frühjahr 1974 vorlagen.

## 2. Brennstoff- und Bestrahlungsdaten

In diesem Abschnitt werden die wesentlichsten Brennstoff- und Bestrahlungsdaten aufgeführt, soweit sie für das Spaltgasverhalten von Interesse sind. Zur genaueren Information wird auf die für die einzelnen Versuchsgruppen bzw. Bestrahlungsexperimente erschienenen KFK-Berichte verwiesen, die eine ausführliche Dokumentation aller Daten der Brennstoffherstellung, der Brennstäbe, der Bestrahlung und der Nachbestrahlungsuntersuchungen bieten. Sofern vorhanden, wird bei jeder Versuchsgruppe auch der KFK-Bericht genannt, der sich mit der Auswertung der Bestrahlungsergebnisse befasst. Es werden bei jeder Versuchsgruppe nur die Brennstäbe aufgeführt, die  $\text{UO}_2$ - oder  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Tablettenbrennstoff enthielten und von denen Spaltgasdaten vorliegen.

Die wesentlichsten Einflussgrößen auf das Spaltgasverhalten sind der Abbrand und die Bestrahlungstemperatur, d.h. Spaltgasfreisetzung und -rückhaltung bei einem gegebenen Abbrand werden bestimmt durch das radiale Brennstofftemperaturprofil am Bestrahlungsende und seine vorangegangenen zeitlichen Änderungen. Das Temperaturprofil ergibt sich bei einer bestimmten Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes und der gegebenen Wärmequellendichte durch die Stabileistung und die Brennstoffoberflächentemperatur. Um in den graphischen Darstellungen nicht zwei temperaturbestimmende Größen zu haben, wurden die Stabileistung und die Brennstoffoberflächentemperatur zur mittleren Brennstofftemperatur zusammengefasst. Es gilt:

$$T_m = \frac{1}{F} \int_{r_{ZK}}^{r_B} T(r) \cdot 2\pi r dr$$

- $T_m$  mittlere Brennstofftemperatur
- $F$  Brennstoffquerschnittsfläche
- $r_{ZK}$  Zentralkanalradius
- $r_B$  Brennstoffaussenradius
- $r$  Radius
- $T(r)$  radiusabhängige Brennstofftemperatur
- $T_Z$  Zentraltemperatur
- $T_B$  Brennstoffoberflächentemperatur

Unter der Voraussetzung einer parabolischen Temperaturverteilung

$$T(r) = T_Z - \frac{r^2}{r_B^2} (T_Z - T_B)$$

für einen Brennstoff ohne Zentralkanal bzw.

$$T(r) = T_Z - \frac{(r-r_{ZK})^2}{(r_B-r_{ZK})^2} (T_Z - T_B)$$

für einen Brennstoff mit Zentralkanal gilt für die mittlere Brennstofftemperatur

$$T_m = \frac{T_Z + T_B}{2}$$

bzw.

$$T_m = T_Z - \frac{T_Z - T_B}{(1-x)^2 (1-x)^2} \left( \frac{1}{2} - \frac{4}{3} x + x^2 - \frac{1}{6} x^4 \right)$$

mit

$$x = \frac{r_{ZK}}{r_B} .$$

Bei der Bestimmung der mittleren Brennstofftemperatur  $T_m$  wurden die durchschnittlichen Werte der Stabileistung und der Hülloberflächentemperatur während der letzten 10% der Bestrahlungsdauer benutzt. Die Wärmeübergangszahl zwischen Brennstoff und Hülle zur Bestimmung der Brennstoffoberflächentemperatur wurde nach der in den Gefügebildern zu beobachtenden Spaltbreite zwischen 50 und 0  $\mu\text{m}$  zu 0,5 bis 1,2  $\text{W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$  angenommen. Bei den Abbrandangaben wurden, soweit vorhanden, die radiochemisch bestimmten Werte verwendet.

## 2.1 Bestrahlungen im FR 2

Im thermischen Neutronenfluss des Karlsruher Forschungsreaktors FR 2 wurden im Rahmen der Brennelemententwicklung verschiedene Experimente mit unterschiedlichen Zielsetzungen durchgeführt /1/. Die Bestrahlungen erfolgten in Kapselversuchseinsätzen (KVE's), in denen drei oder vier relativ kurze Brennstabprüflinge übereinander angeordnet waren, die mit Thermoelementen zur Bestimmung der Hülloberflächentemperaturen versehen waren. Im folgenden wird eine kurze Übersicht über die bestrahlten Kapselversuchsgruppen und deren wichtigste Brennstoff- und Bestrahlungsdaten gegeben.

### Kapselversuchsgruppe 1

Brennstoff:  $\text{UO}_2$ , 91% TD

Anreicherung: 12,5% U-235

O/M-Verhältnis: 2,01

Pelletdurchmesser:  $9,95 \pm 0,01$  mm (geschliffen)

Brennstoffsäulenlänge: 225 mm

diametraler Kaltspalt:  $65 \pm 10$   $\mu\text{m}$

Tab. 1: Brennstoff- und Bestrahlungsdaten der Kapselversuchsgruppe 1

KVE	Prüf- ling	UO <sub>2</sub> - Gew. g	Voll- last- tage	max.Ab- brand <sup>1)</sup> MWd/kgM	max.Stab- leistg. W/cm	max.Hüll- temp. °C	T <sub>m</sub> , °C
4	A-D	682,4	14	ca.0,75	ca. 370	ca. 450	ca. 1200
5	E,F	341,8	150	ca.8,1	ca. 370	ca. 450	ca. 1100

<sup>1)</sup>Auf Grund thermischer Daten berechnet.

Kapselversuchsgruppe 2

Brennstoff: UO<sub>2</sub>, 92% TD

Anreicherung: 2% U-235

O/M-Verhältnis: 2,00 ± 0,01

Pelletdurchmesser in KVE 11: 9,74 ± 0,02 mm (ungeschliffen)

" " " 13: 9,85 ± 0,01 mm (geschliffen)

Brennstoffsäulenlänge: 180 mm

diametraler Kaltspalt KVE 11: 260 ± 20 µm

KVE 13: 150 ± 10 µm

Tab. 2: Brennstoff- und Bestrahlungsdaten der Kapselversuchsgruppe 2

KVE	Prüf- ling	UO <sub>2</sub> - Gew. g	Voll- last- tage	max.Ab- brand <sup>1)</sup> MWd/kgM	max.Stab- leistg. W/cm	max.Hüll- temp. °C	T <sub>m</sub> , °C
11	A5-A8	ca.530	58	ca. 3,8	ca. 450	ca. 510	ca. 1200
13	A1-A3	ca.407	131	ca. 8,5	ca. 450	ca. 510	ca. 1050

<sup>1)</sup> Auf Grund thermischer Daten berechnet.

Kapselversuchsgruppe 3

Die Dokumentation dieser Versuchsgruppe ist in /2/ enthalten. Entsprechend den Herstellungsbedingungen kann man vier Typen von UO<sub>2</sub>-Pellets unterscheiden (Tab. 3), die neben UO<sub>2</sub>-CeO<sub>2</sub>-Pellets und Pulverbrennstoff in dieser Versuchsgruppe eingesetzt wurden.

Tab. 3: UO<sub>2</sub>-Pellettypen der Kapselversuchsgruppe 3

Typ	Gründlings- dichte g/cm <sup>3</sup>	Sintern	Pelletman- telfläche	% TD
A	5,25	2h / 1500°C	geschliffen	88
B	4,84	2h / 1550°C	ungeschl.	88
C	5,55	2h / 1600°C	geschliffen	93
D	5,10	2h / 1700°C	ungeschl.	93

Folgende Daten gelten für alle Pellettypen:

Anreicherung: 11,5% U-235

O/M-Verhältnis: 2,01

Pelletdurchmesser: 6,25 mm

Brennstoffsäulenlänge: 80 mm

diametraler Kaltspalt: 160 ± 20 µm.

Die übrigen Brennstoff- und Bestrahlungsdaten sind in Tab. 4 aufgeführt.

Kapselversuchsgruppe 4a

Dokumentation: /3/

Versuchsauswertung /4/

Brennstoff: 85% UO<sub>2</sub> - 15% PuO<sub>2</sub>, 85 und 90% TD

Isotopenzusammensetzung des Pu:	Pu-239	90,86%
	Pu-240	8,25%
	Pu-241	0,85%
	Pu-242	0,04%

O/M-Verhältnis: 1,98 - 1,99

Brennstoffsäulenlänge: 80 mm

Entsprechend dem Stabaufbau und den Brennstoffdaten kann man die Prüflinge in drei Typen einteilen (Tab. 5).

KVE	Prüflg.	Typ	Brennstoff- menge g	Zeit d	Abschal- tungen	Abbrand MWd/kgM	Stableist., W/cm		Hülltemp., °C		T <sub>m</sub> , °C
							mittl.	max.	mittl.	max.	
20	1	D	24,9	30	2	6,42	550	580	449	469	1610
	5	D	24,9			6,63	560	615	463	538	1630
	7	C	25,2			5,71	515	565	427	460	1580
21	11	C	25,2	87,5	11	18,8	534	585	442	475	1390
	13	D	24,9			17,7	522	550	433	455	1370
23	3	C	26,2	87	14	16,0	465	585	396	475	1490
	9	D	25,0			17,3	510	640	432	560	1510
24	6	A	24,0	609,6	89	64,6	284	545	285	455	ca.580
25	2	A	23,9	280,2	43	48,9	472	725	444	550	1140
26	8	B	23,7	220,5	34	41,0	458	630	390	506	1100
	10	A	24,0			42,9	515	634	402	487	1170
27	12	B	23,7	399,4	53	ca.55	365	614	322	500	ca.600
	14	A	23,9			58,7	390	576	341	456	ca.600
28	BU	B	23,6	542,8	80	62,3	317	503	307	420	ca.600
	16	B	23,7			63,2	292	550	286	455	ca.600
29	15	C	25,2	132,5	17	27,8	505	610	406	494	1190
	AG	A	24,0			29,6	490	610	413	487	1180
	CG	C	25,2			30,0	516	688	451	536	1290
	DU	D	24,9			26,8	524	604	429	462	1270

Tab.4: Brennstoff- und Bestrahlungsdaten der Kapselversuchsgruppe 3

Tab. 5: Prüflingstypen in der Kapselversuchsgruppe 4a

Typ	% TD	Pellet- durchm. mm	diam. Kaltspalt $\mu\text{m}$	Stabaufbau
I	90	6,20	200	1 Isoliertablette oben
IIa	90	6,20	200	je 1 Isoliertabl. oben u.unten
IIb	85	6,25	135 $\pm$ 15	2 Isoliertabletten oben

Die Brennstoffmenge pro Stab und die Bestrahlungsdaten sind der Tab. 6 zu entnehmen.

Kapselversuchsgruppe 4b

Dokumentation: /5/

Brennstoff: 80%  $\text{UO}_2$ -20%  $\text{PuO}_2$ , 84 und 90% TD

Isotopenzusammensetzung des Pu:	Pu-239	90,91%
	Pu-240	8,21%
	Pu-241	0,84%
	Pu-242	0,04%

O/M-Verhältnis: 1,98

Brennstoffsäulenlänge: 80 mm

Brennstoffdurchmesser: 5,10  $\pm$  0,02 mm

Tab. 7: Prüflingstypen in der Kapselversuchsgruppe 4b

Typ	% TD	Stirnflächenein- senkung	diam. Kaltspalt $\mu\text{m}$
I	90	beidseitig	155 $\pm$ 15
II	90	einseitig	125 $\pm$ 15
III	84	einseitig	140 $\pm$ 10
IV	84	beidseitig	120 $\pm$ 10

Die Brennstoffmenge pro Stab und die Bestrahlungsdaten sind der Tab. 8 zu entnehmen.

KVE	Prüflg.	Typ	Brennstoff- menge g	Zeit d	Abschal- tungen	Abbrand MWD/kgM	Stableist., W/cm		Hülltemp., °C		T <sub>m</sub> , °C
							mittl.	max.	mittl.	max.	
33	B10	I	24,354	57	7	11,0	569	627	464	501	1350
	B 7	I	24,301			10,4	547	~ 640	449	~ 563	1290
	B 6	I	24,356			10,1	521	601	433	484	1280
34	B13	I	23,947	172	23	30,0	461	587	393	475	1220
	B12	I	24,256			30,4	475	701	399	550	1260
	B11	I	24,323			27,6	443	606	378	487	1210
35	4A/4	IIa	24,477	142	21	26,6	506	597	423	481	1240
	4A/2	IIa	24,373			27,5	518	675	429	532	1330
	4A/1	IIa	24,385			28,6	523	673	432	531	1320
36	4A/9	IIa	24,246	163	25	29,2	521	663	427	525	1260
	4A/8	IIa	24,332			30,3	546	~ 700	445	~ 600	1240
	4A/5	IIa	24,415			32,0	479	~ 700	400	~ 600	1200
	4A/3	IIa	24,489			32,1	533	620	439	556	1300
37	4A/19	IIb	22,887	391	54	60,8	401	561	341	457	> 1100 <sup>1)</sup>
	4A/16	IIb	23,226			62,1	391	512	332	425	"
	4A/15	IIb	22,828			71,9	403	559	345	456	"
	B14	I	24,208			66,4	395	587	335	475	"
38	4A/22	IIb	22,755	578	88	96,6	367	606	329	487	> 600 <sup>1)</sup>
	4A/21	IIb	22,956			89,0	344	597	314	481	"
	4A/20	IIb	22,881			90,8	316	578	295	468	"
40	4A/28	IIb	22,88	523		85,5	390	568	344	462	ca. 750
	4A/25	IIb	22,95			90,7	386	587	342	475	"
	4A/26	IIb	22,83			93,0	369	625	331	500	"
	4A/27	IIb	22,86			95,5	383	644	339	512	"
41	4A/18	IIb	23,035	360	55	46,8	385	587	342	475	> 1000 <sup>1)</sup>
	4A/23	IIb	23,193			44,8	412	616	360	494	"
	4A/17	IIb	22,921			35,2	343	593	312	478	"
45	4A/24	IIb	22,98	67	80	13,6	472	621	566	704	1550

1) Starke axiale Brennstoffverlagerungen sowie U-Pu-Entmischung

Tab.6: Brennstoff- und Bestrahlungsdaten der Kapselversuchsgruppe 4a



KVE	Prüflg.	Typ	Brennstoff- menge g	Zeit d	Abschal- tungen	Abbrand MWd/kgM	Stableist., W/cm		Hülltemp., °C		T <sub>m</sub> , °C
							mittl.	max.	mittl.	max.	
47	4B/4	I	15,935	484,3	77	95,3	313	444	385	520	1180
	4B/3	I	15,893			100,0	273	444	343	520	1100
	4B/2	I	15,924			100,0	279	496	350	575	1100
	4B/1	I	15,870			103,0	-	529	-	609	-
48	4B/9	II	16,065	425,3	71	88,0	333	424	405	500	1200
	4B/8	II	16,095			95,1	301	424	373	500	1270
	4B/7	II	16,029			93,8	321	450	393	527	1290
	4B/5	I	15,945			95,1	288	466	359	543	1280
49	4B/11	II	16,189	637,1	95	117,9	281	536	352	616	830
	4B/12	II	16,245			124,3	188	477	230	554	650
	4B/10	II	16,042			130,4	309	545	381	625	770
	4B/6	I	15,925			146	527	212	606	-	
55	4B/15	III	15,212	247,0	44	64,4	416	579	530	719	1320
	4B/14	III	15,171			74,3	446	563	565	700	1350
	4B/13	III	15,204			73,7	378	627	486	774	1210
56	4B/18	III	15,288	305,5	51	62,3	326	442	426	560	1000
	4B/17	III	15,254			63,3	338	463	439	585	1010
	4B/16	III	15,154			66,8	338	471	439	594	1030
57	4B/21	IV	15,359	460,4	68	89,4	291	450	385	569	1110
	4B/20	IV	15,365			93,0	305	445	402	563	1170
	4B/19	IV	15,208			88,2	310	461	407	582	1100
58	4B/24	IV	15,219	517,5	72	117,1	304	549	349	684	900
	4B/23	IV	15,256			119,5	339	529	441	661	950
	4B/22	IV	15,347			122,6	281	595	374	737	870

Tab. 8: Brennstoff- und Bestrahlungsdaten der Kapselversuchsgruppe 4b

Kapselversuchsgruppe 5a

Dieses als "integrierter Dichteversuch" bezeichnete Experiment hatte die Aufgabe, das Bestrahlungsverhalten des oxidischen Brennstoffes in Abhängigkeit von der Dichte zu ermitteln. In einem Brennstabprüfling werden jeweils Brennstofftabletten unterschiedlicher Dichte bestrahlt.

Dokumentation: KFK-Bericht, demnächst

Brennstoff: 80,5% UO<sub>2</sub>-19,5% PuO<sub>2</sub>, 84, 87, 90, 93% TD

Isotopenzusammensetzung des Pu:	Pu-239	90,85%
	Pu-240	8,27%
	Pu-241	0,84%
	Pu-242	0,04%

O/M-Verhältnis: 1,98

Brennstoffsäulenlänge: 80 mm

Brennstoffdurchmesser: 6,12 mm

diametraler Kaltspalt: 95 µm

Bestrahlungsdaten: Tab. 9.

Kapselversuchsgruppe 5b

Brennstoff: UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>, Pu-Anreicherung 35%

Isotopenzusammensetzung des Pu:	Pu-239	90,84%
	Pu-240	8,27%
	Pu-241	0,85%
	Pu-242	0,04%

Tablettendichte: 86% TD

O/M-Verhältnis: 1,98

Brennstoffdurchmesser: 3,95 mm

Brennstoffsäulenlänge: 80 mm

diametraler Kaltspalt: 150 ± 35 µm

Die Brennstoffmenge pro Stab und die Bestrahlungsdaten sind der Tab.10 zu entnehmen.

KVE	Prüflg.	Probe	Dichte % TD	Zeit d	Abschal- tungen	Abbrand MWd/kg <sup>1)</sup>	Stabl. W/cm		Hülltemp., °C		T <sub>m</sub> , °C
							mittl.	max.	mittl	max.	
74	5A8	9	93,4	276,0	36	43,6	403	571	497	668	ca. 1700
		8	90,4	276,0	36		403	571	497	668	ca. 1700
73	5A6	9	93,1	91,4	14	16,0	327	502	420	598	ca. 1500
		8	84,2	91,4	14		327	502	420	598	ca. 1500
72	5A4	9	89,7	32,9	6	5,8	448	511	543	608	ca. 1700
		8	93,0	32,9	6		448	511	543	608	ca. 1700

1) Auf Grund thermischer Daten berechnet

Tab. 9: Brennstoff- und Bestrahlungsdaten der Kapselversuchsgruppe 5a

KVE	Prüflg.	Brennstoff- menge g	Zeit d	Abschal- tungen	Abbrand <sup>1)</sup> Mwd/kgM	Stableist., W/cm		Hülltemp., °C		T <sub>m</sub> , °C
						mittl.	max.	mittl.	max.	
77	5B/4	9,4176	321,6	36	116,8	351	453	345	432	ca. 1400 <sup>2)</sup>
	5B/3	9,4241			113,6	366	462	358	440	"
	5B/2	9,4376			109,2	377	522	367	491	"
80	5B/7	9,4284	342,7	38	114,5	345	469	340	446	ca. 1400 <sup>2)</sup>
	5B/6	9,4055			113,6	343	476	338	452	"
	5B/5	9,4661			109,9	333	443	330	423	"
81	5B/9	9,3961	265,8	29	90,6	351	411	344	394	ca. 1400 <sup>2)</sup>
	5B/8	9,4025			92,2	358	478	350	451	"
	5B/1	9,5585			90,6	357	553	349	515	"
82	5B/12	9,3908	265,8	29	93,5	362	468	353	442	ca. 1400 <sup>2)</sup>
	5B/11	9,3996			90,5	352	475	344	448	"
	5B/10	9,4103			85,7	331	475	327	448	"

1) Auf Grund thermischer Daten berechnet

2) Teilweise starke axiale Brennstoffverlagerungen

Tab. 10: Brennstoff- und Bestrahlungsdaten der Kapselversuchsgruppe 5b

## 2.2 Bestrahlungen im BR 2

Die Bestrahlungen im belgischen Reaktor BR 2 in Mol erfolgten hinter einer Cadmiumabschirmung. Damit lag das Intensitätsmaximum des Neutronenflusses im epithermischen Bereich. Die Längen der Brennstäbe bzw. der Brennstoffsäulen waren erheblich grösser als bei den Prüflingen der FR 2-Kapselversuchsgruppen, so dass axiale Stableistungs- und Hülltemperaturunterschiede das Brennstoff- und Spaltgasverhalten beeinflussten.

### Experiment Mol 7A

Hierbei handelt es sich um die Bestrahlung eines Brennstabbündels mit sieben Stäben in einem Natrium-Loop.

Dokumentation: /6/

Versuchsauswertung: /7/

Brennstoff: 80%  $UO_2$ -20%  $PuO_2$ , 88,4% TD

Isotopenzusammensetzung des Pu:	Pu-239	91 %
	Pu-240	8,2 %
	Pu-241	0,74%
	Pu-242	0,04%
	Pu-238	0,02%

U-235-Anreicherung des U: 79%

O/M-Verhältnis: 1,98

Brennstoffdurchmesser: 5,01 mm

Brennstoffsäulenlänge: 500 mm

diametraler Kaltspalt: 120  $\mu$ m

Bestrahlungsbedingungen:

Bestrahlungsdauer (Vollasttage)	139 d
Zahl der Abschaltungen	17
Abbrand, gemittelt über die Stablänge	35 MWd/kgM
Abbrand, maximal	43 "
maximale Stableistung	590 W/cm
maximale Hüllmittentemperatur	600°C

Diese Werte gelten für die Aussenstäbe. Abbrand und Stableistung des Zentralstabes lagen um 5 bis 10% niedriger. Bezüglich des genauen zeit-

zeitlichen und axialen Verlaufs des Abbrandes, der Stableistung und der Hülltemperatur wird auf /6/ verwiesen.

### Experiment Mol 8 B

Im Rahmen dieses Experiments wurden zwei Brennstäbe, die mit Druckgebern zur kontinuierlichen Messung des Spaltgasdruckes ausgerüstet waren, in Bestrahlungskapseln bestrahlt.

Brennstoff: 80%  $UO_2$ -20%  $PuO_2$

Isotopenzusammensetzung des Pu:	Pu-239	90,85%
	Pu-240	8,27%
	Pu-241	0,84%
	Pu-242	0,04%

U-235-Anreicherung des U: 93,2%

Brennstoffdichte: 84% TD

O/M-Verhältnis: 1,98

Brennstoffdurchmesser: 5,1 mm

Brennstoffsäulenlänge: 500 mm

Brennstoffgewicht pro Stab: 8 B1 94,35 g

8 B2 93,70 g

diametraler Kaltspalt: 140  $\mu$ m.

Bestrahlungsbedingungen	B1	B2
Bestrahlungsdauer (Bestrahlungstage über 80% Reaktorleistung)	506	412
Abbrand, gemittelt über Stablänge, MWd/kg	115	89,6
mittlere Stableistung, W/cm	299	308
maximale Stableistung, W/cm	484	453
mittlere Hüllaussentemperatur, °C	496	518
maximale Hüllaussentemperatur, °C	638	620

### Experiment Mol 8 C

Dieses Experiment umfasst die Bestrahlung von zehn mit Druckaufnehmern ausgerüsteten Brennstäben in je einer Bestrahlungskapsel.

Brennstoff: 80% UO<sub>2</sub> - 20% PuO<sub>2</sub>

Isotopenzusammensetzung des Pu ähnlich wie bei Mol 8 B

U-235-Anreicherung des U: 93%

O/M-Verhältnis: 1,99

Brennstoffdurchmesser: 5,1 mm

Brennstoffsäulenlänge: 520 mm

Die übrigen Brennstoffdaten sowie die Bestrahlungsbedingungen sind in der Tab. 11 aufgeführt. Die Bestrahlungsdaten sind internen Zyklusberichten entnommen. Eine experimentelle Bestätigung des berechneten Abbrandes steht noch aus.

Tab. 11: Brennstoff- und Bestrahlungsdaten der Mol 8 C-Stäbe

Stab	Pelletdichte	diam.Ausgangs-	Ab- brand	Stableist., W/cm		max.Hüll- temp. °C
	% TD	spalt µm		max.	mittl.	
1	95	70	79,4	564	340	662
2	95	70	84,9	344	215	686
3	95	70	90,1	582	380	580
4	95	70	94,1	392	245	666
5	87	70	96,4	594	395	646
6	87	70	92,2	382	235	590
7	87	70	95,8	590	395	614
8	87	70	82,8	376	215	678
9	87, 90,8, 95	25, 70, 127	74,0	555	335	662
10	87, 90,8, 95	25, 70, 127	93,8	586	375	620

### 2.3 Bestrahlungen im DFR

#### Experiment DFR-304

Drei Brennstäbe wurden in einem Trefoil-Einsatz im schnellen Fluss des Dounreay Fast Reactors bestrahlt.

Dokumentation: /8/

Versuchsauswertung: /9/

Brennstoff: 80%  $UO_2$ -20%  $PuO_2$ , 89,2 % TD

Isotopenzusammensetzung des Pu:	Pu-239	90,75%
	Pu-240	8,3 %
	Pu-241	0,9 %

U-235-Anreicherung des U: 93%

O/M-Verhältnis: 1,993 - 1,997

Tablettendurchmesser: 5,395 mm

Brennstoffsäulenlänge: 360 mm

mittleres Brennstoffgewicht pro Stab: 80,8 g

diametraler Kaltspalt: 125  $\mu$ m

Bestrahlungsbedingungen:

Bestrahlungsdauer (Volllasttage)	220 d
Abbrand, gemittelt über die Stablänge	54,5 MWd/kg
maximal	59,0 "
maximale Stabileistung	520 W/cm
maximale Hüllinnentemperatur	690 °C

Es lassen sich folgende mittlere Brennstofftemperaturen gegen Bestrahlungsende abschätzen:

unteres (heisses) Brennstoffende	ca. 1650°C
Mitte der Brennstoffsäule	" 1650°C
oberes (kaltes) Brennstoffende	" 1350°C

#### Experiment DFR-350

Im Rahmen der Zusammenarbeit innerhalb von EURATOM wurde ein Brennstab-bündel mit 77 Stäben im DFR bestrahlt; 23 Stäbe dieses Bündels wurden von der GfK hergestellt.

Dokumentation: /10/

Versuchsauswertung: /11/

Brennstoff: 80%  $UO_2$ -20%  $PuO_2$

Isotopenzusammensetzung des Pu:	Pu-239	91,09%
	Pu-240	8,15%
	Pu-241	0,72%
	Pu-242	0,04%



U-235-Anreicherung des U: 86%  
Brennstoffdichte ca. 90% TD  
O/M-Verhältnis: 1,98  
Tablettendurchmesser: 5,1 mm  
Brennstoffsäulenlänge: 290 mm  
Brennstoffgewicht pro Stab: ca. 55,5 g

diametraler Kaltspalt: 140  $\mu$ m

Bestrahlungsbedingungen:

Bestrahlungsdauer: 202,7 Vollasttage  
Reaktorabschaltungen: 19  
mittlerer Abbrand: 48,6 MWd/kg  
Abbrand- und Hülltemperaturverlauf s. Abb.1  
Stableistungsverlauf s. Abb. 2  
mittlere Brennstofftemperaturen gegen Bestrahlungsende:

unteres Brennstoffende	ca. 1500 <sup>o</sup> C
Mitte der Brennstoffsäule	" 1570 <sup>o</sup> C
oberes Brennstoffende	" 1500 <sup>o</sup> C

Die Temperaturberechnungen mit dem Rechenprogramm SATURN ergaben infolge der weitgehend gegenläufigen axialen Änderungen von Stableistung und Hülltemperatur relativ wenig voneinander abweichende Temperaturverteilungen für die verschiedenen axialen Positionen /12/. Beim Vergleich mit den DFR-304-Stäben ist zu beachten, dass diese Stäbe so angeordnet waren, dass sich die Mitte der Brennstoffsäule 2 cm unter Coremitte befand, also fast an der Stelle des maximalen Neutronenflusses, der 2,9 cm unter Coremitte auftritt. An dieser Stelle ist auch die Hülltemperatur bereits ziemlich hoch. Die 7 cm kürzeren Brennstoffsäulen der DFR-350-Stäbe dagegen waren weiter nach unten verschoben, so dass die kälteren oberen Enden die höheren Stableistungen aufwiesen.

Experiment DFR-435

Dokumentation: /13/

Auf Grund der erfolgreichen Bestrahlung des Brennstabbündels DFR-350 wurde beschlossen, acht Stäbe aus diesem Bündel unter der Bezeichnung DFR-435 weiter zu höherem Abbrand im DFR zu bestrahlen. Drei Stäbe blie-

ben dabei ohne Hüllrohrschaden. Sie erreichten folgende mittlere Abbrände:

Stab G 9	71,1 MWd/kgM
" G 17	59,7 "
" G 19	59,7 "

Hierbei wurde, abweichend von /13/, ein Umrechnungsfaktor 10 MWd/kgM  $\hat{=}$  1,07% Abbrand angenommen. Die Stableistungen bei der Weiterbestrahlung, die in Trefoileinsätzen stattfand, lag bei den verwendeten Reaktorpositionen um 4,5 bis 7% niedriger als bei DFR-350 im zentralen Hexagon.

#### 2.4 Bestrahlungen im Rapsodie

##### Experiment Rapsodie-Monitor

Dieses Experiment umfasst die Bestrahlung von fünf Stäben. Bei zwei Stäben, AU 31 und BU 18, wurde das freie Spaltgas bestimmt.

Brennstoff: 70% UO<sub>2</sub>-30% PuO<sub>2</sub>, 87% TD

U-235-Anreicherung des U: 83%

O/M-Verhältnis Stab AU 31: 1,98

BU 18: 1,965

Pelletdurchmesser: 5,06 mm

Brennstoffsäulenlänge: 320 mm

Brennstoffgewicht: ca. 61,25 g

diametraler Kaltspalt: 130  $\pm$  40  $\mu$ m.

Bestrahlungsbedingungen:

mittlerer Abbrand 56,6 MWd/kgM

max. Stableistung am Bestrahlungsende: 425 W/cm

max. Hüllinnenwandtemperatur: 635°C

##### Experiment Rapsodie-Bündel

Die Bestrahlungen erfolgten in zwei Bündeln mit je 34 Brennstäben.

Dokumentation: /14/

Brennstoff- und Bestrahlungsdaten:

70% UO<sub>2</sub>-30% PuO<sub>2</sub>, 87% TD

U-235-Anreicherung des U: 83%

max. Hüllmittentemperatur: ca. 610°C

übrige Daten s.Tab. 12.

Tab.12: Brennstoff und Bestrahlungsdaten der untersuchten Rapsodie-Stäbe

Bün- del	Stab	O/M	Brennstoff- säule mm	Gewicht g	Abbrand, MWd/kg max.	MWd/kg mittl.	max.Stab- leistg.W/cm
1	AM 07	2,000	320,18	62,1	92,7	80,1	408,7
	AM 21	2,000	321,62	62,0	95,6	82,6	418,4
	AM 35	2,000	317,86	60,4	99,0	85,5	426,2
	BM 10	1,965	320,18	59,9	92,6	80,0	393,2
	BM 12	1,965	323,00	61,3	92,4	79,8	398,9
	BM 14	1,965	318,60	60,1	92,4	79,8	396,6
	BM 16	1,965	318,50	59,7	94,1	81,3	400,8
2	AU 20	1,990	322,80	61,4	92,6	80,0	407,1
	AU 22	1,986	319,38	61,2	92,7	80,1	403,9
	AU 24	1,977	317,90	60,9	97,5	84,3	423,8
	AU 26	1,977	320,06	61,0	99,1	85,6	427,7
	AU 37	1,977	318,12	61,0	99,1	85,6	429,3
	BU 14	1,965	323,30	61,1	97,5	84,2	417,7

### 3. Experimentelle Ergebnisse

#### 3.1 Verfahren der Spaltgasbestimmung

Die aus dem Brennstoff freigesetzten Spaltgasmengen wurden nach Anbohren der Brennstäbe unter Vakuum und Absaugen des gesamten Gases gaschromatographisch bestimmt (freies Spaltgas F). Zur Bestimmung der Menge und der axialen Verteilung des im Brennstoff zurückgehaltenen Spaltgases wurden an verschiedenen Stellen der Stäbe Brennstoffproben entnommen. Die Brennstoffmenge pro Probe betrug 1,5 bis 2g. Diese Proben wurden zunächst in einer Kugelmühle gemahlen und das während des Mahlprozesses freigesetzte Spaltgas bestimmt. Dieses Spaltgas wird im folgenden kurz als Porenspaltgas P bezeichnet, denn es stammt zum überwiegenden Teil aus Poren und Blasen. Beim Mahlen wurde der Brennstoff bis auf Teilchengrößen

unter 1  $\mu\text{m}$  zerkleinert. Dadurch dürfte sämtliches Spaltgas freigesetzt worden sein, das sich in intragranularen Blasen mit Durchmessern bis unterhalb 0,1  $\mu\text{m}$  oder in Blasen und Poren an Korngrenzen und Subkorngrenzen befand. Die gemahlten Proben wurden anschliessend in Salpetersäure aufgelöst, wobei das restliche Spaltgas freigesetzt wurde, das sich im Brennstoff in bestrahlungsbedingter Lösung oder in sehr kleinen Blasen innerhalb der Körner befand (Gitterspaltgas G).

### 3.2 Spaltgasdaten

In den folgenden Tabellen werden die Spaltgasdaten angegeben in  $\text{Nmm}^3$  Spaltgas pro g Oxidbrennstoff für alle drei Spaltgasanteile und in Spaltgasatome pro ursprünglich vorhandenem U- und Pu-Atom für das gebundene Spaltgas. Beim freigesetzten Spaltgas wird ausserdem die prozentuale Freisetzung angegeben.

#### 3.2.1 FR 2-Bestrahlungen

Pro Brennstab wurden meist zwei Proben zur Bestimmung des gebundenen Spaltgases genommen. Wegen der geringen Länge der Stäbe liess sich keine systematische Abhängigkeit der Spaltgaskonzentration von der axialen Position im Stab erkennen. Es wird deshalb der Mittelwert beider Proben verwendet. Die Spaltgasdaten der FR 2-Kapselversuchsgruppen sind in den Tab. 13 bis 19 aufgeführt.

#### 3.2.2 BR 2-Bestrahlungen

##### Experiment Mol 7 A

Wegen der Länge der Brennstoffsäulen dieser Stäbe und der axialen Unterschiede der Hülltemperatur, der Stableistung und des Abbrandes wurden zur Bestimmung des gebundenen Spaltgases mehrere Proben, verteilt über die Stablänge, entnommen. Die Ergebnisse der Spaltgasbestimmungen sind in der Tab. 20 aufgeführt. Zur besseren Anschaulichkeit ist die Konzentration des gebundenen Spaltgases in Abhängigkeit von der axialen Position zusammen mit dem Stableistungs- und Hülltemperaturverlauf in der Abb. 3 dargestellt.

KVE	Prüfling	freies Spaltgas F			Porensplattgas P			Gittersplattgas G			P + G			F + P + G	
		mm <sup>3</sup> /g	%	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	At./U-At.	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	At./U-At.	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	At./U-At.	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Xe/Kr
4	D	-	-	-	1,49	0,02 · 10 <sup>-3</sup>	3,0	12,98	0,16 · 10 <sup>-3</sup>	6,5	14,48	0,17 · 10 <sup>-3</sup>	5,9	-	-
	C	0,16	1,0	6,5	6,56	0,08 · 10 <sup>-3</sup>	5,5	9,34	0,11 · 10 <sup>-3</sup>	8,0	15,91	0,19 · 10 <sup>-3</sup>	6,8	16,07	6,8
	B	3,65	30,3	6,6	2,60	0,03 · 10 <sup>-3</sup>	4,4	5,75	0,07 · 10 <sup>-3</sup>	6,5	8,35	0,10 · 10 <sup>-3</sup>	5,8	12,00	5,9
	A	0,19	1,5	6,0	2,40	0,03 · 10 <sup>-3</sup>	5,2	9,98	0,12 · 10 <sup>-3</sup>	7,3	12,38	0,15 · 10 <sup>-3</sup>	6,8	12,59	6,8
	Mittel	1,33	9,5	6,6	3,26	0,04 · 10 <sup>-3</sup>	4,8	9,51	0,12 · 10 <sup>-3</sup>	7,0	12,78	0,15 · 10 <sup>-3</sup>	6,3	14,11	6,5
5	F	-	-	-	19,57	0,24 · 10 <sup>-3</sup>	6,7	92,21	1,11 · 10 <sup>-3</sup>	7,1	111,78	1,35 · 10 <sup>-3</sup>	7,0	-	-
	E	49,19	28,3	6,3	37,35	0,45 · 10 <sup>-3</sup>	6,8	87,47	1,05 · 10 <sup>-3</sup>	5,2	124,81	1,50 · 10 <sup>-3</sup>	5,7	174,00	5,9
	Mittel	49,19	29,4	6,3	28,46	0,34 · 10 <sup>-3</sup>	6,8	89,84	1,08 · 10 <sup>-3</sup>	6,2	118,30	1,42 · 10 <sup>-3</sup>	6,3	167,49	6,3

Tab. 13: Spaltgasdaten der FR 2-Kapselversuchsgruppe 1

KVE	Prüflg.	freies Spaltgas F			Porensplaltgas P			Gittersplaltgas G			P + G			F + P + G	
		mm <sup>3</sup> /g	%	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	At./U-At.	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	At./U-At.	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	At./U-At.	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Xe/Kr
11	A 8	7,58	18,1	7,4	18,40	$0,22 \cdot 10^{-3}$	7,1	15,94	$0,19 \cdot 10^{-3}$	6,1	34,34	$0,41 \cdot 10^{-3}$	6,6	41,92	6,8
	A 7	13,83	18,2	7,3	26,73	$0,32 \cdot 10^{-3}$	6,7	35,48	$0,43 \cdot 10^{-3}$	7,4	62,21	$0,75 \cdot 10^{-3}$	7,1	76,04	7,2
	A 6	13,78	17,4	7,1	21,56	$0,26 \cdot 10^{-3}$	5,0	44,02	$0,53 \cdot 10^{-3}$	7,6	65,58	$0,79 \cdot 10^{-3}$	6,7	79,36	6,8
	A 5	-	-	-	19,32	$0,23 \cdot 10^{-3}$	4,8	36,22	$0,44 \cdot 10^{-3}$	7,4	55,54	$0,67 \cdot 10^{-3}$	6,5	-	-
	Mittel	11,73	17,7	7,2	21,50	$0,26 \cdot 10^{-3}$	5,9	32,92	$0,40 \cdot 10^{-3}$	7,3	54,42	$0,66 \cdot 10^{-3}$	6,8	66,15	6,9
13	A 3	-	-	-	27,65	$0,33 \cdot 10^{-3}$	6,0	101,23	$1,22 \cdot 10^{-3}$	8,5	128,88	$1,55 \cdot 10^{-3}$	7,9	-	-
	A 2	-	-	-	24,05	$0,29 \cdot 10^{-3}$	5,7	119,95	$1,44 \cdot 10^{-3}$	8,5	144,01	$1,74 \cdot 10^{-3}$	8,0	-	-
	A 1	10,91	6,7	5,7	26,30	$0,32 \cdot 10^{-3}$	6,1	125,97	$1,52 \cdot 10^{-3}$	8,3	152,27	$1,84 \cdot 10^{-3}$	7,9	163,18	7,8
	Mittel	10,91	7,1	5,7	26,00	$0,31 \cdot 10^{-3}$	5,9	115,72	$1,39 \cdot 10^{-3}$	8,4	141,72	$1,71 \cdot 10^{-3}$	7,9	152,63	7,8

Tab. 14: Spaltgasdaten der FR 2-Kapselversuchsgruppe 2

KVE	Prüflg.	freies Spaltgas F			Porenspaltgas P			Gitterspaltgas G			P + G			F + P + G	
		mm <sup>3</sup> /g	%	Xe:Kr	mm <sup>3</sup> /g	At./U-At.	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	At./U-At.	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	At./U-At.	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Xe/Kr
20	1	120,23	58,8	7,2	47,63	0,57·10 <sup>-3</sup>	5,4	36,52	0,44·10 <sup>-3</sup>	9,0	84,15	1,01·10 <sup>-3</sup>	7,0	204,37	7,1
	5	85,30	44,4	7,9	42,99	0,52·10 <sup>-3</sup>	4,8	63,94	0,77·10 <sup>-3</sup>	9,8	106,92	1,29·10 <sup>-3</sup>	7,9	192,22	7,9
	7	41,67	35,7	9,7	17,51	0,21·10 <sup>-3</sup>	1,7	57,50	0,69·10 <sup>-3</sup>	13,7	75,01	0,90·10 <sup>-3</sup>	10,9	116,67	10,5
21	11	239,20	47,7	8,3	141,62	1,71·10 <sup>-3</sup>	6,5	120,79	1,45·10 <sup>-3</sup>	7,8	262,41	3,16·10 <sup>-3</sup>	7,1	501,61	7,7
	13	189,61	41,3	6,4	140,53	1,69·10 <sup>-3</sup>	5,8	128,00	1,54·10 <sup>-3</sup>	9,1	268,53	3,23·10 <sup>-3</sup>	7,4	458,14	7,0
23	3	191,37	53,6	6,9	69,42	0,84·10 <sup>-3</sup>	6,2	96,16	1,16·10 <sup>-3</sup>	6,8	165,59	1,99·10 <sup>-3</sup>	6,6	356,96	6,8
	9	247,76	60,2	8,2	83,96	1,01·10 <sup>-3</sup>	5,3	76,67	0,92·10 <sup>-3</sup>	9,5	163,62	1,97·10 <sup>-3</sup>	7,3	411,38	7,8
24	6	685,83	31,6	6,4	1187,56	14,30·10 <sup>-3</sup>	7,7	293,97	3,54·10 <sup>-3</sup>	7,7	1481,53	17,84·10 <sup>-3</sup>	7,7	2167,37	7,3
25	2	501,38	47,7	7,0	429,22	5,17·10 <sup>-3</sup>	7,2	120,27	1,45·10 <sup>-3</sup>	8,2	549,49	6,62·10 <sup>-3</sup>	7,5	1050,87	7,3
26	8	195,78	30,9	2,6	266,26	3,21·10 <sup>-3</sup>	6,3	171,67	2,07·10 <sup>-3</sup>	8,8	437,93	5,27·10 <sup>-3</sup>	7,3	633,71	5,8
	10	318,54	40,5	4,6	295,93	3,56·10 <sup>-3</sup>	5,8	172,05	2,07·10 <sup>-3</sup>	9,1	467,98	5,63·10 <sup>-3</sup>	7,0	786,52	6,0
27	12	1395,78	-	6,9	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	14	769,46	37,0	5,8	889,67	10,71·10 <sup>-3</sup>	7,5	418,46	5,04·10 <sup>-3</sup>	10,0	1308,13	15,75·10 <sup>-3</sup>	8,3	2077,58	7,4
28	BU	1663,31	61,1	8,5	791,56	9,53·10 <sup>-3</sup>	4,6	268,89	3,24·10 <sup>-3</sup>	8,8	1060,46	12,77·10 <sup>-3</sup>	5,7	2723,77	7,4
	16	1727,00	59,1	8,7	930,00	11,19·10 <sup>-3</sup>	7,7	265,84	3,20·10 <sup>-3</sup>	8,2	1195,84	14,40·10 <sup>-3</sup>	7,8	2922,84	8,3
29	15	207,66	30,0	7,0	267,78	3,22·10 <sup>-3</sup>	6,4	216,33	2,61·10 <sup>-3</sup>	8,6	484,11	5,83·10 <sup>-3</sup>	7,4	691,77	7,3
	AG	-	-	-	312,50	3,76·10 <sup>-3</sup>	6,8	163,49	1,97·10 <sup>-3</sup>	8,0	475,99	5,73·10 <sup>-3</sup>	7,2	-	-
	CG	266,11	35,4	6,9	332,48	4,00·10 <sup>-3</sup>	6,0	152,25	1,83·10 <sup>-3</sup>	5,7	484,73	5,84·10 <sup>-3</sup>	5,9	750,84	6,3
	DU	225,78	33,7	7,0	215,96	2,60·10 <sup>-3</sup>	6,6	227,77	2,74·10 <sup>-3</sup>	8,3	443,73	5,34·10 <sup>-3</sup>	7,5	669,51	7,3

Tab. 15: Spaltgasdaten der FR 2-Kapselversuchsgruppe 3

KVE	Prüflg.	freies Spaltgas F			Porenspaltgas P			Gitterspaltgas G			P + G			F + P + G	
		mm <sup>3</sup> /g	%	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Xe/Kr
33	B 10	110,09	36,0	15,7	117,76	1,42·10 <sup>-3</sup>	17,8	77,92	0,94·10 <sup>-3</sup>	19,1	195,68	2,36·10 <sup>-3</sup>	18,8	305,77	17,3
	B 7	106,83	39,2	19,6	84,86	1,02·10 <sup>-3</sup>	12,5	80,67	0,97·10 <sup>-3</sup>	21,5	165,53	2,00·10 <sup>-3</sup>	16,9	272,36	18,0
	B 6	98,09	37,4	17,5	89,67	1,20·10 <sup>-3</sup>	16,3	64,62	0,78·10 <sup>-3</sup>	17,0	164,29	1,98·10 <sup>-3</sup>	16,6	262,38	16,9
34	B 13	370,28	48,3	32,2	253,47	3,05·10 <sup>-3</sup>	17,8	142,86	1,72·10 <sup>-3</sup>	14,8	396,33	4,78·10 <sup>-3</sup>	16,7	766,60	24,2
	B 12	554,50	-	28,9	318,78	3,84·10 <sup>-3</sup>	13,5	-	-	-	-	-	-	-	-
	B 11	570,04	-	16,0	-	-	-	153,24	1,85·10 <sup>-3</sup>	20,2	-	-	-	-	-
35	4A/4	133,51	23,8	7,0	271,86	3,28·10 <sup>-3</sup>	17,5	155,77	1,88·10 <sup>-3</sup>	23,3	427,62	5,15·10 <sup>-3</sup>	19,6	561,14	16,6
	4A/2	156,65	28,1	5,6	253,93	3,06·10 <sup>-3</sup>	15,9	146,53	1,77·10 <sup>-3</sup>	23,2	400,46	4,83·10 <sup>-3</sup>	18,6	557,11	14,9
	4A/1	169,16	27,2	5,6	297,75	3,59·10 <sup>-3</sup>	16,8	148,65	1,79·10 <sup>-3</sup>	21,0	446,40	5,38·10 <sup>-3</sup>	18,2	615,51	14,7
36	4A/9	293,12	43,8	10,2	258,90	3,12·10 <sup>-3</sup>	17,6	117,89	1,42·10 <sup>-3</sup>	18,9	376,79	4,54·10 <sup>-3</sup>	18,0	669,91	14,6
	4A/8	200,07	36,7	9,4	214,35	2,58·10 <sup>-3</sup>	15,2	130,77	1,58·10 <sup>-3</sup>	22,1	345,12	4,16·10 <sup>-3</sup>	17,8	545,18	14,7
	4A/5	394,92	50,1	22,9	217,11	2,62·10 <sup>-3</sup>	14,0	177,48	2,14·10 <sup>-3</sup>	26,4	394,59	4,76·10 <sup>-3</sup>	19,6	789,51	21,3
	4A/3	-	-	-	207,53	2,50·10 <sup>-3</sup>	14,0	88,75	1,07·10 <sup>-3</sup>	15,2	296,28	3,57·10 <sup>-3</sup>	14,4	-	-
37	4A/19	-	-	-	237,71	2,86·10 <sup>-3</sup>	24,2	59,61	0,72·10 <sup>-3</sup>	41,8	297,32	3,58·10 <sup>-3</sup>	27,7	-	-
	4A/16	1358,82	82,8	20,6	228,18	2,75·10 <sup>-3</sup>	21,3	54,53	0,66·10 <sup>-3</sup>	25,0	282,71	3,41·10 <sup>-3</sup>	22,0	1641,53	20,9
	4A/15	1427,63	73,0	16,7	463,03	5,58·10 <sup>-3</sup>	21,8	82,59	1,00·10 <sup>-3</sup>	24,2	545,62	6,58·10 <sup>-3</sup>	22,2	1973,25	18,2
	B 14	1000,50	58,0	20,6	531,04	6,40·10 <sup>-3</sup>	18,0	160,00	1,93·10 <sup>-3</sup>	14,3	691,04	8,33·10 <sup>-3</sup>	17,2	1691,54	19,2
38	4A/22	2094,05	73,0	18,4	492,67	5,94·10 <sup>-3</sup>	17,6	228,20	3,38·10 <sup>-3</sup>	24,5	772,87	9,31·10 <sup>-3</sup>	20,1	2866,91	18,9
	4A/21	2357,99	76,3	17,5	504,78	6,08·10 <sup>-3</sup>	17,6	226,64	2,73·10 <sup>-3</sup>	23,4	731,42	8,81·10 <sup>-3</sup>	19,4	3089,40	17,9
	4A/20	1873,17	68,3	17,8	597,39	7,20·10 <sup>-3</sup>	17,1	273,37	3,29·10 <sup>-3</sup>	22,6	870,76	10,49·10 <sup>-3</sup>	18,5	2743,93	18,1
40	4A/28	1597,90	59,5	18,6	741,53	8,94·10 <sup>-3</sup>	16,5	343,92	4,14·10 <sup>-3</sup>	21,5	1085,45	13,08·10 <sup>-3</sup>	18,1	2683,35	18,4
	4A/25	1671,02	58,5	18,7	1003,31	12,09·10 <sup>-3</sup>	16,9	184,17	2,22·10 <sup>-3</sup>	22,3	1187,48	14,31·10 <sup>-3</sup>	17,8	2858,50	18,3
	4A/26	1585,63	57,6	15,5	790,80	9,53·10 <sup>-3</sup>	16,9	376,43	4,54·10 <sup>-3</sup>	19,6	1167,23	14,07·10 <sup>-3</sup>	17,8	2752,86	16,4
	4A/27	1825,46	62,4	20,6	705,99	8,51·10 <sup>-3</sup>	16,7	349,96	4,22·10 <sup>-3</sup>	23,2	1055,95	12,72·10 <sup>-3</sup>	18,8	2881,41	19,9
41	4A/18	1652,92	-	18,3											
	4A/23	1611,48	-	17,9	keine Bestimmung der gebundenen Spaltgase										
	4A/17	1684,92	-	17,2											
45	4A/24	321,06	69,0	23,8	114,72	1,38·10 <sup>-3</sup>	12,3	29,38	0,35·10 <sup>-3</sup>	22,5	144,10	1,74·10 <sup>-3</sup>	14,4	465,16	20,9

Tab. 16: Spaltgasdaten der FR 2-Kapselversuchsgruppe 4a



KVE	Prüflg.	freies Spaltgas F			Porenspaltgas P			Gitterspaltgas G			P + G			F + P + G	
		mm <sup>3</sup> /g	%	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Xe/Kr
47	4B/4	1819,27	76,8	18,5	464,97	5,60·10 <sup>-3</sup>	11,5	85,03	1,03·10 <sup>-3</sup>	26,5	550,00	6,63·10 <sup>-3</sup>	13,8	2369,27	17,4
	4B/3	1956,21	75,1	18,6	561,93	6,77·10 <sup>-3</sup>	16,5	85,97	1,04·10 <sup>-3</sup>	23,2	647,90	7,81·10 <sup>-3</sup>	17,4	2604,11	18,3
	4B/2	1603,87	70,9	16,7	505,58	6,09·10 <sup>-3</sup>	14,2	154,10	1,86·10 <sup>-3</sup>	23,3	659,68	7,95·10 <sup>-3</sup>	16,3	2263,55	16,6
	4B/1	1705,73	63,8	16,2	750,42	9,04·10 <sup>-3</sup>	16,6	216,36	2,61·10 <sup>-3</sup>	24,3	966,78	11,65·10 <sup>-3</sup>	18,3	2672,51	17,0
48	4B/9	1636,48	72,2	17,9	510,71	6,15·10 <sup>-3</sup>	16,1	118,65	1,43·10 <sup>-3</sup>	22,2	629,35	7,58·10 <sup>-3</sup>	17,2	2265,83	17,7
	4B/8	1696,18	77,6	16,1	371,19	4,47·10 <sup>-3</sup>	15,9	118,28	1,43·10 <sup>-3</sup>	22,7	489,47	5,90·10 <sup>-3</sup>	17,5	2185,65	16,4
	4B/7	2009,48	80,3	17,8	386,53	4,66·10 <sup>-3</sup>	15,0	107,73	1,30·10 <sup>-3</sup>	24,7	494,26	5,96·10 <sup>-3</sup>	17,1	2503,74	17,7
	4B/5	1995,99	78,6	17,5	415,45	5,01·10 <sup>-3</sup>	15,3	127,35	1,54·10 <sup>-3</sup>	20,1	542,80	6,54·10 <sup>-3</sup>	16,4	2538,79	17,3
49	4B/11	2226,82	67,8	16,6	861,17	10,38·10 <sup>-3</sup>	17,7	194,61	2,35·10 <sup>-3</sup>	18,5	1055,78	12,72·10 <sup>-3</sup>	17,9	3282,60	17,0
	4B/12	2405,66	67,2	14,8	963,08	11,61·10 <sup>-3</sup>	21,2	209,86	2,53·10 <sup>-3</sup>	17,9	1172,93	14,13·10 <sup>-3</sup>	20,6	3578,60	16,7
	4B/10	2391,85	66,3	15,2	974,48	11,74·10 <sup>-3</sup>	16,4	239,47	2,87·10 <sup>-3</sup>	21,7	1213,95	14,63·10 <sup>-3</sup>	17,4	3605,80	15,9
	4B/6	2489,17	-	15,9	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
55	4B/15	1199,71	-	18,2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	4B/14	1528,57	74,1	18,5	381,91	4,60·10 <sup>-3</sup>	16,1	152,86	1,84·10 <sup>-3</sup>	25,7	534,78	6,44·10 <sup>-3</sup>	18,8	2063,35	18,6
	4B/13	1464,09	74,8	18,2	332,25	4,00·10 <sup>-3</sup>	14,8	160,00	1,93·10 <sup>-3</sup>	31,1	492,25	5,93·10 <sup>-3</sup>	20,1	1956,33	18,7
56	4B/18	698,91	40,0	17,3	828,78	9,99·10 <sup>-3</sup>	15,6	217,48	2,62·10 <sup>-3</sup>	25,9	1046,27	12,61·10 <sup>-3</sup>	17,8		17,6
	4B/17	819,85	44,7	18,1	818,31	9,86·10 <sup>-3</sup>	16,1	197,11	2,38·10 <sup>-3</sup>	21,7	1015,42	10,24·10 <sup>-3</sup>	17,2		17,6
	4B/16	832,70	47,8	17,8	705,41	8,50·10 <sup>-3</sup>	15,9	200,69	2,42·10 <sup>-3</sup>	21,5	906,11	10,92·10 <sup>-3</sup>	17,1		17,5
57	4B/21	1987,43	78,5	16,7	419,23	5,05·10 <sup>-3</sup>	15,2	124,67	1,50·10 <sup>-3</sup>	26,8	543,90	6,55·10 <sup>-3</sup>	17,8	2531,33	16,9
	4B/20	2402,86	83,0	17,3	376,42	4,54·10 <sup>-3</sup>	16,2	117,27	1,41·10 <sup>-3</sup>	22,7	493,68	5,95·10 <sup>-3</sup>	17,8	2896,55	17,4
	4B/19	2262,63	80,5	18,0	395,96	4,77·10 <sup>-3</sup>	15,6	150,66	1,82·10 <sup>-3</sup>	24,0	546,61	6,59·10 <sup>-3</sup>	17,9	2809,24	18,0
58	4B/24	2415,40	69,8	18,8	801,24	9,66·10 <sup>-3</sup>	16,6	244,23	2,94·10 <sup>-3</sup>	23,8	1045,47	12,60·10 <sup>-3</sup>	18,3	3460,87	18,6
	4B/23	2458,70	75,2	18,6	791,64	9,54·10 <sup>-3</sup>	16,5	177,05	2,13·10 <sup>-3</sup>	30,5	808,69	9,75·10 <sup>-3</sup>	16,8	3267,39	18,2
	4B/22	2341,50	68,3	18,6	943,77	11,37·10 <sup>-3</sup>	16,6	142,70	1,72·10 <sup>-3</sup>	26,4	1086,47	13,09·10 <sup>-3</sup>	17,9	3427,97	18,4

Tab. 17: Spaltgasdaten der FR 2-Kapselversuchsgruppe 4 b

KVE	Prüf- ling	Pro- be	Porensplattgas P			Gittersplattgas G			P + G		
			mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr
74	5A8	9	48,13	$5,80 \cdot 10^{-4}$	14,2	-	-	-	-	-	-
		8	60,12	$7,24 \cdot 10^{-4}$	8,4	27,28	$3,29 \cdot 10^{-4}$	22	87,40	$1,05 \cdot 10^{-3}$	12,7
73	5A6	9	92,68	$1,12 \cdot 10^{-3}$	14,1	85,48	$1,03 \cdot 10^{-3}$	22,7	178,16	$2,15 \cdot 10^{-3}$	18,2
		8	95,49	$1,15 \cdot 10^{-3}$	14,0	108,59	$1,31 \cdot 10^{-3}$	24,8	204,08	$2,46 \cdot 10^{-3}$	19,7
72	5A4	9	50,38	$6,07 \cdot 10^{-4}$	11,4	34,52	$4,16 \cdot 10^{-4}$	28	84,90	$1,02 \cdot 10^{-3}$	18,1
		8	42,59	$5,13 \cdot 10^{-4}$	10,9	58,76	$7,08 \cdot 10^{-4}$	26,1	101,35	$1,22 \cdot 10^{-3}$	19,7

Tab. 18: Spaltgasdaten der FR 2-Kapselversuchsgruppe 5a

KVE	Prüflg.	freies Spaltgas F			Porenspaltgas P			Gitterspaltgas G			P + G			F + P + G	
		mm <sup>3</sup> /g	%	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	$\frac{\text{Atome}}{\text{Metallatom}}$	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	$\frac{\text{Atome}}{\text{Metallatom}}$	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	$\frac{\text{Atome}}{\text{Metallatom}}$	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Xe/Kr
77	5B/4	3093,15	-	17,6	268,30	$3,23 \cdot 10^{-3}$	16,8	-	-	-	-	-	-	-	-
	5B/3	3272,46	93,1	17,8	214,94	$2,59 \cdot 10^{-3}$	14,6	26,32	$3,17 \cdot 10^{-4}$	21,1	241,26	$2,91 \cdot 10^{-3}$	15,3	3513,72	17,6
	5B/2	3519,96	91,4	17,3	295,43	$3,56 \cdot 10^{-3}$	16,7	34,32	$4,14 \cdot 10^{-4}$	21,4	329,75	$3,97 \cdot 10^{-3}$	17,2	3849,71	17,2
80	5B/7	3160,66	-	17,6	300,68	$3,62 \cdot 10^{-3}$	17,9	-	-	-	-	-	-	-	-
	5B/6	3137,53	-	17,3	323,82	$3,90 \cdot 10^{-3}$	16,4	-	-	-	-	-	-	-	-
	5B/5	3053,00	-	17,6	314,33	$3,79 \cdot 10^{-3}$	17,5	-	-	-	-	-	-	-	-
81	5B/9	2453,15	86,6	17,4	262,01	$3,16 \cdot 10^{-3}$	14,7	118,17	$1,42 \cdot 10^{-3}$	29,7	380,18	$4,58 \cdot 10^{-3}$	19,3	2833,33	17,7
	5B/8	2588,31	-	17,4	274,27	$3,31 \cdot 10^{-3}$	16,5	-	-	-	-	-	-	-	-
	5B/1	2611,29	-	17,4	305,88	$3,69 \cdot 10^{-3}$	15,4	-	-	-	-	-	-	-	-
82	5B/12	2573,80	88,6	16,6	290,45	$3,50 \cdot 10^{-3}$	16,2	39,95	$4,81 \cdot 10^{-4}$	19,8	330,40	$3,98 \cdot 10^{-3}$	16,7	2904,20	16,6
	5B/11	2670,33	89,5	16,9	241,30	$2,91 \cdot 10^{-3}$	14,8	72,82	$8,77 \cdot 10^{-4}$	30,5	314,12	$3,79 \cdot 10^{-3}$	18,4	2984,45	17,1
	5B/10	2551,46	87,6	17,3	325,47	$3,92 \cdot 10^{-3}$	15,1	34,95	$4,21 \cdot 10^{-4}$	12,0	360,42	$4,34 \cdot 10^{-3}$	14,8	2911,88	17,0

Tab. 19: Spaltgasdaten der FR 2-Kapselversuchsgruppe 5b

Stab	freies Spaltgas F		Position der Probe, cm <sup>1)</sup>	Porenspaltgas P			Gitterspaltgas G			P + G		
	mm <sup>3</sup> /g	Xe/Kr		mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr
1	559,2	9,0	2,3	102,9	$1,23 \cdot 10^{-3}$	5,9	52,3	$6,26 \cdot 10^{-4}$	7,2	155,2	$1,86 \cdot 10^{-3}$	6,3
			3,6	123,5	$1,48 \cdot 10^{-3}$	6,0	-	-	-	-	-	-
			4,7	161,3	$1,93 \cdot 10^{-3}$	6,4	46,6	$5,58 \cdot 10^{-4}$	9,1	207,9	$2,49 \cdot 10^{-3}$	7,0
			26,3	209,2	$2,50 \cdot 10^{-3}$	5,3	86,1	$1,03 \cdot 10^{-3}$	9,0	295,3	$3,53 \cdot 10^{-3}$	6,4
			46,0	197,0	$2,36 \cdot 10^{-3}$	6,1	55,7	$6,66 \cdot 10^{-4}$	7,6	252,7	$3,02 \cdot 10^{-3}$	6,4
3	818,7	6,8	4,0	59,1	$7,07 \cdot 10^{-4}$	6,6	33,0	$3,95 \cdot 10^{-4}$	10,0	92,1	$1,10 \cdot 10^{-3}$	7,8
			26,5	203,0	$2,43 \cdot 10^{-3}$	6,0	92,7	$1,11 \cdot 10^{-3}$	12,2	295,7	$3,54 \cdot 10^{-3}$	7,9
			46,0	169,6	$2,03 \cdot 10^{-3}$	6,4	104,0	$1,24 \cdot 10^{-3}$	9,0	273,6	$3,27 \cdot 10^{-3}$	7,4
5	653,1	5,7	12,5	156,2	$1,87 \cdot 10^{-3}$	5,8	39,7	$4,75 \cdot 10^{-4}$	9,4	195,9	$2,34 \cdot 10^{-3}$	6,5
			26,0	224,1	$2,68 \cdot 10^{-3}$	5,3	51,2	$6,13 \cdot 10^{-4}$	12,3	275,3	$3,29 \cdot 10^{-3}$	6,6
			43,0	179,9	$2,15 \cdot 10^{-3}$	5,9	74,4	$8,90 \cdot 10^{-4}$	7,7	254,3	$3,04 \cdot 10^{-3}$	6,4
6	789,4	6,7	4,5	77,2	$9,24 \cdot 10^{-4}$	6,1	76,4	$9,14 \cdot 10^{-4}$	8,4	153,6	$1,84 \cdot 10^{-3}$	7,2
			26,5	202,8	$2,43 \cdot 10^{-3}$	5,6	111,9	$1,34 \cdot 10^{-3}$	14,4	314,7	$3,77 \cdot 10^{-3}$	8,7
			46,0	216,1	$2,59 \cdot 10^{-3}$	6,5	102,4	$1,23 \cdot 10^{-3}$	9,6	318,5	$3,81 \cdot 10^{-3}$	7,5
7	743,3	8,6	11,7	155,1	$1,86 \cdot 10^{-3}$	6,0	47,9	$5,73 \cdot 10^{-4}$	7,7	203,0	$2,43 \cdot 10^{-3}$	6,4
			25,3	177,7	$2,13 \cdot 10^{-3}$	6,7	44,6	$5,34 \cdot 10^{-4}$	9,8	222,3	$2,66 \cdot 10^{-3}$	7,3
			42,5	141,1	$1,69 \cdot 10^{-3}$	6,1	75,7	$9,06 \cdot 10^{-4}$	8,1	216,8	$3,59 \cdot 10^{-3}$	6,8
9	749,9	6,7	12,0	120,2	$1,44 \cdot 10^{-3}$	5,7	54,3	$6,50 \cdot 10^{-4}$	9,2	174,5	$2,09 \cdot 10^{-3}$	6,8
			26,5	303,1	$3,63 \cdot 10^{-3}$	7,5	33,8	$4,04 \cdot 10^{-4}$	8,3	336,8	$4,03 \cdot 10^{-3}$	7,6
			43,5	212,7	$2,54 \cdot 10^{-3}$	9,2	67,4	$8,06 \cdot 10^{-4}$	10,3	280,1	$3,35 \cdot 10^{-3}$	9,4

1) Entfernung der Probenmitte vom oberen Brennstoffsäulenende

Tab. 20: Spaltgasdaten der Mol 7A-Stäbe

Am oberen Ende der Brennstoffsäule ( $T_m \approx 1500^\circ\text{C}$ ) beträgt die über alle Stäbe gemittelte Spaltgaskonzentration ca.  $2 \cdot 10^{-3}$  Gasatome/Metallatom, in Stabmitte ( $T_m \approx 1400^\circ\text{C}$ ) ca.  $3,5 \cdot 10^{-3}$  und am unteren Brennstoffsäulenende ( $T_m \approx 1300^\circ\text{C}$ ) ca.  $3,1 \cdot 10^{-3}$  Gasatome/Metallatom. Die über die Stablänge gemittelte Gaskonzentration ist  $2,83 \cdot 10^{-3}$  Atome/Atom oder  $0,24 \text{ cm}^3/\text{g}$  Brennstoff. Bei einer mittleren Freisetzung von  $0,75 \text{ cm}^3/\text{g}$  (ohne Zentralstab, dessen Abbrand niedriger ist) ergibt sich die mittlere prozentuale Freisetzung zu ca. 76%.

Experiment Mol 8 B

An den beiden Stäben dieses Experimentes war keine Bestimmung des freigesetzten Spaltgases möglich, denn der Stab Mol 8 B 1 war defekt und beim Stab Mol 8 B 2 misslang die Bestimmung. Die Spaltgasfreisetzung konnte deshalb nur auf Grund der Gasdruckbestimmungen ermittelt werden. Die auf diese Weise erhaltenen Freisetzungskurven sind in Abb.4 dargestellt. Die Messwerte wurden /15/ entnommen. Beim Stab B 2 war der Druckaufnehmer bereits nach einem Abbrand von ca. 40 MWd/kgM ausgefallen.

Proben zur Bestimmung des gebundenen Spaltgases wurden bei beiden Stäben nur in der Nähe des Stableistungsmaximums entnommen. Die mittleren Brennstofftemperaturen an diesen Stellen lagen bei oder über  $1500^\circ\text{C}$ . Die Ergebnisse sind in der Tab. 21 aufgeführt.

Tab. 21: Gebundenes Spaltgas in den Mol 8B-Stäben

Stab Probe	Porensplattgas P			Gittersplattgas G			P + G		
	$\text{mm}^3/\text{g}$	$\frac{\text{Atome}}{\text{Metallatom}}$	Xe/Kr	$\text{mm}^3/\text{g}$	$\frac{\text{Atome}}{\text{Metallatom}}$	Xe/Kr	$\text{mm}^3/\text{g}$	$\frac{\text{Atome}}{\text{Metallatom}}$	Xe/Kr
B1/12	58,4	$7,01 \cdot 10^{-4}$	6,2	-	-	-	-	-	-
/15	62,1	$7,46 \cdot 10^{-4}$	7,6	10,8	$1,29 \cdot 10^{-4}$	9	72,9	$8,75 \cdot 10^{-4}$	7,8
B2/18	63,7	$7,64 \cdot 10^{-4}$	6,6	-	-	-	-	-	-

### Experiment Mol 8C

Die Nachbestrahlungsuntersuchungen der Stäbe dieses Experimentes sind noch nicht abgeschlossen. Die auf Grund der kontinuierlichen Messung des Gasdruckes bestimmten Spaltgasfreisetzungswerte sind in Abhängigkeit vom Abbrand in den Abb. 5 bis 7 dargestellt. Die Abb. 8 bis 15 zeigen die Freisetzungsraten und die Stabileistungen der Stäbe Mol 8 C1 bis C8 in Abhängigkeit vom Abbrand sowie die über den Gesamtabbrand gemittelten Werte bei der Grössen. Die Freisetzungsraten sind das Verhältnis der pro Zeiteinheit freigesetzten Spaltgasmenge zu der in der gleichen Zeiteinheit erzeugten Spaltgasmenge. Die Zahlenangaben in den Abb. 8 bis 15 sind die Reaktorabschaltungen in den Abbrandintervallen.

### 3.2.3 DFR - Bestrahlungen

#### Experiment DFR - 304

Das freie Spaltgas konnte nur beim Stab G 3 bestimmt werden, da die beiden anderen Stäbe bei der Demontage beschädigt wurden. Dieser Freisetzungswert und die gefundenen Werte des Poren- und Gitterspaltgases sind in der Tab. 22 aufgeführt. Der axiale Konzentrationsverlauf des gebundenen Spaltgases ist zusammen mit dem Abbrand- und Hülltemperaturverlauf in der Abb. 16 dargestellt.

#### Experiment DFR - 350

Das freie Spaltgas wurde, soweit möglich, bei allen bei der GfK untersuchten Brennstäben bestimmt. Die Ergebnisse sind in der Tab. 23 aufgeführt. Der Mittelwert der pro Stab freigesetzten Spaltgasmenge - ohne Stab G 14 - liegt bei  $54,17 \text{ cm}^3$ . Für den aus der Reihe fallenden Wert des am Bündelrand stehenden Stabes G 14 von  $73,32 \text{ cm}^3$  lässt sich auf Grund der bekannten Bestrahlungsdaten keine Erklärung finden. Dieser hohe Freisetzungswert könnte auf eine kurzzeitige Temperaturerhöhung am Bestrahlungsende zurückzuführen sein. Zwar gibt es keine Erklärung für die vermutete Temperaturerhöhung, doch deutet auch das von den Werten der übrigen Stäbe stark abweichende Zentralkanalvolumen des Stabes G 14 auf eine Temperaturzunahme. Das Zentralkanalvolumen des Stabes G 14 ist mit einem Wert von  $0,455 \text{ cm}^3$  deutlich niedriger als die Zentralkanalvolumina der anderen Stäbe, die zwischen  $0,709$  und  $0,873 \text{ cm}^3$  liegen. Die Ursache hierfür ist

Stab	freies Spaltgas F		Position der Probe, cm <sup>1)</sup>	Porenspaltgas P			Gitterspaltgas G			P + G			
	mm <sup>3</sup> /g	Xe/Kr		mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	Atome Metallatom	Xe/Kr	
G 1	-	-	3,3	198,4	$2,37 \cdot 10^{-3}$	6,6	114,7	$1,37 \cdot 10^{-3}$	6,8	313,1	$3,74 \cdot 10^{-3}$	6,7	
			18,1	22,0	$2,64 \cdot 10^{-4}$	5,6	66,9	$8,00 \cdot 10^{-4}$	11,5	88,9	$1,06 \cdot 10^{-3}$	10,0	
			31,3	61,2	$7,32 \cdot 10^{-4}$	6,1	32,8	$3,93 \cdot 10^{-4}$	8,1	94,0	$1,12 \cdot 10^{-3}$	6,8	
G 2			4,3	99,4	$1,19 \cdot 10^{-3}$	7,0	58,3	$6,97 \cdot 10^{-4}$	7,3	157,7	$1,89 \cdot 10^{-3}$	7,1	
			13,0	120,2	$1,44 \cdot 10^{-3}$	6,3	48,4	$5,79 \cdot 10^{-4}$	8,7	168,6	$2,02 \cdot 10^{-3}$	7,0	
			32,3	39,2	$4,69 \cdot 10^{-4}$	5,6	10,7	$1,28 \cdot 10^{-4}$	5,4	49,9	$5,97 \cdot 10^{-4}$	5,6	
G 3	1448,0	6,3	3,8	219,6	$2,63 \cdot 10^{-3}$	7,8	94,5	$1,13 \cdot 10^{-3}$	8,5	314,1	$3,76 \cdot 10^{-3}$	8,0	
			6,0	178,9	$2,14 \cdot 10^{-3}$	6,4	93,8	$1,12 \cdot 10^{-3}$	6,6	272,7	$3,26 \cdot 10^{-3}$	6,4	
			16,3	14,6	$1,74 \cdot 10^{-4}$	6,9	9,3	$1,12 \cdot 10^{-4}$	5,8	23,9	$2,86 \cdot 10^{-4}$	6,5	
			17,5	22,0	$2,63 \cdot 10^{-4}$	6,8	-	-	-	-	-	-	-
			30,8	31,6	$3,78 \cdot 10^{-4}$	6,1	15,9	$1,90 \cdot 10^{-4}$	,5	47,5	$5,68 \cdot 10^{-4}$	8,2	

1) Entfernung vom oberen Brennstoffende

Tab. 22: Spaltgasdaten der DFR - 304-Stäbe

Tab. 23: Spaltgasfreisetzung der DFR - 350 - Stäbe

Stab	Position im Bündel	freies Spaltgas F				
		cm <sup>3</sup>	mm <sup>3</sup> /g	Xe/Kr	% <sup>1)</sup>	% <sup>2)</sup>
G 2	aussen	59,06	1056,5	6,8	82,1	77,0
G 4	aussen	60,81	1101,6	6,6	85,6	80,3
G 6	innen	60,40	1094,2	7,1	85,0	79,7
G 14	aussen	73,32	1311,6	6,5	101,9	95,6
G 21	innen	58,22	1049,0	6,3	81,6	76,5
G 36	aussen	46,77	845,8	7,1	65,8	61,7
G 39	aussen	53,84	986,1	7,0	76,7	71,9
G 40	innen	47,05	866,5	7,0	67,4	63,2
G 41	aussen	55,68	1010,5	6,3	78,6	73,7
G 43	innen	52,49	964,1	6,0	75,1	70,4
G 56	aussen	50,00	915,8	6,8	71,2	66,8
G 57	innen	50,00	912,4	6,7	70,9	66,5
G 61	innen	55,75	1024,8	6,8	79,6	74,7

1) prozentuale Freisetzung bei Annahme von 0,30 Spaltgasatomen/Spaltung

2) " " " " " 0,32 " "

vermutlich eine durch höhere Temperatur bedingte stärkere Schwellung beim Stab G 14.

Das gebundene Spaltgas wurde nur an zwei Stäben bestimmt. Die Konzentrationen sind in der Tab.24 in Abhängigkeit von der axialen Position aufgeführt. Sie ändern sich nur relativ wenig über die Stablänge. Lediglich die Probe 6 des Stabes G 50 liefert einen ungewöhnlich hohen Wert, ohne dass hierfür ein Grund ersichtlich ist. Eine fehlerhafte Probennahme ist nicht auszuschliessen.



Stab	Pro- be	Position der Pro- be, cm <sup>1)</sup>	Porensplattgas P			Gittersplattgas G			P + G		
			mm <sup>3</sup> /g	$\frac{\text{Atome}}{\text{Metallatom}}$	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	$\frac{\text{Atome}}{\text{Metallatom}}$	Xe/Kr	mm <sup>3</sup> /g	$\frac{\text{Atome}}{\text{Metallatom}}$	Xe/Kr
G 39	7	2,5	166,3	$1,99 \cdot 10^{-3}$	6,9	96,5	$1,15 \cdot 10^{-3}$	6,4	262,8	$3,14 \cdot 10^{-3}$	6,7
	8	8	172,6	$2,06 \cdot 10^{-3}$	6,8	99,9	$1,20 \cdot 10^{-3}$	7,5	272,5	$3,26 \cdot 10^{-3}$	7,1
	9	14,5	150,6	$1,80 \cdot 10^{-3}$	6,3	72,1	$8,62 \cdot 10^{-4}$	7,1	222,7	$2,66 \cdot 10^{-3}$	6,6
	10	20,5	209,4	$2,50 \cdot 10^{-3}$	6,0	51,5	$6,16 \cdot 10^{-4}$	7,9	260,9	$3,12 \cdot 10^{-3}$	6,4
	11	27,5	223,8	$2,67 \cdot 10^{-3}$	6,5	71,8	$8,58 \cdot 10^{-4}$	6,3	295,5	$3,53 \cdot 10^{-3}$	6,4
G 50	2	4	208,8	$2,50 \cdot 10^{-3}$	5,5	63,6	$7,61 \cdot 10^{-4}$	6,6	272,5	$3,26 \cdot 10^{-3}$	5,8
	4a	10	110,3	$1,32 \cdot 10^{-3}$	5,9	114,5	$1,37 \cdot 10^{-3}$	7,9	224,8	$2,69 \cdot 10^{-3}$	6,9
	6	20,5	358,5	$4,29 \cdot 10^{-3}$	6,9	198,4	$2,37 \cdot 10^{-3}$	6,9	556,9	$6,66 \cdot 10^{-3}$	6,9
	9a	27,5	223,8	$2,68 \cdot 10^{-3}$	5,8	56,3	$6,74 \cdot 10^{-4}$	9,7	280,1	$3,35 \cdot 10^{-3}$	6,6

1) Entfernung vom unteren Brennstoffende

Tab. 24: Gebundenes Splattgas der DFR-350-Stäbe

Experiment DFR-435

An den drei unversehrt gebliebenen Stäben wurde das freie Spaltgas bestimmt (Tab. 25),

Tab. 25: Freies Spaltgas in den DFR-435-Stäben

Stab	freies Spaltgas F				
	cm <sup>3</sup>	mm <sup>3</sup> /g	Xe/Kr	% <sup>1)</sup>	% <sup>2)</sup>
G 9	97,04	1742,2	5,9	91,3	85,6
G 17	93,37	1688,4	6,4	105,3	98,8
G 19	95,93	1700,9	6,7	106,1	99,5

1) prozentuale Freisetzung bei Annahme von 0,30 Spaltgasatomen/Spaltung

2) " " " " " 0,32 " "

3.2.4 Rapsodie-Bestrahlungen

Rapsodie-Monitor

An zwei Stäben wurde das freigesetzte Spaltgas bestimmt. Die Ergebnisse sind in der Tab.26 aufgeführt.

Tab. 26: Spaltgasfreisetzung der Rapsodie-Monitor-Stäbe

Stab	freies Spaltgas F				
	cm <sup>3</sup>	mm <sup>3</sup> /g	Xe/Kr	% <sup>1)</sup>	% <sup>2)</sup>
AU 31	78,82	1285,8	14,4	88,7	83,1
BU 18	88,52	1446,4	14,4	98,2	92,1

1) prozentuale Freisetzung bei Annahme von 0,30 Spaltgasatomen/Spaltung

2) " " " " " 0,32 " "

Rapsodie-Bündel

Die Ergebnisse der Bestimmungen des freien Spaltgases sind in der Tab.27 wiedergegeben.

Tab. 27: Spaltgasfreisetzung der Rapsodie-Stäbe

Bün- del	Stab	cm <sup>3</sup>	freies Spaltgas F			2) %
			mm <sup>3</sup> /g	Xe/Kr	% <sup>1)</sup>	
1	AM 07	110,54	1780,0	6,4	83,1	77,9
	AM 21	122,40	1974,2	7,5	89,3	83,7
	AM 35	127,15	2105,1	7,4	91,9	86,2
	BM 10	118,74	1982,3	6,0	92,4	86,6
	BM 12	125,55	2048,1	7,6	95,6	89,7
	BM 14	102,30	1702,2	7,7	79,5	74,5
	BM 16	109,80	1839,2	8,9	84,3	79,0
2	AU 20	95,12	1549,2	6,5	72,3	67,8
	AU 22	99,58	1627,1	6,5	75,9	71,1
	AU 24	108,66	1784,2	6,1	79,0	74,0
	AU 26	117,83	1931,6	6,9	84,1	78,9
	AU 37	106,20	1741,0	7,4	75,8	71,1
	BU 14	115,90	1896,9	6,3	84,0	78,7

1) prozentuale Freisetzung bei Annahme von 0,30 Spaltgasatomen/Spaltung

2) " " " " " 0,32 " "

4. Diskussion

4.1 Spaltgasfreisetzung

Als Wert für die Spaltgasfreisetzung wird allgemein der prozentuale Anteil des freigesetzten am erzeugten Spaltgas angegeben. Die Menge des erzeugten Spaltgases kann, wenn keine Bestimmung des gebundenen Spaltgases erfolgt oder wegen starker axialer Änderungen der Gaskonzentra-

tion infolge unterschiedlicher Betriebsbedingungen eine hinreichend genaue Bestimmung nicht möglich ist, häufig nur berechnet werden. Hierfür ist die Kenntnis der eingesetzten Brennstoffmenge, des mittleren Abbrandes und der Zahl der pro Spaltung entstehenden Spaltgasatome erforderlich. Während die beiden erstgenannten Größen fast immer mit ausreichender Genauigkeit bekannt sind, ist die Zahl der pro Spaltung erzeugten Xe- und Kr-Atome nicht für alle Fälle klar. Sie ist abhängig vom Spaltstoff und vom Neutronenspektrum, das die Spaltgasmenge in zweifacher Hinsicht beeinflussen kann: direkt über die Ausbeute bei der Spaltung und über die Umwandlung kurzlebiger Isotope in stabile.

Bei der Spaltung von U-235 und Pu-239 mit thermischen Neutronen entstehen nach neueren Literaturangaben /16, 17, 18/ 0,24 bis 0,25 stabile Xe- und Kr-Atome pro Spaltung. Das Xe/Kr-Verhältnis beträgt nach diesen Literaturangaben ca. 5,5 bei U-235- und ca. 13,7 bei Pu-239-Spaltung. Der Wert von 0,25 Gasatomen pro Spaltung ist jedoch zu niedrig, um die tatsächlich entstandenen Spaltgasmengen zu erklären. Bei einer Rückrechnung auf Grund der bei den FR 2-Versuchsgruppen ermittelten Spaltgas-mengen und der bekannten Brennstoff- und Abbranddaten ergibt sich, dass pro Spaltung ca. 0,3 Gasatome entstanden sein müssen. Dieser Wert lässt sich auch theoretisch begründen, wenn man berücksichtigt, dass das instabile Xe-135 wegen seines hohen Einfangquerschnittes für thermische Neutronen von  $3,6 \cdot 10^6$  barn fast vollständig durch (n, $\gamma$ )-Reaktion in das stabile Xe-136 umgewandelt wird. Bei vollständiger Umwandlung ergibt sich dann nach /16, 17, 18/ ein Wert von 0,3 bis 0,32 Gasatomen pro Spaltung. Bei thermischen Neutronenflüssen von  $10^{13}$  bis  $10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>·s, wie sie bei den FR-2-Bestrahlungen auftreten, ist die Abbaukonstante des Xe-135 durch (n, $\gamma$ )-Reaktion 40 bis 400 mal so gross wie die  $\beta$ -Zerfallskonstante, d.h. fast das gesamte Xe-135 wird in Xe-136 umgewandelt. Das bestätigen auch die gefundenen mittleren Xe/Kr-Verhältnisse von 7,4 bei den UO<sub>2</sub>-Versuchsgruppen FR 2-1,2 und 3 und von ca. 18 bei den UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Versuchsgruppen, die sich nur durch nahezu vollständige Umwandlung erklären lassen.

Etwas anders sind die Verhältnisse bei Bestrahlungen im schnellen Neutronenfluss. Es sind keine zuverlässigen Angaben über (n, $\gamma$ )-Wirkungsquerschnitte der interessierenden Spaltgasisotope bekannt. Die wenigen Angaben für Neutronen hoher Energie deuten jedoch daraufhin, dass sie klein sind.

Auch die beobachteten Xe/Kr-Verhältnisse geben keinen Hinweis auf eine nennenswerte Entstehung stabiler Xe- oder Kr-Isotope durch Neutroneneinfangprozesse. Die gemessenen Xe/Kr-Verhältnisse entsprechen in etwa den auf Grund der Spaltungsanteile der Spaltstoffe zu erwartenden. Der theoretische Wert von 0,24 bis 0,26 Gasatomen pro Spaltung nach /18, 19/ reicht jedoch nicht aus, die bei Bestrahlung in schnellen Flüssen entstandenen Spaltgasmengen zu erklären. Auch hier muss man bei Versuchsauswertungen einen Wert von 0,3 bis 0,32 Gasatomen pro Spaltung annehmen, um gemessene Spaltgasmengen, oft sogar nur die freigesetzten, zu erklären.

Abb.17 zeigt die prozentuale Spaltgasfreisetzung der untersuchten Brennstäbe in Abhängigkeit vom Abbrand. Parameter in dieser Abbildung ist die mittlere Brennstofftemperatur. Die obere und die untere gestrichelte Linie geben die Grenzen des Streubandes der Freisetzungswerte an, die der Literatur für Brennstabbestrahlungen mit Mischoxidpellets entnommen wurden. Die eigenen Messwerte füllen dieses breite Streuband voll aus. Nach der Einführung der mittleren Brennstofftemperatur am Bestrahlungsende als Parameter -wobei drei Temperaturgruppen mit den mittleren Temperaturen 1000, 1250 und 1500°C gewählt wurden- erkennt man, dass die unteren Werte von den Brennstäben mit niedriger mittlerer Brennstofftemperatur stammen. Das sind die Stäbe aus den FR 2-Bestrahlungen, bei denen die Stabileistung und die Hülltemperatur im Laufe des Abbrandes stark abfielen. Den oberen Bereich des Streubandes füllen die Freisetzungswerte der Brennstäbe mit hoher mittlerer Brennstofftemperatur aus. Alle drei Freisetzungskurven zeigen einen grundsätzlich ähnlichen Verlauf. Nach einem steilen Anfangsanstieg folgt ein s-förmiger Kurvenverlauf mit einem relativ starken Anstieg zwischen 10 und 60 MWd/kgM Abbrand, der um so später eintritt, je niedriger die Brennstofftemperatur ist. Danach erfolgt eine Abflachung der Freisetzungskurven.

Einen ähnlichen Verlauf der Spaltgasfreisetzung mit dem Abbrand ergeben die kontinuierlichen Druckmessungen an den Mol 8 C-Stäben (Abb.5 bis 7). Auch diese Kurven zeigen in dem oben angegebenen Abbrandbereich im allgemeinen eine starke Zunahme der prozentualen Freisetzung. Deutlicher kommt dieser Effekt noch in den Abb.8 bis 15 zum Ausdruck, die

die Freisetzungsraten der Stäbe Mol 8 C1 bis C8 zeigen. Die Freisetzungsraten unmittelbar zu Beginn der Bestrahlung waren nicht zu ermitteln, da sie durch desorbierte Fremdgase verfälscht wurden. Bei Abbränden zwischen 15 und 40 MWd/kgM werden erstmals Freisetzungsraten erreicht, die der mittleren Freisetzungsrate (=prozentuale Freisetzung am Bestrahlungsende) entsprechen oder diese übersteigen, wobei teilweise sogar Werte über eins auftreten. Nach einem darauffolgenden kurzzeitigen Abfall wird dann meist noch ein zweites Maximum zwischen 50 und 70 MWd/kgM gefunden, bei dem die Werte zum Teil erheblich über eins liegen. Bei Abbränden über 75 MWd/kgM liegen dann die Freisetzungsraten fast immer etwas unter eins. Grössere Schwankungen treten dann kaum noch auf bzw. sie lassen sich bei diesen Abbränden fast immer durch Schwankungen der Stableistung im betrachteten Abbrandintervall erklären. Ein Einfluss der Zahl der Abschaltungen auf die Freisetzungsraten ist nicht erkennbar, allerdings gibt es diesbezüglich auch keine gravierenden Unterschiede in den Abbrandintervallen.

Die Vorgänge bei der Spaltgasfreigabe können folgendermassen beschrieben werden: Zu Beginn der Bestrahlung, wenn sich durch schnelle Porenwanderung zum Zentrum der Zentralkanal bildet, ist die Spaltgasfreisetzungsraten relativ hoch; denn zu diesem Zeitpunkt ist die Temperatur des Brennstoffes am höchsten und die Zone rascher Porenwanderung am weitesten nach aussen ausgedehnt. Die wandernden Poren nehmen das entstandene Spaltgas auf und setzen es am Zentralkanal frei. In dieser Anfangsphase der Bestrahlung dürfte das der entscheidende Freisetzungsmechanismus sein. Nach älterer Auffassung ist Poren- und Spaltgasblasenwanderung überhaupt der Hauptfreisetzungsmechanismus bei hoher Temperatur, nach neuerer Ansicht /20/ ist jedoch auch in der Stengelkristallzone Gasdiffusion der wesentlichste Freisetzungsmechanismus, während die Blasen- und Porenwanderung nur mit weniger als 25% an der Freisetzung beteiligt ist.

Nach der Ausbildung des Zentralkanals und dem Schliessen des Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle kommt es jeweils zu einem Abfall der Brennstofftemperatur und zu einer Verkleinerung der Hochtemperaturzone mit schneller Spaltgasfreisetzung. Dadurch nimmt die Spaltgasfreisetzungsraten zunächst etwas ab, weil in den Zonen mittlerer und niedriger Temperatur das entstehende Spaltgas zum überwiegenden Teil noch gespeichert

wird (s.Kap. 4.2). Erst wenn es zur sogenannten break-away-Freisetzung kommt -der Freisetzung durch das Aufreißen von dicht mit Spaltgasblasen belegten Korngrenzen infolge gegenseitiger Blasenberührung- steigt die Freisetzungsrates an, zum Teil auf Werte deutlich über eins. Die prozentuale Freisetzung nimmt dadurch erheblich zu. Wann dieser Effekt eintritt und wie stark er ausgeprägt ist, hängt neben der zeitlichen Änderung der thermischen Spannungen im Brennstoff infolge von Leistungsänderungen im wesentlichen von der Temperaturverteilung ab. Wie die Abb. 17 zeigt, verschiebt er sich mit abnehmender Brennstofftemperatur zu höheren Abbränden.

Auf Grund der an den Mol 8C-Stäben gemessenen Freisetzungsrates kann man annehmen, dass die hohen Freisetzungsrates unter 40 MWd/kgM Abbrand im wesentlichen durch den break-away-Mechanismus in der Kornwachstumszone bedingt sind, während die zwischen 50 und 70 MWd/kg auftretenden hauptsächlich durch das Aufreißen der Korngrenzen in der äusseren Zone ohne Gefügebeeinflussung hervorgerufen werden. Die häufig beobachtete Abnahme der Freisetzungsrates nach einer break-away-Freisetzung auf Werte erheblich unter eins deutet auf ein teilweises "Ausheilen" der aufgerissenen Korngrenzen und einen Wiederanstieg des Gasspeichervermögens des Brennstoffes. Damit verbunden wäre nach einem gewissen Abbrand eine erneute, wenn auch schwächere break-away-Freisetzung aus der betreffenden Brennstoffzone.

Auf einen Wiederanstieg des Gasspeichervermögens des Brennstoffes nach einer sehr hohen Freisetzungsrates lässt auch die Abb.18 schliessen, die die auf das jeweilige Brennstoffgewicht bezogenen freigesetzten Spaltgasmengen der in den schnellen Flüssen des DFR und des Rapsodie unter vergleichbaren Bedingungen bestrahlten Teststäbe in Abhängigkeit vom Abbrand wiedergibt. Auf eine sehr hohe Freisetzungsrates zwischen 48 und 60 MWd/kgM Abbrand folgt eine wesentlich niedrigere im Abbrandbereich zwischen 60 und 95 MWd/kgM. Anhand der wenigen bis jetzt bei hohen Abbränden zur Verfügung stehenden Daten kann noch nicht entschieden werden, ob der Wiederabfall der Freisetzungsrates wirklich auf ein zunehmendes Spaltgasspeichervermögen des Brennstoffes infolge Struktur- oder Eigenschaftsänderungen bei hohen Abbränden zurückzuführen ist, oder

ob sich lediglich Perioden hoher und niedriger Freisetzungsraten abwechseln, also eine wiederholte break-away-Freisetzung mit anschließender Ausheilung der aufgerissenen Korngrenzen erfolgt. Die Ergebnisse der FR 2-Bestrahlungen bis zu hohen Abbränden sind zur Deutung wegen des Leistungsabfalls zum Bestrahlungsende nicht heranziehbar.

Die Abhängigkeit der Spaltgasfreisetzung von der Ausgangsdichte des Brennstoffes ist in der Abb.19 dargestellt. Parameter in dieser Abbildung sind die mittlere Brennstofftemperatur und der Abbrand, wobei die Werte zu Gruppen zusammengefasst wurden. Allgemein ist aus der Literatur bekannt, dass die Freisetzung mit abnehmender Dichte zunimmt. Man erkennt diese Tendenz auch aus den beiden unteren Streubändern, die die Werte mit niedriger Bestrahlungstemperatur und geringem Abbrand umfassen. Bei hoher Brennstofftemperatur und hohem Abbrand findet man dagegen keine Abhängigkeit von der Ausgangsdichte mehr; denn im Laufe des Abbrandes findet durch Porenwanderung, Schwell- und Kriechvorgänge eine Porositätsverteilung statt, die um so schneller abläuft, je höher die mittlere Brennstofftemperatur ist. Dadurch stellt sich ein Endzustand ein, der nicht mehr von der Ausgangsdichte abhängt /21/. Eine Beeinflussung der Spaltgasfreisetzung durch die Ausgangsporosität kann also nur vor dem Erreichen dieses Endzustandes erfolgen, und zwar durch das höhere Temperaturniveau und die stärkere Porenwanderung bei einem Brennstoff niedriger Dichte und dadurch, dass eine höhere Ausgangsporosität auch eine höhere offene Porosität beinhaltet und offene Poren Transportwege des Spaltgases zur freien Oberfläche darstellen.

Den Einfluss des Ausgangs-O/M-Verhältnisses auf die Spaltgasfreisetzung zeigt die Abb.20. Die Ergebnisse stammen aus den Rapsodie-Bestrahlungen, wo Brennstoffe mit unterschiedlichem O/M-Verhältnis eingesetzt wurden. Man sieht, dass die Freisetzung bei Stäben, die unter identischen Bedingungen bestrahlt wurden, mit abnehmendem O/M-Verhältnis zunimmt. Die Ursache hierfür dürfte im wesentlichen in der schlechteren Wärmeleitfähigkeit des stärker unterstöchiometrischen Materials zu suchen sein, die zu höheren Brennstofftemperaturen führt. Das bestätigen auch die Gefügeuntersuchungen, die bei den Stäben mit niedrigerem O/M-Verhältnis weiter nach aussen ausgedehnte Stengelkristall- und Kornwachstumszonen er-



gaben. Das O/M-Verhältnis könnte jedoch auch über Nachsinterungsvorgänge im Brennstoff, die sich auf die Breite des Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle auswirken, die Spaltgasfreisetzung beeinflussen /22/. In jedem Fall ist der Einfluss des O/M-Verhältnisses kein direkter.

#### 4.2 Spaltgasrückhaltung

Ein Teil des erzeugten Spaltgases wird im Brennstoff zurückgehalten. Dieses Spaltgas liegt in bestrahlungsbedingter Lösung oder ausgeschieden in Blasen vor und trägt zur Brennstoffschwellung bei. Die Kenntnis der Konzentration des zurückgehaltenen Spaltgases ist wichtig für die Vorhersage des Brennstabverhaltens bei Leistungsimpulsen oder Störungen in der Kühlung; denn in derartigen Fällen kann dieses Spaltgas durch plötzliches Entweichen, u.U. verbunden mit örtlich sehr hohen Gasdrücken, und durch starkes Schwellen infolge Bildung grösserer Blasen möglicherweise die Ursache für ein Brennstabversagen sein. Kermographische Untersuchungen an einem Brennstab, der nach einer Vorbestrahlung einem kurzzeitigen Leistungsimpuls ausgesetzt war, zeigten die Bildung einer neuen Spaltgasblasenpopulation /23/.

Die Konzentration des gebundenen Spaltgases in Abhängigkeit vom Abbrand ist in der Abb.21 für verschiedene mittlere Brennstofftemperaturen dargestellt. Die entsprechenden Darstellungen für das Gitter- und Porenspaltgas sind die Abb.22 und 23. Auf Grund dieser Kurvenverläufe kann man das Spaltgasverhalten im Brennstoff in groben Zügen folgendermassen beschreiben: Zu Beginn der Bestrahlung steigt zunächst die Konzentration des in bestrahlungsbedingter Lösung befindlichen Spaltgases an. Das erkennt man an der nahezu linearen Zunahme der Gitterspaltgaskonzentration mit dem Abbrand am Bestrahlungsbeginn. Sie strebt dann jedoch relativ rasch einem Sättigungswert zu, der um so schneller erreicht wird und um so niedriger liegt, je höher die Brennstofftemperatur ist. Mit zunehmender Sättigung der Gitterspaltgaskonzentration steigt der Gehalt an Porenspaltgas, der unmittelbar zu Beginn der Bestrahlung nur langsam zunahm, stärker an, d.h. immer mehr Spaltgas wird aus dem Brennstoffgitter ausgeschieden, vornehmlich in Blasen an Korngrenzen. Bei hohen

Brennstofftemperaturen ist dieses Ausscheiden an Korngrenzen wegen der hohen Diffusionsgeschwindigkeit dort weitgehend gleichbedeutend mit einer Freisetzung. Bei niedrigen Brennstofftemperaturen bleibt jedoch das Gas zunächst in Korngrenzenblasen.

Die Belegungsdichte der Korngrenzen mit Blasen nimmt dann im Laufe des Abbrandes immer mehr zu, bis sie sich gegenseitig berühren und die Korngrenze dadurch aufreißt und ihren Spaltgasinhalt freisetzt (break-away-Mechanismus). Bei einer mittleren Brennstofftemperatur von  $1250^{\circ}\text{C}$  erkennt man das an dem Anstieg der Konzentration des Poren- und des gebundenen Spaltgases bis ca. 30 MWd/kgM Abbrand und dem darauffolgenden Abfall. Bis zu einem Abbrand von ca. 60 MWd/kgM streuen dann die Werte des Poren- und des gebundenen Spaltgases stark, einmal weil der break-away-Mechanismus in den verschiedenen Temperaturbereichen des Brennstoffes bei verschiedenen Abbrandzuständen auftritt - nach Frost /24/ bei Temperaturen unter  $1050^{\circ}\text{C}$  bei 6% Abbrand, im Temperaturbereich 1050 bis  $1500^{\circ}\text{C}$  bei 4% und bei Temperaturen zwischen 1500 und  $1750^{\circ}\text{C}$  bei 2% - zum anderen weil er wesentlich von den Betriebsbedingungen abhängt, nämlich durch Rissbildung und Spannungsänderungen im Brennstoff infolge Änderungen der Leistung oder der Wärmeabfuhr. Bei Abbränden über 60 MWd/kgM erfolgt dann ein Wiederanstieg der Porensplattgaskonzentration und damit des gebundenen Spaltgases auf Werte, die erheblich über denen des Maximums bei 30 MWd/kgM liegen. Der Kurvenverlauf bei einer mittleren Bestrahlungstemperatur von  $1500^{\circ}\text{C}$  ist ähnlich, wenn auch der break-away-Mechanismus, u.U. wegen fehlender Messpunkte, nicht so stark ausgeprägt ist. Oberhalb 60 MWd/kgM macht sich jedoch auch hier ein Anstieg der Konzentration des Porensplattgases bemerkbar. Für eine mittlere Brennstofftemperatur von  $1000^{\circ}\text{C}$  fehlen für die Darstellung der Abbrandabhängigkeit die Konzentrationswerte bei niedrigen und mittleren Abbränden.

Gegenwärtig kann mangels Messwerten noch nicht entschieden werden, ob die bei Abbränden um oder über 80 MWd/kgM festgestellten Gaskonzentrationen Sättigungswerte darstellen, oder ob sich das Spaltgasspeichervermögen des Brennstoffes weiter erhöht. Die bei den Mol 8 B 1- und Mol 8 C-Brennen gemessenen Freisetzungsraten bei hohen Abbränden deuten auf eine Erhöhung des Rückhaltevermögens. Jedoch sind die erreichten Abbrände noch zu niedrig, um eine endgültige Aussage machen zu können. Aus anderswo

festgestellten Freisetzungswerten bei hohen Abbränden lassen sich ebenfalls keine Aussagen gewinnen, da relativ geringe Änderungen der Konzentration des gebundenen Spaltgases bei hohen Abbränden und hohen Freisetzungswerten nur kleine Auswirkungen auf die prozentuale Freisetzung haben und damit im üblichen Streubereich dieser Werte liegen.

Bei Betrachtung der Abb. 21 bis 23 fällt auf, dass die Poren- und auch die Gitterspaltgaskonzentration im  $UO_2$  bei gleichem Abbrand fast stets über den Konzentrationen im Mischoxid liegen. Die Hauptursache hierfür besteht darin, dass im  $UO_2$  Spaltgasentstehung und -speicherung homogen erfolgen, während in dem mechanisch gemischten  $UO_2$ - $PuO_2$  die Spaltungen in der kälteren Brennstoffaussenzone, in der keine ausreichende Homogenisierung des Brennstoffes stattfand und die den grössten Teil des Spaltgases speichert, überwiegend in den  $PuO_2$ -Inseln stattfinden. Das hier entstandene Spaltgas wird dann auch zum überwiegenden Teil in diesen  $PuO_2$ -Bereichen gespeichert. Dadurch trägt das  $UO_2$  nur wenig zur Spaltgasspeicherung bei.

In den Abb. 24 bis 26 sind die Konzentrationen des gebundenen Spaltgases und seiner beiden Anteile in Abhängigkeit von der mittleren Brennstofftemperatur dargestellt. Parameter in diesen Abbildungen ist der Abbrand. In den Streubändern der Messwerte des Poren- und damit auch des gebundenen Spaltgases liegen die Werte hohen Abbrandes bei gleicher Temperatur meist über den Werten niedrigen Abbrandes. Bei der Abhängigkeit der Gitterspaltgaskonzentration von der mittleren Brennstofftemperatur ist ein Einfluss des Abbrandes auf die Lage der Messpunkte im Streubereich nicht erkennbar. Damit wird bestätigt, dass die Konzentration des Gitterspaltgases schon nach relativ niedrigen Abbränden ihren Sättigungswert erreicht.

Aus der Abhängigkeit der Konzentrationen der einzelnen Spaltgasanteile von der mittleren Brennstofftemperatur lassen sich die Konzentrationen in verschiedenen Temperaturbereichen des Brennstoffes abschätzen. Man erhält dann für Abbrände um 80 MWd/kgM die in der Tab. 28 angegebenen Spaltgaskonzentrationen.

Tab. 28: Konzentrationen des gebundenen Spaltgases im  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstoff nach 80 MWd/KgM Abbrand

Temperaturbereich °C	Gaskonzentration, Atom/Metallatom		
	Gitterspaltgas G	Porenspaltgas P	gebundenes Gas P+G
<1100	$3,2 \cdot 10^{-3}$	$11,5 \cdot 10^{-3}$	$14,7 \cdot 10^{-3}$
1100-1300	$1,5 \cdot 10^{-3}$	$7 \cdot 10^{-3}$	$8,5 \cdot 10^{-3}$
1300-1500	$5 \cdot 10^{-4}$	$1,7 \cdot 10^{-3}$	$2,2 \cdot 10^{-3}$
>1500	$1 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-4}$

In der Abb.27 ist die Konzentration des Gitterspaltgases nach Tab. 28 in Abhängigkeit von der Temperatur dargestellt. Gleichzeitig wurde der Versuch unternommen, diese Konzentration und ihre Temperaturabhängigkeit zu berechnen. Wie bereits erwähnt, besteht das Gitterspaltgas aus zwei Anteilen: dem in bestrahlungsbedingter Lösung befindlichen Gas und dem in kleinen intragranularen Blasen enthaltenen. Von diesen Blasen wird angenommen, dass sich ihre Grösse auf Grund des Gleichgewichtes zwischen Gasaufnahme durch Diffusion, sowohl thermische als auch bestrahlungsbedingte, und Gasverlust durch Wiederauflösung einstellt.

Zur Berechnung des gelösten Spaltgases wurde die Formel von Pati /25, 26/ benutzt:

$$c = f\dot{F}t - \frac{1}{b} \left[ (4\dot{F}n)^{2/3} (3v)^{1/3} D_g c (f\dot{F}t - c)^{1/3} - f\dot{F} \right]$$

c Konzentration des gelösten Spaltgases, Atome/cm<sup>3</sup>

f Zahl der Spaltgasatome pro Spaltung

$\dot{F}$  Spaltungsrate, Spaltungen/cm<sup>3</sup>·s

t Bestrahlungszeit, s

b Wiederauflösungsparameter, s<sup>-1</sup>

n Blasendichte, cm<sup>-3</sup>

v von der Waals' Konstante für Xe, cm<sup>3</sup>

$D_g$  Gasatomdiffusionskoeffizient, cm<sup>2</sup>/s.

Den Rechnungen wurden folgende Bedingungen und Zahlenwerte zugrunde gelegt:

$$\begin{aligned} f &= 0,3 \\ \dot{F} &= 3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1} \\ t &= 5 \cdot 10^7 \text{ s} \\ b &= 2 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1} \text{ in Anlehnung an /23, 25/} \\ v &= 8,5 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^3 \end{aligned}$$

Für den Gasatomdiffusionskoeffizienten  $D_g$  wurden die angekreuzten Werte der Abb. 28 benutzt. Diese Abbildung wurde der Arbeit von Ronchi und Matzke /27/ entnommen und stellt eine Zusammenfassung aller als zuverlässig zu betrachtenden Literaturdaten dar.

Für die Dichte der intragranularen Blasen wurden die experimentell bestimmten Werte nach /28/ zugrunde gelegt, deren Abhängigkeit von der Bestrahlungstemperatur in der Abb.29 dargestellt ist. Diese Blasen mit Durchmessern unter  $50 \text{ \AA}$  tragen mit ca.  $5 \cdot 10^{-4}$  Gasatomen pro Metallatom zur Konzentration des Gitterspaltgases bei.

Abb. 27 zeigt, dass die Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Gitterspaltgaskonzentrationen bis zu einer Temperatur von  $1500^\circ\text{C}$  relativ gut ist. Die beste Übereinstimmung wird erreicht, wenn für die Gasatomdiffusionskoeffizienten oberhalb ca.  $1150^\circ\text{C}$  die oberen Grenzwerte des in Abb.28 eingezeichneten Streubandes 2 verwendet werden, die die Wechselwirkung der diffundierenden Gasatome mit Gitterdefekten und anderen Gasatomen berücksichtigen. Bei Temperaturen über  $1500^\circ\text{C}$  tritt eine beträchtliche Abweichung auf, weil Cornell et al. /28/ bis  $1580^\circ\text{C}$  Blasen beobachteten, deren Grösse und Dichte eine Konzentration von ca.  $5 \cdot 10^{-4}$  Atomen/Atom bedeuten. Bei höheren Temperaturen jedoch sollte die Konzentration dieses Spaltgasanteiles infolge zunehmender Blasenbeweglichkeit abnehmen, wie der aus den eigenen Messungen ermittelte Wert von  $1 \cdot 10^{-4}$  Gasatome/Metallatome zeigt.

Einen qualitativen Hinweis darauf, dass thermische Diffusion eine Rolle beim Spaltgastransport spielt, geben die Xe/Kr-Verhältnisse der drei Spaltgasanteile (Tab. 29). Abgesehen von den durch Neutronenspektrum und Spaltstoff bedingten Unterschiede dieser Verhältnisse bei den einzelnen Experimenten, zeigen alle Ergebnisse, dass das Xe/Kr-Verhältnis des freigesetzten Spaltgases nahezu dem des erzeugten entspricht. Das

	E x p e r i m e n t					
	FR 2-1,2,3	FR 2-4a	FR 2-4b,5b	Mo1 7A	DFR-304	DFR-350
Brennstoff						
UO <sub>2</sub> -Gehalt, Gew.-%	100	85	80	80	80	80
PuO <sub>2</sub> -Gehalt, "	-	15	20,35	20	20	20
U-Anreicherung, %	≤ 12,5	0,7	0,7	79	93	86
Neutronenfluss	therm	therm.	therm.	epitherm.	schnell	schnell
freies Spaltgas F	7,3	18,5	17,3	7,0	6,3	6,7
Porenspaltgas P	6,8	17,1	16,3	6,3	6,4	6,3
Gitterspaltgas G	8,6	21,6	22,9	9,7	8,7	7,1
gebundenes Spaltgas P+G	7,4	18,5	17,6	7,2	7,1	6,7
gesamtes Spaltgas F+P+G	7,4	18,5	17,5	7,0	6,4	6,7

Tab. 29: Xe/Kr-Verhältnisse der verschiedenen Spaltgasanteile

gleiche gilt für das Xe/Kr-Verhältnis des gebundenen Spaltgases. Lediglich bei höheren mittleren Brennstofftemperaturen wurde im gebundenen Spaltgas etwas mehr Xe gefunden als es dem Erzeugungsverhältnis entspricht. Das bedeutet, dass sich der höhere thermische Diffusionskoeffizient der kleineren Kr-Atome bemerkbar macht. Noch auffälliger wird diese Tatsache, wenn man die Xe/Kr-Verhältnisse des Poren- und des Gitterspaltgases in Tab. 29 betrachtet. Das durch Diffusionstransport ausgeschiedene Porenspaltgas hat in allen Fällen ein deutlich niedrigeres Xe/Kr-Verhältnis als das Gitterspaltgas.

#### 4.3 Einfluss des gebundenen Spaltgases auf die mechanische Wechselwirkung Brennstoff-Hülle

Das Schwellen des Brennstoffs durch Spaltgasblasenbildung führt beim stationären Reaktorbetrieb und beim Vorhandensein innerer Hohlräume im Brennstoff infolge der hohen Kriechgeschwindigkeit des Oxids nur zu einem begrenzten Kontaktdruck zwischen Brennstoff und Hülle. Nach SATURN-Rechnungen /29/ ist unter den stationären Betriebsbedingungen eines Schnellen Brütters bei Stableistungen über 400 W/cm nur mit Kontaktdrücken von weniger als 40 kp/cm<sup>2</sup> zu rechnen. Auch ein in-pile Experiment zur direkten Messung des Schwelldruckes ergab, dass der Schwelldruck bei einer Stableistung von 500 W/cm unterhalb 25 kp/cm<sup>2</sup> lag /30/. Drücke dieser Größenordnung können noch nicht zu einer plastischen Aufweitung einer 0,35 bis 0,4 mm starken Edelhüllhülle im interessierenden Temperaturbereich führen.

Entscheidend für die beobachteten plastischen Hüllaufweitungen ist die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle bei Leistungs- und/oder Hülltemperaturänderungen infolge unterschiedlicher thermischer Ausdehnungen des Brennstoffes und der Hülle /31, 32/. Voraussetzung für die wiederholte Wirksamkeit dieses Mechanismus ist das Blockieren oder Ausheilen der bei den Temperaturänderungen im Brennstoff entstandenen Risse sowie das Schliessen eines evtl. entstandenen Spaltes. Unter den möglichen Mechanismen, die das entstandene Leervolumen teilweise stabilisieren oder vernichten können /33/, spielt das Spaltgas-schwellen vermutlich eine wesentliche Rolle.

Bei den hochabgebrannten Brennstäben der Versuchsgruppen FR 2-4b und FR 2-5b lässt sich tatsächlich ein Zusammenhang zwischen dem Gehalt an Porensplattgas und der Hüllaufweitung erkennen (Abb.30 und 31). In beiden Versuchsgruppen steigt mit zunehmender Hüllaufweitung die Konzentration des Porensplattgases an. Die unterschiedlichen Konzentrationen in beiden Versuchsgruppen sind durch die unterschiedlichen Brennstofftemperaturen bedingt, die bei der Versuchsgruppe FR 2-5b höher waren. Ein systematischer Zusammenhang zwischen Gittersplattgaskonzentration und Hüllaufweitung ist nicht erkennbar.

Das Splattgasswellen kann das Schliessen von Rissen und Spalten bewirken, weil der Brennstoff an deren Oberflächen unter keiner Druckspannung steht und deshalb die hohe freie Schwellrate des Oxids in diesen Bereichen wirksam werden kann. Zur Druckabhängigkeit der Gasswellrate können keine exakten Angaben gemacht werden, da keine experimentell bestimmten Werte bekannt sind, jedoch ist zu erwarten, dass sie bei Temperaturen oberhalb ca.  $1100^{\circ}\text{C}$  erheblich ist. So berechnete Kämpf /34/ mit dem GRASS-Code für eine Brennstofftemperatur von  $1490^{\circ}\text{C}$  nach 3 Atom-% Abbrand bei einer Stabileistung von 200 W/cm folgende Druckabhängigkeit:

<u>Druck (at.)</u>	<u>Schwellrate (%/ % Abbrand)</u>
1	20
10	0,8
100	0,003

Wenn diese Werte -vermutlich bedingt dadurch, dass der GRASS-Code nur Blasenwanderung als Gastransportmechanismus berücksichtigt- auch nicht ganz realistisch erscheinen, so geben sie doch einen Hinweis, mit welcher Druckabhängigkeit u.U. zu rechnen ist, so dass Risse und Spalte durch Blasenreubildung und -vergrößerung in relativ kurzer Zeit verschwinden können. Bei mehrmaliger Wiederholung dieses Vorganges kommt es dann zu einem merklichen Anstieg der Porensplattgaskonzentration, während die Konzentration des Gittersplattgases davon praktisch unberührt bleibt, da sich nach jeder abgeschlossenen Blasenreubildung bei den betrachteten hohen Abbränden rasch wieder die Sättigungskonzentration einstellt.



Einen Beitrag zur Erhöhung des Gehaltes an Porensplattgas können auch ausgeheilte Risse leisten, die nicht mit der freien Oberfläche in Verbindung stehen und Spaltgas aufgenommen haben. Die Menge dieses eingeschlossenen Spaltgases ist jedoch klein und kann die Erhöhung der Porensplattgaskonzentration allein nicht erklären, da der Gasdruck in diesen Rissen im Vergleich zu dem in Spaltgasblasen sehr gering ist. Rechnet man den zusätzlichen Porensplattgasgehalt bei Hüllaufweitung auf das durch die Aufweitung neu entstandene Leervolumen um, so kommt man bei den jeweiligen Betriebstemperaturen im äusseren Brennstoffring zu Gasdrücken von ca.  $400 \text{ kp/cm}^2$  bei den FR 2-4b-Stäben und ca.  $270 \text{ kp/cm}^2$  bei den FR 2-5b-Stäben. Derartige Drücke können nur in Spaltgasblasen von  $\leq 0,1 \text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser herrschen.

#### 4.4 Zusammenfassung

Die experimentell bestimmten Spaltgasmengen deuten daraufhin, dass pro Spaltung 0,3 bis 0,32 Spaltgasatome entstehen, und zwar sowohl im thermischen als auch im schnellen Neutronenfluss. Während sich für Bestrahlungen im thermischen Neutronenfluss diese hohe Ausbeute durch Umwandlung des instabilen Xe-135 in das stabile Xe-136 infolge  $(n,\gamma)$ -Reaktion erklären lässt, ist sie für Bestrahlungen im schnellen Fluss auf Grund bekannter Daten nicht erklärbar.

Die Spaltgasfreisetzungsrates, aufgetragen über den Abbrand, ist nicht konstant. Sie wird beeinflusst durch den sogenannten break-away-Mechanismus, d.h. das Aufreissen von dicht mit Spaltgasblasen belegten Korngrenzen. Dieser Effekt tritt in den einzelnen Temperaturzonen des Brennstoffes bei verschiedenen Abbränden auf. Er verschiebt sich mit abnehmender Temperatur zu höheren Abbränden. Nach einer break-away-Freisetzung ist eine teilweise "Ausheilung" der aufgerissenen Korngrenzen wahrscheinlich.

Auf Grund der gemessenen Daten ist unter den Betriebsbedingungen Schneller Brüter bei mittleren und hohen Abbränden mit Freisetzungen von 90% und darüber zu rechnen. Für eine genauere Darstellung der Spaltgasfreisetzung und -rückhaltung wird empfohlen, folgende empirisch ermittelte Formel für die Freisetzungsrates zu benutzen:

$$\text{FR} = \begin{cases} 0 & \text{für } A \leq A_G \\ \left(\frac{A-A_G}{A_G}\right)^6 & \text{für } nA_G \geq A > A_G \\ 1 & \text{für } A > nA_G \end{cases}$$

A Abbrand

$A_G$  Grenzabbrand, unter dem  $\text{FR} = 0$  gesetzt wird

n Konstante, bestimmt das Abbrandintervall, in dem FR veränderlich ist.

Eine gute Übereinstimmung mit experimentell gefundenen Spaltgasdaten ergab sich bei folgender Einteilung der Temperaturzonen und Wahl der Konstanten:

Temperaturzone °C	$A_G$ , MWd/kgM	n
< 1100	25	2,2
1100 - 1500	12,5	2,4
> 1500	1	2,4

Die Spaltgasrückhaltung in der nicht restrukturierten Gefügezone ist beträchtlich. Es treten Gaskonzentrationen von  $1,5 \cdot 10^{-2}$  Gasatomen pro Metallatom auf. 20 bis 25% dieses Gases (Gitterspaltgas) befindet sich in strahlungsbedingter Lösung oder in sehr kleinen intragranularen Blasen (Durchmesser  $< 100 \text{ \AA}$ ). 75 bis 80% des Gases ist in grösseren Spaltgasblasen enthalten (Porenspaltgas). Mit steigender Brennstofftemperatur nimmt die Konzentration des gebundenen Spaltgases ab. Bei Temperaturen über  $1500^\circ\text{C}$  ist nur noch mit ca.  $2 \cdot 10^{-4}$  Gasatomen/Metallatom zu rechnen.

Es besteht ein Zusammenhang zwischen Porenspaltgaskonzentration und Hüllaufweitungen von Brennstäben in der Weise, dass bei grösserer Hüllaufweitung höhere Gehalte an Porenspaltgas gefunden werden.

Die Brennstoffparameter Ausgangs-O/M-Verhältnis und Ausgangsdichte der Pellets beeinflussen im untersuchten Parameterbereich das Spaltgasverhal-

ten nur indirekt über die Wärmeleitfähigkeit und das Nachsinterverhalten, das sich auf die Breite des Brennstoff/Hülle-Spaltes auswirkt.

Die hier gemachten Aussagen zum Spaltgasverhalten beziehen sich im wesentlichen auf Mischoxid mit mikroskopisch inhomogener Pu-Verteilung. Inwieweit die Pu-Verteilung Einfluss auf das Spaltgasverhalten hat, ist schwer abzuschätzen. Die wenigen Ergebnisse an  $UO_2$ -Bestrahlungen lassen vermuten, dass eine homogene Spaltstoffverteilung zu einer etwas höheren Konzentration des gebundenen Spaltgases führt.

#### Literatur

- /1/ D.Freund  
Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der Oxidbrennstabproben im FR 2  
KFK 1376 (1972)
- /2/ D.Geithoff, D.Freund, K.Kummerer  
Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der  $UO_2$ -Brennstabprüflinge in der FR 2-Kapsel-Versuchsgruppe 3  
KFK 1239 (1971)
- /3/ D.Freund et al.  
Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstab-Bestrahlungsexperimente der FR 2-Kapsel-Versuchsgruppe 4a  
KFK 1523 (1973)
- /4/ W.Dienst et al.  
Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstäben der Versuchsgruppe FR 2-4a  
KFK 1727 (1973)
- /5/ P.Weimar, Th.Dippel, D.Freund  
Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der  $UO_2$ / $PuO_2$ -Brennstab-Bestrahlungsexperimente der FR 2-Kapsel-Versuchsgruppe 4b  
KFK 1952 (1974)
- /6/ K.Kummerer, D.Geithoff, P.Weimar  
Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung des  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstab-Bündels Mol-7A  
KFK 1522 (1972)
- /7/ W.Dienst et al.  
 $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstabbündel-Bestrahlung Mol 7A. Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben  
KFK 1736 (1973)

- /8/ P.Dünner, C.Heyne  
Bestrahlungsexperiment DFR-304. Stabspezifikation, Bestrahlungsablauf und Ergebnisse der Nachuntersuchungen  
Interatom, Technischer Bericht ITB 72,55 (1972)
- /9/ K.Ehrlich et al.  
UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstab-Bestrahlung im Trefoil-Einsatz DFR-304.  
Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben  
KFK 1864 (1974)
- /10/ D.Geithoff, K.Kummerer  
Auslegung, Bestrahlung und zerstörungsfreie Nachuntersuchung des UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstab-Bündels DFR-350  
KFK 1377 (1972)
- /11/ K.Ehrlich et al.  
UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstabbündel-Bestrahlung DFR-350. Auswertung der Versuchsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben  
KFK 1960 (1974)
- /12/ H.Elbel  
Analyse des Bestrahlungsversuches DFR-350 mit Hilfe des Rechenprogrammes SATURN-1a  
in: KFK 1273/2 (1973) 112-2
- /13/ D.Geithoff, W.Ernst  
Bestrahlungsablauf des GfK-Trefoils DFR-435  
interner Bericht
- /14/ D.Haas  
RAPSODIE two mixed oxide fuel subassemblies irradiation report  
BN 7402-05 (1974)
- /15/ H.Sebening  
unveröffentlicht
- /16/ M.Lammer, O.J.Eder  
Discussion of Fission Product Yield Evaluation Methods and a New Evaluation  
IAEA Symp. on Applications of Nuclear Data in Science and Technology, Paris, 1973
- /17/ E.A.C.Crouch  
Fission Product Chain Yields from Experiments in Thermal Reactors  
IAEA Symp. on Applications of Nuclear Data in Science and Technology, Paris, 1973
- /18/ M.E.Meek, B.F.Rider  
Compilation of Fission Product Yields  
NEDO-12154 (1972)

- /19/ K.F.Flynn, L.E.Glendenin  
Yields of Fission Products for Several Fissionable Nuclides at  
Various Incident Neutron Energies  
ANL-7749 (1970)
- /20/ Hj.Matzke, C.Ronchi  
Model Calculations of Fission Gas Behavior and Swelling  
during Power Rise  
unveröffentlicht
- /21/ G.Ondracek, B.Schulz  
Die gemessene Porositätsverteilung bestrahlter oxidischer Brenn-  
stoffe und ihr Einfluss auf das Temperaturprofil  
Reaktortagung Berlin, 1974
- /22/ W.Dienst  
persönliche Mitteilung
- /23/ D.Stahl et al.  
Fission-gas Behavior Studies  
ANL-RDP-12 (1972) 6.27
- /24/ B.R.T. Frost  
Studies of Irradiation Effects in Ceramic Fuels at Harwell  
Ceramic Nuclear Fuels, Intern.Symp. Washington, 1969
- /25/ S.R. Pati et al.  
Re-Resolution-Controlled Fission-Gas Behavior in UO<sub>2</sub> Irradiated  
in a Fast Flux  
J.Nucl.Mat. 50 (1974) 227
- /26/ S.R.Pati  
Irradiation-Induced Re-Resolution of Fission Gases in Oxide Fuels  
Trans.Am.Nucl.Soc. 14 (1971) 580
- /27/ C.Ronchi, Hj.Matzke  
Calculations on the In-pile Behaviour of Fission Gas in Oxide Fuels  
EUR 4877e (1972)
- /28/ R.M.Cornell et al.  
The Role of Bubbles in Fission Gas Release from UO<sub>2</sub>  
J.Nucl.Mat. 30 (1969) 170
- /29/ H.Kämpf, H.Elbel, F.Depisch  
Die Behandlung des mechanischen und thermischen Verhaltens von  
Brennstäben in SATURN 1  
KFK 1477 (1971)
- /30/ D.Brucklacher, W.Dienst  
Experimentelle Ergebnisse zur mechanischen Wechselwirkung zwischen  
Oxidbrennstoff und Hülle  
in: KFK 1273/2 (1973), 112-55

- /31/ D.P.Hines, S.Oldberg, E.L.Zebroski  
Non-steady-state Factors in Models for Swelling of Oxide Fuels  
Nucl.Appl.Technol. 9 (1970) 338
- /32/ D.Brucklacher, W.Dienst  
Experimental Results on the Mechanical Interaction between Oxide  
Fuel and Cladding  
IAEA Symp. on Fast Reactor Fuels and Fuel Elements,  
Brüssel, Juli 1973
- /33/ D.Brucklacher, W.Dienst, H.Zimmermann  
Die mechanische Belastung der Hülle durch den Brennstoff  
in: KFK 1999 (1974)
- /34/ H.Kämpf  
Theoretische Abhängigkeiten des Gasschwellens und der Gasfreisetzung  
von Betriebsparametern  
Reaktortagung Berlin, 1974

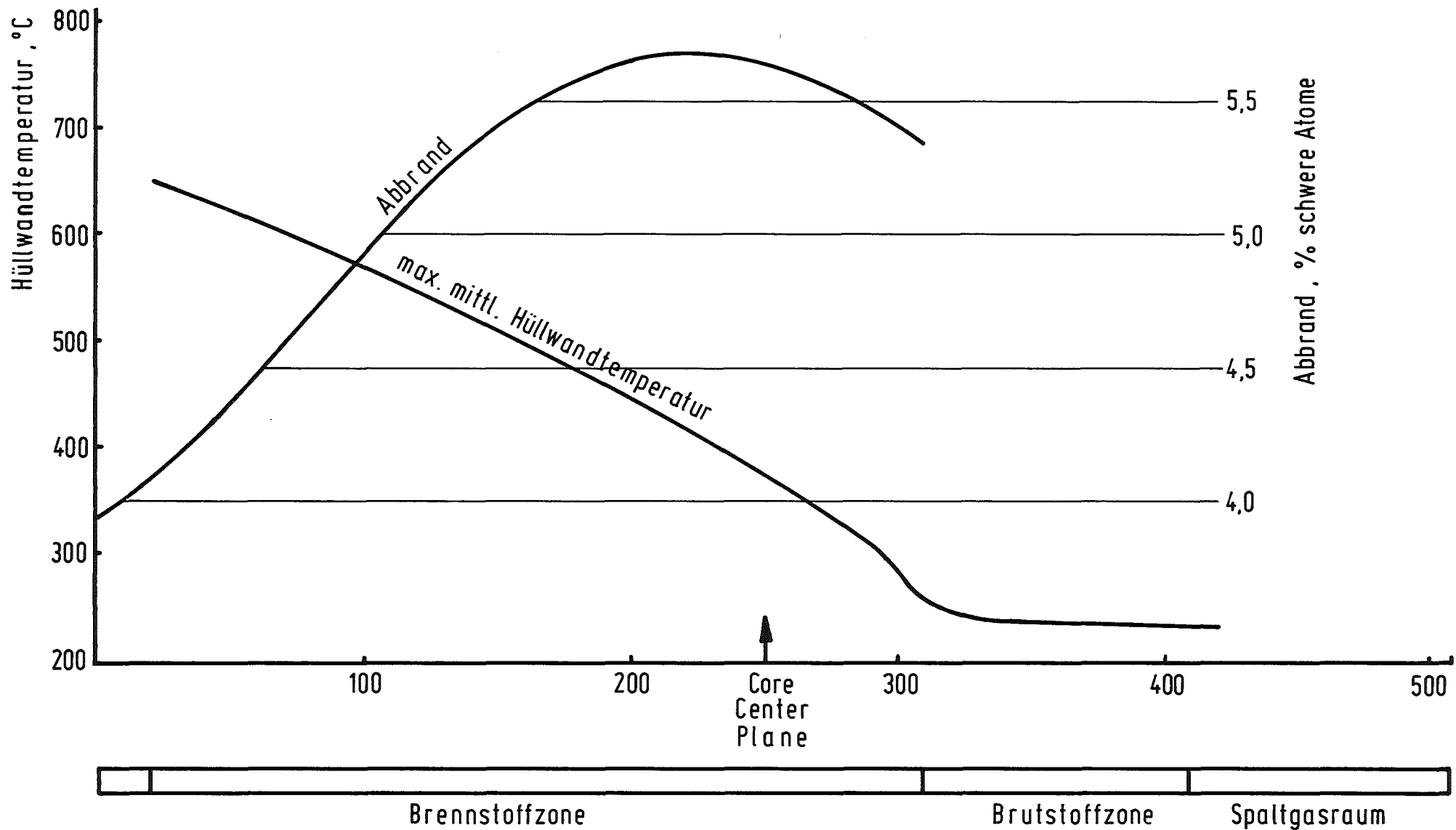


Abb. 1: DFR - 350 - axialer Abbrand - und Hülltemperaturverlauf nach ( 10 )

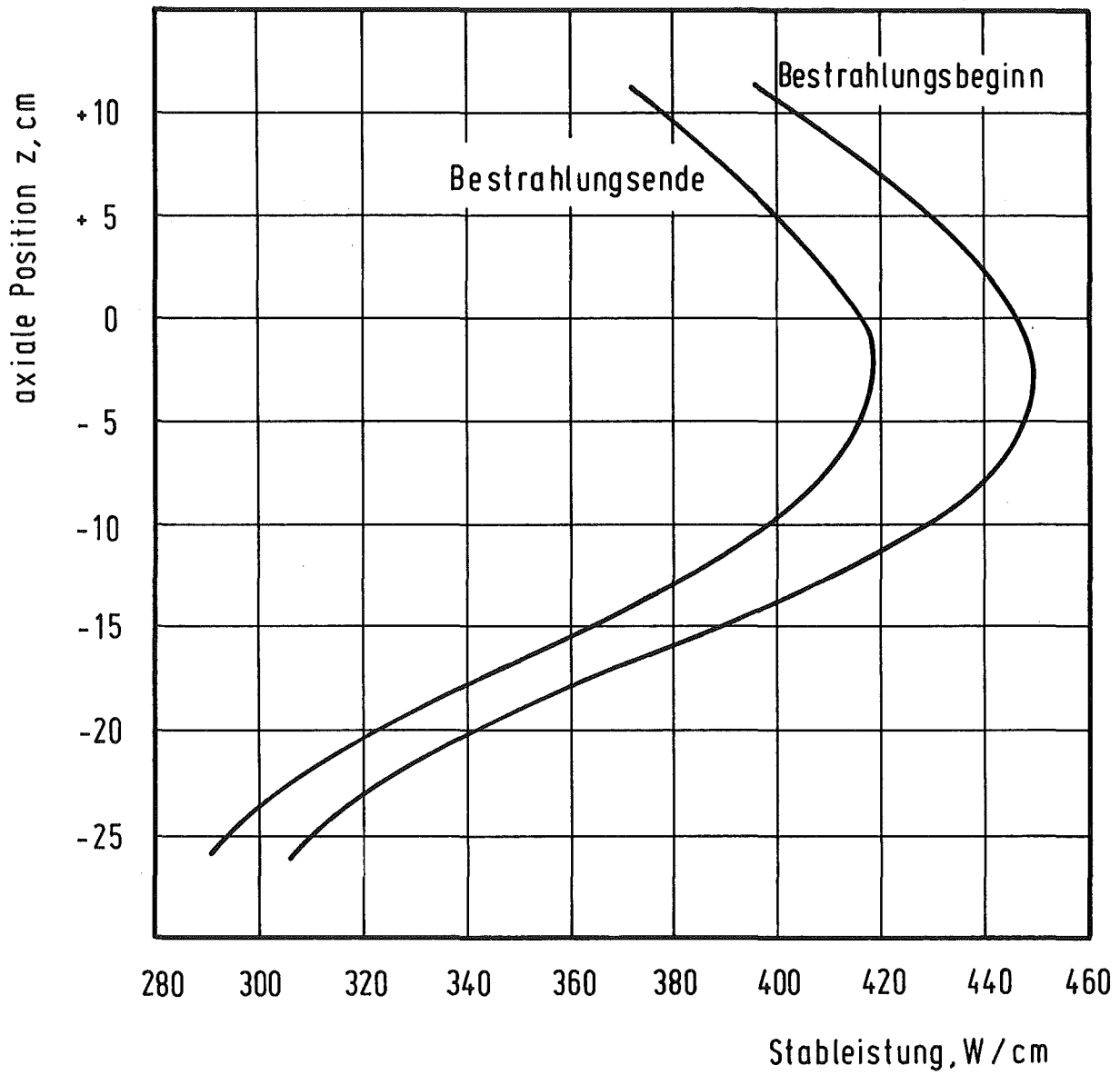


Abb. 2: DFR-350 - axialer Verlauf der Stableistung nach (10)



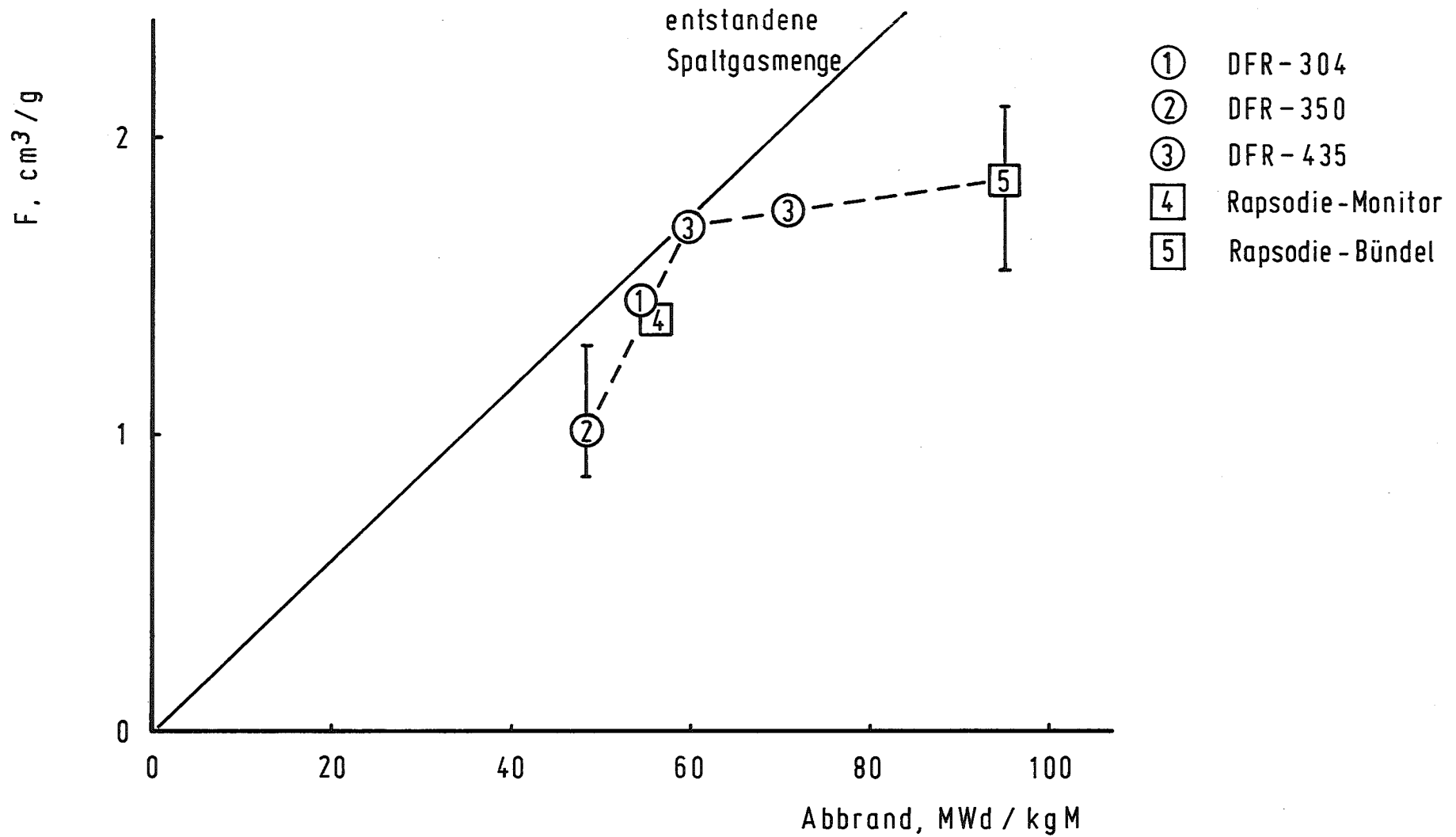


Abb. 18: Spaltgasfreisetzungswerte der DFR- und Rapsodie-Stäbe in Abhängigkeit vom Abbrand

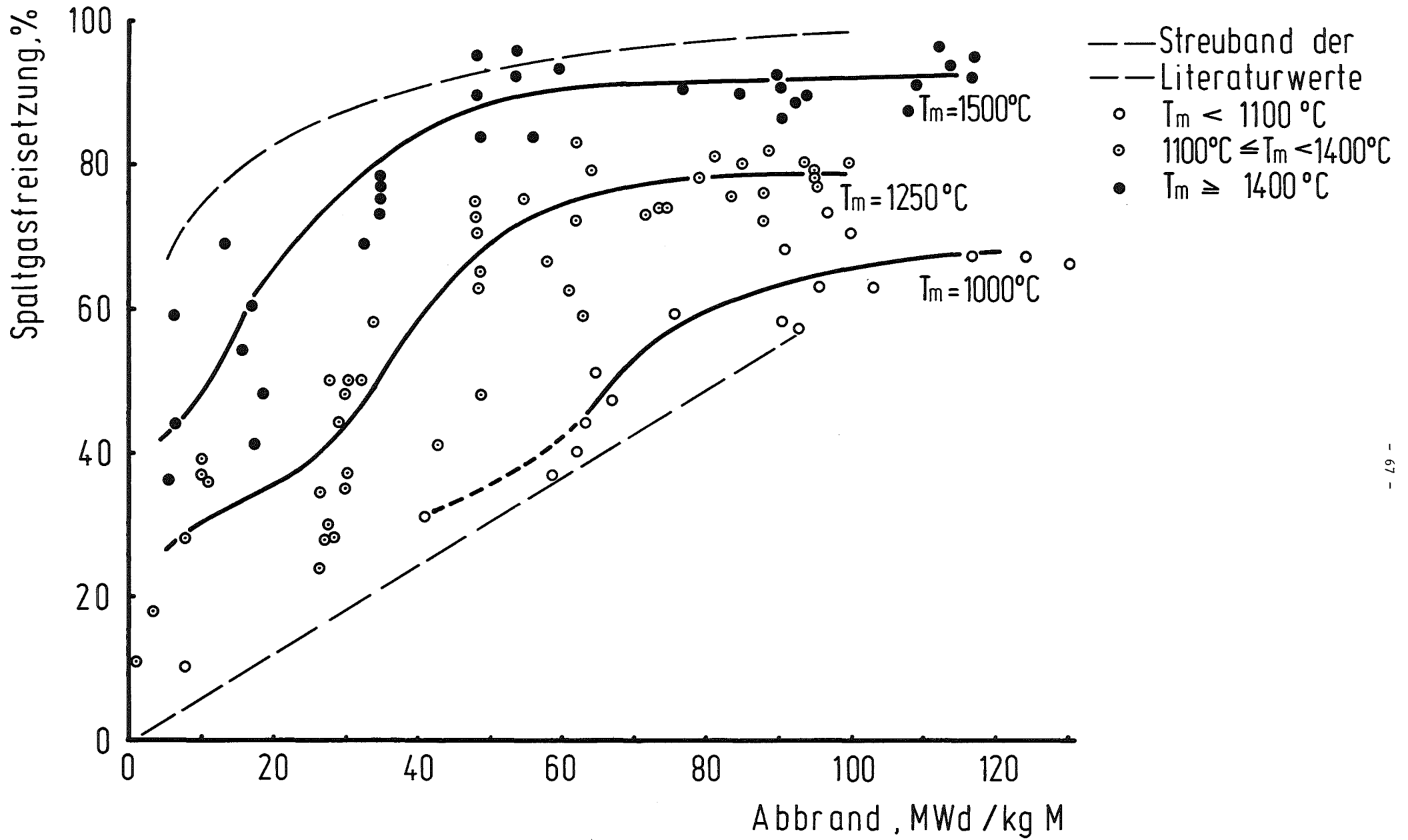


Abb. 17: Spaltgasfreisetzung in Abhängigkeit vom Abbrand

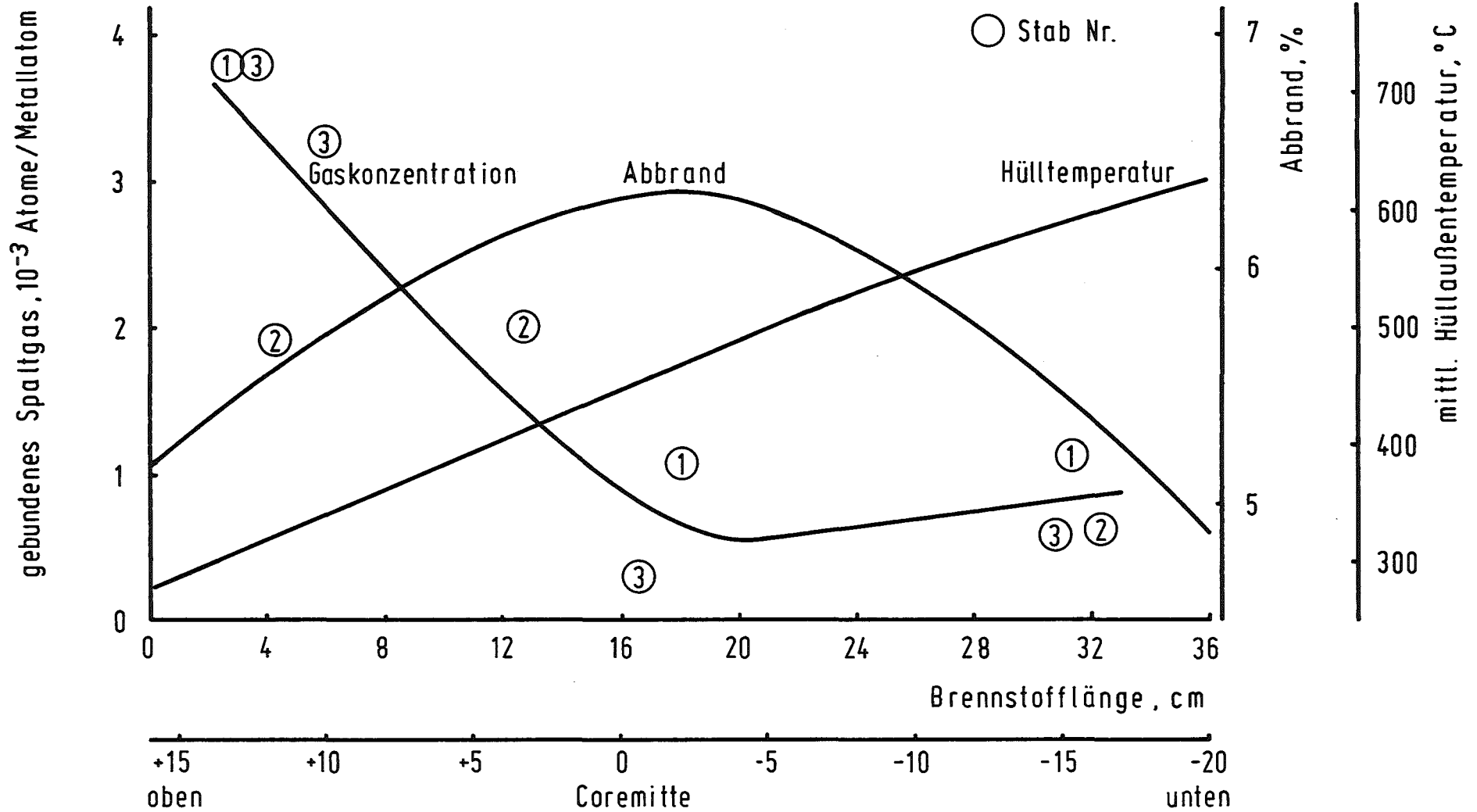


Abb. 16: Konzentration des gebundenen Spaltgases der DFR-304 - Stäbe in verschiedenen axialen Positionen mit Abbrand - und Hülltemperaturverlauf

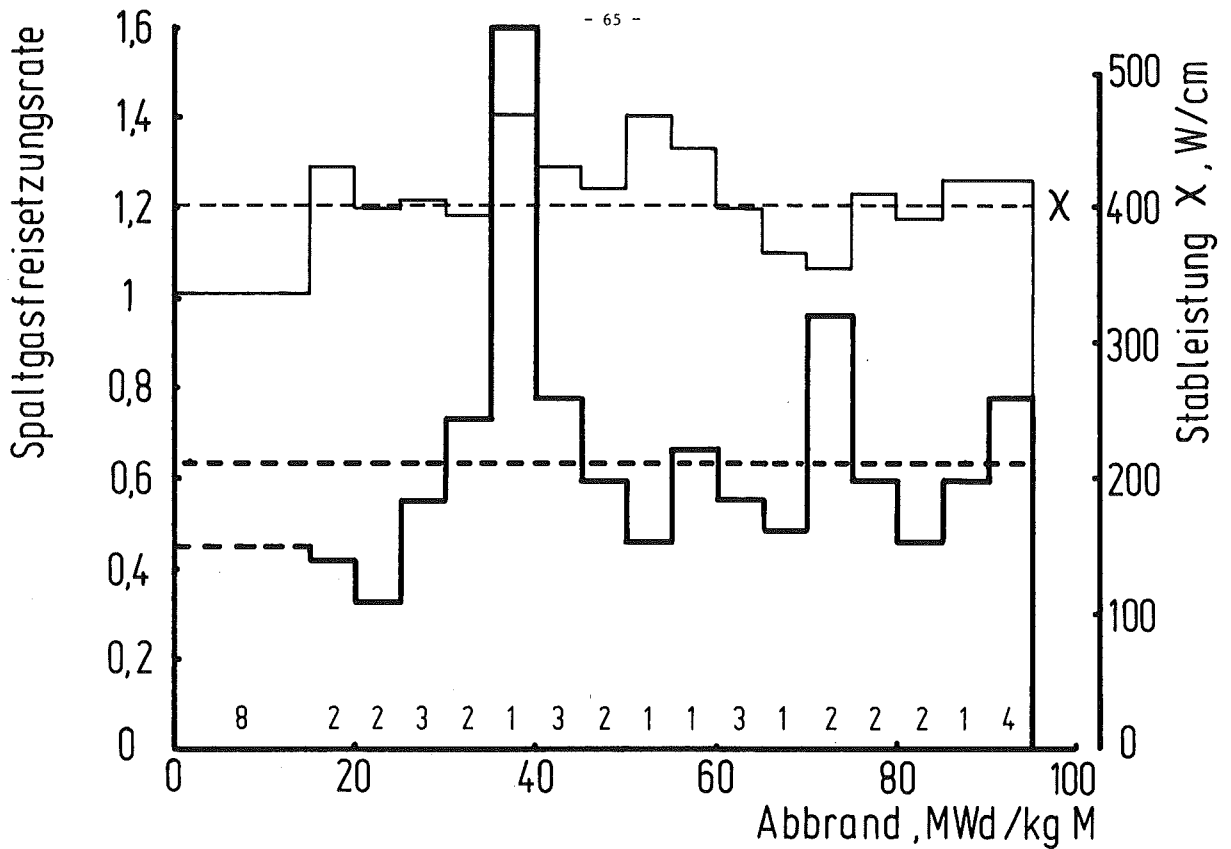


Abb. 14: Spaltgasfreisetzungsrates und mittlere Stableistung des Stabes Mol 8C7 in Abhängigkeit vom Abbrand

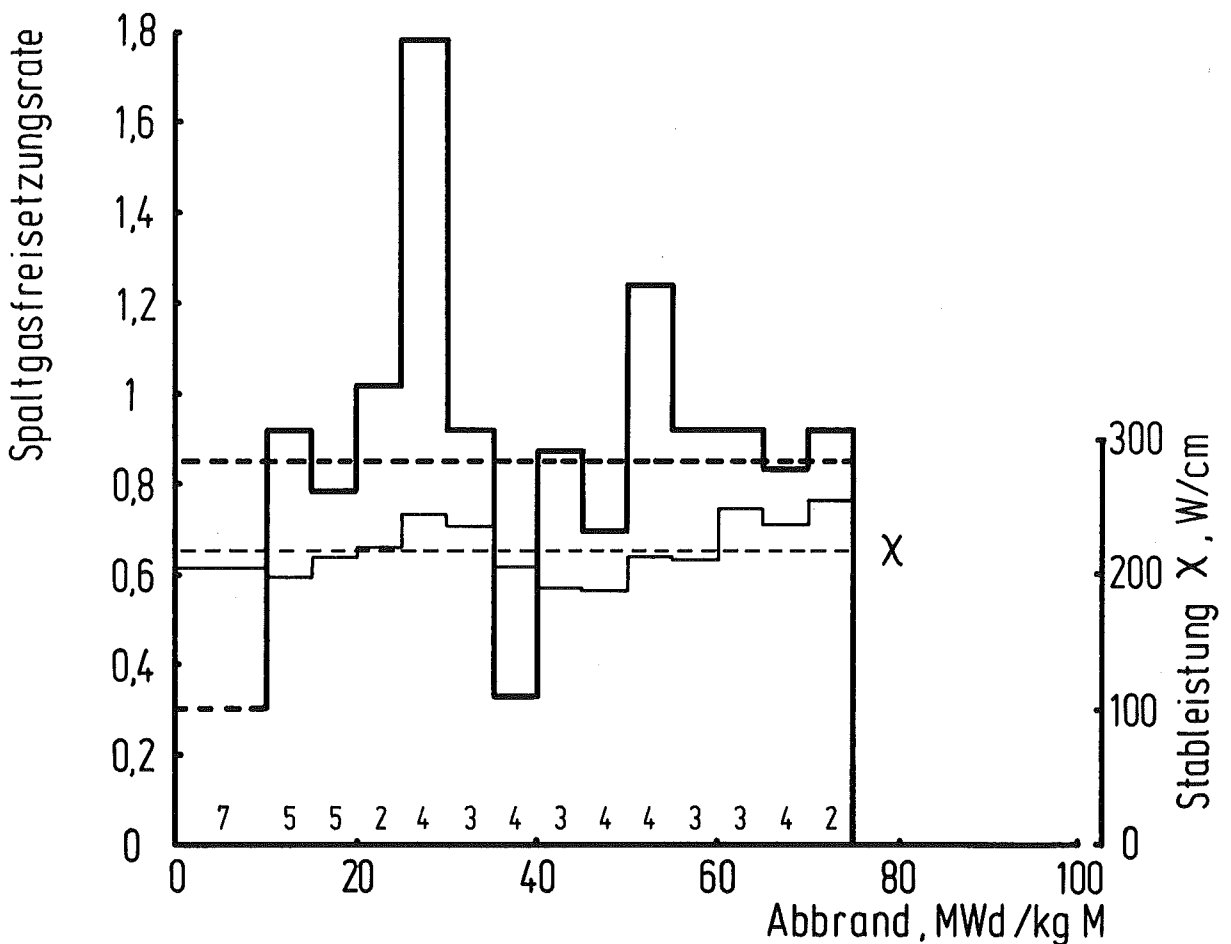


Abb. 15: Spaltgasfreisetzungsrates und mittlere Stableistung des Stabes Mol 8C8 in Abhängigkeit vom Abbrand

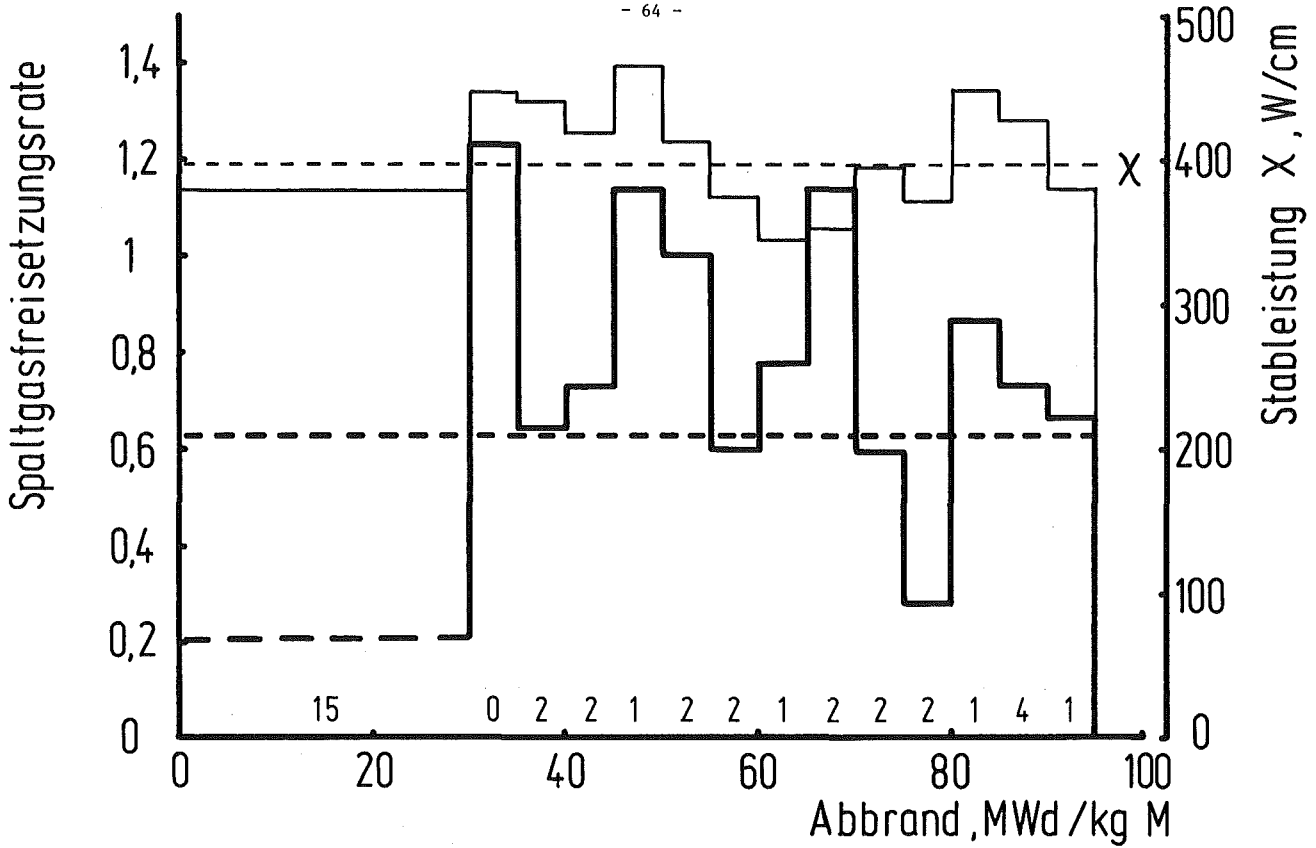


Abb. 12: Spaltgasfreisetzungsrates und mittlere Stableistung des Stabes Mol 8C5 in Abhängigkeit vom Abbrand

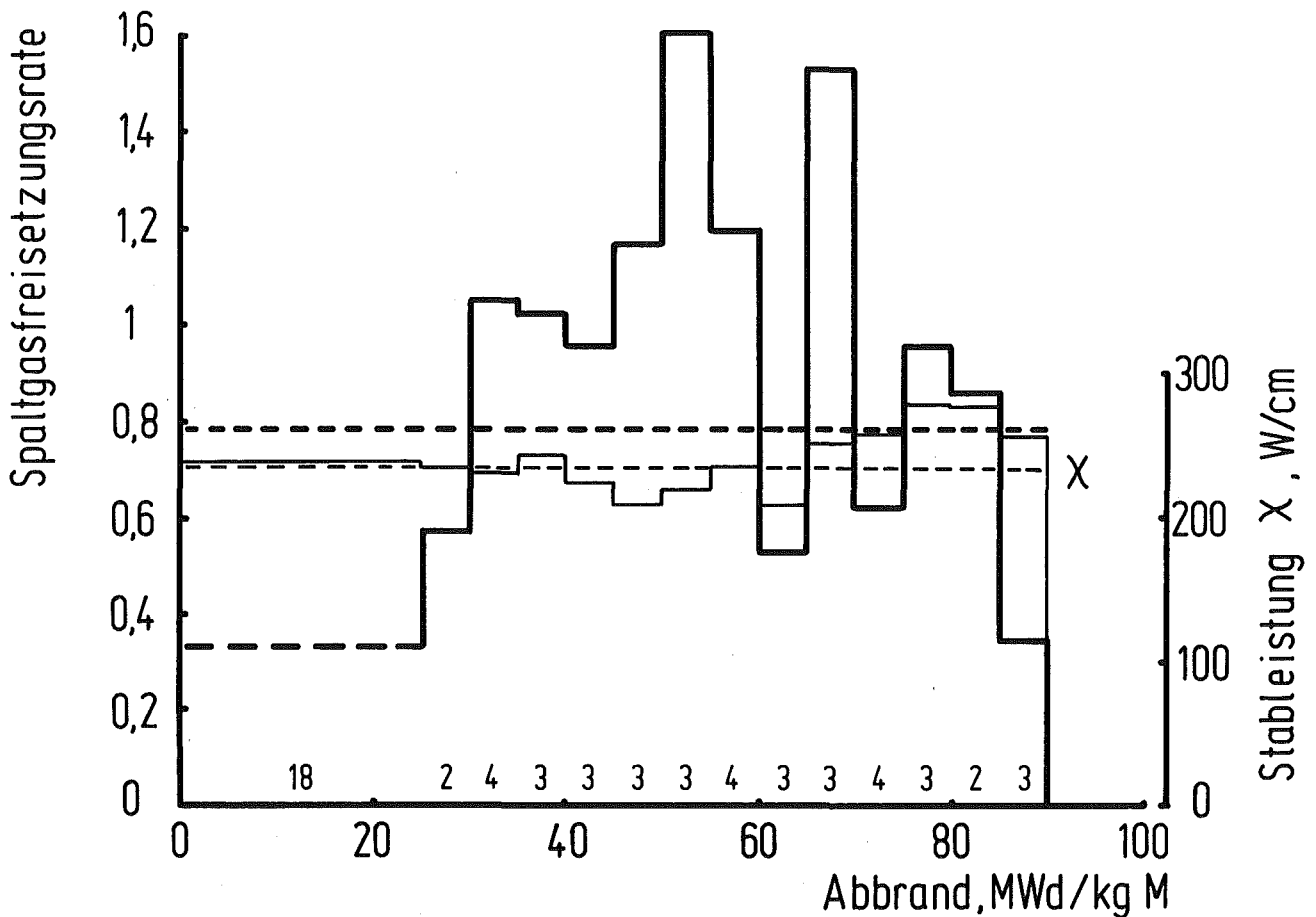


Abb. 13: Spaltgasfreisetzungsrates und mittlere Stableistung des Stabes Mol 8C6 in Abhängigkeit vom Abbrand

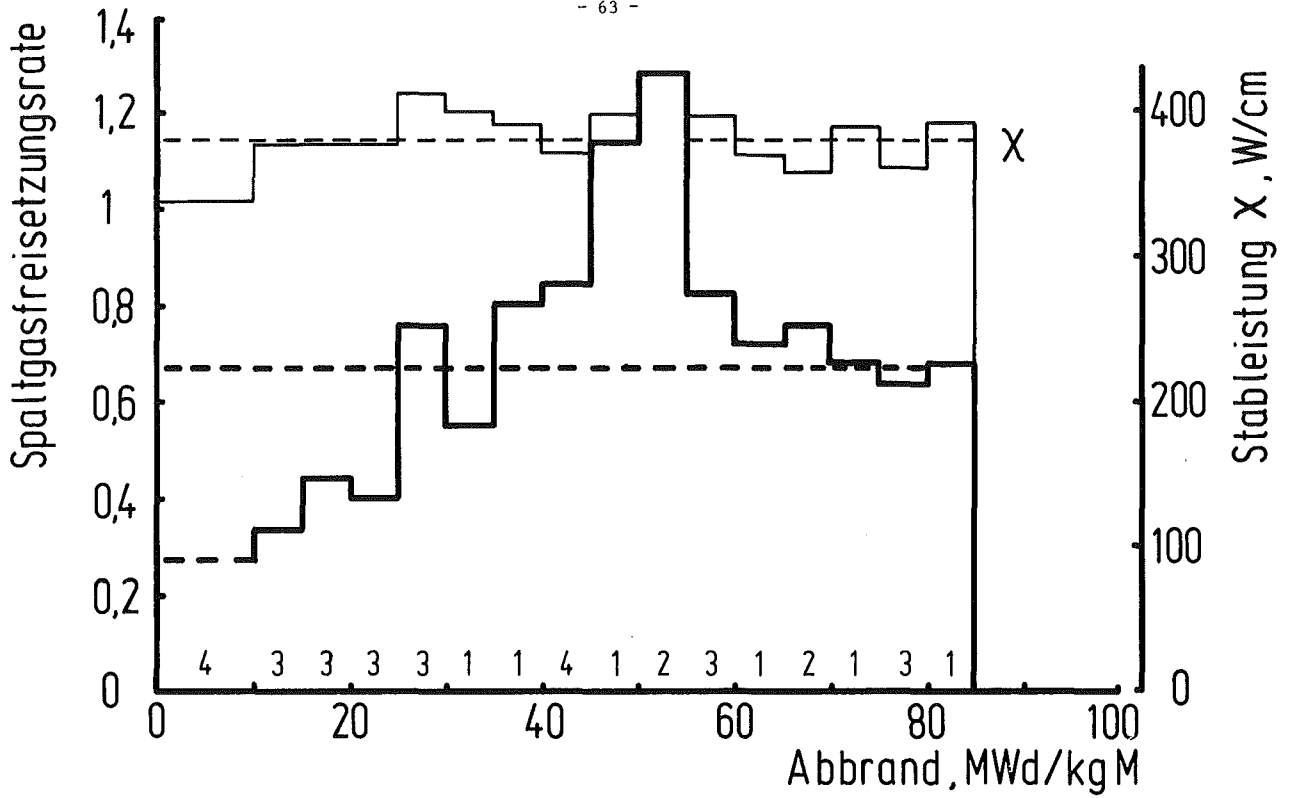


Abb. 10: Spaltgasfreisetzungsrates und mittlere Stableistung des Stabes Mol 8C3 in Abhängigkeit vom Abbrand

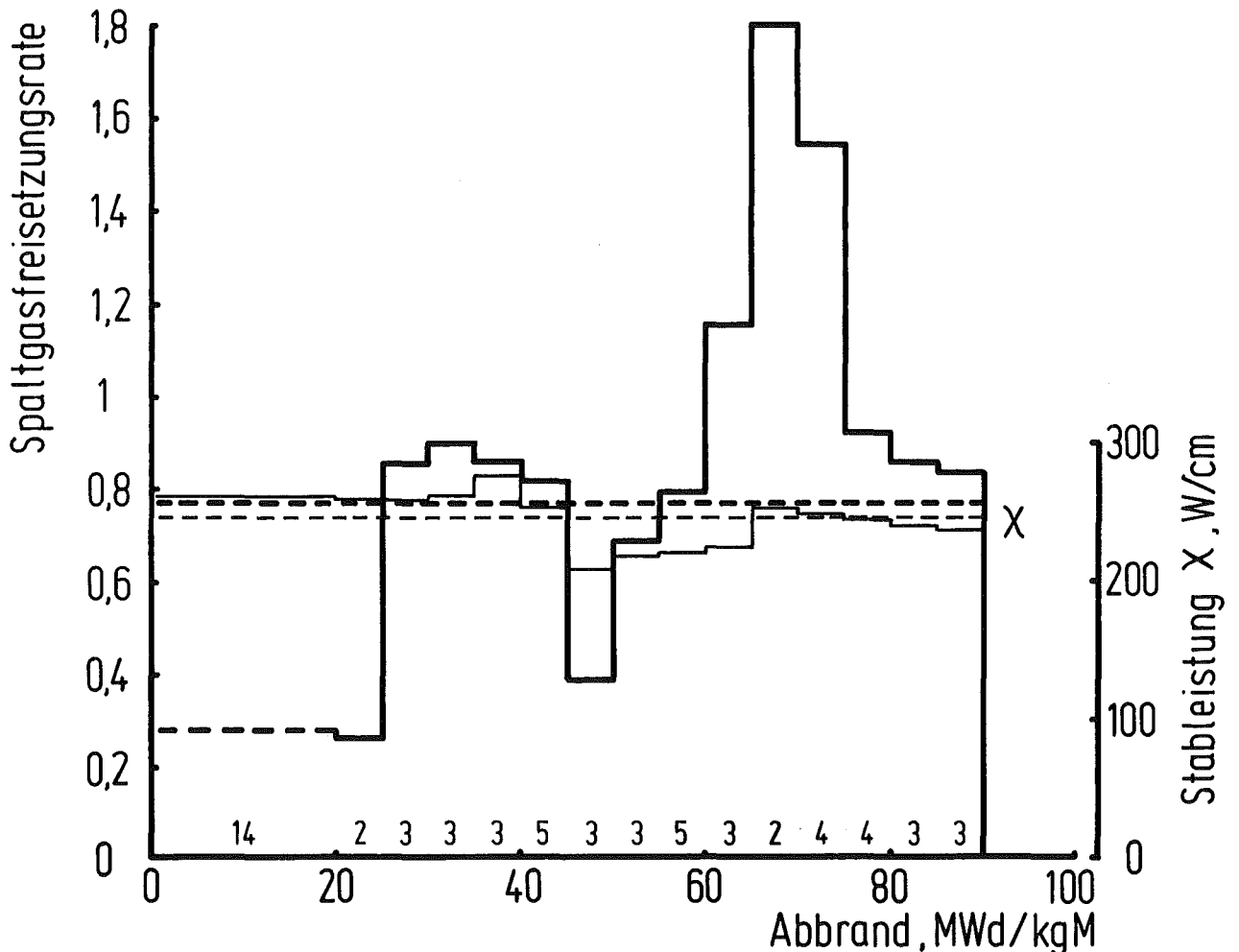


Abb. 11: Spaltgasfreisetzungsrates und mittlere Stableistung des Stabes Mol 8C4 in Abhängigkeit vom Abbrand

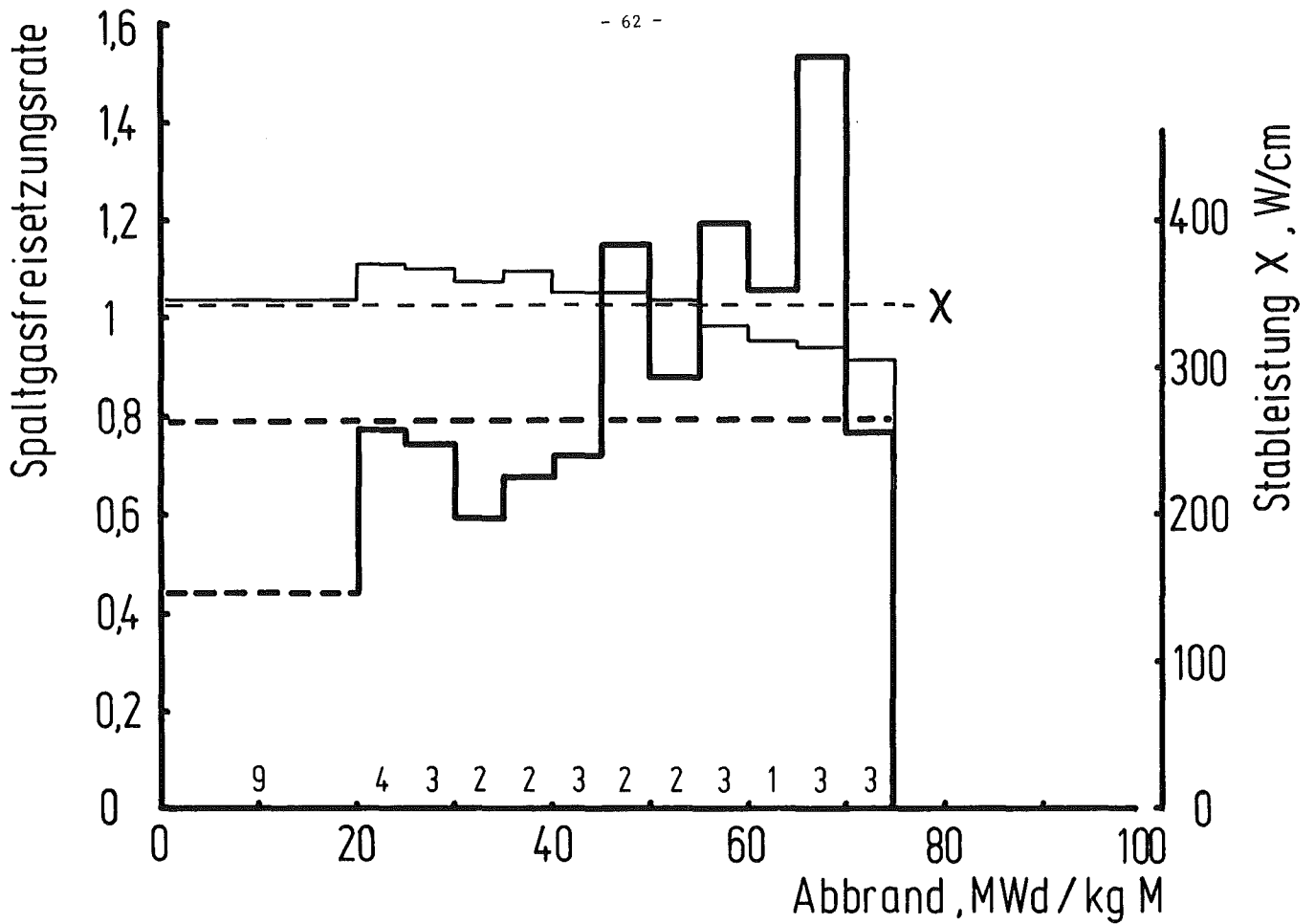


Abb. 8: Spaltgasfreisetzungsrates und mittlere Stableistung des Stabes Mol 8C1 in Abhängigkeit vom Abbrand

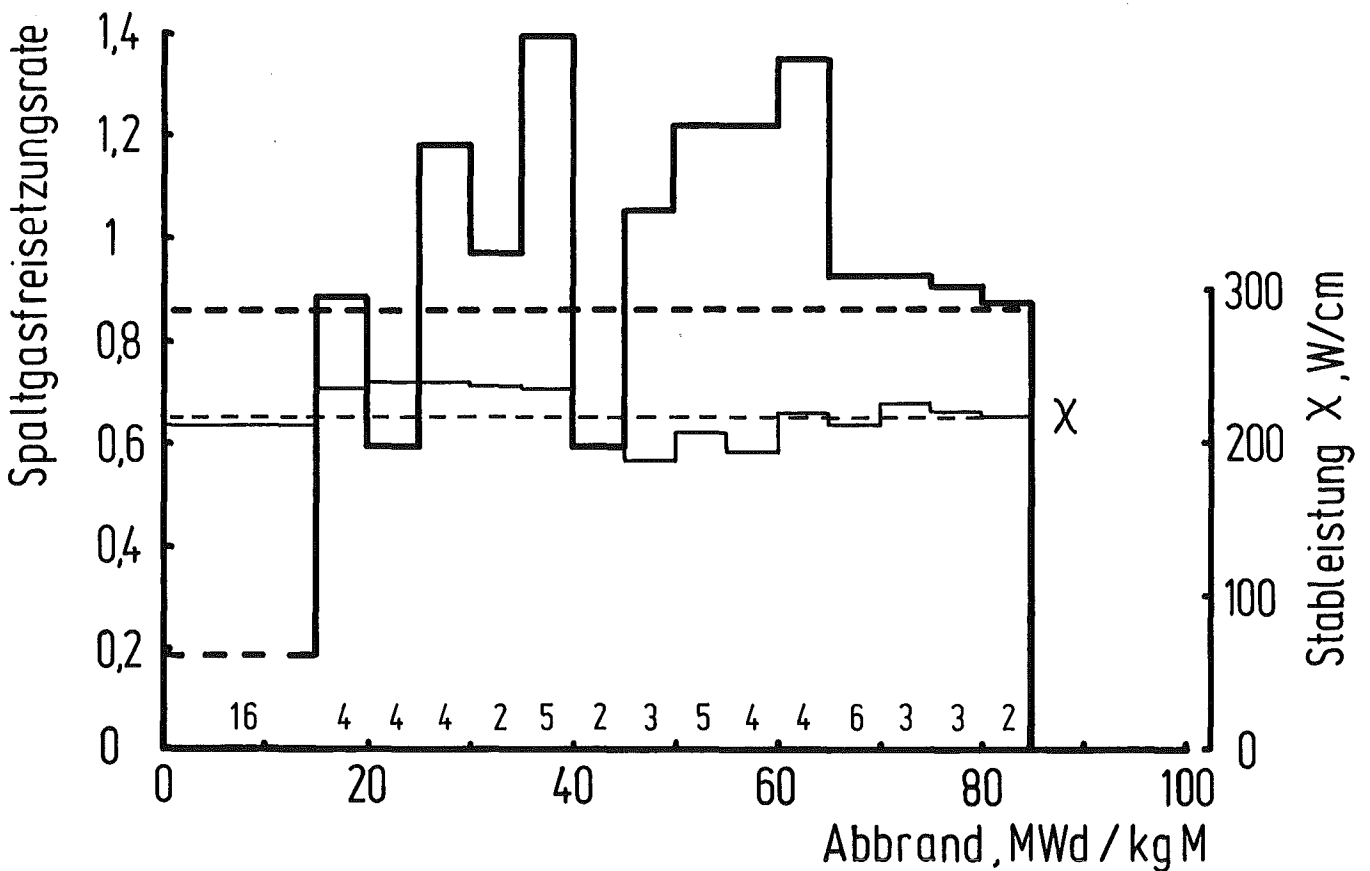


Abb. 9: Spaltgasfreisetzungsrates und mittlere Stableistung des Stabes Mol 8C2 in Abhängigkeit vom Abbrand

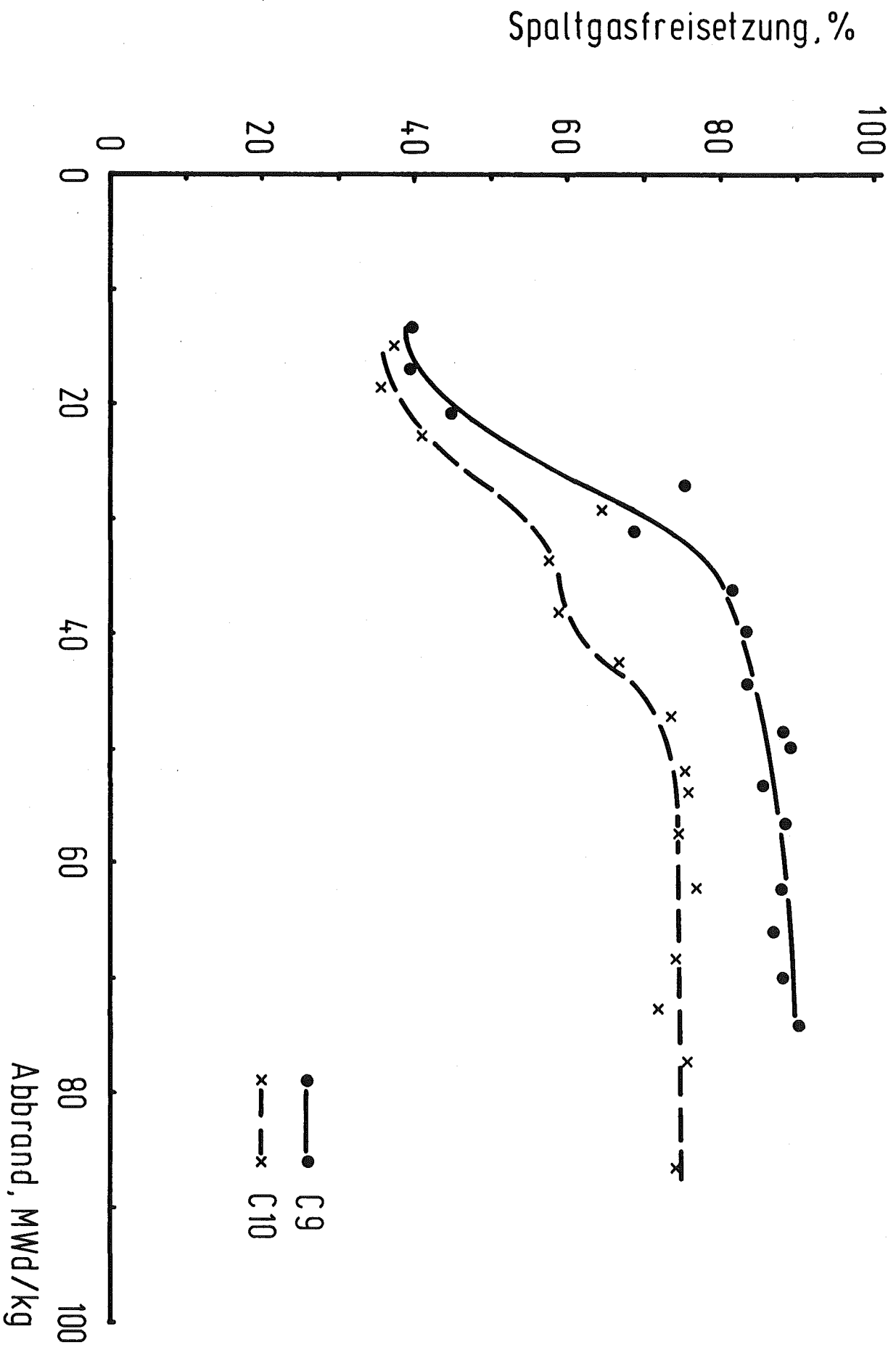


Abb. 7: Spaltgasfreisetzung der Stäbe Mol 8C9 und 10 in Abhängigkeit vom Abbrand



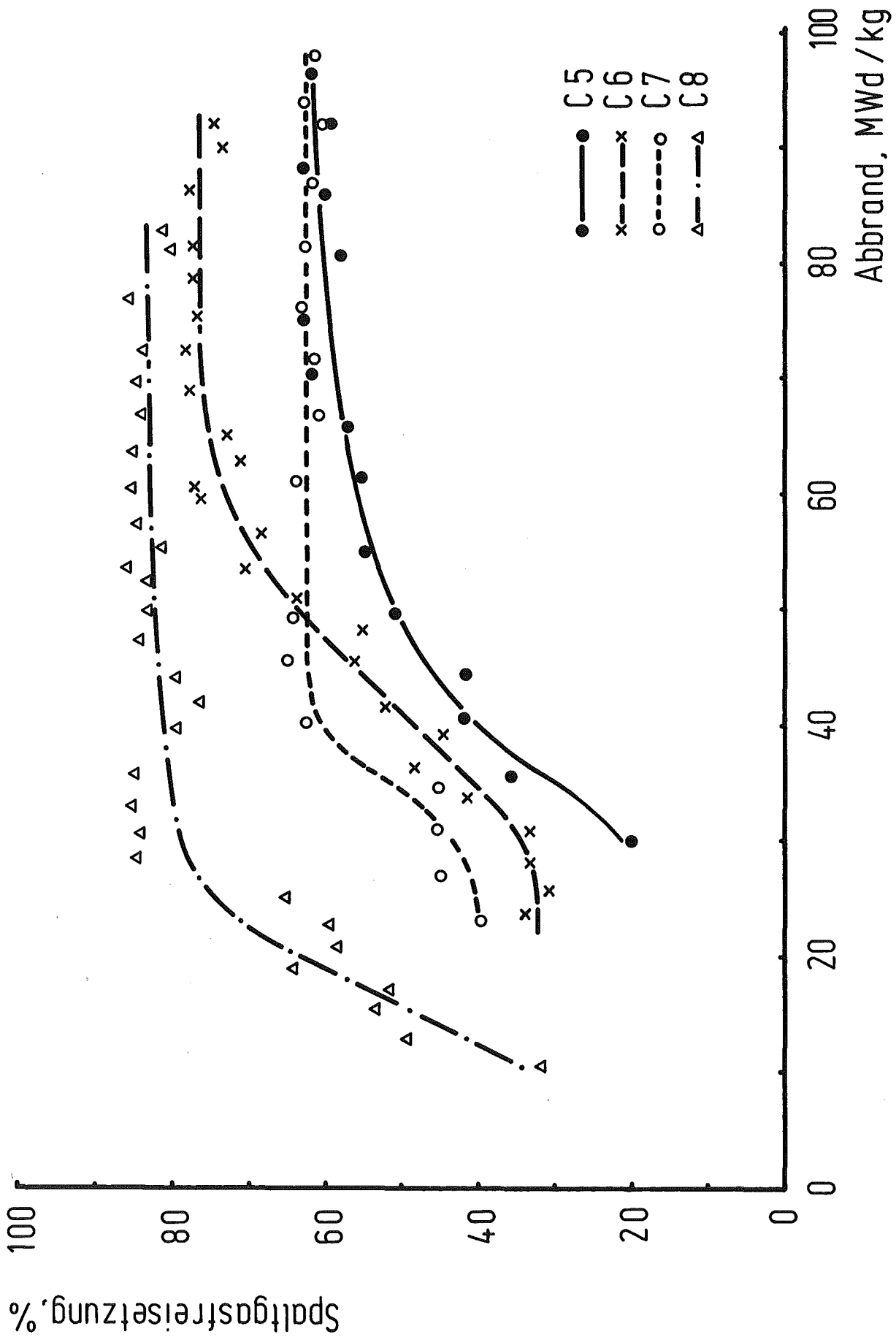


Abb. 6: Spaltgasfreisetzung der Stäbe Mol 8C5-8 in Abhängigkeit vom Abbrand

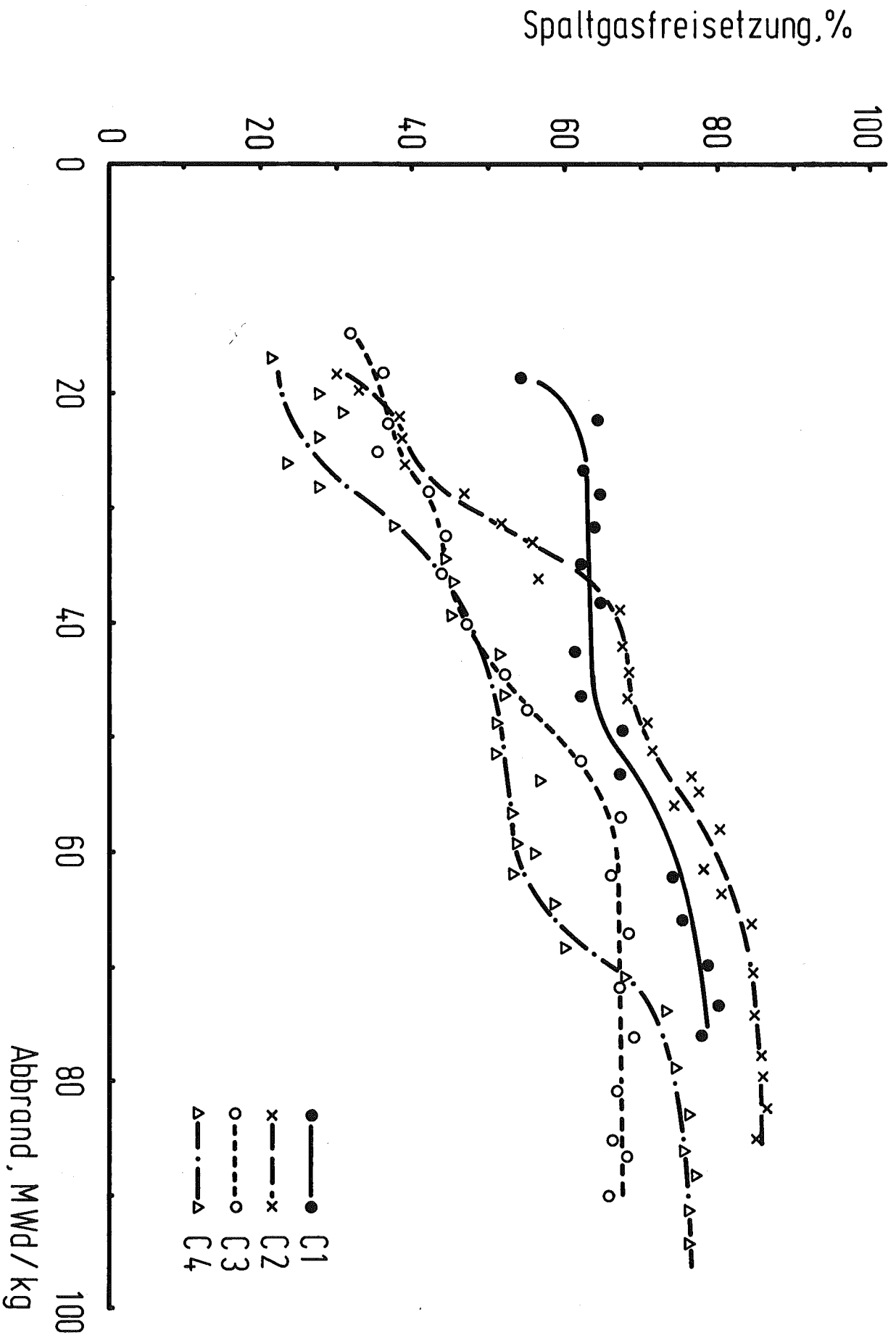


Abb. 5: Spaltgasfreisetzung der Stäbe Mol 8C1-4 in Abhängigkeit vom Abbrand

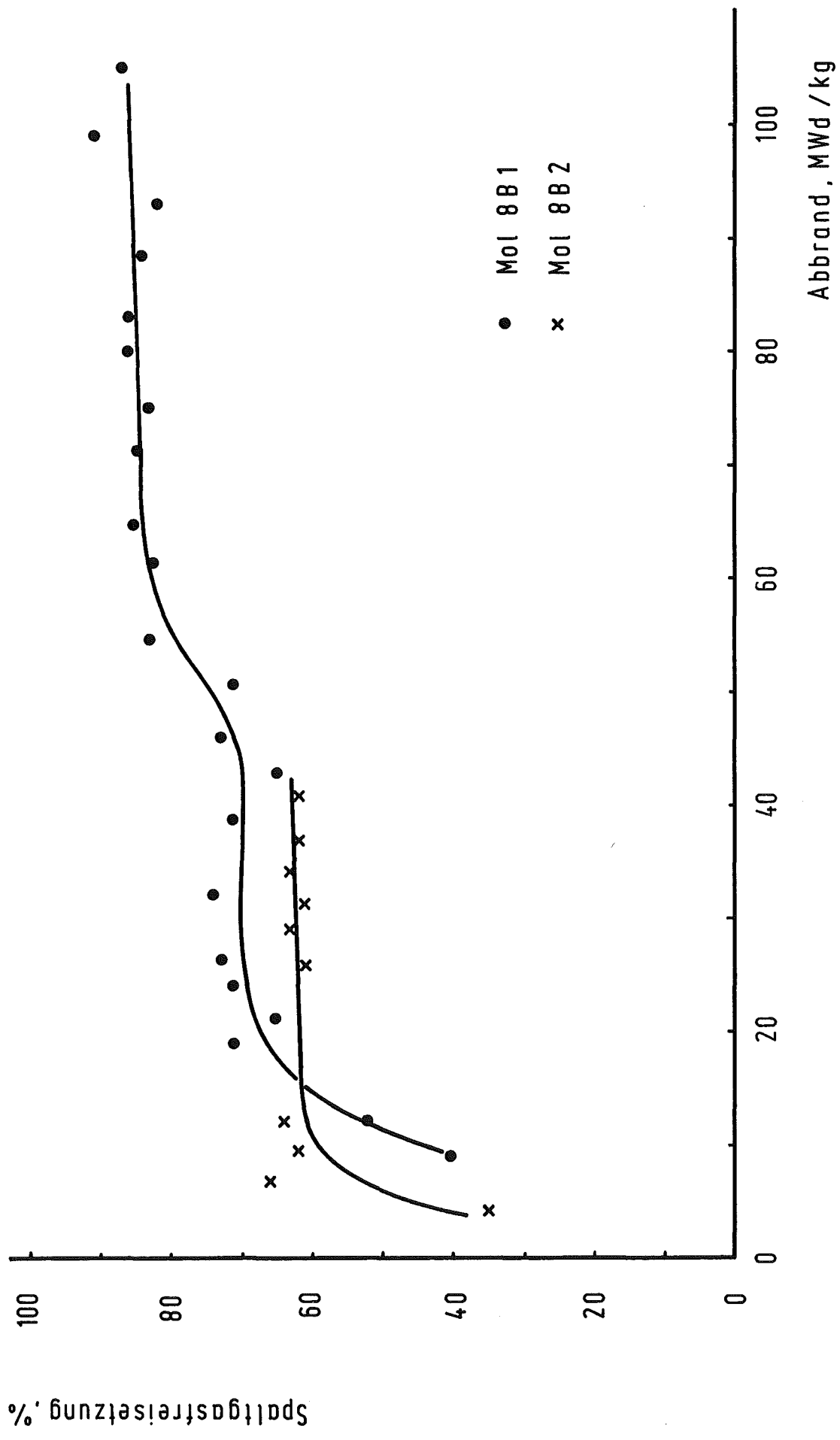


Abb. 4: Spaltgasfreisetzung der Mol 8B - Stäbe in Abhängigkeit vom Abbrand

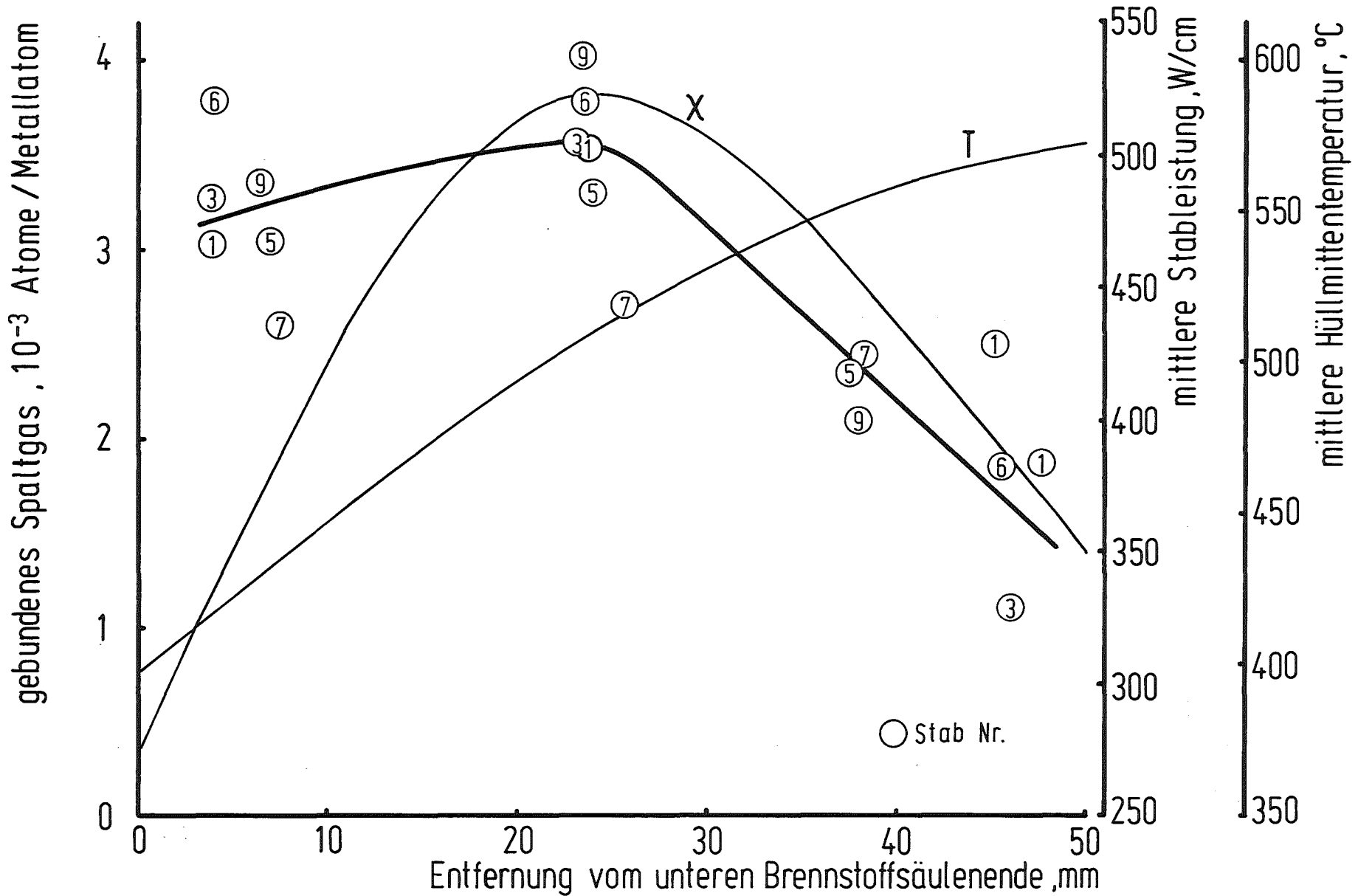


Abb. 3: Konzentration des gebundenen Spaltgases der Mol 7A-Stäbe in verschiedenen axialen Positionen mit Stableistungs- und Hülltemperaturverlauf nach (6)

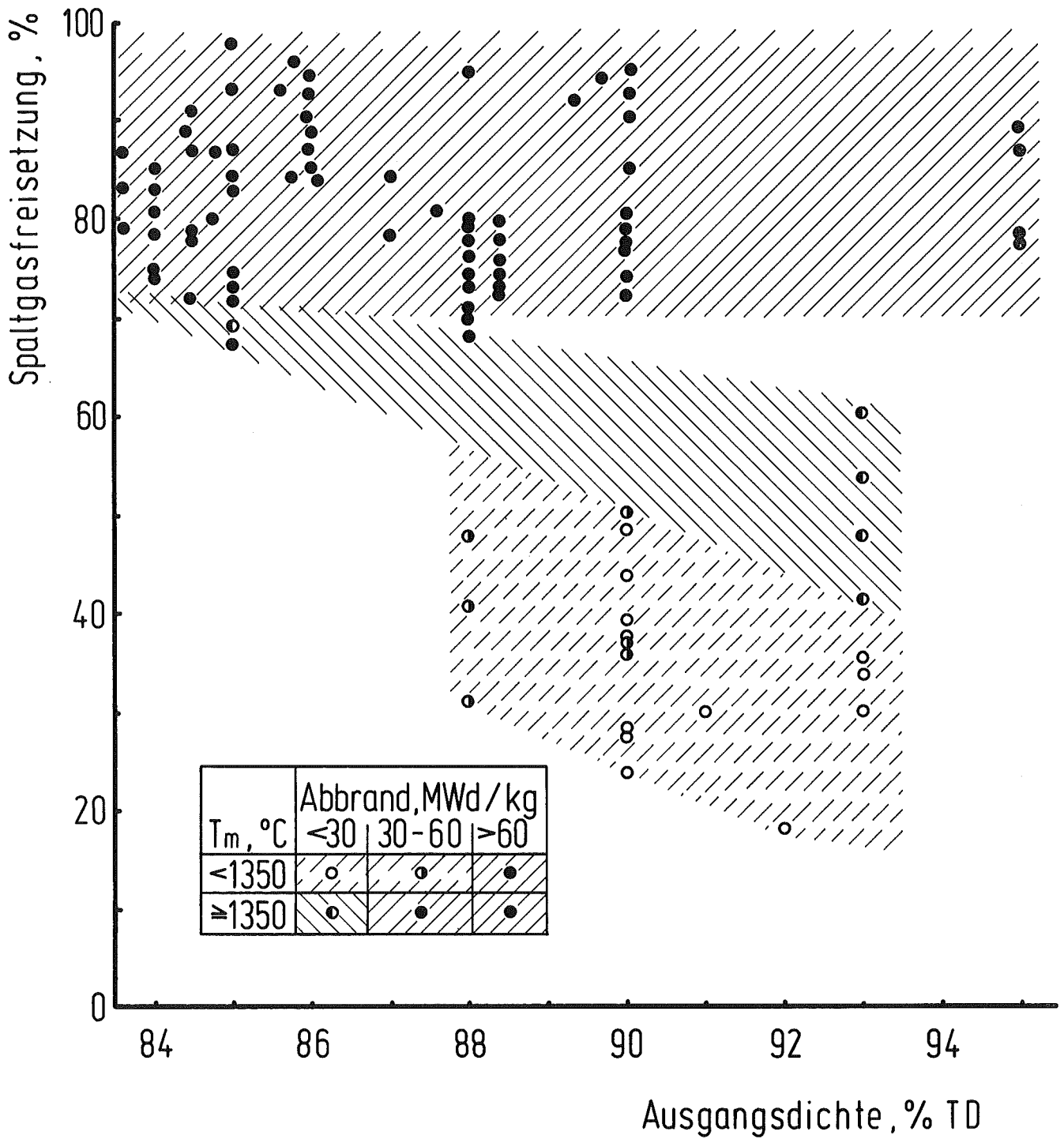


Abb. 19: Spaltgasfreisetzung in Abhängigkeit von der Ausgangsdichte des Brennstoffes

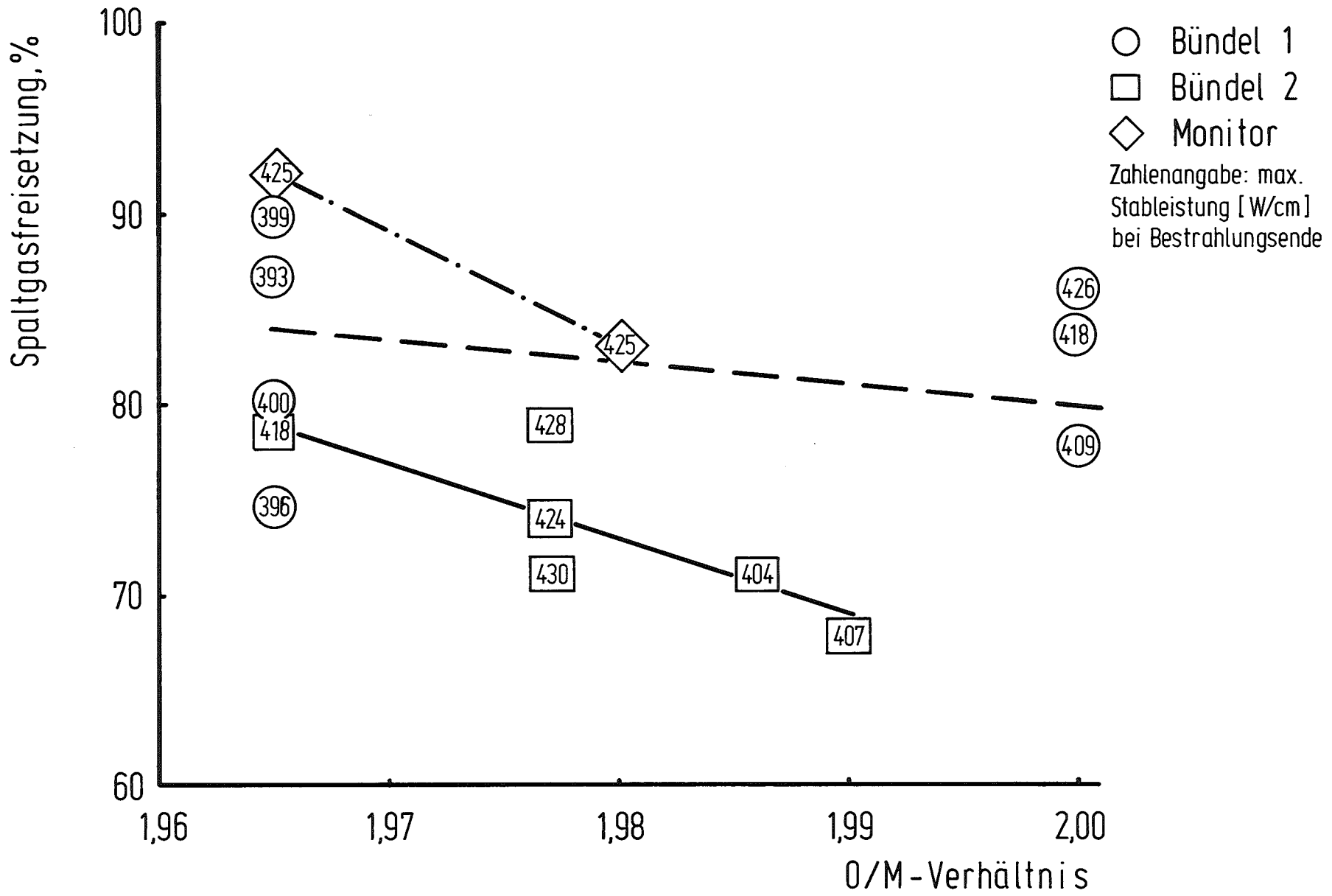


Abb.20: Abhängigkeit der Spaltgasfreisetzung der Rapsodie-Stäbe vom Ausgangs-O/M-Verhältnis

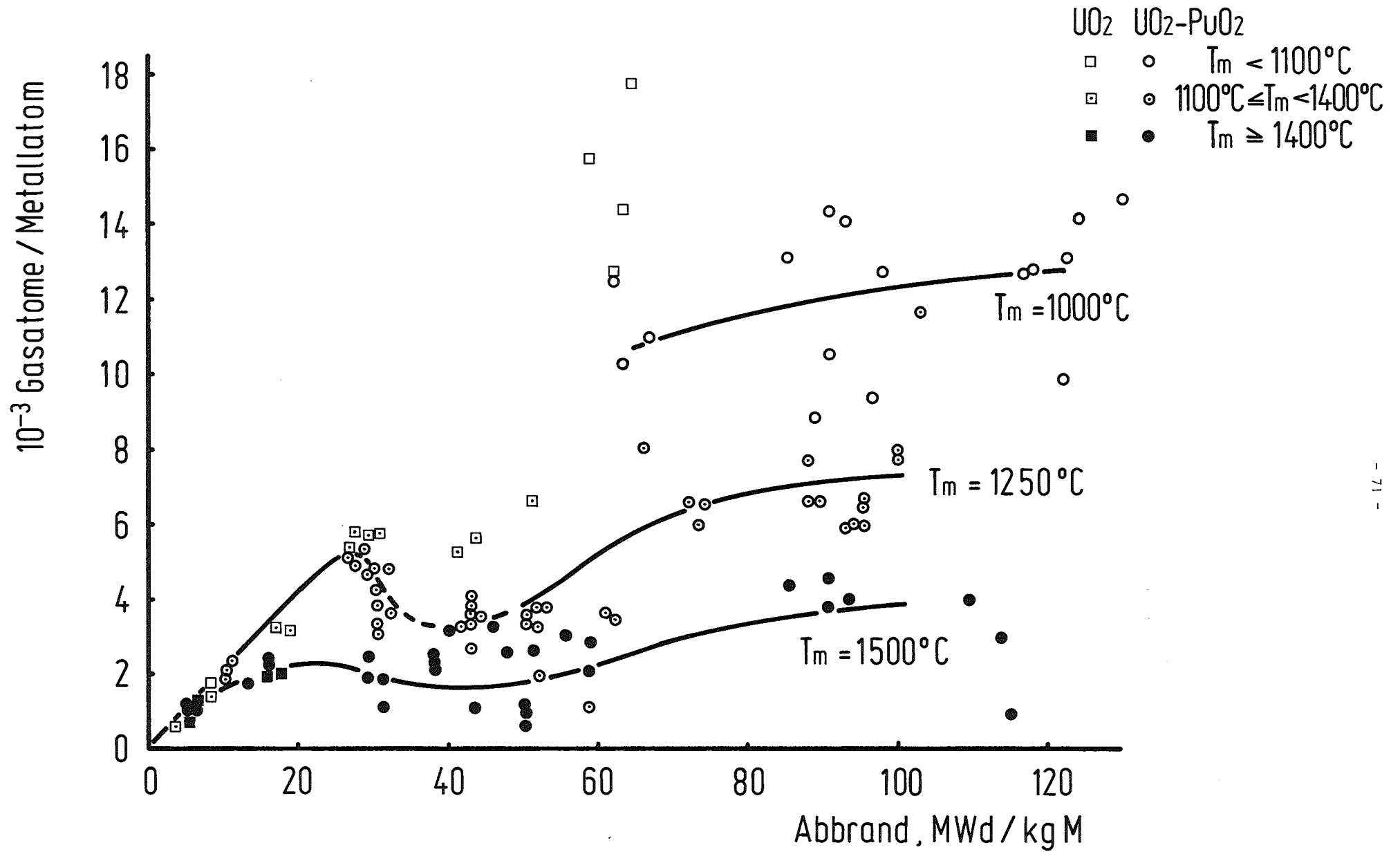


Abb. 21: Konzentration des gebundenen Spaltgases in Abhängigkeit vom Abbrand

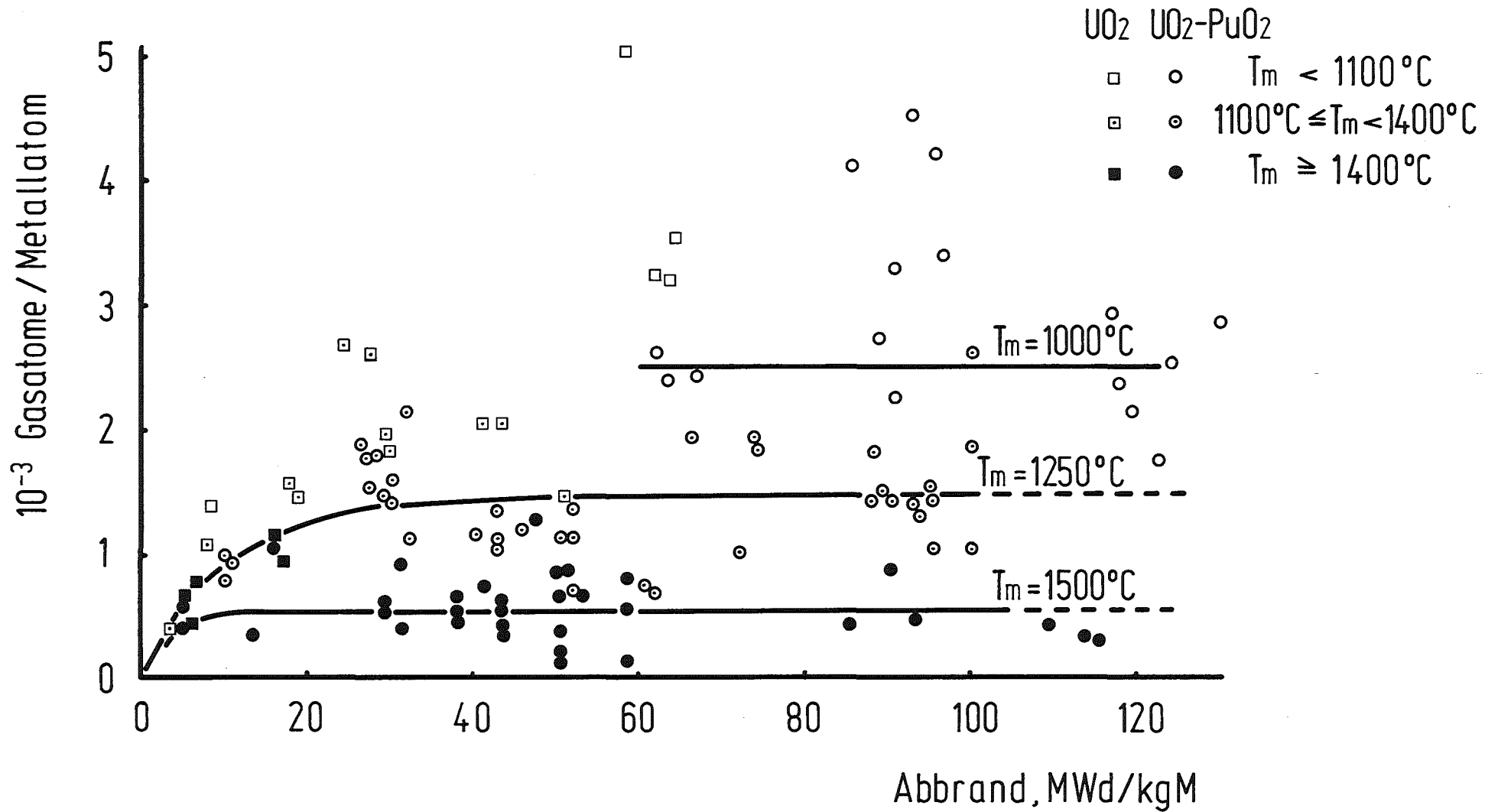


Abb. 22: Gitterspaltgaskonzentration in Abhängigkeit vom Abbrand



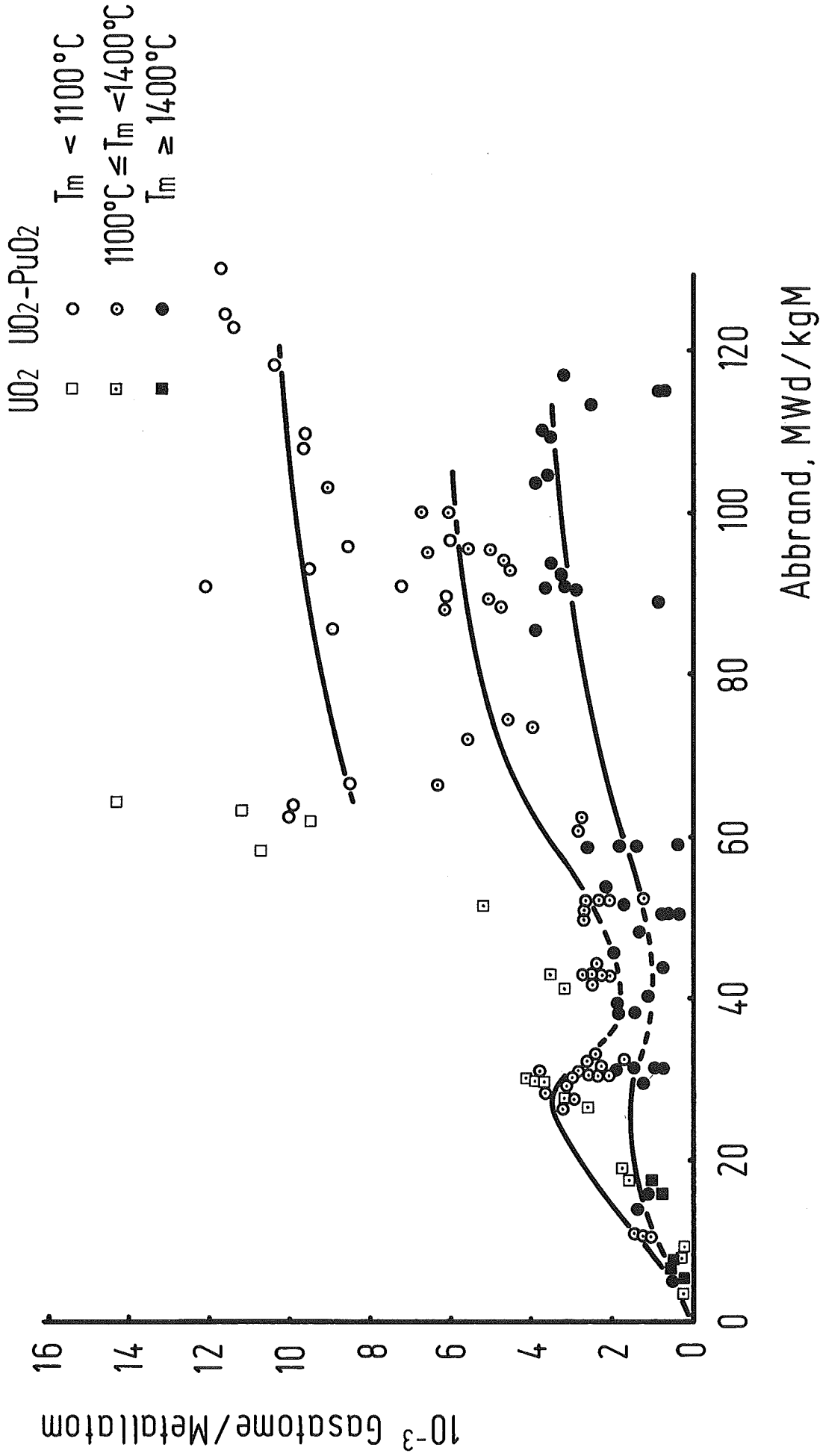


Abb. 23: Porensplattgaskonzentration in Abhängigkeit vom Abbrand

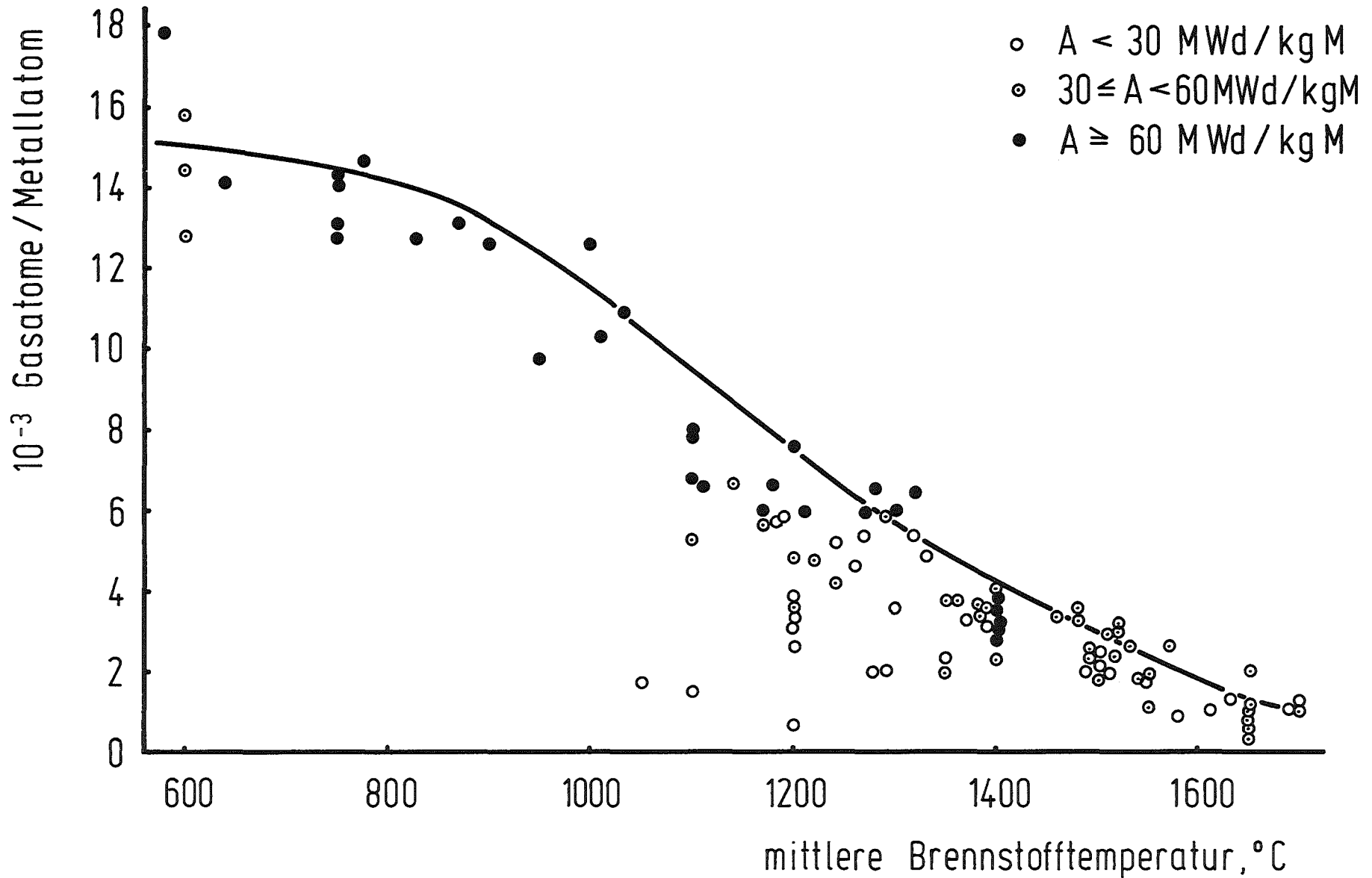


Abb. 24: Konzentration des gebundenen Spaltgases in Abhängigkeit von der mittleren Brennstofftemperatur

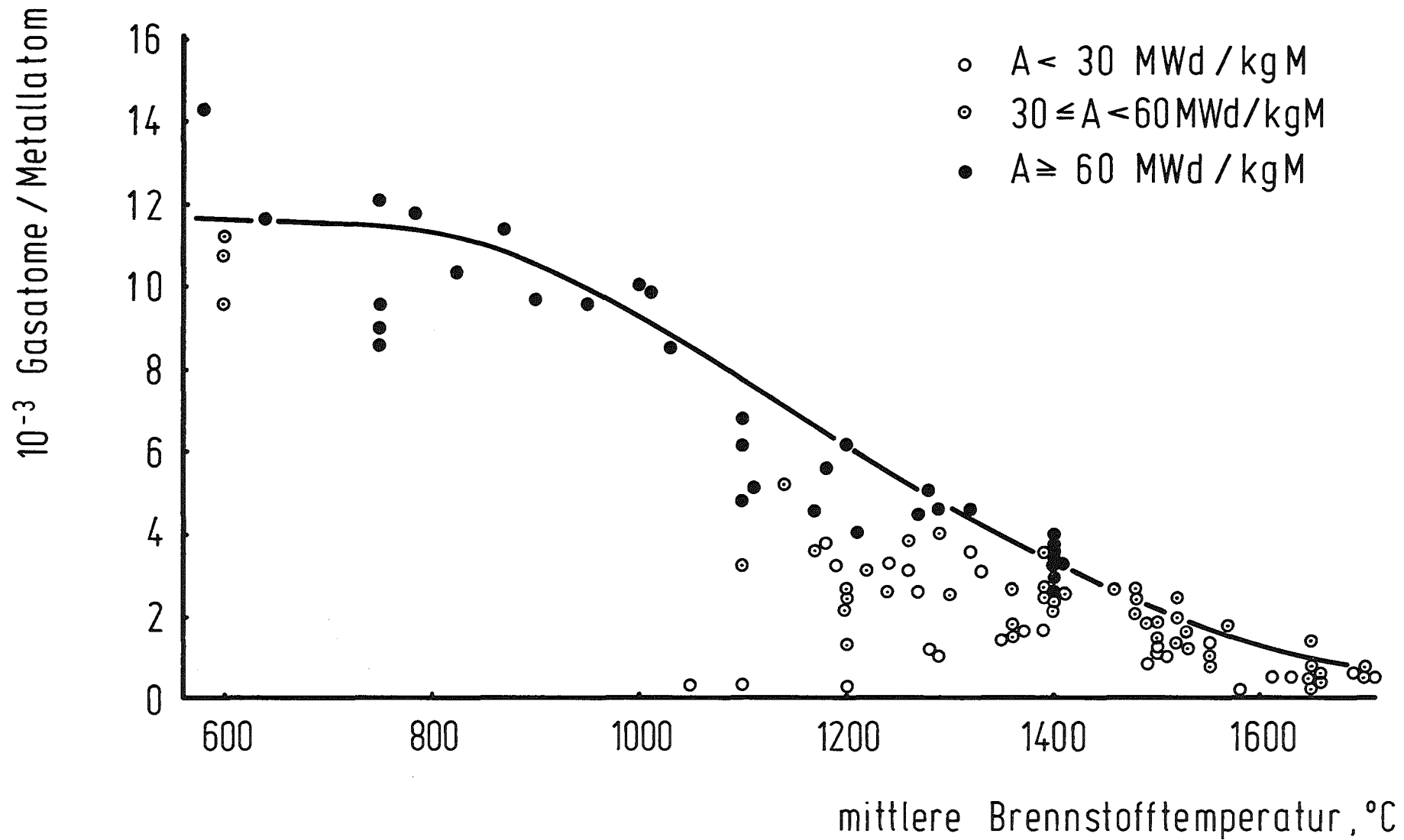


Abb. 25: Porensplattgaskonzentration in Abhängigkeit von der mittleren Brennstofftemperatur

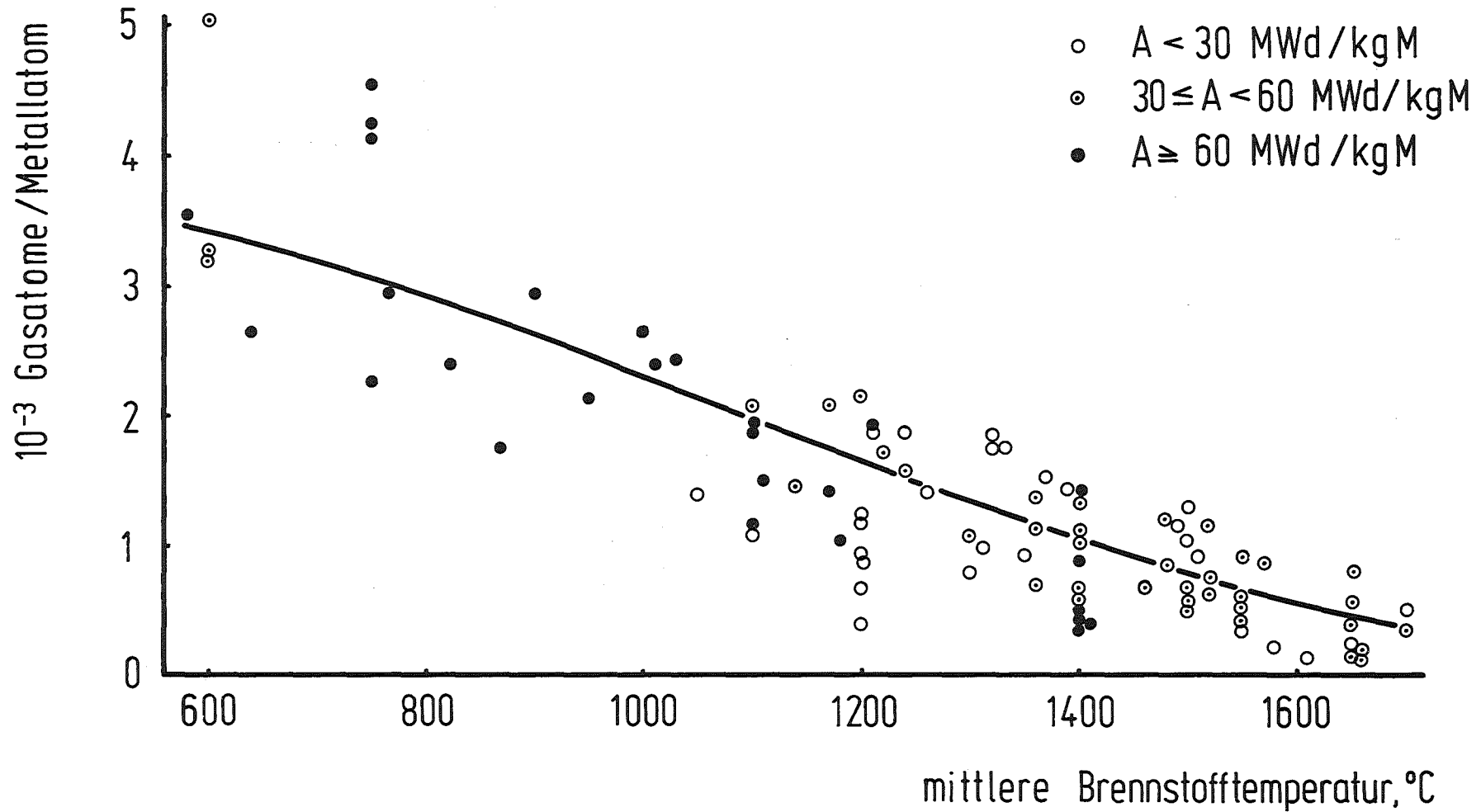


Abb. 26: Gitterspaltgaskonzentration in Abhängigkeit von der mittleren Brennstofftemperatur

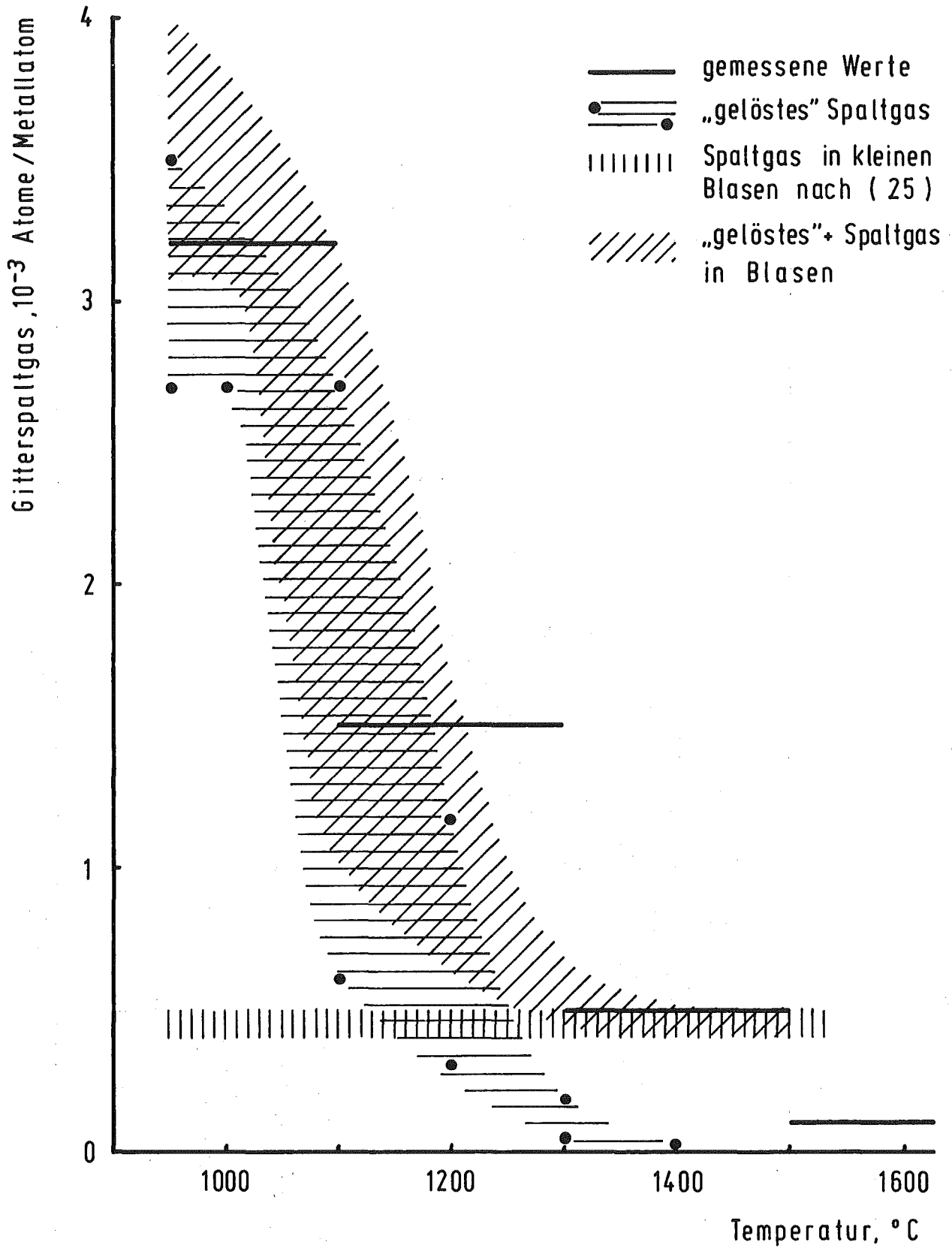


Abb. 27: Gitterspaltgaskonzentration — Vergleich der gemessenen und berechneten Werte

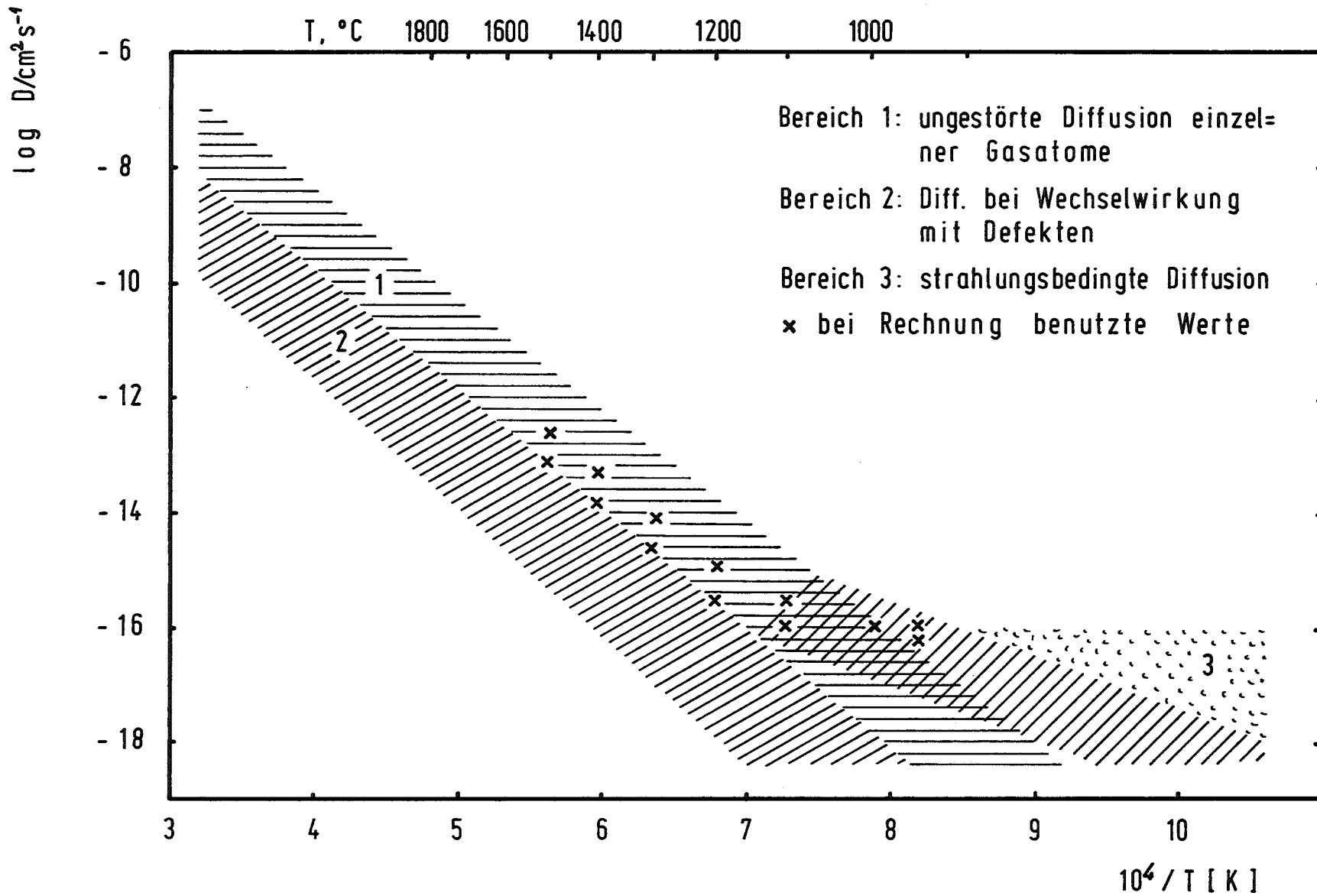


Abb. 28: Abhängigkeit der Spaltgasatomdiffusionskoeffizienten von der Temperatur nach ( 27 )

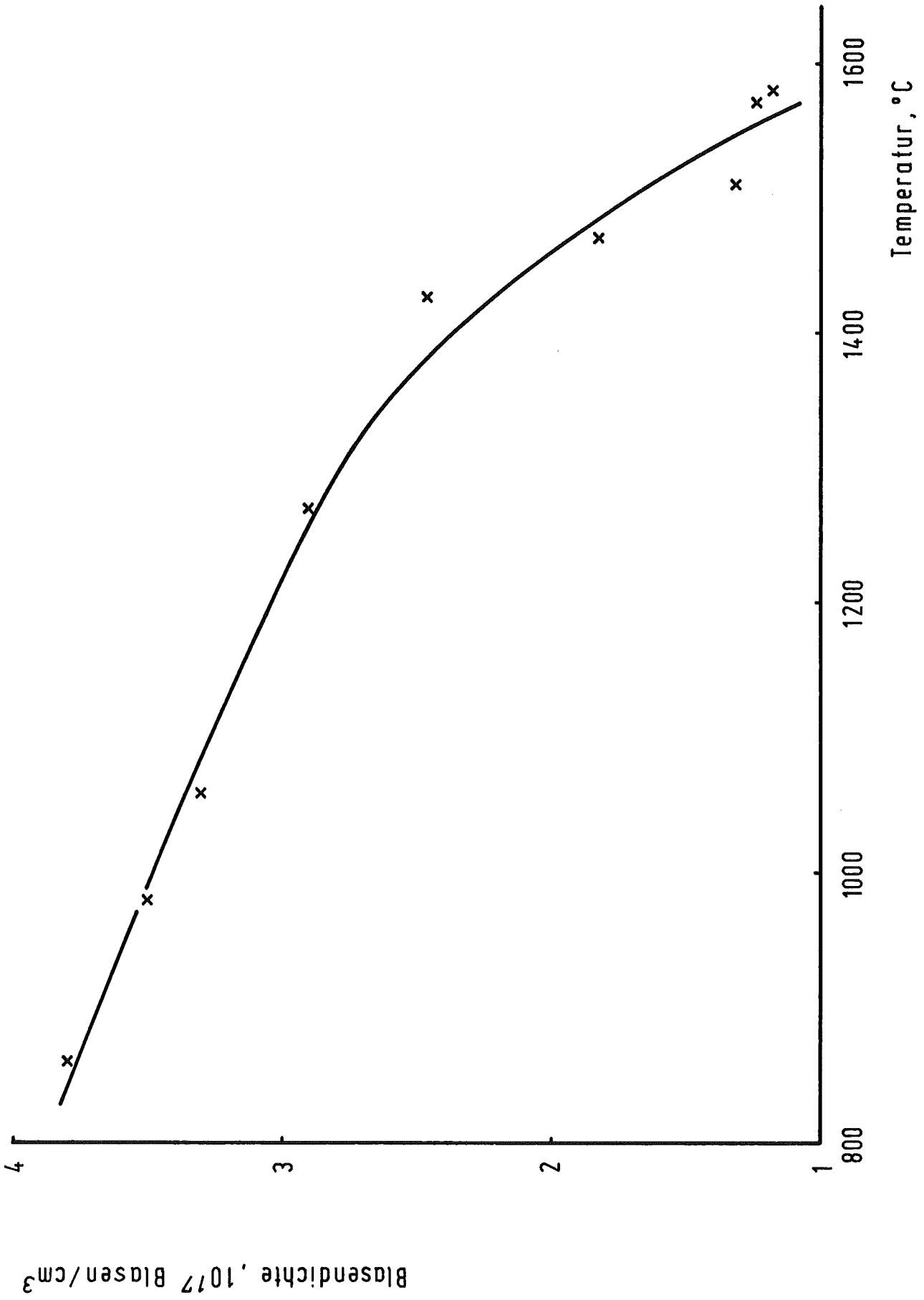


Abb. 29: Blasendichte in Abhängigkeit von der Temperatur nach ( 28 )

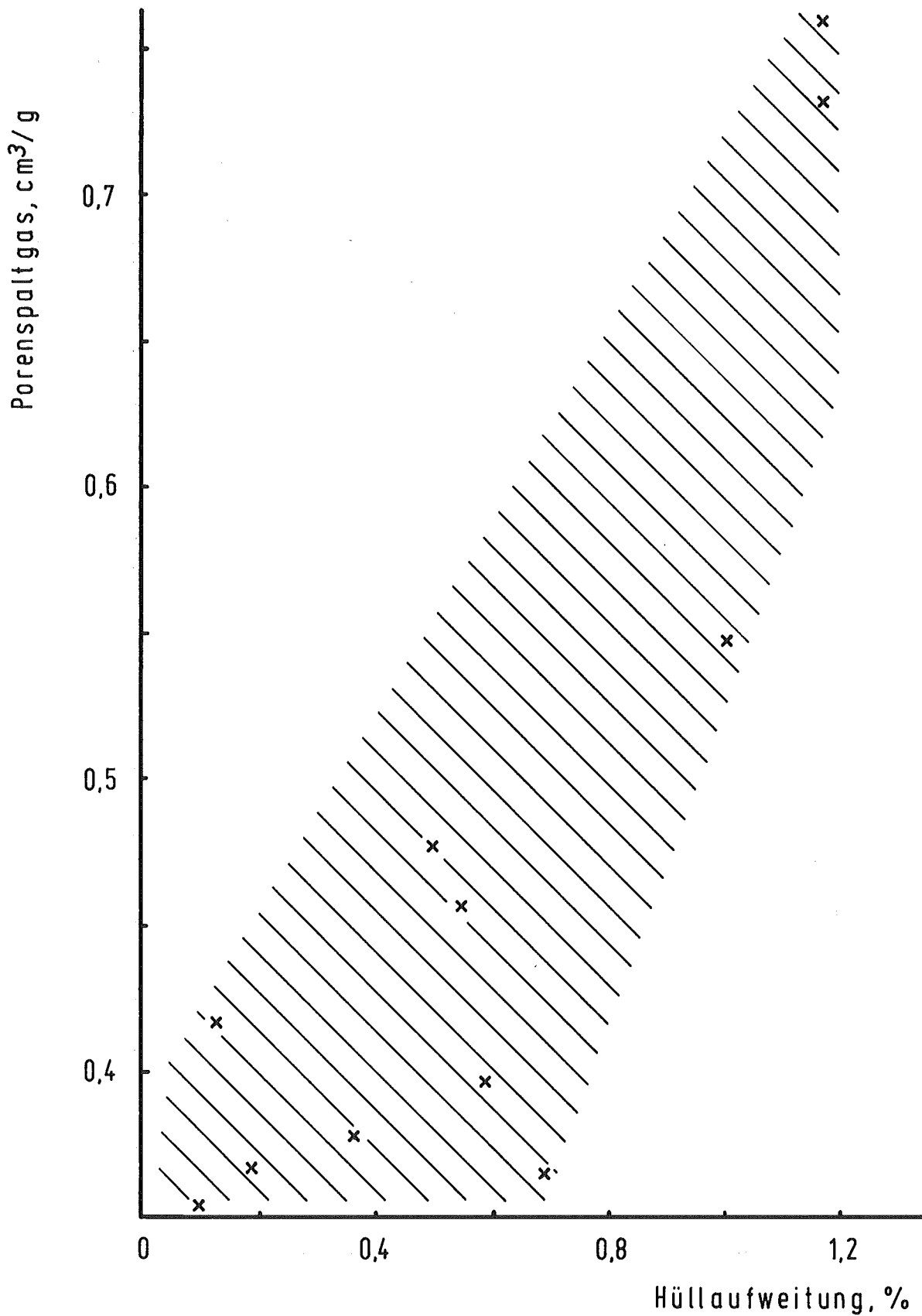


Abb. 30: Abhängigkeit der Porensplattgaskonzentration von der Hüllaufweitung bei den FR2-4b-Brennstäben mit Abbränden über 85 MWd/kgM und mittleren Brennstofftemperaturen um 1200 °C