

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

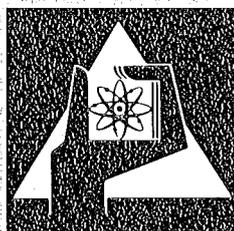
Oktober 1975

KFK 2199

Institut für Material- und Festkörperforschung

**Bestrahlungsverhalten von  $UAl_3$ -Al- und  $UAl_2$ -Al-  
Dispersionsbrennstoffplatten**

W. Dienst, G. Gausmann



**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 2199

Institut für Material- und Festkörperforschung

Bestrahlungsverhalten von  $UAl_3$ -Al- und  $UAl_2$ -Al-  
Dispersionsbrennstoffplatten

---

von

W. Dienst, G. Gausmann

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe



Die Entwicklung des Herstellungsverfahrens und die Herstellung der verwendeten Brennstoffplatten lag in den Händen von Herrn S.Nazaré und Herrn J. Bürkin (IMF). Die Bestrahlungsversuche wurden zunächst durch Herrn H.Herrmann in Angriff genommen (früher IMF, jetzt IRS, Köln). An der Vorbereitung und Durchführung der Bestrahlungsversuche waren zahlreiche Mitarbeiter der Abteilung RBT beteiligt, im besonderen die Herren G.Harbauer, E.Hutter und B.Lederer. Dasselbe gilt für die Nachuntersuchung der bestrahlten Brennstoffplatten in den Heissen Zellen, die im besonderen von den Herren H.Enderlein, E.Hardock, R.Pejsa, F.Weiser und H.Ziegler betreut bzw. durchgeführt wurde. Die radiochemische Abbrandbestimmung erfolgte durch Herrn H.Wertenbach (IRCh). Wir danken allen Beteiligten für ihre Mitarbeit.

## Zusammenfassung

An eigens gefertigten  $UAl_3$ -Al- und  $UAl_2$ -Al-Dispersionsbrennstoffplatten (220 mm x 40 mm x 1,3 mm) wurden Bestrahlungsversuche in einem Druckwasserloop des FR 2 (Karlsruhe) durchgeführt. Die Versuche sollten vor allem Aufschluss geben über die chemische Reaktion zwischen den Uranaluminid-Teilchen und der Al-Matrix sowie über die Schwellung der Brennstoffplatten durch Spaltprodukte, im besonderen durch Spaltgase.

Die Brennstoffdispersionen enthielten 50 Gew.%  $UAl_3$  oder 45,5 bzw. 54,5 Gew.-%  $UAl_2$ . Die maximale Wärmeflussdichte an den Plattenoberflächen betrug etwa  $100 \text{ W/cm}^2$ . Die Plattenoberflächentemperaturen lagen in verschiedenen Bestrahlungseinsätzen um  $70^\circ\text{C}$ , zwischen  $110$  und  $155^\circ\text{C}$  sowie zwischen  $140$  und  $185^\circ\text{C}$  und blieben an den einzelnen Platten während der Bestrahlung konstant. Der Uran-Abbrand erreichte 6,5 bis 72%, in der Hauptserie mit den höchsten Bestrahlungstemperaturen 53 bis 72%.

Es wurden keine Hüllschäden durch Blasen- oder Rissbildung an den Brennstoffplatten beobachtet, die auf das Bestrahlungsverhalten des Brennstoffkernes zurückzuführen waren. Die Schwellung der Platten wurde durch Wägung und Volumenbestimmung nach dem Auftriebsverfahren sowie durch Messung der Plattendicke geprüft. Die Korrosionsschichtbildung, im besonderen bei hohen Bestrahlungstemperaturen, wurde durch eine Korrektur berücksichtigt. Zur Prüfung des Überhitzungsverhaltens der bestrahlten Brennstoffplatten wurden Glühversuche ("blister tests") bei  $200$ ,  $300$ ,  $400$  und  $500^\circ\text{C}$  durchgeführt (je 1 h). Der Verlauf der bestrahlungsbedingten Reaktion zwischen den Brennstoffteilchen und der Al-Matrix wurde durch quantitative Auswertung von Gefügeanteilen in Schlifffbildern des Brennstoffbereiches verfolgt. Diese Auswertung wurde von einigen Mikrosondenanalysen und von Mikrohärtmessungen begleitet.

Die Untersuchungsergebnisse zeigen, dass Dispersionsbrennstoffe mit  $UAl_3$  und  $UAl_2$  gleichermaßen für sehr hohe Abbrände in Forschungsreaktoren geeignet sind. Ein Uran-Abbrand von 40% ist auf jeden Fall zulässig, unabhängig von der Bestrahlungstemperatur bis mindestens  $180^\circ\text{C}$ . Für höheren Abbrand bis zu 60% scheint  $UAl_2$ -Al-Brennstoff noch ohne Einschränkung geeignet zu sein, während dann für  $UAl_3$ -Al-Platten die Ge-

fahr starker Blasenbildung bei Überhitzung auf Temperaturen oberhalb 400°C besteht.

Oberhalb von 30 - 40% Abbrand beginnen Spaltproduktausscheidungs Vorgänge das Verhalten des Dispersionsbrennstoffes zu bestimmen. Unterhalb dieser Abbrandgrenze hat die Spaltprodukt-Schwellung noch keinen nennenswerten Spaltgasblasen-Beitrag und kann eine Schwellrate beträchtlich unterhalb des in der Literatur öfters angegebenen Wertes von etwa 6 Vol.-%/10<sup>21</sup>f/cm<sup>3</sup> ergeben.

Die Reaktion der UAl<sub>3</sub>- und UAl<sub>2</sub>-Brennstoffteilchen mit der Al-Matrix erfolgt unter Bildung einer nichtstöchiometrischen UAl<sub>4</sub>-Phase, etwa mit der Zusammensetzung UAl<sub>5</sub>, die jedoch keine Änderung des Volumenanteiles der Teilchen nach hohem Abbrand ergibt. Bei 55 Gew.-% UAl<sub>2</sub> erreicht dieser Anteil etwa 60 Vol.-%.

#### Irradiation Behaviour of UAl<sub>3</sub>-Al and UAl<sub>2</sub>-Al Dispersion Fuel Plates

---

##### Abstract

UAl<sub>3</sub>-Al and UAl<sub>2</sub>-Al dispersion fuel plates (220 mm x 40 mm x 1,3 mm) were prepared and irradiated in a pressurized water loop of the FR 2 (Karlsruhe). The irradiation tests were to give information on the chemical reaction of the UAl<sub>x</sub> particles with the Al matrix and on the swelling of the fuel plates by fission products, particularly by fission gas.

The dispersions contained 50 wt % UAl<sub>3</sub> or 45.5 and 54.5 wt % UAl<sub>2</sub>, respectively. The maximum heat flux through the fuel plate surfaces was about 100 W/cm<sup>2</sup>. The surface temperatures in various irradiation rigs were about 70°C, between 110 and 155°C, and between 140 and 185°C remaining constant for the individual plates over the irradiation period. The uranium burnups were in the range from 6.5 to 72% amounting to 53 to 72% in the main series at high irradiation temperatures.

After irradiation, the fuel plates did not show cladding failures by blister or crack formation in any case, which could be attributed to the irradiation behaviour of the fuel. Swelling of the fuel plates was

examined by immersion density and thickness measurement. A correction was made with regard to the corrosion layer formed particularly at high irradiation temperatures. To examine the overheating behavior of irradiated fuel plates, annealing tests ("blister tests") were made at 200, 300, 400 and 500°C (1 h each). The irradiation-induced reaction of the fuel particles with the Al matrix was followed by quantitative evaluation of microstructure components in micrographs of the fuel section. That evaluation was supported by some microprobe analyses and by microhardness measurements.

The results show that Al-base dispersion fuels containing  $UAl_3$  or  $UAl_2$  are likewise suited for high burnups in research reactors. A uranium burnup of 40% is permissible in any case, independent of irradiation temperature at least up to 180°C. For higher burnups up to 60%,  $UAl_2$ -Al fuel seems yet suited without reservation, whereas  $UAl_3$ -Al fuel plates will suffer the risk of heavy blister formation on overheating to temperatures above 400°C.

Above a burnup of 30 to 40%, fission product precipitation processes will strongly influence the behaviour of the dispersion fuel. Below that burnup limit there is no appreciable fission gas bubble contribution to fission product swelling, and the swelling rate can be considerably lower than the value of about  $6 \text{ vol } \% / 10^{21} \text{ f/cm}^3$  given in the literature.

The reaction of  $UAl_3$  and  $UAl_2$  fuel particles with the Al matrix results in the formation of a non-stoichiometric  $UAl_4$  phase, whose composition is about  $UAl_5$ . However, that does not increase the volume percentage of the particles at high burnup, which took up to about 60 vol % for 55 wt %  $UAl_2$ .

<u>Inhalt:</u>	Seite
1. Einleitung	1
2. Proben und Bestrahlungsbedingungen	2
3. Versuchsergebnisse	3
3.1 Schwellung der Brennstoffplatten unter Bestrahlung	3
3.2 Nachschwellung der Brennstoffplatten durch Glühung nach Bestrahlung (Blistertest)	7
3.3 Reaktion zwischen Brennstoffteilchen und Al-Matrix	9
3.3.1 Reaktionsverlauf	9
3.3.2 Härte- und Festigkeitsänderung	12
4. Diskussion	13
4.1 Brennstofftemperatur	13
4.2 Reaktion, Spaltproduktaufnahme und Wachstum der Brennstoffteilchen	14
4.3 Bestrahlungsbedingte Diffusion	17
4.4 Schwellverhalten	18
5. Schlussfolgerungen	21
Literatur	22
Tabelle 1	24
Abbildungen 1 bis 14	25 - 38

## 1. Einleitung

In Forschungsreaktoren mit hohem thermischen Neutronenfluss werden zur besseren Wärmeabfuhr meistens dünne Brennstoffplatten statt der für Leistungsreaktoren üblichen Brennstäbe verwendet. Der Entwurf von Brennstoffplattenelementen für Hochflussreaktoren mit Neutronenflüssen in der Grössenordnung von  $10^{15} n_{th}/cm^2 \cdot s$  (HFIR-Oak Ridge, ATR-Idaho Falls, HFR-Grenoble) ergab, dass die erforderlichen hohen Urangehalte die zuvor übliche Verwendung eines Brennstoffes aus erschmolzener Uran-Aluminium-Legierung (in Aluminium-Hülle gewalzt) ausserordentlich erschweren. Die besonderen Schwierigkeiten traten beim Homogenisieren der Brennstofflegierung und beim Walzen der Platten auf.

Daher wurde zunächst durch den Einsatz von pulvermetallurgisch hergestelltem  $U_3O_8$ -Al-Dispersions-Brennstoff eine Alternative geschaffen, die sich in den Hochflussreaktoren HFIR und ATR befriedigend bewährte. Der Umfang der bestrahlungsinduzierten Reaktion zwischen den  $U_3O_8$ -Teilchen und der Al-Matrix der Brennstoffdispersion schien allerdings den zulässigen  $U_3O_8$ -Gehalt auf maximal etwa 40 Gew.-% zu beschränken /1,2,3/. Im Rahmen der ATR-Brennstoffentwicklung wurden zwar auch erste Versuche mit  $UAl_3$ -Al-Dispersionsbrennstoff durchgeführt, deren Ergebnis darauf hindeutete, dass dieser Brennstofftyp eine beträchtlich höhere Uran-Belastung der Brennstoffplatten gestatten würde. Der routinemässige Einsatz von  $UAl_3$ -Al-Brennstoffplatten war aber zunächst dadurch behindert, dass die Herstellung von  $UAl_3$  und  $UAl_3$ -Al-Dispersionen noch nicht hinreichend breit und eingehend untersucht worden war und daher auch keinen ausreichenden Spezifikationen unterworfen werden konnte.

Eine Übersicht über die vorliegenden Bestrahlungsversuchsergebnisse an Dispersionsbrennstoffplatten auf Aluminium-Basis /4/ zeigte, dass Uran-Aluminid-Al-Dispersionen ein allgemein überlegenes Bestrahlungsverhalten gegenüber Uranoxid-Al-Dispersionen erwarten liessen. Daher wurde bei uns eine ausführliche Untersuchung über die Herstellung im Labormassstab und über die Eigenschaften von Uranaluminid-Dispersionen durchgeführt, deren Ergebnisse kürzlich zusammenfassend dargestellt wurden /5/. Diese Untersuchung mündete in die Fertigung von Brennelementplatten für Bestrahlungsversuche, über die im folgenden berichtet wird.

Diese Versuche sollten vor allem Aufschluss geben über die chemische Reaktion zwischen den Uranaluminid-Teilchen und der Al-Matrix, über die Schwellung der Brennstoffplatten durch Spaltprodukte, im besonderen durch Spaltgase, und gegebenenfalls über Grobstrukturschäden wie Blasen- oder Rissbildung an der Plattenhülle.

## 2. Proben und Bestrahlungsbedingungen

Über die Herstellung der Bestrahlungsproben wurde bereits im einzelnen berichtet /5/, so dass hier eine kurze Angabe der wichtigsten Daten genügt. Die äusseren Abmessungen der plattenförmigen Proben betragen 220 mm x 40 mm x 1,3 mm, die Abmessungen des Dispersionsbrennstoff-Kernes 200 mm x 30 mm x 0,5 mm, die Hülldicke an den Plattenflächen je 0,4 mm. Als Hüllmaterial wurde Rein-Al 99,9 verwendet, als Matrixmaterial Al 99,5. Die eingesetzten Brennstoffdispersionen enthielten 50 Gew.-%  $UAl_3$  oder 45,5 Gew.-%  $UAl_2$  (gleicher Urangehalt) bzw. 54,5 Gew.-%  $UAl_2$  (gleicher Volumenanteil) in der Al-Matrix. Das Uran war auf 93% U 235 angereichert. Eine  $UAl_3$ -Al-Platte enthielt damit knapp 4 g U 235. Die Schwankung des Uran-Gehaltes betrug von Platte zu Platte  $\pm 0,8\%$ , zwischen 2 mm breiten Längsstreifen der Platten  $\pm 3\%$  und zwischen 2 mm-Durchmesser-Kreisausschnitten der Platten  $\pm 15\%$  (nur am Ende des Brennstoffkernes bis + 25%). Sie wurde durch  $\gamma$ -Strahlungsmessung bzw. durch mikrophotometrische Vermessung von Röntgen-Durchstrahlungsaufnahmen bestimmt.

Die Bestrahlung der Platten erfolgte im Forschungsreaktor FR 2 (Karlsruhe) unter Verwendung eines speziellen Druckwasser-Versuchskreislaufes, der in einem früheren Bericht beschrieben wurde /6/. Er musste in erster Linie die folgenden Anforderungen erfüllen: Hinreichend hoher Kühlwasserdruck zur Vermeidung des Oberflächensiedens bei Plattenoberflächentemperaturen bis zu 200°C, regelbarer Kühlwasserdurchsatz zur Konstanthaltung der Plattentemperatur bei abnehmender Plattenleistung mit zunehmendem Abbrand. Als Halterung für die Platten-Prüflinge in einem Zircaloy-Druckrohr dienten zwei einander gegenüberliegende Schienen mit je 4 parallelen Nuten, in die die Platten eingeschoben wurden. Die Schienen bildeten mit zwei seitlichen Abdeckblechen einen Kühlwasserführungskasten. In jeder der Nuten konnten bis zu 3 Brennstoffplatten übereinander stehen, so dass maximal 12 Platten in einem Einsatz bestrahlt werden konnten. Die Kühl-

kanalweite, der Abstand zwischen nebeneinander stehenden Platten, betrug 3 mm; zwischen den äusseren Platten und der Kastenwand betrug sie 2 mm. An- und Auslaufbleche vor und hinter der Brennstoffplatten-Zone sicherten eine definierte Strömung in den Kühlkanälen. Die Temperaturen der Brennstoffplatten wurden durch direkte Temperaturmessung mit Thermoelementen an 3 bis 5 Platten je Einsatz bestimmt. Der vordere Teil der ummantelten Thermoelemente war so dünn gezogen, dass er in eine 0,2 mm tiefe Nut an der Plattenoberfläche eingelegt und dort durch Flamm-spritzen einer Ni-Al-Legierung befestigt werden konnte.

Im FR 2 war bei einem maximalen ungestörten thermischen Neutronenfluss von  $8,5 \cdot 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$  nur eine maximale Wärmeflussdichte von etwa  $100 \text{ W/cm}^2$  an den Brennstoffplattenoberflächen erzielbar. Die Wärmeflussdichte ging bei hohem Abbrand (>50%) auf etwa 1/4 des Anfangswertes zurück. Die Kühlwassergeschwindigkeit in den Kühlkanälen zwischen den Platten lag im Bereich von etwa 1,3-0,4 m/s (nur für besonders niedrige Plattentemperaturen bei etwa 5 m/s). Die spezifischen Plattenleistungen und die Kühlwassergeschwindigkeiten in den Brennelementen von Hochflussreaktoren betragen zwar ein Mehrfaches dieser Werte, aber dieser Unterschied wurde nicht als entscheidende Einschränkung für die Brauchbarkeit der Versuchsergebnisse angesehen. Denn die hier durchgeführten Bestrahlungsversuche galten nicht einem Brennstoffplatten-Performance-Test, sondern in erster Linie der Untersuchung der bestrahlungsbedingten Veränderung bzw. Vorgänge im Dispersionsbrennstoff-Kern der Platten. Diese Veränderungen sind aber vor allem eine Funktion des Abbrandes, d.h. der Spaltungsdichte in den Brennstoffteilchen, die hier nicht eingeschränkt war. Die Verminderung der Spaltungsrate bei fester Spaltungsdichte sollte nur einen Einfluss zweiter Ordnung haben, der im übrigen eher zu grösseren als zu kleineren Veränderungen im Dispersionsbrennstoffkern führt. Auch alle temperaturabhängigen Vorgänge müssen bei verminderter Spaltungsrate zu grösseren Veränderungen führen, weil die Bestrahlungsdauer bis zum Erreichen eines bestimmten Abbrandes verlängert wird. Daher sollten die Folgerungen aus diesen Bestrahlungsversuchen mit relativ niedrigen Plattenleistungen auch für hohe Plattenleistungen anwendbar sein, u.U. sogar mit einer zusätzlichen Sicherheitsmarge.

Die Brennstoffplatten-Oberflächentemperatur betrug bei einer Reihe einleitender Versuche mit jeweils nur 4 nebeneinander stehenden Platten bei erhöhter Kühlwassergeschwindigkeit (ca. 5m/s)  $70 \pm 10^\circ\text{C}$ . In der Hauptversuchsreihe standen stets 3 solche Gruppen aus je 4 Platten hintereinander im Kühlmittelstrom geringer Geschwindigkeit ( $\leq 1,3$  m/s). Dadurch ergab sich längs der Plattenanordnung ein beträchtlicher Temperaturgradient, in dem die Plattenoberflächentemperatur bei einem Einsatz zwischen  $110$  und  $155^\circ\text{C}$  lagen, in drei Einsätzen zwischen  $140$  und  $185^\circ\text{C}$ . Die mittleren Plattenoberflächentemperaturen in den 3 hintereinander stehenden Plattengruppen betrugen dann  $120$ ,  $135$  und  $150^\circ\text{C}$  bzw.  $150$ ,  $165$  und  $180^\circ\text{C}$ . Die Temperaturverteilung wurde durch Regelung des Kühlwasserdurchflusses konstant gehalten /6/. Die Schwankungen der Plattenoberflächentemperaturen lagen innerhalb  $\pm 5^\circ\text{C}$ .

Der Uran-Abbrand durch Spaltprozesse lag in der einleitenden Versuchsreihe mit niedrigen Plattentemperaturen zwischen 6,5 und 47%, in der Hauptversuchsreihe mit erhöhten Plattentemperaturen einmal bei 28%, sonst aber zwischen 53 und 72%. Die relative Ungenauigkeit der durch radiochemische Analyse bestimmten Abbrandwerte beträgt  $\pm 5\%$ . Die Schwankung des lokalen Abbrandes innerhalb eines 12 Platten-Einsatzes blieb innerhalb dieses Ungenauigkeitsintervalles; das ergab die Untersuchung der Abbrandverteilung durch  $\gamma$ -Scan-Messungen an den einzelnen Platten nach Bestrahlung.

Abb. 1 zeigt den typischen Verlauf der Plattenleistung, des Kühlwasserflusses, der Kühlwasseraustrittstemperatur, und der mittleren Plattentemperaturen mit der Bestrahlungszeit in einem Bestrahlungseinsatz der Hauptversuchsreihe. In Tab. 1 sind die Uranaluminid-Beladungen, die Bestrahlungstemperaturen, die Abbrände der bestrahlten Brennstoffplatten und die Anzahl der jeweils betreffenden Platten in der Reihenfolge der Bestrahlungseinsätze zusammengestellt. Insgesamt wurden 76 Platten bestrahlt.

### 3. Versuchsergebnisse

#### 3.1 Schwellung der Brennstoffplatten unter Bestrahlung

Für die in Tab. 1 angegebenen Bestrahlungsbedingungen wurden in keinem Fall Hüllschäden durch Blasen- oder Rissbildung an den Brennstoffplatten

beobachtet, die auf das Bestrahlungsverhalten des Brennstoffkernes zurückzuführen wären. Es gab zwar Fälle, in denen eine Abgabe von radioaktiven Spaltprodukten in das Kühlwasser erfolgte; diese war aber offensichtlich meistens durch die Anbringung von Thermoelementen in Nuten der Plattenhülle verursacht, in einem Fall möglicherweise auch durch einen Bindungsfehler der Hülle zwischen Rahmen und Deckblech. Daher muss die Beurteilung des Bestrahlungsverhaltens der Brennstoffplatten, besonders im Hinblick auf den technischen Einsatz entsprechender Platten, in erster Linie aufgrund ihrer Schwellung unter Bestrahlung erfolgen. Daneben kommt auch die Nachschwellung bei einer Nachbestrahlungs-Glühung der Platten in Betracht, die oft als "Blistertest" bezeichnet wird.

Zur Untersuchung der Schwellung erfolgten vor und nach der Bestrahlung an den Brennstoffplatten Gewichtsbestimmungen und Volumenbestimmungen nach dem Auftriebsverfahren. Als Auftriebsflüssigkeit wurde Tetrachlorkohlenstoff verwendet. Ein Kontrollwert für die Volumenänderung sowie eine Darstellung ihrer Verteilung über die Plattenoberfläche wurde durch Messung der Plattendicke vor und nach der Bestrahlung gewonnen. Sie erfolgte durch Aufnahme des Dickenprofils in Längsrichtung der Platten auf jeweils drei Spuren in der Plattenmitte bzw. in der Nähe der beiden Ränder des Brennstoffkernes. Abb.2 zeigt ein an einer bestrahlten Brennstoffplatte gemessenes Dickenprofil. Zur Bestimmung der mittleren Dickenänderung der Platten über der Brennstoffkern-Fläche wurden die drei Dickenprofile (Rand, Mitte, Rand) mit der Wichtung  $1/4 : 1/2 : 1/4$  herangezogen. Die so ermittelte Volumenänderung führte innerhalb der Fehlergrenzen zu gleichen Auswertungsergebnissen wie die nach dem Auftriebsverfahren gemessene Volumenänderung. Der Auswertung wurde im allgemeinen die Dickenmessung zugrundegelegt.

Das eigentliche Ziel der Auswertung zum Schwellverhalten der Brennstoffplatten war es, die Volumenvergrößerung des Uranaluminid-Aluminium-Kernes innerhalb der Aluminium-Hülle der Platten zu ermitteln. Dabei ergaben sich Schwierigkeiten durch die Korrosion der Plattenhülle, die bei den höheren Bestrahlungstemperaturen zur Bildung ziemlich dicker Oxidschichten führte. Abb.3 zeigt korrodierte Platten nach der Bestrahlung. Die Oxidschicht muss bei der Auswertung der gemessenen Plattenvolumen-änderung berücksichtigt werden. Dazu wurde die Dicke der Oxidschicht

mit einem Wirbelstrommessgerät zur Messung isolierender Schichten auf Metallen bestimmt. Die Messung erfolgte für jede 4 cm x 1 cm Fläche eines Messrasters auf den Platten. Bei der niedrigen Bestrahlungstemperatur von etwa 70°C blieb die mittlere Oxidschichtdicke stets, d.h. bis zu 7000 h Bestrahlungsdauer  $\leq 4$   $\mu\text{m}$ . Bei 150 - 180°C betrug sie nach 9000 h 55 - 70  $\mu\text{m}$ . Bei längerer Bestrahlungsdauer ergab sich ein allgemeiner Oxidabtrag durch Abplatzungen, so dass die verbleibende Oxidschichtdicke bei 70 - 100  $\mu\text{m}$  stagnierte. Durch die getrennte Messung der Gewichts- und der Volumenänderung der Brennstoffplatten unter Bestrahlung war es jedoch möglich, die Abplatzungen bei der Bestimmung der Platten-Schwellung zu berücksichtigen. Der Zerklüftung der vorhandenen Oxidschicht konnte durch die Dickenprofilmessung, wie sie in Abb.2 gezeigt ist, Rechnung getragen werden. Für jede Plattenseite wurde die mit dem Wirbelstrommessgerät gemessene Schichtdicke, die die Maximalwerte für die zerklüftete Schicht wiedergibt, um die Differenz zwischen dem maximalen und dem mittleren Dickenprofil vermindert, wie sie in Abb.2 erkennbar ist. Für die Oxidschicht, deren mittlere Dicke sich auf diese Weise ergeben hatte, wurde ausserdem angenommen, dass sie auf der Platte nur im Flächenbereich des Brennstoffkernes vorliegt und aus  $\text{Al}_2\text{O}_3$  theoretischer Dichte besteht.

Die aus der Auswertung resultierenden Ergebnisse für die prozentuale Brennstoffkern-Volumenvergrösserung sind in Abb.4 in Abhängigkeit vom Uran-Abbrand des Brennstoffes dargestellt. Dabei sind die Messwerte für die  $\text{UAl}_3$ -Al- und  $\text{UAl}_2$ -Al-Platten verschieden markiert und diejenigen für die  $\text{UAl}_2$ -Al-Platten mit erhöhter Uran-Beladung noch besonders hervorgehoben. In das Diagramm sind eine Gerade sowie schraffierte Bänder eingezeichnet, die den Verlauf der Schwellung für eine mittlere Plattenoberflächentemperatur von 70°C bzw. für erhöhte Temperaturen von 150 - 180°C darstellen. Von den Messwerten nach hohen Abbränden bei erhöhter Temperatur erschienen diejenigen nach 60% Abbrand am zuverlässigsten, weil die Oxidschichten auf den Brennstoffplatten des betreffenden Bestrahlungseinsatzes besonders geringe Abplatzungen und Zerklüftungen aufwiesen und damit die genaueste Berechnung der Brennstoffkern-Volumenänderung zuließen. Das Gegenteil galt für die Messwerte nach 72% Abbrand, deren Auswertung durch ziemlich unregelmässige Oxid-Abplatzungen an den Brennstoffplatten verunsichert war. Daher wurden diese Messwerte bei der Verlegung der schraffierten Ergebnissbänder in Abb.4 ausser Betracht gelassen. Sie wurden jedoch mit

eingetragen, um zu zeigen, dass nach 72% Abbrand keine Beschleunigung der Schwellrate erkennbar war. Der verschiedene Zustand der Oxidschichten dürfte auf Unterschieden in Einzelheiten des Bestrahlungsverlaufes wie Umsetzungen im Reaktor, Reaktorabschaltungen, kurzzeitigen Kühlmitteledurchfluss- und Temperaturänderungen und ähnlichem beruhen.

Die Messwerte und die Ergebnisbänder in Abb.4 zeigen, dass bis zu 33 - 40% Uran-Abbrand nur eine relativ geringe Volumenzunahme des Brennstoffkernes erfolgte, die dem Abbrand proportional zu sein scheint und 0,12 Vol.-% je % Abbrand beträgt. Oberhalb 40% Abbrand ergab sich für die erhöhten Bestrahlungstemperaturen (mittlere Plattenoberflächentemperatur  $\geq 150^{\circ}\text{C}$ ) eine viel stärkere Volumenzunahme. Die Schwellung des Brennstoffkernes schien in diesem Bereich mit der Plattentemperatur anzusteigen, wie im besonderen die Messwerte nach 60% Abbrand zeigen. Auch die Messwerte nach 53% Abbrand lassen sich diesem Zusammenhang unter Berücksichtigung ihres Streubereiches zuordnen. Die Schwellrate für die  $\text{UAl}_2$ -Al-Platten scheint bei gleicher Uran-Beladung etwas höher zu liegen als für die  $\text{UAl}_3$ -Al-Platten; der Unterschied geht jedoch kaum über die grösste Streubreite der Messwerte hinaus. Es erscheint daher angebracht, für die weitere Diskussion der Schwellung der Brennstoffplatten unter Bestrahlung den gleichen Verlauf für alle Uranaluminid-Brennstoffkerne bei gleicher Uran-Beladung (entspr. 50 Gew.-%  $\text{UAl}_3$ ) anzunehmen. Die zwei  $\text{UAl}_2$ -Al-Platten mit um 20% erhöhtem Uran-Gehalt zeigten keine höhere Schwellung bei gleichem Uran-Abbrand.

### 3.2 Nachschwellung der Brennstoffplatten durch Glühung nach Bestrahlung (Blistertest)

Es ist unter verschiedenen Aspekten interessant, auch das Schwellungspotential der Brennstoffplatten durch Ausscheidung bzw. Freigabe von Spaltgasen im Brennstoffkern für den Fall einer Überhitzung weit über die normale Betriebstemperatur kennenzulernen. Dazu wurden an einigen bestrahlten Platten aus jedem Bestrahlungseinsatz Glühversuche durchgeführt, bei denen sie auf nacheinanderfolgenden Temperaturstufen von 200, 300, 400 und  $500^{\circ}\text{C}$  je 1 Stunde lang erhitzt wurden. Nach jeder Stufe erfolgte eine Messung der Plattenvolumenänderung nach dem Auf-

triebsverfahren in Tetrachlorkohlenstoff als Auftriebsflüssigkeit. Dieser Schwellungsversuch wird gelegentlich als Blistertest bezeichnet, weil er unter Umständen zur Bildung von grossen Spaltgasblasen unter der Plattenhülle führen kann (s. Abb.6).

Bis zu 300°C wurde keine systematische Volumenvergrößerung der Brennstoffplatten durch die Glühbehandlung gefunden. Bei 400°C ergaben sich die ersten eindeutigen Effekte, allerdings fast nur an denjenigen Platten, die bei niedriger Temperatur (mittlere Plattenoberflächentemperatur 70°C) bestrahlt worden waren. An den bei erhöhter Temperatur bestrahlten Platten ergaben sich bis 400°C nur geringe, unsystematische Schwankungen des Plattenvolumens und erst bei 500°C beträchtliche Volumenvergrößerungen. In Abb. 5 sind die Volumenvergrößerungen nach der 500°C-Glühung als relative Änderung des Brennstoffkern-Volumens dargestellt und in Abhängigkeit vom Uran-Abbrand aufgetragen. Die Markierung der Messpunkte entspricht derjenigen in Abb.4. Bei 47% Abbrand ist am oberen Rand des Diagramms auf eine ganz extreme Schwellung nach Bestrahlung bei niedriger Temperatur hingewiesen. Abb.6 zeigt die entsprechende starke Blasenbildung an der geglühten Platte. In allen anderen Fällen konnten keine erkennbaren Blasen gefunden werden. Diese Ergebnisse entsprechen für niedrige Bestrahlungstemperatur den Angaben anderer Autoren bezüglich der aus Blistertests ermittelten Versagensgrenzen /7, 8/; sie liegen nach 40 und 50% Abbrand bei etwa 440 bzw. 400°C. Für die erhöhten Bestrahlungstemperaturen besteht jedoch keine Übereinstimmung; die zu erwartende Blasenbildung im Blistertest nach Abbränden >25% trat hier nicht ein. Neben den nach der 500°C-Glühung gemessenen Werten ist in Abb.5 auch die Volumenänderung der bei niedriger Temperatur (70°C) bestrahlten Platten nach der 400°C-Glühung eingetragen.

Aus Abb. 5 lässt sich entnehmen, dass die bei niedriger Temperatur bestrahlten Brennstoffplatten in den Glühversuchen eine Schwellung ergaben, die mit der Glühtemperatur und mit dem Abbrand stark zunahm und die für die  $UAl_3$ -Al-Platten viel grösser war als für die  $UAl_2$ -Al-Platten. Für die Brennstoffplatten, die bei erhöhten Temperaturen bis zu hohen Abbränden (≥53,5%) bestrahlt worden waren, ergaben sich in den Glühversuchen Schwellwerte, die bei den  $UAl_2$ -Al-Platten etwa auf dem gleichen

Niveau wie nach Bestrahlung bei niedriger Temperatur lagen. Bei den  $UAl_3$ -Al-Platten waren die Schwellwerte jedoch viel kleiner als nach Bestrahlung bei niedriger Temperatur, lagen nicht mehr höher als für die  $UAl_2$ -Al-Platten und schienen sogar mit steigendem Abbrand zu fallen.

### 3.3 Reaktion zwischen Brennstoffteilchen und Al-Matrix

#### 3.3.1 Reaktionsverlauf

Bei den hier gewählten Bestrahlungstemperaturen für die Brennstoffplatten, die etwa den gesamten in Reaktor-Brennelementen zu erwartenden Temperaturbereich erfassen, ist ohne Bestrahlungseinfluss keine chemische Reaktion zwischen den Uranaluminid-Teilchen und der Aluminium-Matrix zu erwarten /9/. Dagegen kann es durch die Uran-Spaltungen im Reaktorneutronenfluss zu einer ziemlich schnellen, bestrahlungsbedingten Reaktion kommen. Der Reaktionsablauf ist wegen seiner metallphysikalischen Aspekte von mehr grundsätzlichem Interesse; der schliesslich erreichte Reaktionsumfang hat aber auch technische Bedeutung, weil ihm ein unerwünschter Abbau der Aluminium-Matrix des Dispersionsbrennstoff-Kernes in den Brennstoffplatten entspricht (Abb. 7). Daher wurde versucht, die von der Reaktion betroffenen Volumenanteile des Dispersionsbrennstoffes quantitativ zu erfassen.

Abb. 8 und 9 zeigen ursprüngliche  $UAl_3$ - bzw.  $UAl_2$ -Teilchen, die unter Bestrahlung teilweise mit der Al-Matrix reagiert haben. Sie erscheinen nun deutlich zwei- bzw. dreiphasig. Für das Vorliegen definierter Phasen als Reaktionsprodukte sprach auch das Ergebnis einiger Versuche zur Elektronenstrahl-Mikrosonden-Analyse. Sie ergaben eine ziemlich scharfe Abstufung der Uran-Konzentration an den Grenzen von Bereichen verschiedener Helligkeit wie sie in Abb.8 und 9 erkennbar sind. Im Inneren dieser Bereiche war die Uran-Konzentration jeweils konstant. Die Uran-Konzentrationsverhältnisse entsprächen bei Berücksichtigung des Abbrandes ungefähr der Zusammensetzungsfolge  $UAl_3/UAl_5$  für ursprüngliche  $UAl_3$ -Teilchen und  $UAl_2/UAl_3/UAl_5$  für ursprüngliche  $UAl_2$ -Teilchen, jeweils von den dunklen zu den helleren Zonen fortschreitend. Die Phase mit der Zusammensetzung  $UAl_5$  ist dabei als ein bezüglich des U-Gehaltes stark unterstöchiometrisches  $UAl_4$  anzusehen. Am äusseren Rand der

Uranaluminid-Teilchen<sup>+)</sup>  war in der Aluminium-Matrix eine Spaltfragmentbeschusszone von  $10 \pm 3 \mu\text{m}$  Tiefe erkennbar, in der noch ein allmählicher Anstieg der Al-Konzentration nach aussen hin erfolgt, aber kein nachweisbarer U-Gehalt mehr vorliegt. Andererseits zeigte sich nach innen hin in der Randzone der Uranaluminid-Teilchen noch ein gewisser Anstieg der U-Konzentration bei entsprechend abnehmender Al-Konzentration.

Die quantitative Bestimmung der in den Gefügebildern erkennbaren Phasenteile im bestrahlten Dispersionsbrennstoff erfolgte im Prinzip durch eine sogenannte Linearanalyse. Dabei werden für eine Linienschar, die das Gefügebild überlagert, jeweils die Längenteile im Bereich einer Phase aufsummiert und als Mass für deren Volumenanteil verwendet. Das Messverfahren wurde hier durch Konstruktion eines Integrationstisches für photographische Gefügebilder teilautomatisiert. Dieser Messtisch lässt sich unter einer Beobachtungslupe mit Fadenkreuz durch Schraubenspindeln in zwei zueinander senkrechten Richtungen verschieben. In der einen Richtung können Schraubenspindeln durch mehrere Elektromotoren mit Umdrehungszählern alternativ angetrieben werden. Wenn zum Durchfahren der zu verschiedenen Phasen gehörigen Bilderbereiche mit der Beobachtungsmarkierung jeweils auch verschiedene Antriebsmotoren eingeschaltet werden, gibt die Anzeige der verschiedenen Umdrehungszähler ein Mass für die Volumenanteile der Phasen. Aus jedem zur Messung herangezogenen Brennstoffplatten-Kern wurden 4 Flächen von je etwa  $0,8 \text{ mm}^2$  vermessen; das entspricht einer Fläche von etwa  $4 \times 80 \text{ cm}^2$  in den zur Auswertung verwendeten 100-fach vergrösserten photographischen Gefügebildern. Der Abstand der auf diesen Bildern durchfahrenen Mess-Spuren betrug je 2 mm.

Da mit diesen Messungen vor allem grundsätzliche Aussagen über die Kinetik der bestrahlungsbedingten Reaktion zwischen den Uranaluminid-Teilchen und der Aluminium-Matrix angestrebt wurden, wurden sie auf  $\text{UAl}_3$ -Al-Platten beschränkt, in denen einfachere Verhältnisse (als in den  $\text{UAl}_2$ -Al-Platten) mit nur einer Reaktionsprodukt-Phase vorlagen. Im wei-

---

<sup>+)</sup>  Wenn im folgenden von "Uranaluminid"-Teilchen geschrieben wird, wird als selbstverständlich vorausgesetzt, dass in diesen Teilchen nach hohem Abbrand ein grosser Teil des Urans durch Spaltprodukte ersetzt ist. Diese können in den ursprünglichen Uranaluminid-Phasen gelöst oder in neuen, fein verteilten Phasen ausgeschieden sein.

teren Verlauf zeigte sich, dass nur in den bei tiefer Temperatur ( $70^{\circ}\text{C}$  an der Plattenoberfläche) bestrahlten Platten eine für die Messung ausreichend scharfe Abgrenzung der verschiedenen Phasen gegeben war. Abb. 11 gibt die von den entsprechenden  $\text{UAl}_3$ -Al-Platten stammenden Ergebnisse wieder. Proben aus den bei höheren Temperaturen bestrahlten Platten zeigten eine starke Verwischung der Phasenkonturen (Abb. 10), die wahrscheinlich auf diffusionsbedingte Spaltproduktausscheidungsvorgänge zurückzuführen ist, die erst bei diesen Temperaturen ( $\geq 120^{\circ}\text{C}$ ) ablaufen.

In Abb. 11 ist der Reaktionsverlauf in Abhängigkeit vom Abbrand durch zwei verschiedene Zusammenhänge dargestellt. Eine Kurve zeigt die prozentuale Verminderung des ursprünglich vorhandenen  $\text{UAl}_3$ -Volumens durch fortschreitende Verbreiterung der Reaktionsproduktschichten um die Teilchen. Die andere Kurve zeigt die Vergrößerung des gesamten Teilchenvolumens (einschliesslich der Reaktionsproduktschichten) auf Kosten der Al-Matrix, und zwar durch den prozentualen Anteil der Teilchen am Volumen des Dispersionsbrennstoff-Kernes der Platten. Dem Diagramm ist zu entnehmen, dass die ursprünglichen  $\text{UAl}_3$ -Teilchen bereits nach 10-15% Abbrand zu 50 Vol.-% von der Reaktion mit der Al-Matrix erfasst sind, und dass die Reaktion nach 50% Abbrand weitgehend abgelaufen ist. Das Diagramm zeigt ausserdem, dass der Volumenanteil der  $\text{UAl}_3$ -Teilchen am Plattenkern ursprünglich 28-29 Vol.-% betragen haben sollte, und dass die Teilchen nach 50 % Abbrand 45-46 Vol.-% des Plattenkernes einnehmen. In Abb. 11 sind auch Messwerte von bei höheren Temperaturen ( $130$ - $180^{\circ}\text{C}$  an der Plattenoberfläche) bestrahlten  $\text{UAl}_3$ - und  $\text{UAl}_2$ -Al-Platten eingetragen. Wie durch eine strichpunktierte Linie angedeutet ist, lassen sie sich mit einer weiteren Volumenzunahme der Brennstoffteilchen durch Spaltproduktschwellung vereinbaren. Die Messwerte für die höher beladenen  $\text{UAl}_2$ -Al-Platten (ca. 60 Vol.-% für ursprünglich 54,5 Gew.-%  $\text{UAl}_2$ ) liegen um etwa 10 Vol.-% höher als bei normaler Beladung (45,5 Gew.-%  $\text{UAl}_2$ ). Die gestrichelte Kurve für den Brennstoffteilchen-Volumenanteil zeigt zum Vergleich mit den Messwerten den Verlauf, der sich aus dem  $\text{UAl}_3$ -Al-Reaktionsumsatz und aus der Schwellung des Brennstoffkernes gem. Abb. 4 ergeben würde.

### 3.3.2 Härte- und Festigkeitsänderung

Die bisher in diesem Abschnitt behandelten Beobachtungen und Messungen betrafen in erster Linie die Uran- und Aluminium-Konzentrationsverteilung im Bereich der ursprünglichen Uranaluminid-Teilchen. Um auch einige Hinweise auf den Einfluss der Spaltprodukte zu erhalten, wurden in den verschiedenen Gefügezonen Mikrohärtmessungen durchgeführt. Sie erfolgten im Verlauf der mikroskopischen Gefügeuntersuchung nach dem Vickers-Verfahren. Die Eindruckbelastung betrug dabei 5 p für Messeindrücke im Bereich der Al-Hülle und Al-Matrix und 25 p im Bereich der U-haltigen Phasen. In Abb. 12 sind die Ergebnisse in Abhängigkeit vom Uran-Abbrand der Brennstoffplatten dargestellt. Die linke Seite des Diagramms enthält Ergebnisse von Brennstoffplatten, die bei einer mittleren Temperatur von 70°C bestrahlt wurden. Auf der rechten Seite sind auch Ergebnisse für eine Bestrahlungstemperatur von 150°C eingetragen, die überwiegend bei hohen Abbränden erhalten wurden. Bei 70°C zeigte die "UA<sub>4</sub>"-Phase keinen Härtungseffekt der eingelagerten Spaltprodukte, der über den Streubereich für unbestrahltes UA<sub>4</sub> hinausgeht. Nach etwa 30% Abbrand begann die Härte im "UA<sub>4</sub>"-Bereich mit steigendem Abbrand zu sinken. Die "UA<sub>3</sub>"-Phase zeigte eine deutliche, etwa 30%ige Härtesteigerung, die von 6,5% Abbrand an lange unverändert blieb. Oberhalb von etwa 35% Abbrand erfolgt eine ähnliche Härteabnahme wie für "UA<sub>4</sub>". Der "UA<sub>2</sub>"-Bereich zeigt dagegen eine kontinuierliche Verminderung der Härte im gesamten erfassten Abbrandintervall. Bei der erhöhten Bestrahlungstemperatur von 150°C scheint der Härteabfall -mindestens für "UA<sub>3</sub>" und "UA<sub>4</sub>"- schon bei niedrigerem Abbrand einzutreten. Oberhalb von 50% Abbrand zeigten "UA<sub>2</sub>", "UA<sub>3</sub>" und "UA<sub>4</sub>" dann einen Wiederanstieg der Härte. In der unmittelbaren Umgebung der U-haltigen Teilchen unterliegt auch die Al-Matrix mit einer sogenannten Recoilzone dem Spaltfragment-Beschuss aus den Teilchen. Diese Zone war bei der Elektronenstrahl-Mikrosonden-Analyse bis zu einer Tiefe von 10±3 µm nachweisbar und ist auch auf Gefügebildern mit einer Tiefe von 12-15 µm erkennbar. Abb.12 gibt auch den Härteverlauf in diesem Bereich wieder. Die Al-Matrix zeigte dort bei 70°C eine starke Härtesteigerung mit steigendem Abbrand, die nach etwa 40% Abbrand gesättigt erschien. Bei der erhöhten Bestrahlungstemperatur von 150°C scheint die anfängliche Härtung der Recoilzone durch die eindringenden Spaltfragmente zu entfallen. Wie in

den Brennstoffteilchen folgt aber noch eine starke Härtung im Bereich hohen Abbrandes oberhalb von 40-50%. Die Härte der Al-Matrix ausserhalb der Recoil-Zonen und die Härte der Al-Hülle in den Brennstoffplatten blieben unter Bestrahlung unverändert und lagen bei HV 0,005  $860-70 \text{ kp/mm}^2$  (Matrix) bzw.  $40 \text{ kp/mm}^2$  (Hülle).

Um einen Eindruck von der Festigkeitsänderung der ganzen Brennstoffplatte zu erhalten, die sich durch die Gefügeänderungen im Plattenkern während der Bestrahlung ergibt, wurden auch einige Zugfestigkeitsprüfungen an bestrahlten Platten durchgeführt. Sie erfolgten an Flachzugproben mit 25 mm Messlänge und 4 mm Breite (Dicke = 1,3 mm Plattendicke), die für Belastung in der Längsrichtung der Platten orientiert aus den Platten herausgestanzt wurden. Die Zugversuche waren auf  $\text{UAl}_3$ -Al-Platten nach 16,5% Abbrand beschränkt, weil nur nach dem entsprechenden, frühesten Bestrahlungsversuch die benötigte Prüfeinrichtung in den Heissen Zellen zur Verfügung stand. Sie wurden bei einer Prüftemperatur von  $180^\circ\text{C}$  unter Feindehnungsmessung mit Dehnungsmessstreifen durchgeführt. Abb.13 zeigt den typischen Verlauf des Last/Dehnungs-Diagramms, das den Bruch des weniger duktilen Plattenkernes von dem folgenden Bruch der Plattenhülle getrennt erkennen lässt. An den Proben aus unbestrahlten Platten betrug die Höchstlast bis zum Bruch des Plattenkernes  $36 \pm 0,5 \text{ kp}$ , die entsprechende plastische Dehnung  $0,35 \pm 0,2\%$ . Für die Proben aus den bestrahlten Platten ergab sich dagegen eine Höchstlast von  $45 \pm 4 \text{ kp}$  bei einer plastischen Dehnung von  $0,05 \pm 0,03\%$ .

#### 4. Diskussion

##### 4.1 Brennstofftemperatur

Wie bereits einleitend erwähnt, betraf diese Untersuchung in erster Linie das Verhalten des Dispersionsbrennstoff-Kernes in den bestrahlten Platten, und zwar in Abhängigkeit von seiner Zusammensetzung, vom Abbrand und von der Bestrahlungstemperatur. Als Bestrahlungstemperatur wurde im vorangehenden Abschnitt jeweils die Temperatur der Aluminiumhülle der Platten im Bereich des Brennstoffkernes angegeben, wie sie sich aus direkten Messungen in den ersten 3 bis 4 Reaktorzyklen ergeben hatte. Im weiteren Bestrahlungsverlauf -nach Ausfall der Thermoelemente- wurden die Plattentemperaturen über die Kühlwassereintritts- und aus-

trittstemperaturen kontrolliert und konstant gehalten. Das heisst aber, dass das Temperaturgefälle innerhalb der Platten und auch in der Oxidschicht, die sich an der Plattenoberfläche durch Korrosion im Verlauf der Bestrahlung bildet, in den Temperaturangaben nicht mit erfasst ist. Das Produkt aus der Wärmeflussdichte an der Plattenoberfläche (in  $\text{W/cm}^2$ ) und der Oxidschichtdicke (in cm) war jedoch im Anfangs-, Mittel- und Endstadium der Bestrahlung nicht grösser als  $100 \cdot 0,001$ ;  $50 \cdot 0,005$  bzw.  $25 \cdot 0,01$   $\text{W/cm}$ . Bei einer  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Wärmeleitfähigkeit von etwa  $0,25 \text{ W/cm} \cdot \text{K}$  bestand daher ein Temperaturgefälle von höchstens 1 K in der Oxidschicht. Auch das Temperaturgefälle innerhalb der Platte betrug nur etwa 1 K. Die Abweichung der Brennstoffkern-Temperaturen von den angegebenen Plattenoberflächentemperaturen bleibt damit innerhalb der Messfehlergrenzen und braucht im folgenden nicht besonders berücksichtigt zu werden.

#### 4.2 Reaktion, Spaltproduktaufnahme und Wachstum der Brennstoff-Teilchen

Zunächst soll die Reaktion zwischen den Uranaluminid-Teilchen und der Aluminium-Matrix qualitativ betrachtet werden. Bei tiefen Bestrahlungstemperaturen reagiert die  $\text{UAl}_3$ -Phase durch bestrahlungsbedingte Al-Diffusion in einer Reaktionszone entsprechend gleichmässiger Dicke zu einer  $\text{UAl}_4$ -Phase, die nach Mikrosondenanalysen-Ergebnissen einen stark unterstöchiometrischen U-Gehalt aufweist, auf den auch schon von anderen Autoren hingewiesen wurde /3, 10/. Sie ergibt in dieser Zusammensetzung bei der metallographischen Untersuchung einen hohen Ätzkontrast gegen die  $\text{UAl}_3$ -Phase. Sie kann ziemlich zwanglos einen grossen Spaltproduktanteil in fester Lösung aufnehmen und zeigt daher keine erkennbare Aufhärtung unter Bestrahlung /s.a. 11/. Nach etwa 30% Abbrand erscheint ihre Aufnahmefähigkeit für Spaltprodukte erschöpft; der Härteabfall mit höherem Abbrand deutet auf eine starke Spaltproduktausscheidung hin. Bei höheren Bestrahlungstemperaturen ( $>120^\circ\text{C}$ ) scheinen die erwähnten Effekte (U-Unterstöchiometrie + Spaltproduktlösung) weniger ausgeprägt zu sein, so dass die Erkennbarkeit der Reaktionszone durch Ätzkontrast viel schlechter wird und der Härteabfall durch Spaltproduktausscheidung früher erfolgt. Die Härtemessungen im  $\text{UAl}_3$ -Bereich zeigen, dass sich dort ebenfalls erst nach hohem Abbrand, oberhalb etwa 35%, eine starke Spaltproduktausscheidung bemerkbar macht, die bei höherer Temperatur früher aufzutreten scheint.

Dagegen deutet der laufende Härteabfall im  $UAl_2$ -Bereich auf ein relativ geringes Spaltproduktaufnahmevermögen der  $UAl_2$ -Phase hin. Bei sehr hohem Abbrand ( $\approx 50\%$ ) wird die Härte in den Brennstoffteilchen überwiegend durch den Spaltproduktanteil bestimmt, so dass die Härteunterschiede verschwinden. Der Anstieg der Härte (auch in der Recoilzone), der in diesem Abbrandbereich bei erhöhter Bestrahlungstemperatur ( $150^\circ\text{C}$ ) beobachtet wurde, kann hier nicht gedeutet werden, weil er in einem sehr komplexen Material erfolgte, das zu den ursprünglichen Uran-Aluminiden (bzw. zu der Al-Matrix) kaum noch eine Beziehung hat.

Was den Volumenanteil der  $UAl_3$ -Brennstoffteilchen am Brennstoffkern der Platten betrifft, so zeigten frühere Abschätzungen /4/, dass er (für 50 Gew.-%  $UAl_3$ ) vor der Bestrahlung und Reaktion mit der Al-Matrix 28,5 Vol.-% betragen sollte, nach vollständiger Reaktion zu  $UAl_4$  35 Vol.-% und unter Berücksichtigung des Volumenbedarfes der eingelagerten Spaltprodukte nach 40% Abbrand 43,5 Vol.-%. Nach 50% Abbrand würden sich 45,5 Vol.-% ergeben. Im Hinblick auf die nicht ganz vollständige Reaktion des  $UAl_3$  (s. Abb. 11) ist hier der abgeschätzte Volumenanteil nach hohen Abbränden um etwa 1 Vol.-% zu reduzieren. Abb. 11 zeigte gemessene Volumenanteile von 28-29 Vol.-% vor Bestrahlung (extrapoliert) und 45-46 Vol.-% nach 50% Abbrand. Damit besteht zwar eine gute Übereinstimmung mit den berechneten Werten, diese hatten sich aber für eine Schwellrate des Brennstoffkernes von 0,23 Vol.-% je % Abbrand ergeben, die viel höher liegt als die hier gemessene (s. 4.4). In Abb. 11 ist auch der Verlauf der berechneten Kurve für die hier gemessene Schwellrate eingetragen. Die bestehende Diskrepanz, die übrigens nur wenig über die Messwertstreuung hinausgeht, könnte dadurch zu deuten sein, dass die  $UAl_3$ -Al-Reaktion nicht zum stöchiometrischen  $UAl_4$  führt, sondern zur (bezüglich des U-Gehaltes) unterstöchiometrischen Zusammensetzung von etwa  $UAl_5$  (s. 3.3.1). Die unterstöchiometrische Phase könnte dann durch Spaltprodukteinbau allmählich in (U, Spaltprodukte)  $Al_4$  übergehen. Dadurch ergäbe sich ein Vorlauf der erhöhten Reaktionsschwellung vor der verminderten Spaltproduktschwellung. Die Lage der Messpunkte bei erhöhter Bestrahlungstemperatur und sehr hohem Abbrand lässt auf eine beträchtlich geringere Schwellrate der Brennstoffteilchen schliessen, als die berechnete Kurve aufgrund der integralen Schwellra-

te des Brennstoffkernes erwarten lässt. Wahrscheinlich beruht das darauf, dass die integrale Schwellung des Brennstoffkernes bei hohen Werten einen beträchtlichen Anteil von neu gebildeten Hohlräumen enthält, die sich in der Nachbarschaft stark geschwollener Brennstoffteilchen gebildet haben.

Abb.11 zeigt im übrigen, dass der Volumenanteil der Brennstoffteilchen bei normaler Uran-Beladung (entspr. 50 Gew.-%  $UAl_3$ ) erwartungsgemäss stets unterhalb des als kritisch angesehenen Wertes von 60 Vol.-% /4/ geblieben ist. In den  $UAl_2$ -Platten mit der um relativ 20% erhöhten Uran-Beladung (54,5 Gew.-%  $UAl_2$ ) wurde die 60 Vol.-%-Grenze gerade erreicht, jedoch ohne erkennbare nachteilige Folge.

Die Verbesserung der Haftung durch die Reaktion zwischen Brennstoffteilchen und Al-Matrix und die Aufhärtung der Recoil-Zone in der Al-Matrix führen zu einer gewissen Erhöhung der Festigkeit des gesamten Dispersionsbrennstoffkernes in den Platten. Andererseits wird dabei aber die duktile Al-Matrix, die den vorzeitigen Bruch einzelner Brennstoffteilchen unter äusserer Belastung der Platten durch starke lokale Verformung aufzufangen vermag, zum Teil aufgezehrt. In einem früheren Bericht /9/ wurde die verbleibende minimale Breite der duktilen Al-Matrix zwischen den Reaktions- und Spaltprodukt-Recoilzonen benachbarter Brennstoffteilchen quantitativ behandelt. Der ursprüngliche mittlere Durchmesser der  $UAl_3$ -Teilchen beträgt 80  $\mu m$  (Siebfraktion 63-90  $\mu m$ ). Wenn sie als kugelförmig und nach Art einer kubisch-dichten Packung gleichmässig verteilt angenommen werden, beträgt ihr kleinster Abstand (für 50 Gew.-%  $UAl_3$ , von Oberfläche zu Oberfläche) etwa 30  $\mu m$ . Er würde durch vollständige Reaktion der  $UAl_3$ -Teilchen zu  $UAl_4$  und durch Spaltprodukteinlagerung auf etwa 15  $\mu m$  zurückgehen. Bei einer Spaltprodukt-Recoilzonendicke von 12  $\mu m$ , deren Annahme sich aufgrund der erwähnten Beobachtungen anbietet, würde dann zwischen den Brennstoffteilchen keine durchgehende Al-Matrix ursprünglicher Duktilität mehr vorliegen. Aber auch in den Proben für die durchgeführten Zugversuche (16,5 % Abbrand, ca. 60%ige  $UAl_3$ -Al-Reaktion) beginnt die Überlappung der Spaltprodukt-Recoilzonen benachbarter Teilchen schon. Die beobachtete starke Abnahme der Bruchdehnung des Brennstoffkernes unter Bestrahlung kann daher auf die Härtung der Al-Matrix

durch Spaltfragment-Einwirkung zurückgeführt werden, aber nicht in erster Linie auf das Wachstum der Brennstoffteilchen durch Reaktion mit der Al-Matrix durch Spaltprodukteinlagerung.

#### 4.3 Bestrahlungsbedingte Diffusion

Für die Geschwindigkeit der Reaktion zwischen den Brennstoffteilchen und der Al-Matrix dürfte in erster Linie die Diffusion von Al-Atomen durch die Reaktionsproduktschicht massgebend sein, die hier auf Gitterschäden durch Spaltfragmente beruht. Der Verlauf des gesamten Reaktionsumsatzes mit dem Abbrand bzw. der Bestrahlungsdauer wird jedoch zu Beginn durch Keimbildungsvorgänge, dann durch die Teilchengrößenverteilung und schliesslich durch die fortschreitende Verminderung des  $UAl_3$ -Anteiles stark beeinflusst und lässt daher keinen unmittelbaren Schluss auf den effektiven Diffusionskoeffizienten zu. Durch Vergleich der Reaktionsdauer für bestimmte Umsätze unter Bestrahlung und bei rein thermischer Reaktion /9/ kann jedoch eine äquivalente Reaktions-Temperatur ermittelt und daran anschliessend ein entsprechender effektiver thermischer Diffusionskoeffizient abgeschätzt werden. Nach Abb.11 und /9/ liegt die äquivalente Temperatur bei etwa  $420^{\circ}C$ . Aus /9/ und /12/ lässt sich für diese Reaktionstemperatur ein effektiver Diffusionskoeffizient von etwa  $10^{-13} \text{ cm}^2/\text{s}$  abschätzen. Eine Abschätzung aufgrund der nach Bestrahlung beobachteten Reaktionsschichtdicken ergibt einen effektiven Diffusionskoeffizienten in der Grössenordnung von  $10^{-14} \text{ cm}^2/\text{s}$ . Nach früheren theoretischen Abschätzungen und Messungen des bestrahlungsbedingten Diffusionskoeffizienten für Uran in Kernbrennstoffen /13, 14/ wären für die hier verwendeten Spaltungsraten (etwa  $3 \cdot 10^{-8}$  Spaltungen/U-Atom·s) höchstens Werte in der Grössenordnung von  $10^{-16}$  bis  $10^{-15} \text{ cm}^2/\text{s}$  zu erwarten, d.h. etwa um einen Faktor 100 niedriger als das aus dem beobachteten Reaktionsablauf resultierende Wertintervall von  $10^{-14}$  bis  $10^{-13} \text{ cm}^2/\text{s}$ . Dieser ziemlich grosse Unterschied könnte auf die viel grössere Diffusionsgeschwindigkeit des Aluminiums (im Vergleich zum Uran) zurückzuführen sein, die sich auch bei der bestrahlungsbedingten Diffusion geltend macht. Quantitative Angaben für das Verhältnis der Diffusionskoeffizienten von Al und U standen jedoch nicht zur Verfügung.

Besser als die absoluten Werte des bestrahlungsbedingten Uran-Diffusionskoeffizienten sollte dessen typische Temperaturabhängigkeit /13/ übertragbar sein, die in Abb.14 als Funktion der homologen Temperatur  $T/T_m$  (in K/K,  $T_m$  Schmelzpunkt) schematisch dargestellt ist. Zwischen etwa 0,25 und 0,32  $T_m$  ist ein beträchtlicher Anstieg des bestrahlungsbedingten Diffusionskoeffizienten mit der Temperatur zu erwarten, unterhalb (und oberhalb) dieses Temperaturbereiches nicht. Eine neue Schwierigkeit ergibt sich nun dadurch, dass die  $UAl_4$ -Phase, die die Reaktionszone charakterisieren soll, nicht schmilzt, sondern bei  $730^\circ\text{C}$  peritektisch zerfällt. Der Vergleich des oben erwähnten thermischen Diffusionskoeffizienten aus der  $UAl_3/Al$ -Reaktion mit den Diffusionskoeffizienten in anderen Uran-Verbindungen im Zusammenhang mit der homologen Temperatur  $T/T_m$  zeigt, dass ein scheinbarer Schmelzpunkt für  $UAl_4$  im Temperaturbereich von etwa  $1000$  bis  $1100^\circ\text{C}$  liegen sollte, aber eher an der oberen als an der unteren Grenze. Damit wären die oben angegebenen charakteristischen Temperaturgrenzen von 0,25  $T_m$  und 0,32  $T_m$  bei  $45$  bis  $70^\circ\text{C}$  bzw.  $135$  bis  $170^\circ\text{C}$  zu erwarten. Das heisst aber, dass in dem hier angewandten Bestrahlungstemperaturbereich von etwa  $70$  bis  $180^\circ\text{C}$  mit einer Beschleunigung bestrahlungsbedingter Diffusionsvorgänge bei steigender Temperatur zu rechnen ist. Diese Tendenz wurde qualitativ durch Änderungen im Ätzverhalten und in der Härte der Reaktionsschicht (nach Bestrahlung) bei Übergang zu höheren Bestrahlungstemperaturen (von  $70^\circ\text{C}$  zu  $>120^\circ\text{C}$ ) bestätigt. Eine quantitative Untersuchung der Reaktionsgeschwindigkeit bei höheren Temperaturen konnte eben wegen des veränderten Ätzverhaltens nicht erfolgen.

#### 4.4 Schwellverhalten

Die Schwellung der Brennstoffkerne in allen Platten mit der Uran-Beladung entsprechend 50 Gew.-%  $UAl_3$  verlief anscheinend bis in die Nähe von 40% Abbrand mit konstanter Geschwindigkeit von etwa 0,12 Vol.-%/Abbrand. Aus der Tatsache, dass der Verlauf der Volumenzunahme in Abb.4 keine Krümmung der Kurve nach unten oder oben erfordert, lässt sich schliessen, dass weder eine bei der Herstellung verbliebene Porosität noch die mit der  $UAl_3$  oder  $UAl_2/Al$ -Reaktion verbundene Volumenzunahme eine beträchtliche Rolle gespielt hat. Bei metallographischen Untersuchungen an unbestrahlten Kontrollplatten war auch keine messbare Porosität nachweisbar.

Die Reaktionsschwellung könnte nach 20% Abbrand nur etwa 1 Vol.-% und nach 40% Abbrand etwa 1,5 Vol.-% betragen. Möglicherweise wird sie durch eine entsprechende geringfügige Porosität kompensiert. Es erscheint also gerechtfertigt anzunehmen, dass die Brennstoffkern-Volumenänderung mit dem Volumenbedarf für die Einlagerung von Spaltprodukten übereinstimmt. Aus den  $UAl_3$ - und  $UAl_2$ -Anteilen von 50 bzw. 45,5 Gew.-% am Brennstoffkern ergibt sich dann ein zusätzlicher Volumenbedarf von 1,6 Uran-Atomvolumen (gemäss dem Volumenbedarf im  $\alpha$ -Uranmetall) je Spaltung. Dieser Wert liegt viel niedriger als bei früheren Abschätzungen aufgrund von Literaturangaben angenommen wurde (4/, 3 U-At.-Volumen/Spaltung). Andererseits wurde oben gezeigt, dass die gemessene Vergrösserung der Brennstoffteilchen unter Bestrahlung mit den Abschätzungen unter Verwendung der hohen Spaltproduktschwellrate gut übereinstimmte (s. 4.2). Diese Diskrepanz wurde dadurch erklärt, dass die Brennstoffteilchen mit der Al-Matrix zunächst unter Bildung von nichtstöchiometrischem  $UAl_{4+1}$  reagieren, d.h. mit erhöhter Al-Aufnahme. Die Bildung von Spaltgasblasen, die zu einer beträchtlich verstärkten Schwellung des Brennstoffkernes führen, scheint bei einem Volumenbedarf von nur 1,6 U-Atomvolumen je Spaltung ausgeschlossen, d.h. also jedenfalls bis fast 40% Abbrand.

Die früher aus der Literatur entnommene Schwellrate von  $6,3 \text{ Vol.-%}/10^{21} \text{ f/cm}^3$  (entspr.  $3,04 \text{ U-Atomvolumen je Spaltung}$ ), die für 50 Gew.-%  $UAl_3$ -Al einem Wert von  $0,23 \text{ Vol.-%}/\%$  Abbrand entspricht, ist von anderen Autoren sehr allgemein verwendet worden, unabhängig vom Brennstofftyp /15, 16/, von der Teilchengrösse /8, 16/ und von der Bestrahlungstemperatur /8/. Der Verlauf der äusseren Brennstoffkern-Volumenänderung erschien ihnen im wesentlichen nur von der ursprünglichen Porosität des Brennstoffkernes (bei Bestrahlungsbeginn) abhängig /8, 16/. Daher überrascht die grosse Abweichung der hier ermittelten, fast um den Faktor 1/2 niedrigeren Schwellrate. Für eine Angleichung der Schwellrate müssten die hier verwendeten Brennstoffplatten eine Brennstoffkern-Porosität von mindestens 6,5 Vol.-% (bei Berücksichtigung von 1,5 Vol.-% Reaktionsschwellung) aufgewiesen haben, die unbedingt nachweisbar gewesen wäre. So bleibt jedenfalls der Schluss, dass die Schwellrate von  $UAl_3$ -Al und  $UAl_2$ -Al-Dispersionsbrennstoff beträchtlich kleiner als  $6,3 \text{ Vol.-%}/10^{21} \text{ f/cm}^3$  sein kann. Das gilt mindestens für niedrige Bestrahlungstemperaturen von etwa  $70^\circ\text{C}$ .

Für die erhöhten Bestrahlungstemperaturen lässt sich dieser Schluss nicht bestätigen, weil hier nur Schwellwerte bei hohen Abbränden vorliegen, aus denen sich mittlere Schwellraten  $\approx 6,3 \text{ Vol.-%}/10^{21} \text{ f/cm}^3$  ergeben. Diese Schwellwerte sollen hier jedoch durch eine Schwellung mit veränderlicher Schwellrate gedeutet werden, die bei den oben erwähnten Versuchen anderer Autoren möglicherweise durch den Porositätseinfluss (mit unbekannter Zeitabhängigkeit) verschleiert worden ist. Diese Deutung besagt, dass sich auch bei erhöhten Bestrahlungstemperaturen zunächst eine niedrigere Schwellrate ergibt, bis die Aufnahmefähigkeit des  $\text{UAl}_{4+x}$ -Gitters für Spaltprodukte, im besonderen für Spaltgase, erschöpft ist. Dann kommt es zur Bildung von Spaltgasblasen und zur Erhöhung der Schwellrate durch Spaltgasschwellung, wobei wahrscheinlich auch die Bildung von Hohlräumen in der Nachbarschaft der schwellenden Brennstoffteilchen zur erhöhten Schwellrate beiträgt (s. 4.2). Es ist zwar festgestellt worden, dass in bestrahlten  $\text{UAl}_3$ -Teilchen überhaupt keine Spaltgasblasen zu finden waren /z.B. 7/, und auch hier wurden lichtmikroskopisch keine Spaltgasblasen beobachtet. Es gibt aber auch gegenteilige Aussagen /11/, und es bleibt unklar, inwieweit die entsprechende Sachlage nach hohen Abbränden für sublichtmikroskopische Blasengrößen geprüft wurde. Im übrigen könnte die angenommene Beschleunigung der Schwellung auch durch Spaltgasblasenbildung oder Änderung der Spaltgasblasen-Struktur in den Recoil-Zonen der Al-Matrix verursacht sein.

Die Nachschwellung der  $\text{UAl}_3$ -Brennstoffplatten bei der  $500^\circ$ -Glühung nach Bestrahlung zeigt einen deutlichen Zusammenhang mit der Spaltgasschwellung während der Bestrahlung. Wie aus Abb. 5 hervorgeht, ergibt sich eine ähnliche Zunahme der Schwellung mit dem Abbrand. Sobald eine beträchtliche Spaltgasschwellung unter Bestrahlung stattgefunden hat, geht die Nachschwellung auf einen wenig veränderlichen Rest zurück. In beiden Fällen scheint der gleiche Mechanismus wirksam zu sein, so dass die Spaltgasschwellung unter Bestrahlung die Nachschwellung grösstenteils ausschliesst. Die im Vergleich zu den  $\text{UAl}_3$ -Al-Platten viel geringere Nachschwellung der bei tiefer Temperatur bestrahlten  $\text{UAl}_2$ -Al-Platten könnte in dieser Betrachtungsweise dadurch erklärt werden, dass sich in den ursprünglichen  $\text{UAl}_2$ -Teilchen (im Gegensatz zu  $\text{UAl}_3$ -Teilchen)

unter Bestrahlung bald sehr kleine Spaltgasblasen bilden. Diese erhöhen die Schwellung unter Bestrahlung nur geringfügig, schliessen aber die Neubildung grösserer Blasen bei der Glühung nach Bestrahlung weitgehend aus. Durch diese Deutung wird die Vermutung bestärkt, dass die hier diskutierten Vorgänge der Spaltgasschwellung mehr die Brennstoffteilchen als die Recoil-Zonen betreffen. Sie würde sich auch mit der Beobachtung vereinbaren lassen, dass die beiden Platten mit erhöhter  $UA1_2$ -Beladung (54,5 statt 45,5 Gew.-%) kein nachweisbar verändertes Schwellverhalten bei gleichem Abbrand (in den Brennstoffteilchen), aber viel höherer Spaltungsdichte zeigten.

Die Frage muss offen bleiben, warum die hier bei erhöhten Temperaturen bis zu hohen Abbränden bestrahlten Brennstoffplatten im Blistertest nicht versagten, obwohl sie bei der  $500^{\circ}C$ -Glühung deutlich oberhalb der oben erwähnten, von anderen Autoren angegebenen Versagensgrenze lagen. Diese wurde für Brennstoffplatten ermittelt, die überwiegend bei Brennstofftemperaturen von  $150 - 200^{\circ}C$  bestrahlt worden waren /8/.

### 5. Schlussfolgerungen

Aufgrund der Diskussion können für den Einsatz von Uranaluminid-Aluminium-Dispersionsbrennstoffen einige Folgerungen gezogen werden:

- Dispersionsbrennelemente mit  $UA1_3$  und  $UA1_2$  sind gleichermassen für sehr hohe Abbrände in Forschungsreaktoren geeignet. Für Brennstoffkerne mit 50 Gew.-%  $UA1_3$  oder 45 bis 55 Gew.-%  $UA1_2$  ist ein Uran-Abbrand bis zu 40% auf jeden Fall zulässig und unproblematisch, und zwar unabhängig von der Bestrahlungstemperatur (bis mindestens  $180^{\circ}C$ ) einschliesslich kurzzeitiger Überhitzung (bis zu  $500^{\circ}C$ ). Bei hohen Bestrahlungstemperaturen ( $140$  bis  $185^{\circ}C$ ) erscheinen auch Abbrände bis zu 60% noch allgemein zulässig.  $UA1_3$ -Al- und  $UA1_2$ -Al-Platten zeigen sehr ähnliches Schwellverhalten.
- Bei tieferen Bestrahlungstemperaturen (nachweisbar bei ca.  $70^{\circ}C$ ) besteht für Abbrände oberhalb 40% die Gefahr der katastrophalen Schwellung von  $UA1_3$ -Al-Brennstoffplatten bei Überhitzung auf Temperaturen oberhalb  $400^{\circ}C$ . Dieses Risiko scheint bei  $UA1_2$ -Al-Brennstoff wesentlich geringer zu sein, so dass er sich für sehr hohen Abbrand (>40%) ohne Einschränkung anbietet.

- Oberhalb von 30 - 40% Uranabbrand beginnen Spaltproduktausscheidungs-  
vorgänge die Eigenschaften des Brennstoffes und das Verhalten der  
Brennstoffplatten zu bestimmen, das dann auch beträchtlich von der  
Temperatur abhängt.
- Die Spaltprodukt-Schwellung ohne Beitrag durch Spaltgasblasenbildung  
kann eine Schwellrate beträchtlich unterhalb des oft verwendeten Wer-  
tes von etwa 6 Vol.-%/10<sup>21</sup>f/cm<sup>3</sup> ergeben. Die niedrigere Schwellrate  
erscheint massgebend für Abbrände bis zu etwa 40% (entspr. 1,5·10<sup>21</sup>f/cm<sup>3</sup>  
für 50 Gew.-% UAl<sub>3</sub>) und auch noch für höhere Abbrände bei niedrigen  
Brennstoffplatten-Betriebstemperaturen.
- Die Reaktion der UAl<sub>3</sub>- und UAl<sub>2</sub>-Brennstoffteilchen mit der Al-Matrix  
erfolgt unter Bildung einer nichtstöchiometrischen UAl<sub>4</sub>-Phase, etwa  
mit der Zusammensetzung UAl<sub>5</sub>. Das ergibt jedoch keine Änderung des Vo-  
lumenanteiles der Teilchen nach hohem Abbrand. Bei 55 Gew.-% UAl<sub>2</sub> er-  
reicht dieser Anteil etwa 60 Vol.-%.

#### Literatur

- /1/ Graber M.J., Gibson G.W., Walker V.A., Francis W.C.  
IDO - 16958, 1964
- /2/ Graber M.J., Zelezny W.F., Gibson G.W.  
IDO - 17037, 1964
- /3/ Francis W.C.  
IDO - 17154, 1966
- /4/ Dienst W.  
KFK - Ext. 6/67-1
- /5/ Nazarè S., Ondracek G., Thümmeler F.  
J. Nucl. Mater. 56 (1975) 251
- /6/ Lederer B., Harbauer G., Karb E., Schmidt Th.  
Kerntechnik 15 (1973) 514
- /7/ de Boisblanc D.R., Francis W.C., Covington E.D.  
IN - 1335, 1969

- /8/ Brugger R.M., Francis W.C.  
IN - 1437, 1970
- /9/ Nazarè S., Ondracek G., Thümmeler F.  
KFK 1252, 1970
- /10/ Walker V.A., Graber M.J., Gibson G.W.  
IDO - 17157, 1966
- /11/ Gibson G.W.  
IN - 1133, 1967
- /12/ Castleman L.S.  
J. Nucl. Mater. 3 (1961) 1
- /13/ Dienst W.  
KFK 1215, 1970
- /14/ Höh A., Matzke H.J.  
J. Nucl. Mater. 48 (1973) 157
- /15/ Gibson G.W., Graber M.J.  
IN - 1131, 1968
- /16/ Martin M.M., Richt A.E., Martin W.R.  
Trans. ANS 14/2 (1971), 567

Tab. 1: Uraluminid-Gehalt und Bestrahlungsbedingungen der Prüflinge

Nummer des Bestrahlungseinsatzes	UAl <sub>x</sub> -Gehalt d. Kernes (Gew.-%)	mittl. Plattenoberfl.-Temp. (°C)	mittl. Uran-Abbrand (%)	Anzahl entspr. Platten
1	50 UAl <sub>3</sub>	70	16	4
2	50 UAl <sub>3</sub>	70	47	4
3	50 UAl <sub>3</sub>	70	34	4
4	50 UAl <sub>3</sub>	70	26	1
	45,5 UAl <sub>2</sub>	70	26	3
5	45,5 UAl <sub>2</sub>	70	21	4
6	50 UAl <sub>3</sub>	70	44	2
	45,5 UAl <sub>2</sub>	70	44	2
7	50 UAl <sub>3</sub>	70	6,5	3
	45,5 UAl <sub>2</sub>	70	6,5	1
8	50 UAl <sub>3</sub>	120/135/150	28	4/4/4
9	50 UAl <sub>3</sub>	150/165/180	53	2/2/2
	45,5 UAl <sub>2</sub>	150/165/180	53	2/2/2
10	50 UAl <sub>3</sub>	150/165/180	72	2/2/2
	45,5 UAl <sub>2</sub>	150/165/180	72	2/2/2
11	50 UAl <sub>3</sub>	150/165/180	60	1/1/2
	45,5 UAl <sub>2</sub>	150/165/180	60	1/1/2
	54,5 UAl <sub>2</sub>	150/165	60	2/2

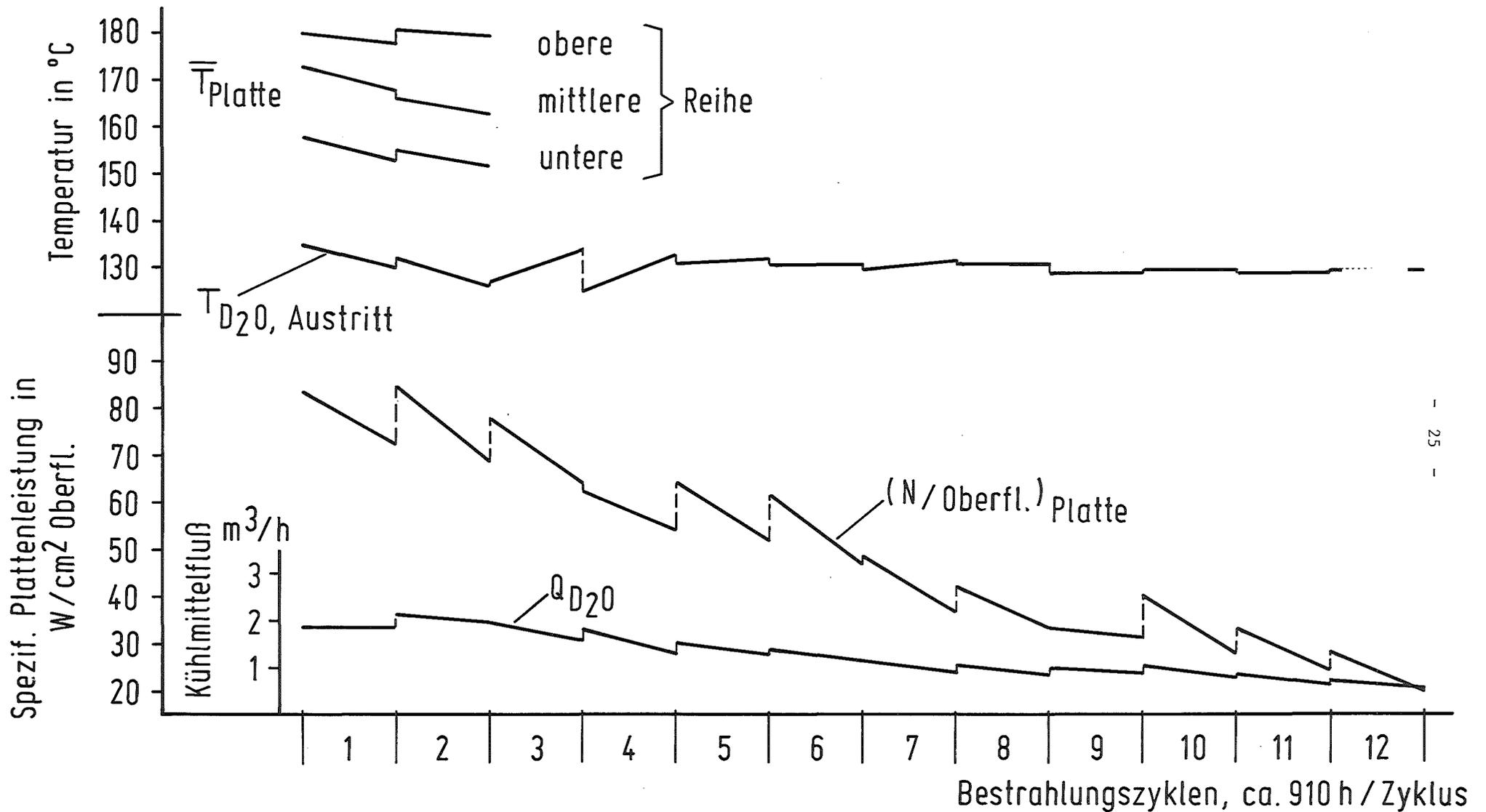


Abb. 1 Verlauf der Plattentemperatur, Kühlmittelaustrittstemperatur, Plattenleistung und Kühlmitteldurchflußmenge über der Bestrahlungszeit

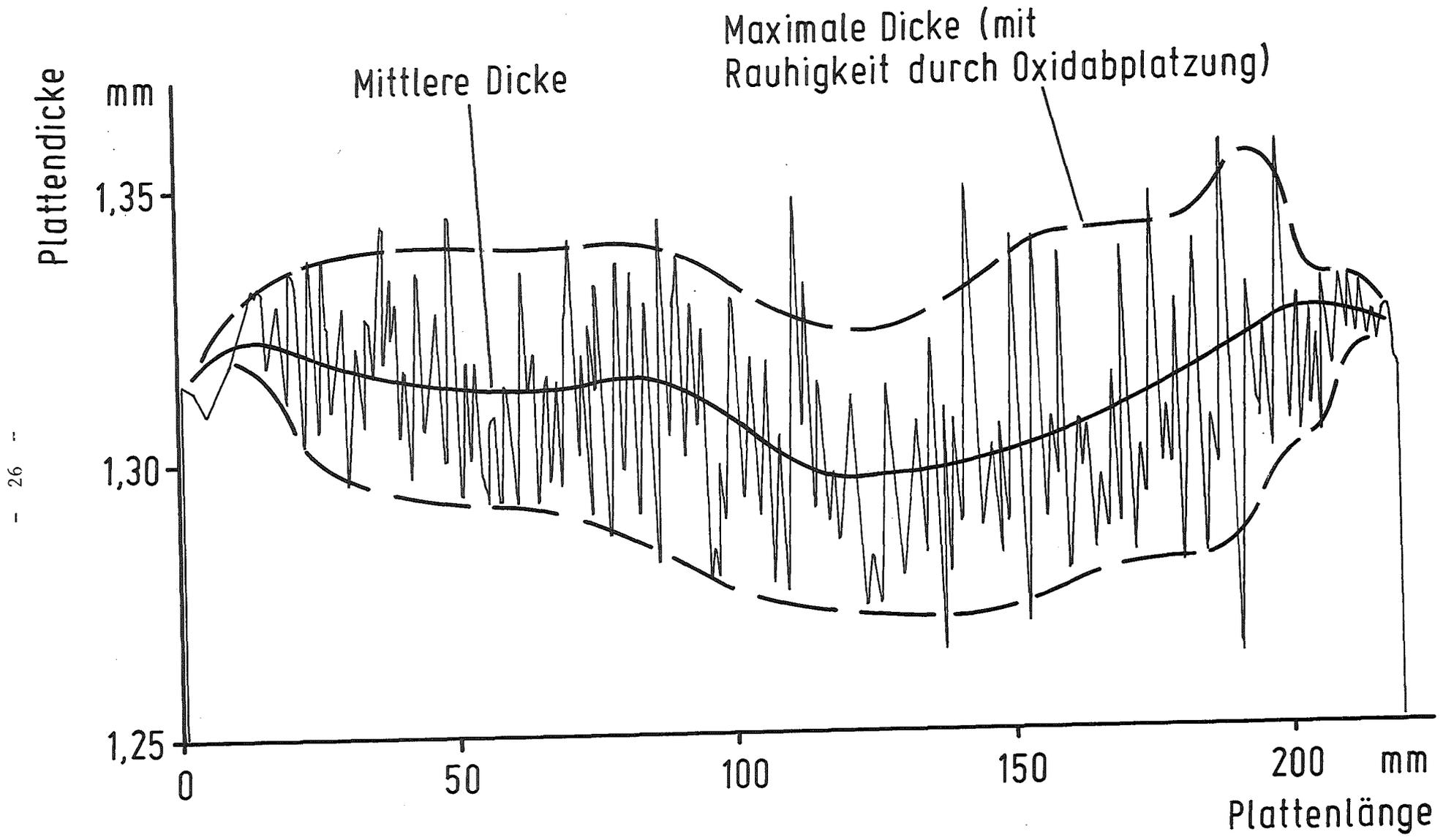


Abb. 2 Dickenprofil einer bestrahlten Brennstoffplatte

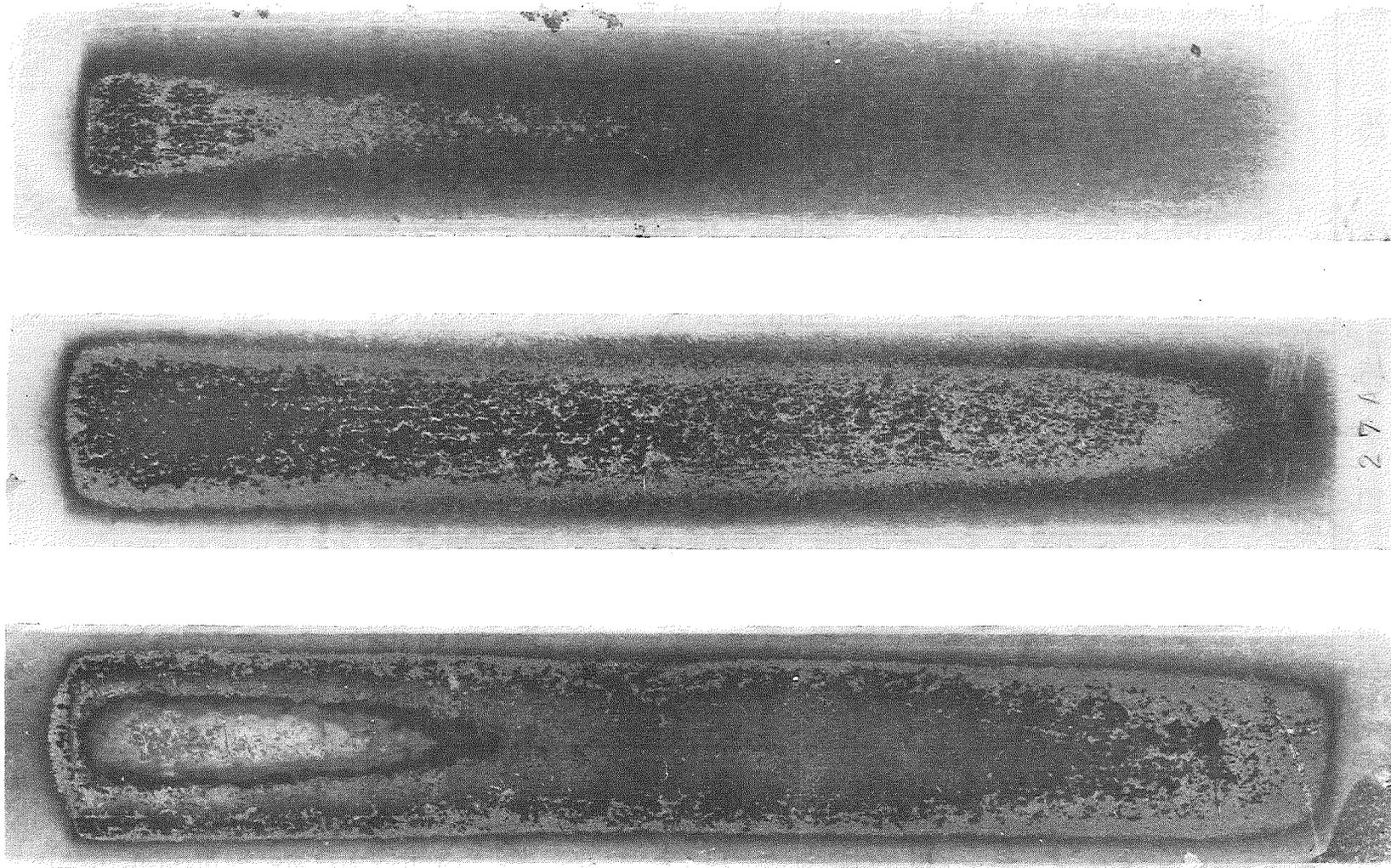


Abb.3: Korrodierte Brennstoffplatten nach 11 000 h Bestrahlung bei 140 - 155°C (oben)  
155 - 170°C (Mitte) und 170 - 185°C (unten)

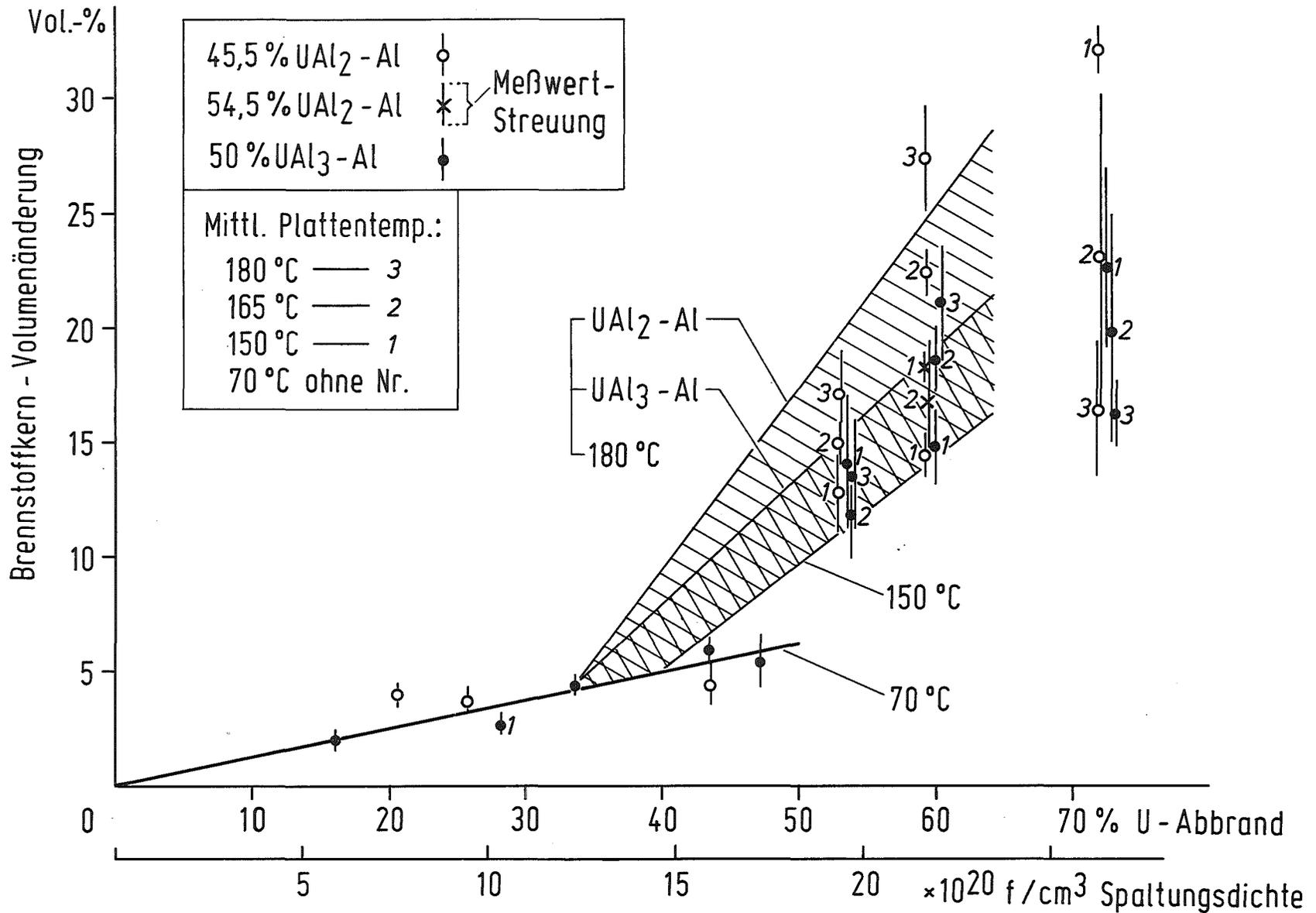


Abb. 4 Schwellung der Brennstoffplatten (bezogen auf das Brennstoffkern - Volumen) unter Bestrahlung in Abhängigkeit vom Abbrand mit der Bestrahlungstemperatur als Parameter

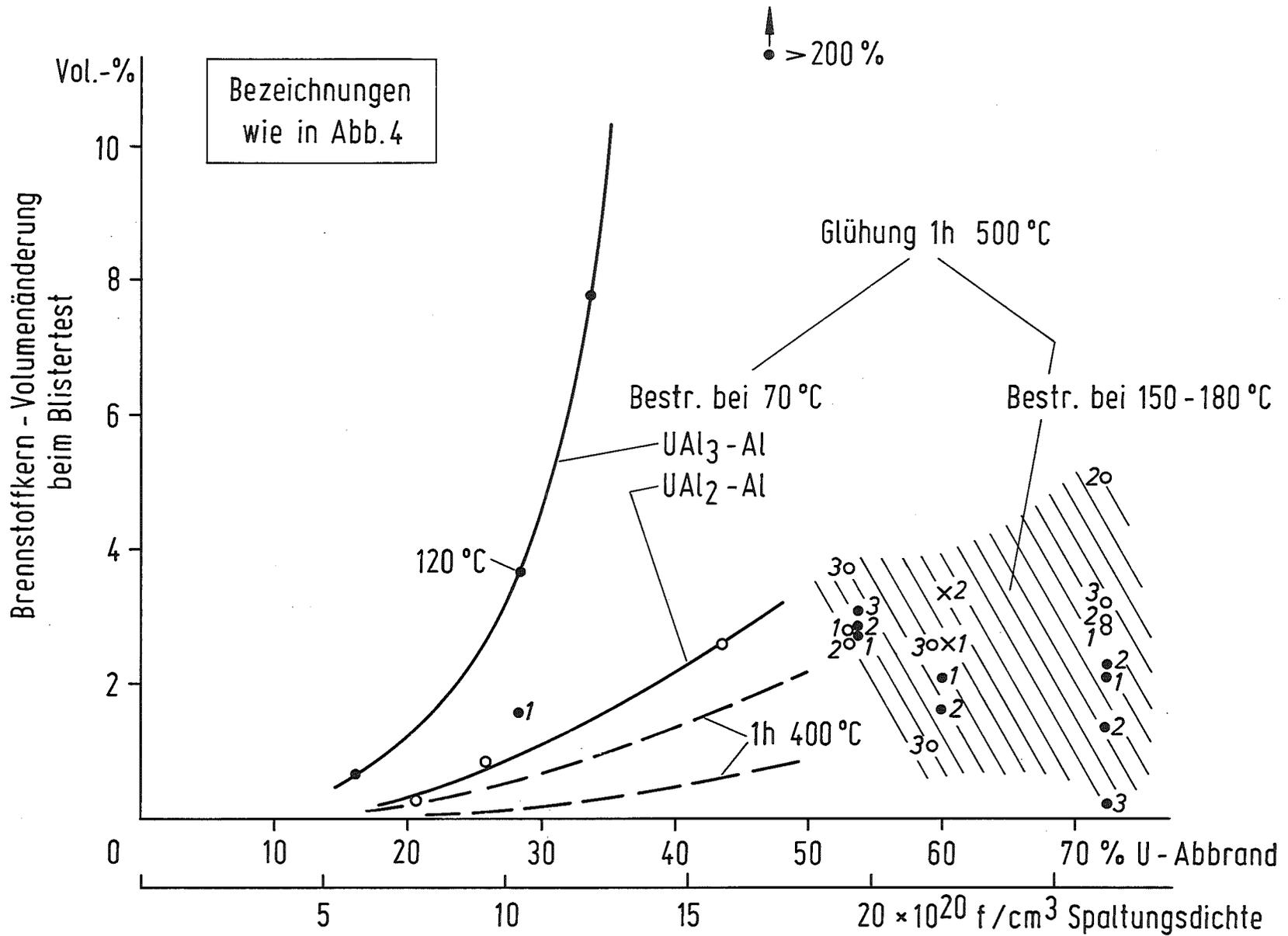


Abb.5 Blistertest - Schwellung der bestrahlten Brennstoffplatten in Abhängigkeit vom Abbrand bei verschiedenen Bestrahlungstemperaturen

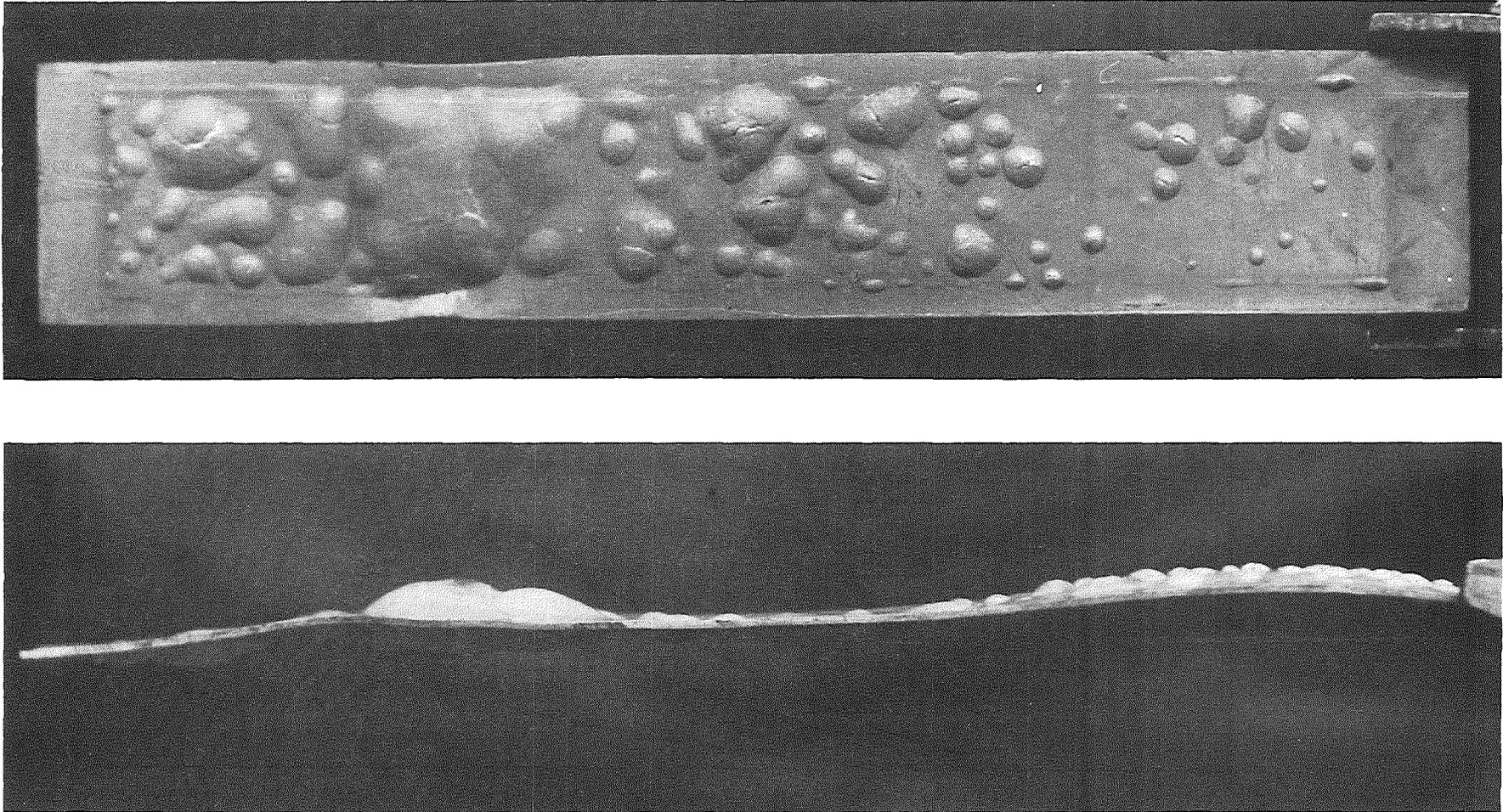


Abb. 6: Starke Blasenbildung (blistering) an einer 50 Gew.-%  $UAl_3$ -Al-Brennstoffplatte im 1 h, 500°C-Blistertest nach Bestrahlung bei 70°C bis zu 47% Uran-Abbrand

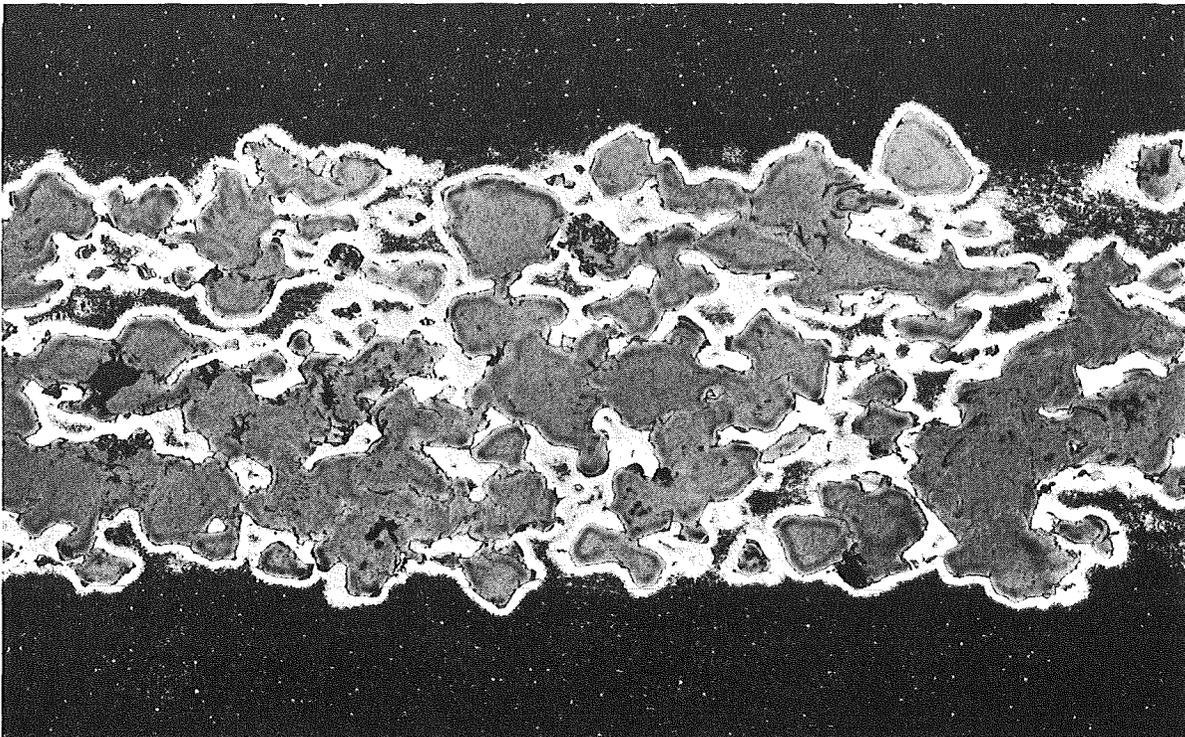


Abb. 7: Verbrauch der Al-Matrix unter Bildung eines zusammenhängenden Gerüsts spröder Brennstoffphasen durch Reaktion zwischen  $UAl_2$ -Teilchen und Matrix in 54,5 Gew.-%  $UAl_2$ -Al unter Bestrahlung bei  $150^\circ C$  bis zu 60% Uran-Abbrand. Vergr. 100x.

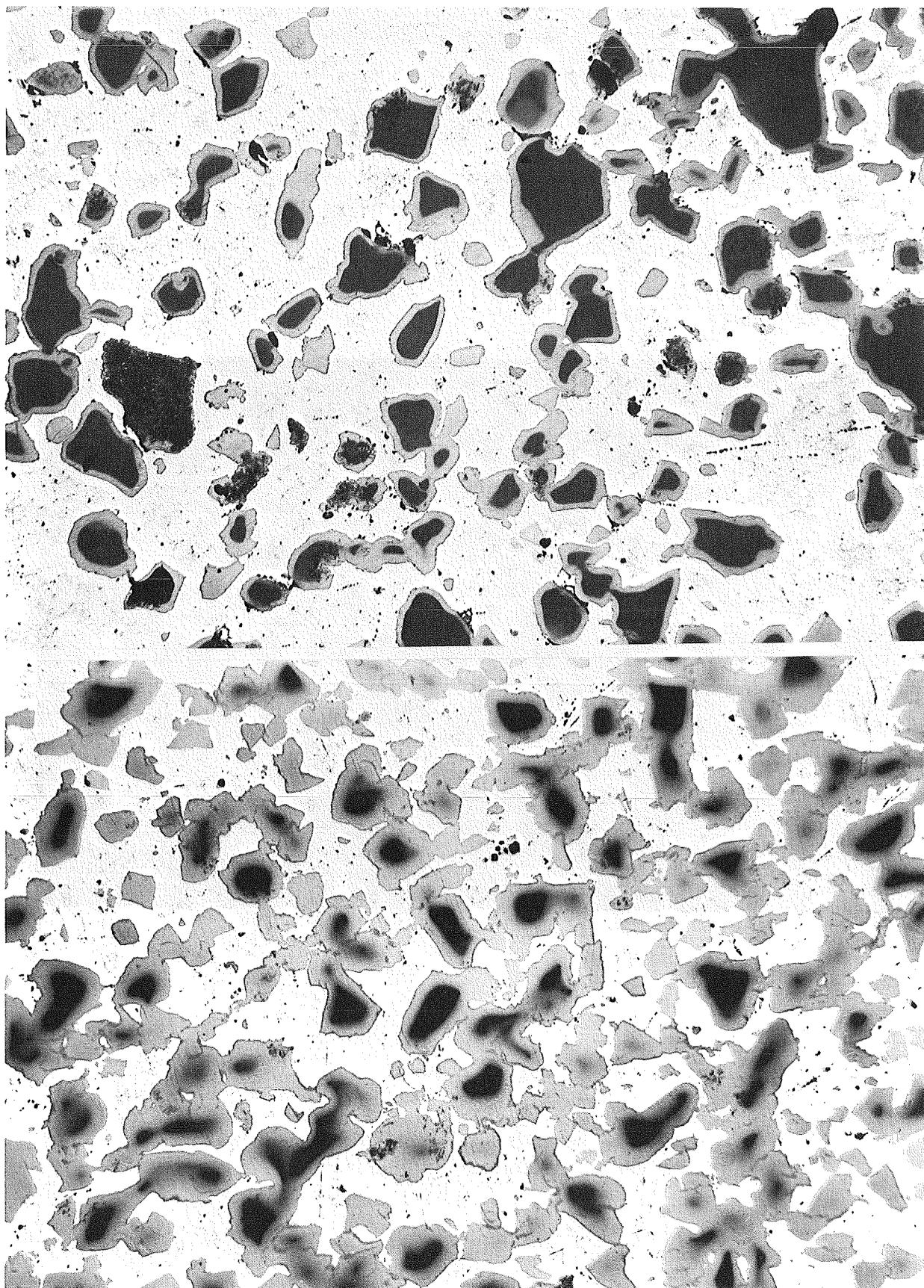


Abb.8: Reaktionszonen zwischen  $UA_{13}$  (dunkel) und Al nach Bestrahlung bei  $70^{\circ}C$  bis zu Uran-Abbränden von 16% (oben) und 47% (unten). Vergr. 100x

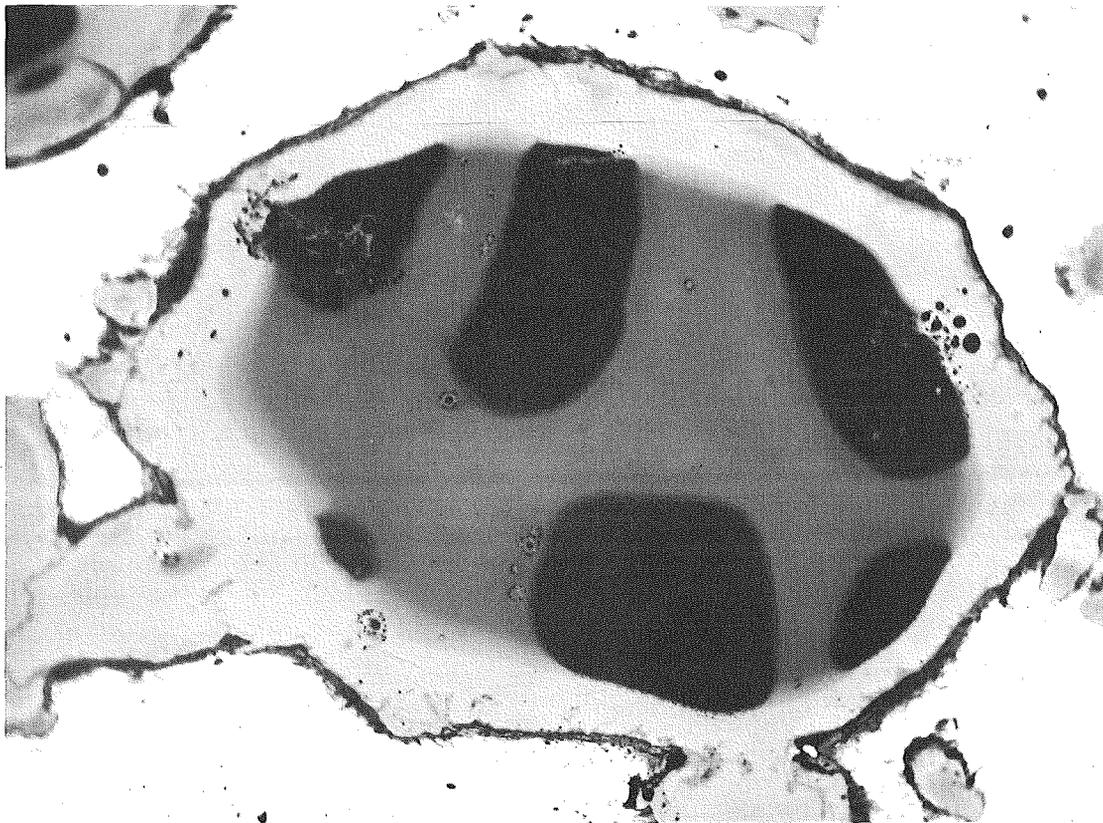
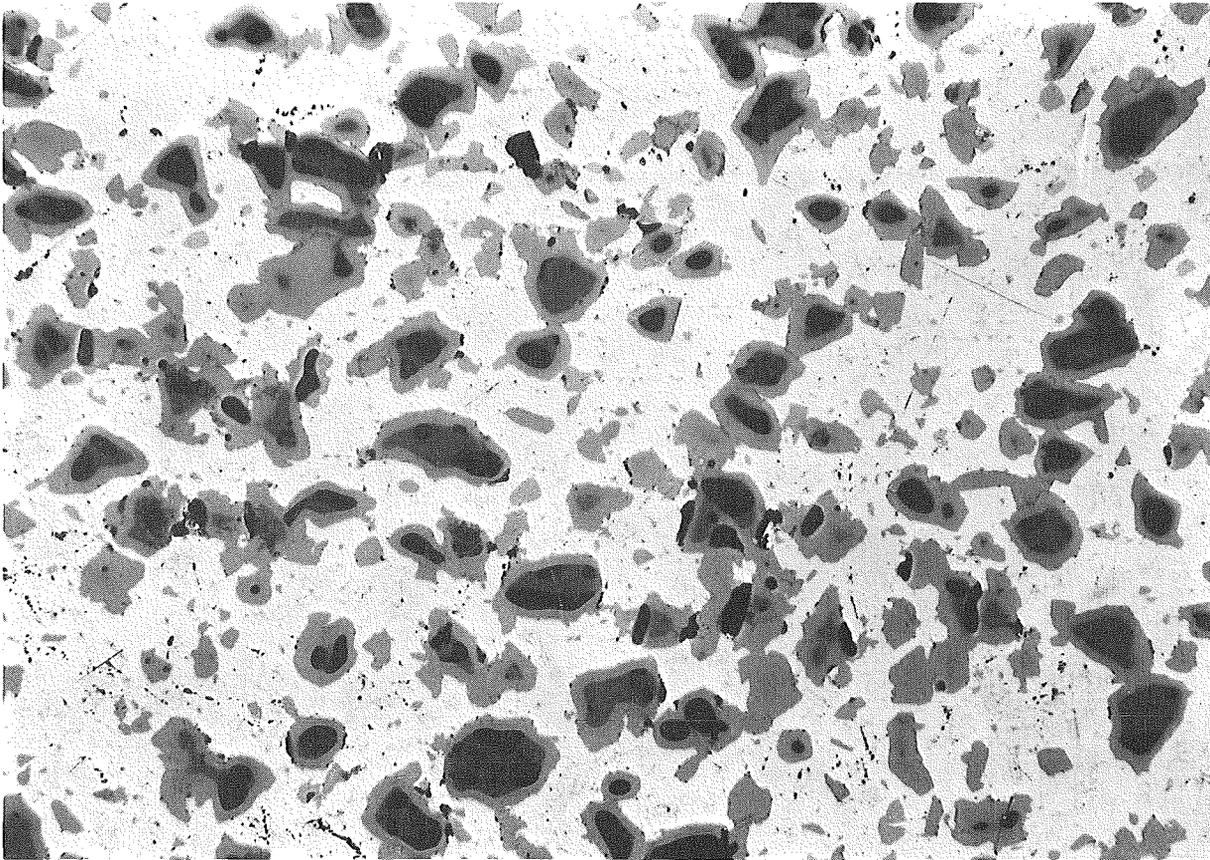


Abb. 9: Drei verschiedene Phasen in den Brennstoffteilchen von  $UA_{12}$ -Al-Brennstoff nach 26% Uran-Abbrand (oben, Vergr. 100x). Hoch vergrössertes Brennstoffteilchen (unten, 44% Uran-Abbrand, Vergr. 500x)

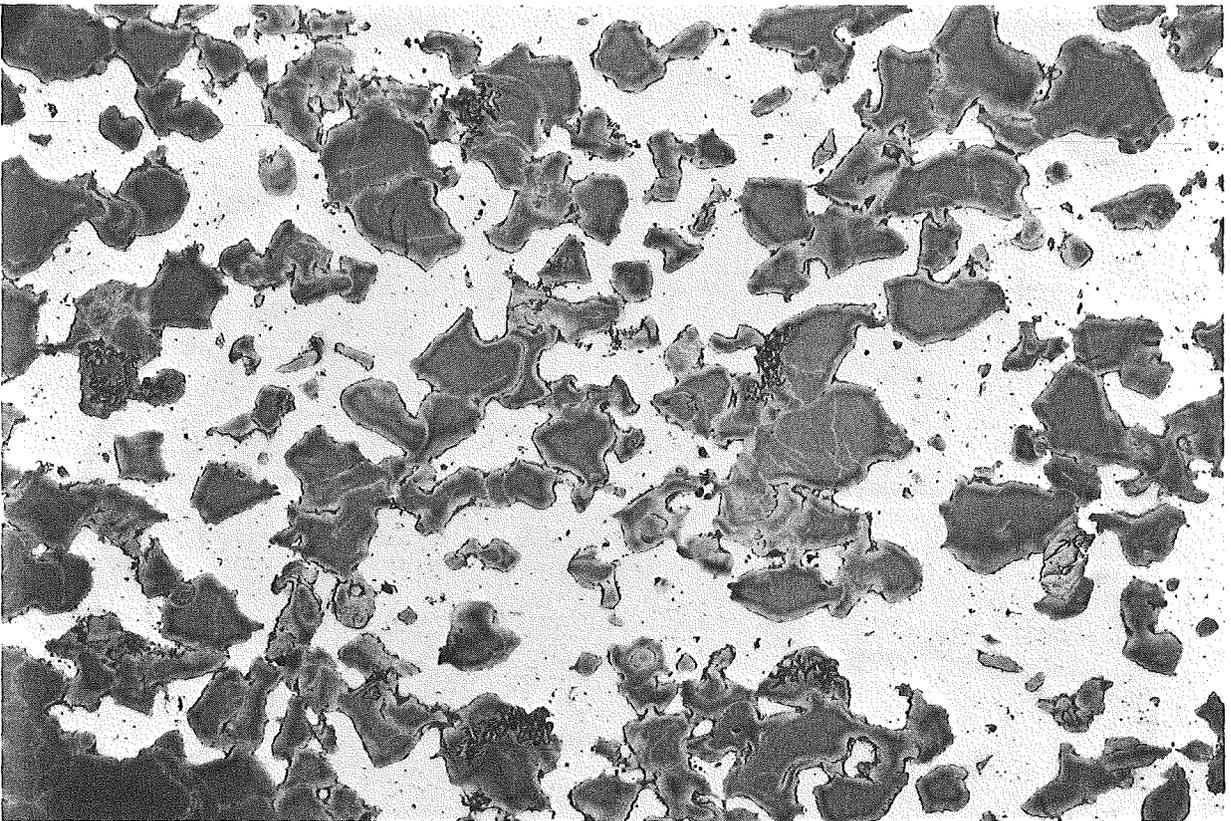
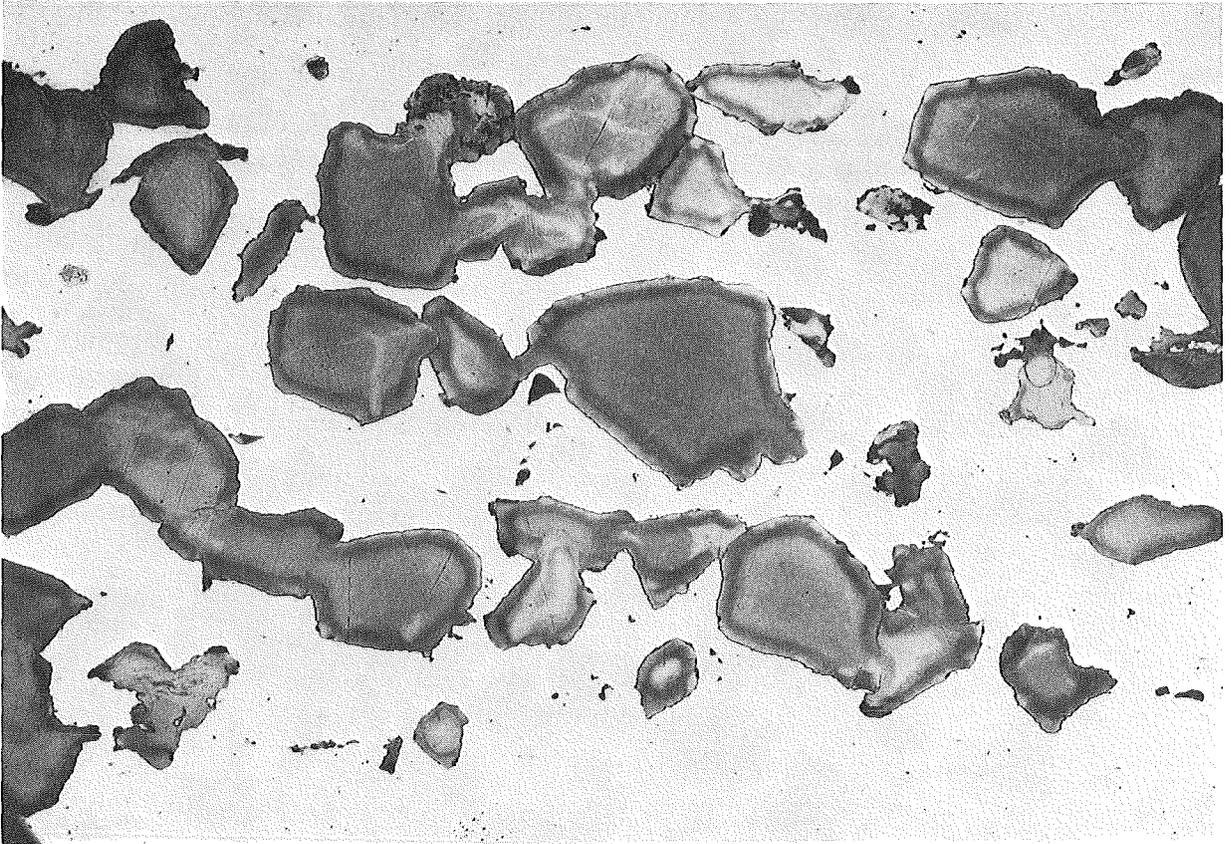


Abb.10: Keine definiert kontrastierten Phasengebiete in  $UAl_3$ -Al nach Bestrahlung bei erhöhter Temperatur, bis zu 28% Uran-Abbrand bei 135°C (oben, Vergr. 200x) und bis zu 53% Abbrand bei 180°C (unten, Vergr. 100x)

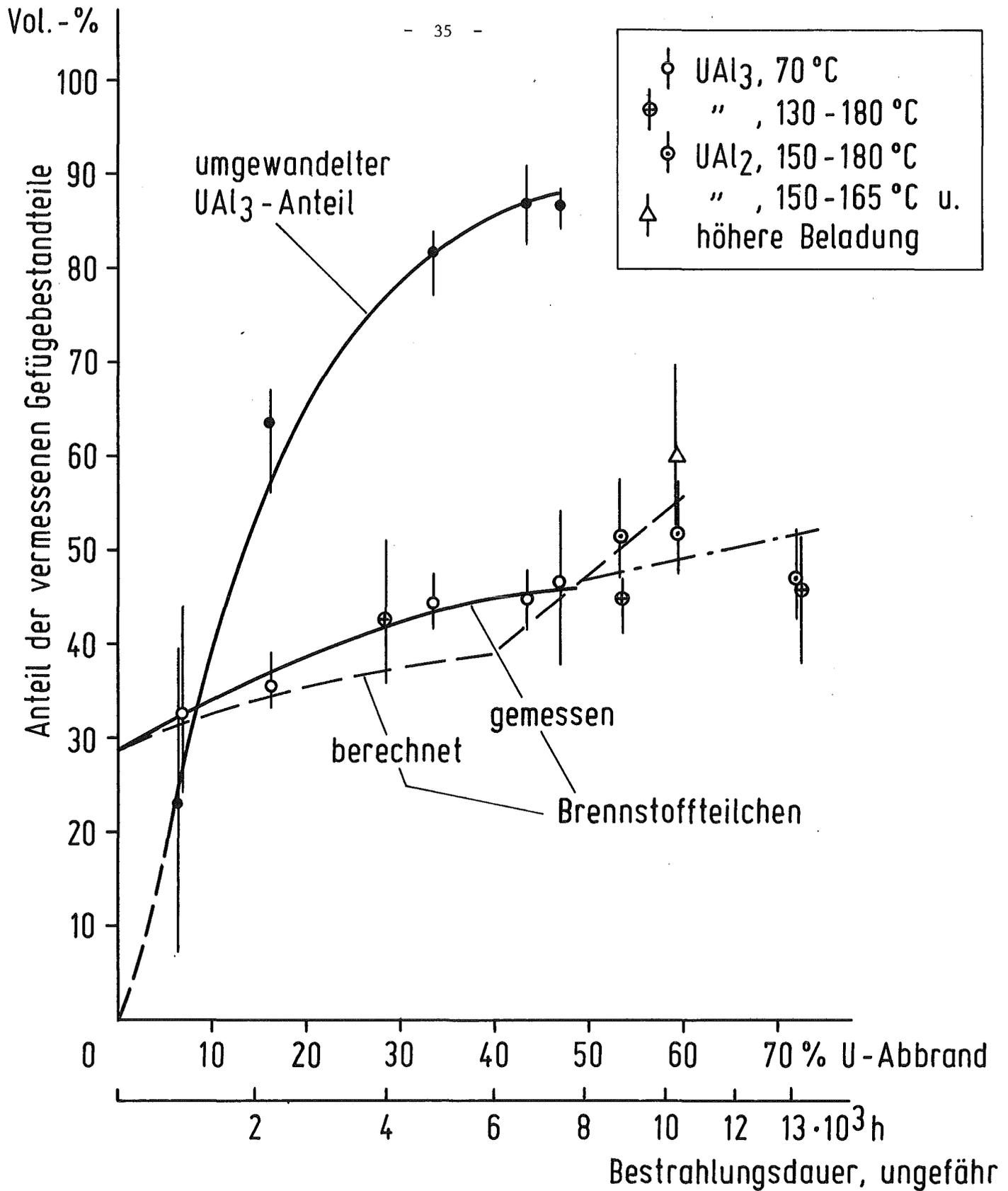


Abb. 11 Abnahme des UAl<sub>3</sub>-Anteils und Wachstum der Brennstoffteilchen durch Reaktion mit der Al-Matrix

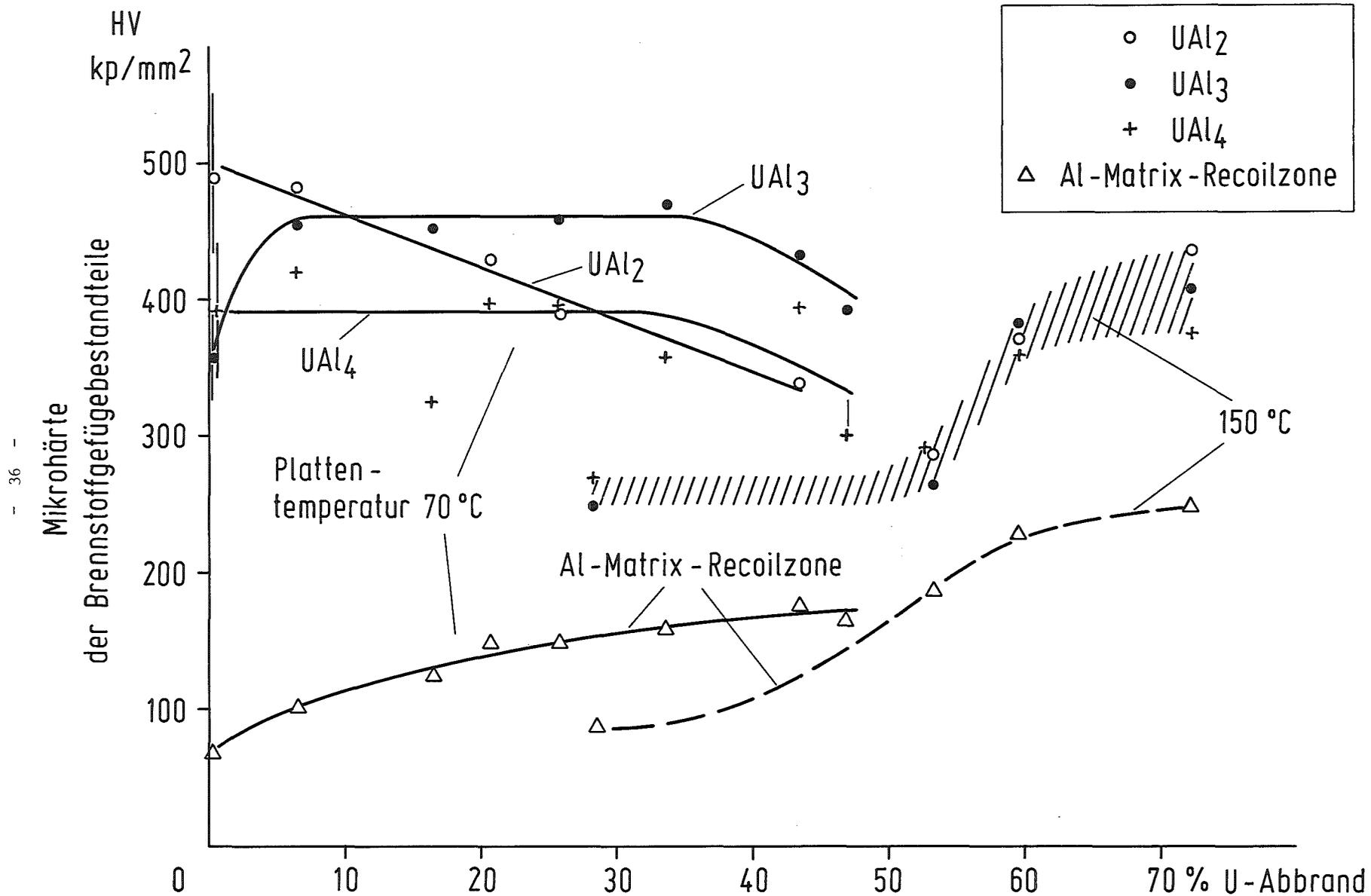


Abb.12 Härteverlauf der Brennstoffgefügebestandteile mit dem Abbrand bei mittleren Platten-temperaturen von 70 °C und 150 °C.

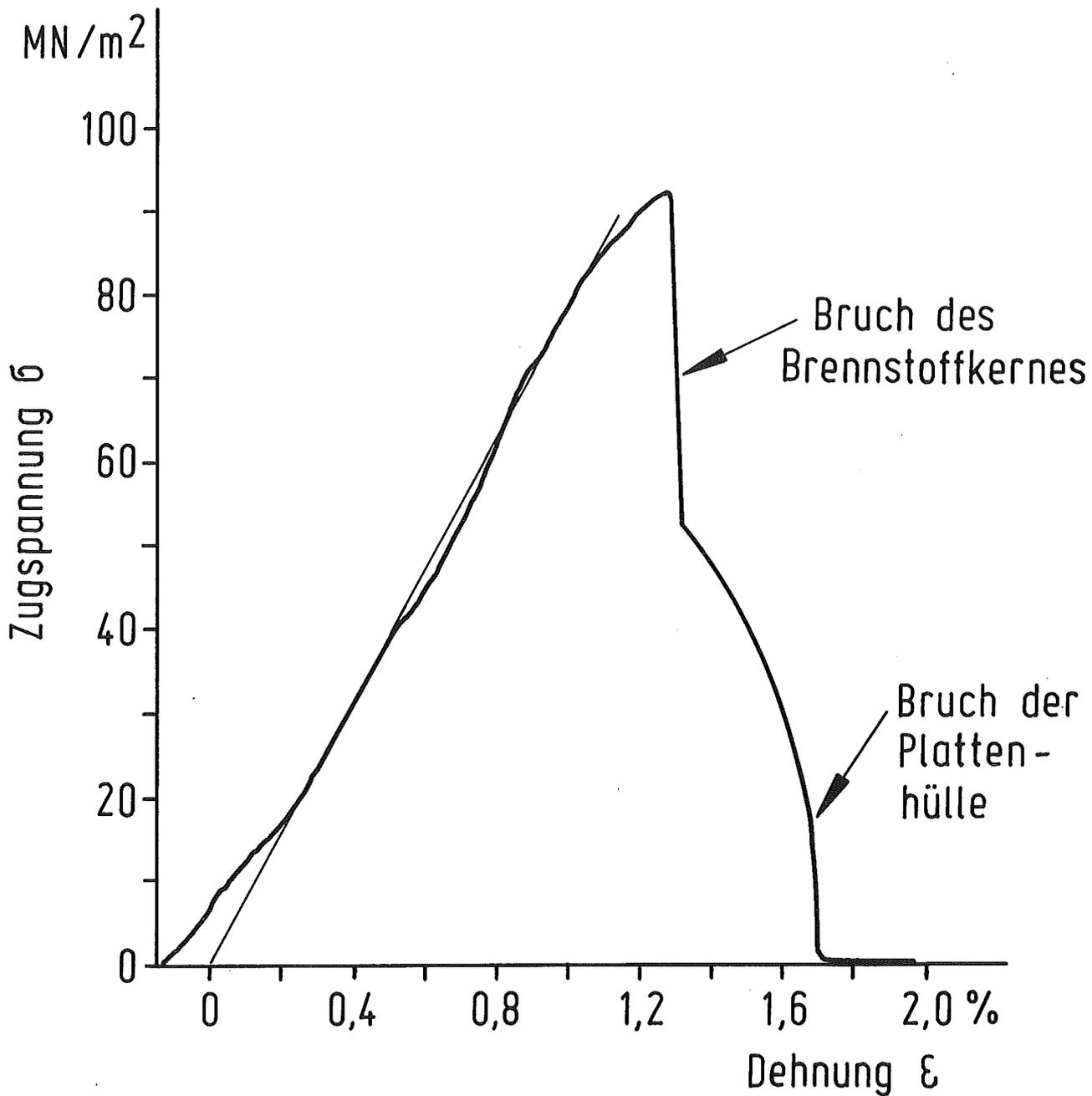


Abb. 13 Spannungs-Dehnungs-Diagramm einer Flachzugprobe aus einer  $UAl_3$ -Al-Brennstoffplatte nach 16% Abbrand im Zugversuch bei 180 °C. Probenquerschnitt 4mm × 1,3mm.

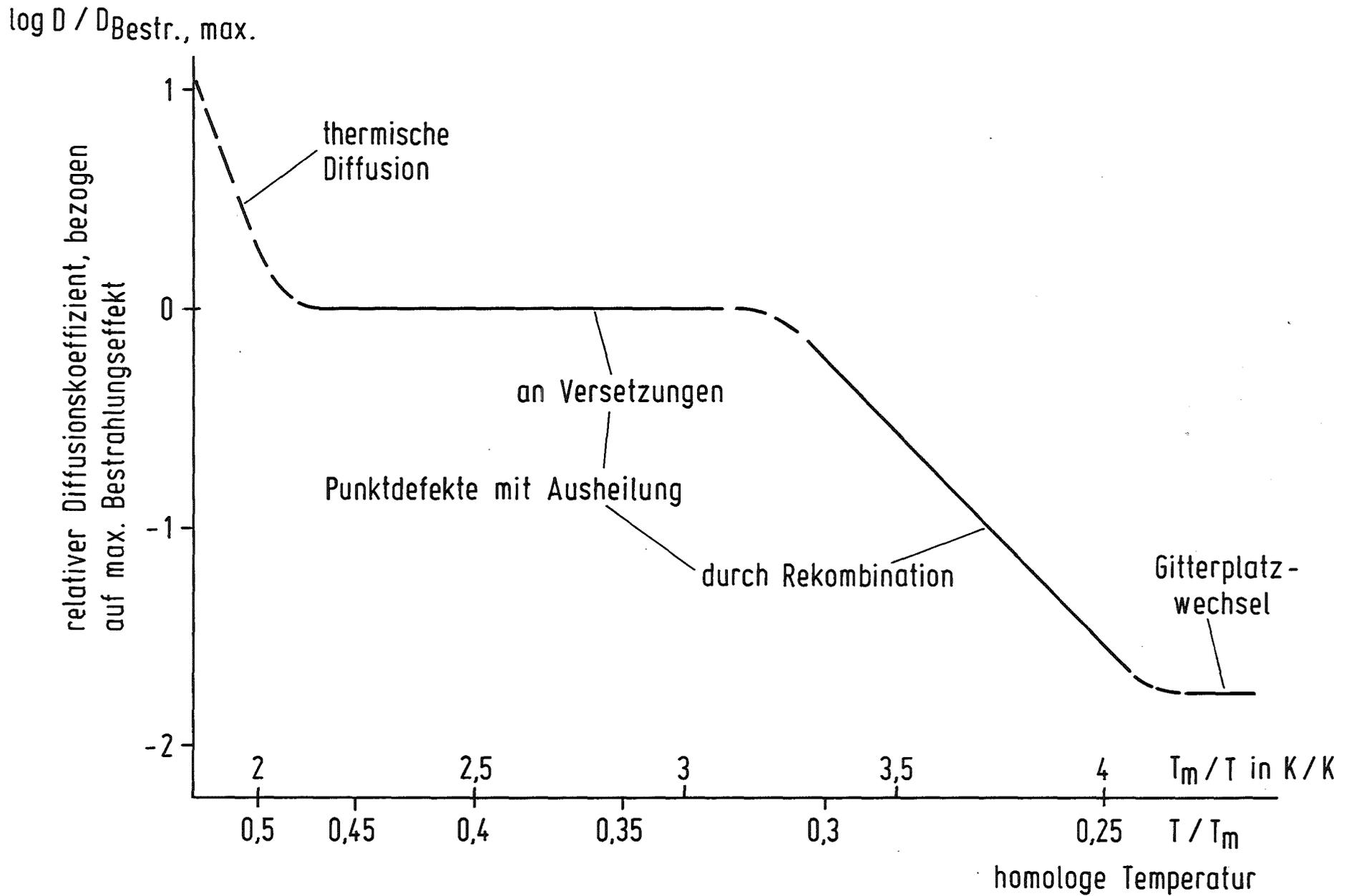


Abb. 14 Temperaturabhängigkeit des bestrahlungsbedingten Uran-Diffusionskoeffizienten in Kernbrennstoffen, verallgemeinert aus [13]