

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

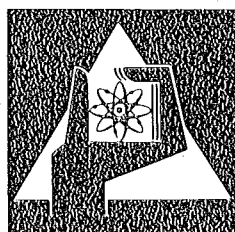
Oktober 1975

KFK 2216

Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Schneller Brüter

Ein Beitrag zur Analyse des thermischen Verhaltens von
Schnellbrüter-Brennstäben mit UO_2 - PuO_2 -Brennstoff

H. Elbel, J. López Jiménez



**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

K E R N F O R S C H U N G S Z E N T R U M K A R L S R U H E

KFK 2216

Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Schneller Brüter

Ein Beitrag zur Analyse des thermischen Verhaltens von Schnellbrüter-
Brennstäben mit UO_2 - PuO_2 -Brennstoff

H. Elbel, J. López Jiménez⁺)

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

⁺) delegiert von Junta de Energia Nuclear, Madrid

Die Autoren danken Herrn Bauer und Herrn Deffaa für die Erstellung der Diagramme und Frau Hauth für die Reinschrift und die redaktionelle Bearbeitung des Berichts. Für die Überlassung der experimentell bestimmten Ergebnisse der Plutonium-Konzentrationsverteilungen sei Herrn Dr. Kleykamp auch an dieser Stelle gedankt.

September 1975

H. Elbel, J. López Jiménez

K U R Z F A S S U N G

Der aus Uran- und Plutoniumdioxid bestehende Brennstoff Schneller Brutreaktoren ist unter anderem durch Plutoniumanteil und -verteilung, Sauerstoffgehalt und den Anteil und die Verteilung des Porenvolumens charakterisiert. Die mit diesem Brennstoff durchgeführten Experimente haben gezeigt, daß die ursprüngliche Tablettenstruktur während des Betriebes eine starke Änderung erfährt. Sie ist eine Folge der im Brennstab auftretenden radialen und axialen Temperaturgradienten.

In einer Serie von Parameterstudien, ausgeführt mit dem Rechenprogrammsystem SATURN, wurden die Rückwirkungen auf das thermische Verhalten eines Brennstabes untersucht, die durch die im radialen Temperaturgradienten auftretenden Umstrukturierungsvorgänge, wie Porenwanderung, Sauerstoff- und Plutoniumumverteilung hervorgerufen werden.

Die mit der Porenwanderung verbundene Zentralkanalbildung sowie die Sauerstoffumverteilung in unterstöchiometrischem Brennstoff führen zu einer Absenkung des Temperaturprofils. Eine Erhöhung der Plutonium-Konzentration in der inneren Zone der Brennstofftablette vermindert die Absenkung der Temperaturen in diesem Bereich. Im besonderen wird der Einfluß gezeigt, den der Sauerstoffgehalt über die von ihm abhängigen Umstrukturierungsvorgänge und die thermischen Eigenschaften des Brennstoffes, Wärmeleitfähigkeit und thermische Ausdehnung hat.

A B S T R A C T

A contribution to the analysis of the thermal behaviour of Fast Breeder
fuel rods with $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ fuel

The fuel of Fast Breeder Reactors which consists of Uranium and Plutonium dioxide is mainly characterized by the amount and distribution of void volume and Plutonium and the amount of oxygen. Irradiation experiments carried out with this fuel have shown that the initial structure of the fuel pellet is subjected to large changes during operation. These are consequences of the radial and axial temperature gradients within the fuel rod.

In several parametric studies undertaken with the computer code system SATURN the influence on the thermal behaviour of a fuel pin has been analysed which is caused by restructuring processes such as pore migration, oxygen and Plutonium redistribution due to the radial temperature gradient. The formation of a central hole occurring as result of pore migration as well as the oxygen redistribution in hypostoichiometric fuel lead to a decrease in the temperature profile. Rise of the Plutonium concentration in the inner zone of the fuel pellet counterbalances this trend. Especially, the influence has been shown which the restructuring processes and the thermal qualities of the fuel e.g. heat conductivity and thermal expansion exert due to their dependency on the amount of oxygen.

<u>I n h a l t</u>	Seite
1. Einleitung	1
2. Thermische Eigenschaften	2
2.1 Wärmedurchgang durch den Spalt	2
2.2 Wärmeleitfähigkeit	3
2.3 Thermische Ausdehnung	8
3. Einfluß der Sauerstoff-Umverteilung	14
3.1 Grundlagen	14
3.2 Ergebnisse	16
4. Einfluß der Plutonium-Umverteilung	17
4.1 Verdampfung und Kondensation	17
4.2 Thermodiffusion	23
4.3 Vergleich mit dem Experiment	27
5. Einfluß des Sauerstoffgehaltes	32
5.1 Qualitative Analyse	33
5.2 Quantitative Analyse	34
6. Zusammenfassung	37
Literatur	38
Tabellen 1 bis 19	43 - 57
Abb. 1 bis 43	58 - 92

1. Einleitung

Der Brennstoff, mit dem das Core des Schnellen Prototyp-Reaktors SNR-300 ausgerüstet werden wird, besteht aus Uran-dioxid und Plutonium-dioxid in einem bestimmten Mischungsverhältnis mit einem Sauerstoffanteil, der mit 1,975 unter dem stöchiometrischen Wert von 2,0 liegt. Dieser Brennstoff wird in Form von Volltabletten eingesetzt. Durch die auf 80 % der theoretischen Dichte festgelegte Schmierdichte im Brennstab ist bei der gewählten Tablettengeometrie die Dichte der Tablette und damit der Anteil an Leervolumen bzw. Porenvolumen gegeben.

Die verschiedenen Experimente, die mit UO_2 - PuO_2 -Brennstoff durchgeführt wurden, haben gezeigt, daß während des Betriebes mit starken Veränderungen der ursprünglichen Tablettenstruktur gerechnet werden muß. Sie sind eine Folge der Temperaturgradienten, die im Brennstab sowohl in radialer als auch in axialer Richtung auftreten.

Unter ihrer Einwirkung wandert ein Teil des Porenvolumens in das Zentrum der Brennstofftablette und führt dort zur Ausbildung eines Zentralkanals, verbunden mit einer Verdichtung der benachbarten Brennstoffzone. Die Experimente haben weiter gezeigt, daß unter den im Brennstab herrschenden Temperaturgradienten eine Entmischung der beiden Komponenten Plutonium und Uran stattfindet. Mit dieser Entmischung ist eine Änderung der Wärmequell-dichte-Verteilung im Brennstab verbunden. Daneben bildet sich eine Gleichgewichtsverteilung des Sauerstoffanteils aus, der eine Verminderung der Sauerstoffkonzentration im inneren Bereich und eine Erhöhung im äußeren Bereich der Brennstofftablette entspricht. Und nicht zuletzt reißt der Brennstoff unter der Einwirkung der Temperaturgradienten auf. Alle diese Veränderungen bleiben nicht ohne Einfluß auf das thermische Verhalten des Brennstabes.

In dem vorliegenden Bericht ist eine Serie von Parameterstudien zusammengestellt worden, deren Ziel es war, die Rückwirkungen zu untersuchen, die als Folge der im radialen Temperaturgradienten ablaufenden Umstrukturierungsvorgänge auftreten. Die Parameterstudien wurden mit Hilfe des Rechenprogrammsystems SATURN durchgeführt. In diesem Rechenprogrammsystem sind die erforderlichen Modelle enthalten, mit denen auf der Grundlage des derzeitigen Kenntnisstandes die untersuchten Phänomene beschrieben werden können.

Das Verhalten eines Brennstabes wird von den thermischen Eigenschaften des verwendeten Materials bestimmt. Die wichtigsten dieser Eigenschaften sind die Wärmeleitfähigkeit und die thermische Ausdehnung des Brennstoffes und der Wärmedurchgang durch den Spalt bzw. die Kontaktzone zwischen Brennstoff und Hüllrohr. Die Sicherheit, mit der die thermische Auslegung von Brennstäben durchgeführt werden kann, hängt entscheidend von der genauen Kenntnis dieser Materialeigenschaften, d.h. von der Zuverlässigkeit der diese charakterisierenden Materialbeziehungen und -daten ab.

Der erste Teil dieses Berichtes ist deshalb zunächst der Beschreibung der genannten thermischen Eigenschaften gewidmet.

2. Thermische Eigenschaften

2.1 Wärmedurchgang durch den Spalt

Die Wärmeableitung aus einem Brennstab in das Kühlmittel ist von der Größe des Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle und von den Wärmeleitungseigenschaften des in diesem Spalt befindlichen Gases abhängig. Je nach Größe des Spaltes und Art und Zusammensetzung des Gases ist das Temperaturprofil im Brennstoff höher oder niedriger.

Zu dem bei der Herstellung der Brennstäbe eingefüllten Gas kommen während des Betriebes hinzu:

- in den Brennstoffporen enthaltene und im Brennstoff adsorbierte Gase, im wesentlichen aus der Sinteratmosphäre,
- in der Hülle und den weiteren Stabkomponenten adsorbierte Gas und
- die während des Betriebes im Brennstoff erzeugten Spaltgase bzw. Spaltprodukte.

Während die Spaltgase erst mit fortschreitendem Abbrand auf die Wärmeleitung maßgeblichen Einfluß ausüben können, werden die in Brennstoff und Hülle adsorbierten Gase bereits zu Beginn der Bestrahlung freigesetzt und damit wirksam.

Zu Beginn der Bestrahlung nimmt die Zentraltemperatur des Brennstoffs infolge des noch nicht ausgebildeten Zentralkanal im allgemeinen den

höchsten Wert an. Die Größe dieses Wertes ist von der Art der freigesetzten adsorbierten Gase und von ihrem Anteil an der gesamten Gasfüllung des Brennstabes abhängig. Da die Wärmeleitungseigenschaften der freigesetzten Gase im allgemeinen schlechter sind als die des Füllgases, wird der Wert der Zentraltemperatur deshalb über demjenigen liegen, der sich bei reinem Füllgas einstellen würde.

Ein Modell zur Berechnung der Wärmedurchgangszahl bzw. des Temperaturabfalles im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle muß also neben der Spaltbreite auch die Art und die Zusammensetzung des im Spalt enthaltenen Gases sowie dessen Wärmeleitungseigenschaften in Abhängigkeit von der Temperatur berücksichtigen. In dem Rechenprogrammsystem SATURN-1 /1/ wurde diese Forderung in einer ersten Näherung durch die Verwendung des in /2/ vorgeschlagenen Modells erfüllt. Mit diesem Modell berechnete Wärmedurchgangszahlen sind in den Abb. 1 und 2 dargestellt. Abb. 1 zeigt zum Vergleich Ergebnisse für eine Gasfüllung aus reinem Helium und aus 50 % Helium und 50 % Argon.

Die in Abb. 2 angegebenen Ergebnisse entsprechen Standardwerten, die den meisten mit SATURN-1 durchgeführten Rechnungen für den Bestrahlungsbeginn zugrundegelegt wurden. Sie berücksichtigen sowohl die zu erwartenden Verunreinigungen des Füllgases durch ein 15 % Argon-Äquivalent als auch die Oberflächenrauigkeit von Brennstofftablette und Hüllrohr durch einen Zuschlag zur Spaltbreite in Höhe von 5 μ m. Die zur Berechnung verwendeten Materialbeziehungen und Materialdaten wurden aus /3/ und /4/ entnommen.

Bei Vorliegen eines Kontaktes zwischen Brennstoff und Hülle wird mit dem für "Nullspalt" (Spaltbreite = Summe der mittleren Oberflächenrauigkeiten von Brennstoff und Hülle) gültigen Wert der Wärmedurchgangszahl gerechnet.

2.2 Wärmeleitfähigkeit

Die Wärmeleitfähigkeit des porösen UO_2 - PuO_2 -Brennstoffes Schneller Brutreaktoren ist von mehreren Faktoren abhängig. Die wichtigsten Einflußgrößen sind neben der Temperatur der Sauerstoffgehalt, Art, Anteil und Verteilung der Porosität und Anteil und Verteilung des PuO_2 /2, 5 bis 17/. Mit zunehmendem Abbrand werden die Wärmeleitungs-

eigenschaften auch durch Anteil, Art und Verteilung der Spaltprodukte beeinflusst /18 bis 20/.

Die von den verschiedenen Autoren /2, 5 bis 17/ zur Berechnung der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit von Temperatur und Porosität vorgeschlagenen unterschiedlichen Ansätze wurden in einer Parameterstudie, durchgeführt mit dem Rechenprogrammsystem SATURN-1a /1/, verglichen. Daneben wurde der Einfluß verschiedener Porositäts- und Stöchiometrie- werte auf die Wärmeleitfähigkeit und damit auf charakteristische thermische Größen des Brennstabes zu Beginn der Bestrahlung untersucht.

Mit dieser Parameterstudie ist keine Bewertung der einzelnen Darstellungen der Wärmeleitfähigkeit von UO_2 - PuO_2 -Brennstoff in Abhängigkeit von Temperatur, Porosität und Stöchiometrie beabsichtigt. Bezüglich der Porositätsabhängigkeit wurde eine kritische Beurteilung durch /21/ vorgenommen.

Die Studie soll anhand einiger Beispiele lediglich deutlich machen, in welcher Weise durch den zur Zeit noch herrschenden Spielraum in der Kenntnis der hier betrachteten Materialeigenschaften die für die thermische Auslegung charakteristischen Brennstabgrößen beeinflusst werden. Weiter soll gezeigt werden, wie stark eine Änderung des Wertes der Porosität und der Stöchiometrie sich in einigen charakteristischen thermischen Brennstabgrößen niederschlägt. Die Auswirkung von Fertigungstoleranzen kann so abgeschätzt werden.

Die geschilderte Absicht konnte nur in Form einiger Beispiele verwirklicht werden. Stableistung und Hüllrohräußentemperatur waren als Parameter festgehalten worden. Sie bestimmen zusammen mit der Wärmeleitfähigkeit das Temperaturniveau im Brennstoff, das seinerseits wieder Einfluß auf die Wärmeleitfähigkeit hat. Auch war der Einfluß von Umstrukturierungsphänomenen unberücksichtigt geblieben. Er wird in folgenden Abschnitten behandelt werden.

Die im Rahmen der Parameterstudie gewonnenen Ergebnisse sind jedoch in ihrer Tendenz auf andere Bedingungen der Auslegung und des Betriebes eines Brennstabes übertragbar. Für quantitative Aussagen ist allerdings erneut das Rechenprogrammsystem SATURN-1a heranzuziehen.

2.2.1 Grundlagen

Die für die Rechnungen benötigten Daten der Stabspezifikation und der Betriebsbedingungen wurden in Anlehnung an den Bestrahlungsversuch DFR-350 /22/ gewählt. Sie sind in den Tabellen 1 und 2 zusammengestellt. Als Anfahrzeit wurde ein Zeitraum von fünf Stunden angenommen, in dem Stableistung und Hüllrohräußentemperatur linear auf den jeweiligen Endwert gebracht werden. In dieser Zeit findet noch keine Änderung der Brennstoffstruktur durch Porenwanderung statt.

Alle in der Parameterstudie angegebenen Rechenergebnisse beziehen sich auf den bei Erreichen der vollen Leistung herrschenden Betriebszustand des betrachteten Brennstabquerschnittes. Diejenigen Größen dieses Zustandes, die bei den einzelnen Rechnungen unverändert bleiben, werden in der Tabelle 2 aufgeführt.

Die von den einzelnen Autoren /2, 5 bis 10/ angegebenen Beziehungen zur Berechnung der Wärmeleitfähigkeit (s. Tabelle 3) sind für Brennstoff mit unterschiedlicher Porosität abgeleitet worden. Um für einen Vergleich eine einheitliche Basis zu haben, wurde eine Umrechnung auf 100 % der theoretischen Dichte mit Hilfe des in /2/ vorgeschlagenen Ansatzes

$$\lambda(P) / \lambda (P_0 = 100 \%) = (1 - P^{2/3}) \quad (2.1)$$

vorgenommen. Das Resultat ist in der Abb. 3 graphisch dargestellt. Wie diese Abbildung zeigt, weichen die einzelnen Kurven mehr oder minder stark voneinander ab. Auf die möglichen Ursachen der Abweichungen soll an dieser Stelle nicht eingegangen werden. In pauschaler Weise kann die Streuung als Aussage über den gegenwärtigen Stand der Kenntnis gewertet werden. Wählt man die in /5/ angegebene Darstellung als Vergleichsbasis, so liegen die Angaben der anderen Autoren innerhalb eines Streubandes von maximal rund $\pm 20\%$ mit Schwerpunkt im unteren Teil des Streubandes. In der Abb. 3 ist dieses Streuband durch die beiden gestrichelt gezeichneten Kurven begrenzt.

Eine Ausnahme bildet die in /8/ angegebene Beziehung, die bei Brennstofftemperaturen oberhalb 2400°C eine systematische Abweichung zu niedrigeren Wärmeleitfähigkeitswerten zeigt. Eine ähnliche Tendenz läßt die in /6/ angegebene Beziehung erkennen.

Da die in /5/ abgeleitete Beziehung eine explizite Abhängigkeit von der Stöchiometrie enthält und über einen sehr weiten Temperaturbereich Gültigkeit besitzt, wurde sie zu den mit SATURN-1a durchgeführten Rechnungen herangezogen.

Die Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von der Porosität wird von den einzelnen Autoren /2, 7, 8, 12 bis 17/ durch unterschiedliche Ansätze erfaßt, in denen zum Teil der Einfluß der Gestalt der Poren berücksichtigt wird. Da diese zu Beginn der Bestrahlung nicht eindeutig definiert werden kann, wird in stark vereinfachender Näherung ein kugelförmiges Aussehen angenommen. Die dafür geltenden Ansätze sind in der Tabelle 4 aufgeführt und in der Abb. 4 graphisch dargestellt. Sie zeigen über den interessierenden Porositätsbereich unterschiedliche, zum Teil erhebliche Differenzen.

Für die Berechnung der linearen thermischen Ausdehnung von UO_2 - PuO_2 -Brennstoff mit 20 % Pu-Anteil wurde die in /23/ angegebene, nur von der Temperatur abhängige Beziehung verwendet. Danach ist der lineare Ausdehnungskoeffizient gegeben als

$$\alpha = 7,87 \cdot 10^{-6} + 3,90 \cdot 10^{-9} T. \quad (2.2)$$

mit T in $^{\circ}C$ und α in $1/^{\circ}C$.

2.2.2 Ergebnisse

Ein Ziel der Parameterstudie war es, die Auswirkung einer gewissen Unsicherheit in der Beschreibung der Wärmeleitfähigkeit von UO_2 - PuO_2 -Brennstoff auf charakteristische Brennstabgrößen zu untersuchen. So ist in Abb. 5 die Veränderung dargestellt, die die Zentral- und die Randtemperatur der Brennstofftablette erfahren, wenn eine Unsicherheit in der Kenntnis der Wärmeleitfähigkeit zwischen -20 % und +20 %, bezogen auf die in /5/ abgeleitete Beziehung angenommen wird. Der Einfluß der Porosität wurde dabei durch die in /2/ angegebene Beziehung erfaßt.

Wie die Abb. 5 und folgende Abbildungen zeigen, führt eine Verminderung der Wärmeleitfähigkeit zu einer Anhebung der Brennstoffzentraltemperatur, dagegen zu einer Erniedrigung der Brennstoffrandtemperatur. Entsprechend hat eine Verbesserung den gegenteiligen

Effekt zur Folge. Dieses Verhalten ist darauf zurückzuführen, daß z.B. bei einer Verminderung der Wärmeleitfähigkeit das mittlere Temperaturniveau der Brennstofftablette angehoben (vgl. Abb. 6) und dadurch die thermische Ausdehnung vergrößert wird. Das führt zu einer Verkleinerung des Spaltes zwischen Brennstofftablette und Hüllrohr und damit zu einer Verbesserung des Wärmedurchgangs (vgl. Abb. 2), so daß letztlich die Brennstoffrandtemperatur absinkt. In Tabelle 5 ist der Effekt für den in Abb. 5 dargestellten Fall festgehalten.

Der Einfluß einer unterschiedlichen Darstellung der Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit auf charakteristische Brennstabgrößen ist aus Abb. 6 und Tabelle 6 ersichtlich. Bei der den Rechnungen zugrundegelegten Porosität der Brennstofftablette in Höhe von 16 % liefern, wie auch aus Abb. 4 hervorgeht, die Darstellungen nach /15,17/, /2,7/ und /8,13,14/ jeweils nahezu identische Ergebnisse, soweit die thermischen Verhältnisse zu Beginn der Bestrahlung bei noch ungeänderter Struktur der Brennstofftablette betrachtet werden. Die unterschiedliche Abhängigkeit der einzelnen Darstellungen von der Porosität kann jedoch im Laufe des Abbrandes infolge der Brennstoffumstrukturierung zu mehr oder minder großen Abweichungen führen.

Die Abhängigkeit charakteristischer Brennstabgrößen von dem jeweiligen Wert der Herstellungsporosität wird anhand zweier Beispiele durch die Abb. 7 und die Tabelle 7 gezeigt. Für sie hat in dem für die Brennstabauslegung interessanten Porositätsbereich bei den gewählten Betriebsbedingungen eine Änderung der Porosität um einen absoluten Betrag von 6 % eine Änderung der Zentraltemperatur um rund 100 °C zur Folge. Etwa dieselbe Differenz tritt bei einem festen Wert der Porosität durch die unterschiedliche Darstellung der Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit zwischen den beiden ausgewählten Beispielen auf.

Abb. 8 und Tabelle 8 geben den Einfluß der Stöchiometrie auf die betrachteten charakteristischen Brennstabgrößen wieder, wie er mit der in /5/ abgeleiteten Wärmeleitfähigkeitsbeziehung erfaßt ist. Die Abhängigkeit von der Porosität wurde gemäß /2/ berücksichtigt. Wie die Abb. 8 zeigt, bringt unter den gegebenen Umständen eine Verminderung

des Sauerstoffanteils von 2,00 auf 1,96 eine Erhöhung der Zentraltemperatur um rund $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ zu Beginn der Bestrahlung mit sich. Die Brennstoffrandtemperatur sinkt dabei um rund $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ infolge der durch die vergrößerte thermische Ausdehnung auf etwa die Hälfte verringerten Spaltbreite ab.

2.3 Thermische Ausdehnung

Der gegenwärtige Stand der Kenntnis über die thermische Ausdehnung des aus unterstöchiometrischem UO_2 - PuO_2 bestehenden Schnellbrüter-Brennstoffes läßt noch viele Wünsche offen. Der Temperaturbereich, aus dem Messungen über Ausdehnungskoeffizienten vorliegen, erreicht bei weitem nicht die hohen Werte, die während des Betriebes auftreten. Er reicht bei Mischoxid bis etwa $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$, bei reinem UO_2 bis etwa $2200\text{ }^{\circ}\text{C}$ und bei reinem PuO_2 bis etwa $1400\text{ }^{\circ}\text{C}$. Für die unter Schnellbrüter-Bedingungen auftretenden Brennstofftemperaturen bis etwa $2700\text{ }^{\circ}\text{C}$ muß deshalb extrapoliert werden.

Der Einfluß der Stöchiometrie ist bisher kaum untersucht worden. Über die Abhängigkeit vom Abbrandzustand des Brennstoffes gibt es keine Angaben. Das in diesem Abschnitt zusammengestellte Datenmaterial ist deshalb mit einem relativ hohen Grad an Unsicherheit behaftet.

In einer Parameterstudie wurden die von verschiedenen Autoren angegebenen Daten und Beziehungen verglichen und der Einfluß untersucht, den zum einen die unterschiedlichen Angaben über den thermischen Ausdehnungskoeffizienten und zum anderen seine Stöchiometrieabhängigkeit auf charakteristische Größen eines Schnellbrüter-Brennstabes haben. Zu diesem Zweck wurden wiederum mit Hilfe des Rechenprogrammsystems SATURN-1a einige Rechnungen durchgeführt.

2.3.1 Definition des thermischen Ausdehnungskoeffizienten

Die thermische Ausdehnung eines Körpers ist isotrop und linear, wenn der Körper selbst isotrop ist und die Geometrieänderung, die bei einer Temperaturänderung von einem homogenen Temperaturniveau auf ein anderes homogenes Temperaturniveau auftritt, ohne äußere Behinderung erfolgt. Diese thermische Ausdehnung wird mit Hilfe eines linearen

thermischen Ausdehnungskoeffizienten beschrieben, dessen differentielle Darstellung allgemein folgendermaßen lautet:

$$\alpha_D(T) = \frac{dl}{l \cdot dT} \quad . \quad (2.3)$$

Dabei ist l die Länge des Körpers bei der Temperatur T und dl die durch die Temperaturänderung von T nach $T + dT$ bewirkte Längenänderung. Es ist üblich, den thermischen Ausdehnungskoeffizienten nicht auf die Länge des Körpers bei der Temperatur T , sondern auf die Länge l_0 bei einer festen Temperatur T_0 zu beziehen. Der differentielle lineare thermische Ausdehnungskoeffizient lautet dann:

$$\alpha_{D(T_0, T)} = \frac{dl}{l_0 dT} \quad . \quad (2.4)$$

Die Länge des Körpers bei der Temperatur T ergibt sich aus dieser Beziehung durch Integration von der Temperatur T_0 bis zur Temperatur T :

$$l(T) = l_0 \cdot \left(1 + \int_{T_0}^T \alpha_D(T_0, T) \, dT \right) \quad . \quad (2.5)$$

Eine weitere Möglichkeit zur Beschreibung der thermischen Ausdehnung bietet der integrale lineare thermische Ausdehnungskoeffizient, der folgendermaßen definiert ist:

$$\alpha_I(T_0, T) = \frac{1}{T - T_0} \cdot \int_{T_0}^T \alpha_D(T_0, T) \, dT \quad . \quad (2.6)$$

Die Länge des Körpers bei der Temperatur T ist dann durch die Beziehung

$$l(T) = l_0 \cdot \left(1 + \alpha_I(T_0, T) \cdot (T - T_0) \right) \quad (2.7)$$

gegeben.

2.3.2 Vergleich verschiedener Angaben zur thermischen Ausdehnung von UO₂-PuO₂-Brennstoff

Umfangreiche röntgenografische Messungen zur thermischen Ausdehnung von (U,Pu)O₂-Brennstoff wurden von Roth und Halteman /24/ publiziert. Diese Autoren bestimmten thermische Ausdehnungskoeffizienten im Temperaturbereich von 100 °C bis rund 1200 °C für verschiedene Mischungsverhältnisse von PuO₂ und UO₂. Die Stöchiometrie war von Probe zu Probe unterschiedlich. Sie bewegte sich zwischen 2,01 und 2,24. Die Aussagekraft dieser Messungen wird dadurch stark eingeschränkt.

Wie Roth et al./25/ für UO₂-20 Gew.-% PuO₂-Brennstoff mit Hilfe dilatometrischer und röntgenografischer Messungen nachwies, ist die thermische Ausdehnung in starkem Maße von der Stöchiometrie abhängig.

2.3.2.1 Temperatur- und Konzentrationsabhängigkeit

Die von Roth und Haltemann /24/ für die verschiedenen untersuchten PuO₂-Konzentrationen angegebenen Beziehungen für den differentiellen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten $\alpha_D(T_0, T)$ als Funktion der Temperatur T sind in der Tabelle 9 zusammengestellt. In /26/ werden diese Koeffizienten irrtümlich als integrale lineare thermische Ausdehnungskoeffizienten bezeichnet.

Aus diesen Beziehungen für eine Temperatur von T = 1000 °C berechnete Werte sind in der Abb. 9 als Funktion des PuO₂-Anteils dargestellt. Es fällt auf, daß die für einen PuO₂-Anteil von 20 Gew.-% angegebene Beziehung zu einem relativ großen thermischen Ausdehnungskoeffizienten führt.

Von Horn und Panisko /27/ wird eine Beziehung vorgeschlagen, die den thermischen Ausdehnungskoeffizienten als Funktion der Temperatur und des PuO₂-Anteils wiedergibt. Sie wurde durch Anpassung an die Daten von Roth und Haltemann gewonnen. Sie lautet:

(2.8)

$$\alpha_D(T_0, T) = \{9,45 \cdot e^{-0,0034 \cdot \text{Pu}} + (0,0012 + 8,66 \cdot 10^{-5} \cdot \text{Pu}) \cdot T / ^\circ\text{C}\} \cdot 10^{-6} / ^\circ\text{C},$$

mit Pu = PuO₂-anteil, in Gew.-% und
T = Temperatur, in °C.

In Abb. 9 sind die mit dieser Beziehung für eine Temperatur von T = 1000 °C berechneten Werte eingetragen.

In /28,29,30/ werden Beziehungen für die Längenänderung bei thermischer Ausdehnung als Funktion der Temperatur und in Abhängigkeit vom PuO_2 -Anteil angegeben, die nach folgendem Verfahren hergeleitet wurden:

Entsprechend den jeweiligen Anteilen wurden die thermischen Ausdehnungskoeffizienten von UO_2 und PuO_2 zu einem gewichteten Ausdehnungskoeffizienten für das Mischoxid überlagert /28/. Dabei konnten bis zu einer Temperatur von $T = 2250^\circ\text{C}$ für UO_2 gemessene Werte verwendet werden /31/. Für PuO_2 mußten extrapolierte Werte verwendet werden. Bis zu einer Temperatur von $T = 1420^\circ\text{C}$ gemessene Werte werden in einer neueren Arbeit von Tokar et al. /32/ angegeben.

Die nach dem angedeuteten Verfahren gewonnene Beziehung lautet in allgemeiner Form nach /29/ unter Berücksichtigung der Abhängigkeit vom PuO_2 -Anteil:

$$\frac{\Delta L}{L_0} = (4,16 + 0,01 \cdot \text{Pu}) \cdot 10^{-4} + (6,905 - 0,0056 \cdot \text{Pu}) \cdot 10^{-6} T/^\circ\text{C} + (2,740 + 0,009 \cdot \text{Pu}) 10^{-9} \cdot T^2/(\text{^\circ C})^2, \quad (2.9)$$

mit $\text{Pu} =$ Gewichtsanteil von PuO_2 , in Gew.-% und
 $T =$ Temperatur, in $^\circ\text{C}$.

Aus den Beziehungen (2.8) und (2.9) wurden die entsprechenden integralen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten $\alpha_L(T_0, T)$ abgeleitet und in Abb. 10 bezüglich ihrer Abhängigkeit vom PuO_2 -Anteil verglichen. In diese Abb. sind zusätzlich die aus den Beziehungen von Roth und Halteman /24/ abgeleiteten integralen Koeffizienten eingetragen. Die Beziehungen selbst sind in der Tabelle 10 zusammengestellt.

Für den für einige Bestrahlungsexperimente interessierenden PuO_2 -Anteil von 20 Gew.-% sind in der Abb. 11 die integralen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten nach /24/, /27/ und /28,29,30/ als Funktion der Temperatur dargestellt, ergänzt durch Werte, die aus der in /33/ angegebenen Beziehung für die Längenänderung von UO_2 -20 Gew.-% PuO_2 -Brennstoff

$$\frac{\Delta L}{L_0} = - 1,77 \cdot 10^{-4} + 6,482 \cdot 10^{-6} T/^\circ\text{C} + 2,997 \cdot 10^{-9} T^2/(\text{^\circ C})^2 \quad (2.10)$$

abgeleitet wurden. Diese Werte unterscheiden sich von den nach /28, 29,30/ bestimmten im wesentlichen dadurch, daß zu den letzteren ein von $1/T$ abhängiger Term beiträgt, wie aus der Tabelle 11 ersichtlich ist, in der die verschiedenen Beziehungen für den integralen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten zusammengestellt sind.

Einen Überblick über die relative Längenänderung in Abhängigkeit von der Temperatur gibt die Abb. 12 für Mischoxid mit einem Anteil von 20 Gew.-% PuO_2 . Die entsprechenden Beziehungen sind in Tabelle 12 zusammengestellt. Bis zu einer Temperatur von rund 1600°C gibt es zwischen den einzelnen Beziehungen nur geringfügige Abweichungen. Darüber hinaus werden die Differenzen aber zunehmend größer.

2.3.2.2 Stöchiometrieabhängigkeit

Zur Stöchiometrieabhängigkeit des thermischen Ausdehnungskoeffizienten liegt nur eine Aussage vor. Sie stammt von Roth et al. /25/ und betrifft das Mischoxid mit 20 Gew.-% PuO_2 . Die Abhängigkeit des integralen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von der Stöchiometrie S wird für die Temperatur von $T = 1500^\circ\text{C}$ in folgender Weise angegeben:

$$\alpha_I(T_0, 1500^\circ\text{C}) = (125,9 - 57,3 S) 10^{-6}/^\circ\text{C}, \quad (2.11)$$

mit $1,94 \leq S \leq 2,01$.

In Abb. 13 ist diese Beziehung graphisch dargestellt. Ein Vergleich dieser Beziehung mit den in Abb. 11 dargestellten Beziehungen nach /27/, /28,29,30/ und /33/ legt die Annahme nahe, daß diese für stöchiometrisches bzw. knapp überstöchiometrisches Mischoxid aus UO_2 -20 Gew.-% PuO_2 gelten sollten.

2.3.3 Ergebnisse

Unter der Voraussetzung, daß der von Roth et al. angegebene Zusammenhang von Stöchiometrie und thermischem Ausdehnungskoeffizienten auf einen größeren Temperaturbereich übertragbar ist, kann der Einfluß der Stöchiometrieabhängigkeit der thermischen Ausdehnung auf charakteristische Brennstabgrößen untersucht werden. Für diese Untersuchung

wurden die nach /27/ und /33/ bestimmten integralen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten verwendet. Zu jeweils drei Stöchiometriewerten sind die möglichen Beziehungen in Tabelle 13 zusammengestellt und in Abb. 14 graphisch aufgetragen. In diese Abb. wurde auch die Beziehung eingetragen, die nach /23/ für UO_2 -20 Gew.-% PuO_2 -Brennstoff in der Parameterstudie zur Wärmeleitfähigkeit von UO_2 - PuO_2 -Brennstoff verwendet wurde (s. Abschn. 2.2, Beziehung (2.2)).

Die für die Parameterstudie mit dem Rechenprogrammsystem SATURN-1a benötigten Eingabedaten der Stabspezifikation und der Betriebsbedingungen wurden in Anlehnung an den Bestrahlungsversuch DFR-350 /22/ gewählt. Sie sind in den Tabellen 1 und 2 zusammengestellt. Die im folgenden angegebenen Rechenergebnisse beziehen sich auf den bei Erreichen der vollen Stableistung herrschenden Betriebszustand des betrachteten Brennstabquerschnittes.

Den Einfluß der Stöchiometrieabhängigkeit der thermischen Ausdehnung auf die Zentral- und die Randtemperatur der Brennstofftablette zeigt die Abb. 15 anhand des Vergleiches der mit und der ohne Berücksichtigung der Stöchiometrieabhängigkeit berechneten Werte. Die Stöchiometrieabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit wurde nach /5/ in beiden Fällen berücksichtigt. Abb. 16 vergleicht Zentral- und Randtemperaturen, die unter Verwendung der in der Tabelle 13 nach einer möglichen Stöchiometrieabhängigkeit aufgeschlüsselten Beziehungen für die thermische Ausdehnung nach /27/ und /33/ berechnet wurden. Weitere charakteristische Brennstabgrößen sind in Tabelle 14 zusammengestellt.

Der Einfluß auf die Zentraltemperatur der Brennstofftablette scheint nicht sehr groß zu sein, wie Abb. 15 zeigt, wenn die der Berechnung zugrundegelegte Annahme eine brauchbare Näherung darstellt. Größer scheint ihr Einfluß auf Spaltbreite und Brennstoffrandtemperatur zu sein. Die mit der Erniedrigung des Stöchiometriewertes einhergehende Vergrößerung der thermischen Ausdehnung führt zu einer Erniedrigung der Zentral- und der Randtemperatur der Brennstofftablette, solange zwischen ihr und der Hülle ein Spalt vorhanden ist. Im Kontaktfall kann eine niedrigere Stöchiometrie eine stärkere mechanische Belastung der Hülle durch die vergrößerte thermische Ausdehnung des Brennstoffes bewirken.

3. Einfluß der Sauerstoff-Umverteilung

Für den oxidischen Brennstoff Schneller Brutreaktoren wird ein Sauerstoffgehalt spezifiziert, der unterhalb des stöchiometrischen Wertes von 2,00 liegt. Durch diese Maßnahme soll der Korrosionsangriff des Hüllrohres abgeschwächt werden, der vom Sauerstoffpotential des Brennstoffes abhängt.

Während der Bestrahlung ist jedoch der Sauerstoffgehalt des Brennstoffes einer Änderung unterworfen. Der durch die Spezifikation vorgegebene Mittelwert steigt mit zunehmendem Abbrand an, da die Sauerstoffatome, die bei der Spaltung des Schwermetalls freigesetzt werden, durch die entstehenden Spaltprodukte nicht wieder vollständig gebunden werden. Daneben findet im radialen Temperaturgradienten der Brennstofftablette eine Änderung der Verteilung der Sauerstoffkonzentration statt. Bei unterstöchiometrischem Brennstoff sinkt die Sauerstoffkonzentration im Innern der Tablette ab, während sie entsprechend im äußeren Teil ansteigt bis auf Werte, die am Rand nahezu dem stöchiometrischen Zustand entsprechen.

Die Umverteilung der Sauerstoffkonzentration wirkt sich aufgrund der O/Me-Abhängigkeit verschiedener Materialeigenschaften auf das Betriebsverhalten des Brennstabes aus. In einer Parameterstudie wurde der Einfluß untersucht, den die sich ändernde Sauerstoffverteilung über die Wärmeleitfähigkeit auf das radiale Temperaturprofil der Brennstofftablette ausübt.

3.1 Grundlagen

Für den im unterstöchiometrischen Brennstoff unter dem Einfluß des radialen Temperaturgradienten stattfindenden Sauerstofftransports zum Rand der Brennstofftablette kommen folgende Transportmechanismen in Frage /34,35,36/:

- Festkörper-Thermodiffusion und
- Transport über die Gasphase mittels Trägergase durch Poren und Risse.

Der Transport über die Gasphase kann mittels der Gasgemische H_2/H_2O und CO/CO_2 erfolgen, wenn deren Partialdrücke genügend hoch sind. Es kann jedoch angenommen werden, daß die Partialdrücke dieser Gase bei unterstöchiometrischem Brennstoff so niedrig sind, daß dieser

Transportmechanismus insgesamt nicht wesentlich zum Sauerstofftransport beiträgt /36/. Den Hauptbeitrag liefert die Festkörper-Thermodiffusion. Die Gleichgewichts-Sauerstoffdefekt-Verteilung, die sich nach diesem Transportmechanismus einstellt, wird durch folgende Beziehungen beschrieben /34/:

$$x = x_0 \exp \left\{ - \frac{Q_v^+}{R} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T} \right) \right\} , \quad (3.1)$$

mit $T_0 \leq T$ Temperaturen, in K
 x_0, x Abweichung von der Stöchiometrie
 ($x = 2 - O/Me$) bei T_0 bzw. T
 Q_v^+ Transportwärme von Sauerstoff, in kcal/mol
 R universelle Gaskonstante, in kcal/mol·K

Da die Plutonium-Valenz nicht unter einen bestimmten Wert absinkt, ist der mögliche Wertebereich des O/(U+Pu)-Verhältnisses nach unten hin beschränkt. Es gilt /34/:

$$O/(U+Pu) \geq 2 - (4 - v_{Pu}) a_{Pu}/2 , \quad (3.2)$$

mit v_{Pu} Plutonium-Valenz
 a_{Pu} Atombruch des Plutoniums, bezogen auf die Gesamtzahl der Brennstoffatome

Nimmt man an, daß die Plutonium-Valenz im Brennstoff den theoretisch möglichen Wert von 3 erreicht, so folgt aus der angegebenen Beziehung, daß für einen Brennstoff aus UO_2 mit 20 % PuO_2 das O/(U+Pu)-Verhältnis nicht kleiner als 1,900 werden kann.

Aus experimentellen Arbeiten (vgl. /37/) wurde abgeleitet, daß die Plutonium-Valenz nicht unter den Wert 3,150 absinkt. Diesem Wert entspricht eine untere Grenze des O/(U+Pu)-Verhältnisses von 1,915.

Der Wert für die Transportwärme Q_v^+ hängt von der Sauerstoffkonzentration ab. Diese Abhängigkeit kann nach /38/ durch folgende Beziehung beschrieben werden:

$$Q_v^+ = (-27 + 3,8 \cdot 10^2 \cdot x) \text{ kcal/mol} \quad (3.3)$$

Sie gilt für unterstöchiometrischen Mischoxid-Brennstoff mit 20 Gew.-% PuO₂.

Die Geschwindigkeit, mit der der Gleichgewichtszustand der Sauerstoffdefektverteilung erreicht wird, ist temperaturabhängig. In der inneren heißen Zone der Brennstofftablette erfolgt die Umverteilung schneller als in der äußeren kälteren Zone. Über die Größe und die Temperaturabhängigkeit des Diffusionskoeffizienten in (U,Pu)O_{2-x} ist zur Zeit noch wenig bekannt. Eine Aussage ist anhand von Experimenten möglich, die an unterstöchiometrischem (U_{0,8}Ce_{0,2})O_{2-x} durchgeführt wurden (siehe /34,39/). Sie zeigen, daß die Beweglichkeit des Sauerstoffes im Festkörper sehr hoch ist.

3.2 Ergebnisse

Um den Einfluß untersuchen zu können, den die Sauerstoffumverteilung auf das radiale Temperaturprofil der Brennstofftablette ausübt, wurde ein entsprechendes Rechenprogramm mit dem Namen STEQ entwickelt und als Unterprogramm in das Rechenprogrammsystem SATURN-1a /1/ eingebaut. Mit diesem erweiterten Programmsystem wurde das Verhalten beim ersten Anfahren eines Brennstabes analysiert.

Stabspezifikation und Betriebsbedingungen sind in Tabelle 1 und 2 zusammengestellt. Als Anfahrzeit wurde wiederum ein Zeitraum von fünf Stunden angenommen, in dem Stableistung und Hüllrohräußentemperatur linear auf den jeweiligen Endwert gebracht werden. In dieser Zeit findet noch keine Änderung der Brennstoffstruktur durch Porenwanderung statt.

Die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes wurde mit der in /5/ angegebenen Beziehung beschrieben. Eine Stöchiometrieabhängigkeit der thermischen Ausdehnung wurde nicht berücksichtigt.

Die in den Abb. 17 und 18 dargestellten Rechenergebnisse beziehen sich auf den bei Erreichen der vollen Leistung herrschenden Betriebszustand des betrachteten Brennstabquerschnittes. Sie zeigen für einen mittleren Wert des O/Me-Verhältnisses von 1,98 bzw. 1,96 die Sauerstoffverteilung und das radiale Temperaturprofil jeweils ohne und mit Berücksichtigung der Sauerstoffumverteilung. Der Grenzwert, der von der

Sauerstoffdefektverteilung nicht überschritten werden kann, wurde nach /37/ auf $x_{\max} = 0,085$ festgesetzt.

Eine Zunahme der Sauerstoffkonzentration bedeutet eine Verbesserung der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes, eine Abnahme eine Verschlechterung. In der äußeren Zone der Brennstofftablette wird deshalb infolge der verbesserten Wärmeleitfähigkeit der Temperaturgradient geringer, in der inneren Zone aufgrund der Verschlechterung größer. Der Einfluß in der äußeren Zone ist dabei stärker als der in der inneren Zone, so daß insgesamt als Folge der Umverteilung des Sauerstoffs eine Abkühlung der Brennstofftablette mit einer deutlichen Abnahme der Zentraltemperatur eintritt.

4. Einfluß der Plutonium-Umverteilung

Die mit dem für den Schnellen Prototyp-Reaktor SNR-300 vorgesehenen $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstoff durchgeführten Experimente haben gezeigt, daß unter den im Brennstab herrschenden Temperaturgradienten eine Entmischung der beiden Komponenten Plutonium und Uran stattfindet (siehe z.B. /40,41,42/). Mit dieser Entmischung ist eine Änderung der Wärmequelllichtverteilung im Brennstab verbunden, die ihrerseits wieder das Temperaturprofil im Brennstab beeinflusst.

Die Vorgänge, die zu der beobachteten Entmischung führen, sind in erster Linie Thermodiffusion in der Brennstoffmatrix und Verdampfungs- und Kondensationsprozesse in den Hohlräumen des Brennstoffs bzw. des Brennstabs, wie z.B. in Poren, Blasen, Rissen und dem Zentralkanal /43 bis 47/.

4.1 Verdampfung und Kondensation

Der Entmischungseffekt durch Verdampfungs- und Kondensationsprozesse in Poren und Blasen wird durch deren Wanderung im radialen Temperaturgradienten der Brennstofftablette verursacht. Zu Beginn der Bestrahlung eines frischen Brennstabes ist deshalb in Zusammenhang mit der Verdichtung der inneren Brennstoffzone bereits mit einer raschen Veränderung der ursprünglichen Plutoniumverteilung zu rechnen.

Das Verhalten während der Anfahrphase hat für die thermische Auslegung eines Brennstabes und für die Festlegung von Anfahrbedingungen eine besondere Bedeutung. In einer Parameterstudie wurde deshalb der Einfluß untersucht, den die zu Beginn der Bestrahlung erfolgende Umverteilung des Plutoniums auf das radiale Temperaturprofil der Brennstofftablette hat.

4.1.1 Grundlagen

4.1.1.1 Umverteilung der Herstellungsporosität

Die im wesentlichen zu Beginn der Bestrahlung auftretende Strukturänderung des porösen Brennstoffes, die zur Ausbildung des Zentralkanals und zur Verdichtung der ihm benachbarten Brennstoffzone führt, hat ihre Ursache in der unter dem Einfluß des radialen Temperaturgradienten erfolgenden Wanderung der Herstellungs-poren in das Zentrum der Brennstofftablette. Von den drei möglichen Transportmechanismen Oberflächendiffusion und Gitterdiffusion bei Poren kleinen Durchmessers ($\approx 1 \mu\text{m}$) und Verdampfungs- und Kondensationsmechanismus bei Poren größeren Durchmessers kommt in der Hauptsache nur der letztere in Betracht /47/. Die Umverteilung der Herstellungs-porosität wird deshalb allein durch die folgende Beziehung beschrieben, die in der angegebenen Schreibweise aus /37/ entnommen wurde:

$$v = \frac{c \cdot p_0 \exp(-H/RT)}{p T^{3/2}} \frac{dT}{dr}, \quad (4.1)$$

- mit c = Materialkonstante, $c = 3,364 \text{ cm}^2/\text{s} \cdot \text{K}^{1/2}$
 p_0 = Materialkonstante, in kp/cm^2
 H = Verdampfungswärme, in kcal/mol
 R = universelle Gaskonstante, $R=1,98 \cdot 10^{-3} \text{ kcal}/\text{mol K}$
 T = Temperatur, in K
 p = Gesamtdruck in der Pore, in kp/cm^2
 $\frac{dT}{dr}$ = Temperaturgradient, in K/cm
 v = Wanderungsgeschwindigkeit, in cm/s

Diese Gleichung berücksichtigt nicht den möglichen Einfluß von Porengröße und -form.

Der Ausdruck $p_0 \exp(-H/RT)$ gibt die Summe aus den Partialdrücken der Uran und Plutonium enthaltenden Komponenten in der Dampfphase an. Die Dampfdrücke dieser Komponenten sind vom O/Me-Verhältnis des Mischoxid-Brennstoffes abhängig. Sie nehmen mit fallendem O/Me-Verhältnis ab. Zur Berücksichtigung dieses Effektes wird in /37/ die folgende für $(U_{0,8}, Pu_{0,2})O_{2-x}$ -Brennstoff gültige Beziehung angegeben:

$$p_0 \exp(-H/RT) = \exp \left\{ -212,275 + 65,842 (O/Me) + 8,9453 \cdot 10^{-2} T - 2,55399 \cdot 10^{-2} (O/Me) T + 2,9560 (O/Me)^2 - 5,6541 \cdot 10^{-6} T^2 \right\}, \quad (4.2)$$

mit $T =$ Temperatur, in K.

4.1.1.2 Plutonium-Umverteilung

Der sich über den Verdampfungs- und Kondensationsmechanismus abwickelnde Materialtransport ist wegen des für uran- bzw. plutoniumhaltige Komponenten unterschiedlichen Dampfdruckes mit einer Entmischung dieser Komponenten verbunden. Der Grad der Entmischung ist vom O/Me-Verhältnis des Brennstoffes abhängig. In wenig unterstöchiometrischem Brennstoff verdampft bevorzugt die uranhaltige Komponente, in stark unterstöchiometrischem Brennstoff bevorzugt die plutoniumhaltige Komponente. Die Grenze scheint bei einem O/Me-Verhältnis von etwa 1,978 zu liegen /48/. Die bevorzugte Verdampfung von Uran bedeutet eine Anreicherung von Plutonium in der Umgebung des Zentralkanals, die bevorzugte Verdampfung von Plutonium eine solche von Uran.

Nach dem in /37/ vorgeschlagenen Modell ist das Pu/(U+Pu)-Verhältnis, das am Ende eines bestimmten Zeitintervalls (ZI) in einem Ring der Brennstofftablette herrscht, durch die folgende Beziehung gegeben:

$$x'_{Pu} = \frac{m_M x_{Pu} + \Delta^+ m_M a/1+a - \Delta^- m_M b/1+b}{m_M + \Delta^+ m_M - \Delta^- m_M} \quad (4.3)$$

Darin ist:

m_M = Masse des schweren Metalls in dem betrachteten Ring zu Beginn des ZI,
 x_{Pu} } = Pu/(U+Pu)-Verhältnis in der Brennstoffmatrix des betrachteten Rings zu Beginn bzw. am Ende des ZI,
 x'_{Pu} }

$\Delta^+ m_M$ = Masse des schweren Metalls, die während des ZI aufgrund der Porenwanderung zum betrachteten Ring hinzukommt,

$\Delta^- m_M$ = Masse des schweren Metalls, die während des ZI aufgrund der Porenwanderung aus dem betrachteten Ring wegtransportiert wird,

a = Pu/U-Verhältnis der Materie, die über die Dampfphase zum betrachteten Ring hinzukommt.

b = Pu/U-Verhältnis der Materie, die über die Dampfphase aus dem betrachteten Ring wegtransportiert wird.

Die Massenänderung im betrachteten Ring wird mittels des im vorangehenden Abschnitt 4.1.1.1 angeführten Verfahrens zur Behandlung der Umverteilung der Herstellungsporosität bestimmt.

Die Größen a und b werden mit Hilfe der in /37/ angegebenen Beziehungen berechnet, die unter der Annahme abgeleitet sind, daß die wandernde Pore im thermodynamischen Gleichgewicht mit dem sie umgebenden Brennstoffmaterial steht. Diese Beziehungen lauten für stöchiometrischen Brennstoff aus $(U_{0,8}, Pu_{0,2})O_2$:

$$a \text{ (bzw. b)} = 0,6320 - 1,0909 \cdot 10^{-3} T + 5,566 \cdot 10^{-7} T^2 - 7,6232 \cdot 10^{-11} T^3, \text{ für } T > 1727 \text{ }^\circ\text{C und} \quad (4.4)$$

$$a \text{ (bzw. b)} = - 0,03374 + 3,01167 \cdot 10^{-5} T, \quad (4.5) \\ \text{für } 1127 \text{ }^\circ\text{C} < T \leq 1727 \text{ }^\circ\text{C},$$

mit T = Temperatur, in $^\circ\text{C}$.

Abweichungen von der Voraussetzung, daß der Brennstoff in jedem Ringelement 20 % PuO_2 enthält, können nach /37/ durch einen Korrekturfaktor berücksichtigt werden. Für das Pu/U-Verhältnis in der Dampfphase über Brennstoff mit abweichendem Pu-Anteil folgt damit:

$$\hat{a} \text{ (bzw. } \hat{b} \text{)} = \frac{4 x_{Pu}}{1-x_{Pu}} a \text{ (bzw. b)}. \quad (4.6)$$

4.1.2 Annahmen

Die Parameterstudie wurde für oxidischen Brennstoff mit 20 % PuO_2 -Anteil durchgeführt, wie er bei bisherigen Bestrahlungsversuchen zur Anwendung gelangte. Es wurde jedoch stöchiometrischer Brennstoff vorausgesetzt, um die bei unterstöchiometrischem Brennstoff durch die Umverteilung des Sauerstoffes auftretenden Effekte zu eliminieren und den zusammen mit der Porenwanderung auftretenden Entmischungseffekt der Plutonium- und Urankomponenten isoliert untersuchen zu können.

Bei den Rechnungen wurden drei Fälle unterschieden:

- Im ersten Fall wurde die Plutonium-Entmischung vernachlässigt.
- Im zweiten und dritten Fall wurde mit Plutonium-Entmischung gerechnet. Dabei wurde im zweiten Fall ein mit U-235 hochangereicherter Brennstoff zugrundegelegt, wie er bei Bestrahlungsexperimenten verwendet wurde, im dritten Fall ein im U-235-Gehalt abgereicherter Brennstoff, wie er für den SNR-300 vorgesehen ist.

Im zweiten Fall rührt die im Brennstab erzeugte Wärme sowohl aus der Spaltung des U-235 als auch aus der des Pu-239 her. Da der Anteil des U-235 den des Pu-239 bei weitem überwiegt, sollte die Auswirkung einer Änderung der ursprünglichen Pu-Verteilung gering sein. Wird die Wärme nur durch die Spaltung des Pu-239 erzeugt, hat eine Umverteilung dieses Schwermetalls auch eine entsprechende Veränderung der Wärmequell-dichtevertelung zur Folge.

Die für die Rechnungen verwendeten Material- und Betriebsdaten sind in der Tabelle 15 zusammengestellt. Sie wurden zum Teil stark vereinfacht.

Es wurde weiter angenommen, daß der zu Spaltungen führende Neutronenfluß räumlich und zeitlich konstant ist.

Die Wärmeleitfähigkeit des UO_2 - PuO_2 -Brennstoffes wurde mit der in /5/ angegebenen Gleichung beschrieben, die Abhängigkeit von der Porosität durch den in /15/ vorgeschlagenen Ansatz berücksichtigt.

4.1.3 Ergebnisse

Die Umverteilung des Plutoniums hat zur Folge, daß auch bei einer über den Brennstoffquerschnitt konstanten Neutronenflußverteilung die ursprünglich nahezu homogene Verteilung der Wärmequellichte eine Funktion des Brennstoffradius wird. Die Anreicherung in der Umgebung des Zentralkanals mit der daraus resultierenden Erhöhung der Wärmeproduktion führt in diesem Bereich des Brennstoffes zu einer Vergrößerung des Temperaturgradienten. Die Zentraltemperatur der Brennstofftablette wird mit Plutonium-Umverteilung höhere Werte annehmen als ohne Umverteilung. Der Effekt ist allerdings davon abhängig, ob Plutonium das einzige spaltbare Material im Brennstoff ist, wie es für den SNR-300 vorgesehen ist, oder ob wie bei den meisten Bestrahlungsexperimenten die notwendige Wärmeerzeugung in erster Linie durch die hohe Anreicherung mit Uran-235 erreicht wird. In den Abb. 19 und 20 ist dieser Effekt graphisch dargestellt.

Die gestrichelten Kurven geben den ohne Berücksichtigung der Plutonium-Umverteilung berechneten Verlauf der Temperaturen in Abhängigkeit von der Zeit bzw. vom Brennstoffradius wieder. Diese Kurven entsprechen innerhalb der Rechenungenauigkeiten auch den Ergebnissen, die unter Berücksichtigung der Plutonium-Umverteilung für einen Brennstoff berechnet wurden, der mit U-235 hoch angereichert ist.

Wird die Wärme allein durch die Spaltung des Plutoniums erzeugt, so entsteht ein Temperaturverlauf, wie er in den Abb. 19 und 20 durch die ausgezogenen Kurven wiedergegeben ist. Die Zentraltemperatur liegt nach einer Betriebszeit von 100 h in dem vorliegenden Beispiel um rund 35 °C über dem Wert, der ohne Berücksichtigung der Plutonium-Umverteilung berechnet wurde. Die Größe des Zentralkanals bleibt jedoch nahezu ungeändert, da die Änderung des Temperaturprofils nicht über die Verdichtungszone des Brennstoffes hinausreicht.

Die Berechnung der Porositäts- und der Plutonium-Umverteilung wurde mit Hilfe eines für diese Zwecke neu formulierten Rechenprogrammes durchgeführt, das den Namen PØUMEC erhalten hat. Die mit diesem Rechenprogramm bestimmten Verteilungen der Porosität und des Plutoniumanteils sind in der Abb. 21 dargestellt.

Die Abb. 22 bis 24 zeigen zum Vergleich die Verhältnisse, die bei einer um 100 °C höheren Brennstoffrandtemperatur herrschen. Bei diesem

Beispiel ist die Verdichtungszone im Brennstoff etwas größer und damit auch der von der Plutonium-Umverteilung erfaßte Bereich.

4.2 Thermodiffusion

Die Umverteilung des Plutoniums mittels Thermodiffusion ist gegenüber der bei der Wanderung der Herstellungsporen auftretenden Entmischung der plutonium- und uranhaltigen Komponenten des Brennstoffs ein langsamer Vorgang. Er gewinnt erst mit zunehmendem Abbrand stärkeren Einfluß auf die Plutonium-Umverteilung.

4.2.1 Grundlagen

Wie bei der Entmischung durch Verdampfung und Kondensation während der Wanderung der Herstellungsporen ist der Anlaß zur Entmischung durch Thermodiffusion der in der Brennstofftablette herrschende Temperaturgradient.

Der Materiestrom der plutoniumhaltigen Komponente, der sich infolge der Thermodiffusion im radialen Temperaturgradienten herausbildet, kann durch folgende Beziehung beschrieben werden (siehe z.B. /43/ bzw. /46/):

$$j_{\text{Pu}} = - n D \left(\frac{dx_{\text{Pu}}}{dr} + x_{\text{Pu}} x_{\text{U}} \frac{Q}{RT^2} \frac{dT}{dr} \right) \quad (4.7)$$

mit

j_{Pu} = Plutoniumstrom, in Ionen/cm²s

n = Gesamtzahl der Schwermetallatome pro Volumenelement der Brennstoffmatrix, in Atome/cm³

D = effektiver Diffusionskoeffizient, in cm²/s

$x_{\text{Pu}}, x_{\text{U}}$ = Molanteil von Plutonium- bzw. Uran-Dioxid ,
mit $x_{\text{Pu}} + x_{\text{U}} = 1$

Q = Transportwärme, in kcal/mol

R = universelle Gaskonstante, $R = 1,98 \cdot 10^{-3}$ kcal/mol K

T = absolute Temperatur, in K

r = Radius, in cm.

Eine entsprechende Beziehung gilt für den Materiestrom der uranhaltigen Komponente.

Der Diffusionskoeffizient D wurde nach /46/ durch folgenden Ausdruck dargestellt:

$$D = 0,34 e^{-\frac{111}{RT}} \text{ cm}^2/\text{s}.$$

Die Transportwärme wurde ebenfalls nach /46/ zu

$$Q = - 35 \text{ kcal/mol}$$

angenommen.

Aus der Beziehung über den Materiestrom kann mit Hilfe der Kontinuitätsgleichung die jeweilige Konzentration einer Komponente im Volumenelement als Funktion der Zeit bestimmt werden. Die Kontinuitätsgleichung lautet:

$$\frac{dn}{dt} + \text{div } j = 0, \quad (4.8)$$

in Zylinderkoordinaten

$$\frac{dn}{dt} + \frac{dj}{dr} + \frac{j}{r} = 0. \quad (4.9)$$

Daraus folgt:

$$n(t) = n(t_0) - \int_{t_0}^t \left(\frac{dj}{dr} + \frac{j}{r} \right) dt, \quad (4.10)$$

wobei $n(t_0)$ die Konzentration zum Zeitpunkt t_0 und $n(t)$ die Konzentration zum Zeitpunkt t ist, mit $t > t_0$.

Die Berechnung der zeitabhängigen Konzentration der plutonium- bzw. der uranhaltigen Komponente in der Brennstofftablette nach den Beziehungen (4.7) und (4.10) wurde mit dem zu diesem Zweck geschriebenen Rechenprogramm PUDIFF durchgeführt.

4.2.2 Voraussetzungen

Wie bei der in Abschnitt 4.1 dokumentierten Parameterstudie wurde für die Rechnungen oxidischer Brennstoff mit 20 % PuO_2 -Anteil vorausgesetzt. Das O/Me-Verhältnis wurde ebenfalls wieder mit 2,00 angenommen. Weitere Materialdaten sind in der Tabelle 15 zusammen mit den gewählten Betriebsbedingungen aufgeführt.

Es wurde weiter vorausgesetzt, daß der zu Spaltungen führende Neutronenfluß räumlich und zeitlich konstant ist. Die Wärmeleitfähigkeit des Mischoxid-Brennstoffes wurde wieder mit der in /5/ angegebenen Gleichung beschrieben, die Abhängigkeit von der Porosität durch den in /15/ vorgeschlagenen Ansatz berücksichtigt.

Die modellmäßig getrennte Behandlung der Plutonium-Entmischung durch einen Verdampfungs- und Kondensationsmechanismus auf der einen Seite und durch Thermodiffusion auf der anderen Seite in jeweils einem Rechenprogramm, POUMEC bzw. PUDIFF, stellt eine Annäherung an die tatsächlich ablaufenden Prozesse dar. Beide Entmischungsmechanismen laufen zeitlich parallel ab, wenn auch in ihrem makroskopischen Einfluß mit unterschiedlicher Wirkung. Denn der Verdampfungs- und Kondensationsmechanismus liefert zu Beginn der Bestrahlung den Hauptbeitrag zur Entmischung, bei höherem Abbrand überwiegt die Thermodiffusion.

Im numerischen Modell werden beide Effekte jedoch zeitlich versetzt gerechnet. Das gewählte Verfahren hat folgendes Aussehen:

Für ein Zeitintervall von bestimmter Länge wird die zu Beginn herrschende Temperaturverteilung in der Brennstofftablette als zeitlich konstant vorausgesetzt. Mit dieser Temperaturverteilung wird zuerst im POUMEC die durch den Verdampfungs- und Kondensationsmechanismus hervorgerufene Änderung der Porositäts- und der Plutoniumverteilung bestimmt, einschließlich der Änderung der Geometrie der Brennstofftablette durch die Zentralkanalbildung. Im Anschluß daran wird mit der zuvor berechneten Dichte- und Plutoniumverteilung im PUDIFF eine neue durch die Thermodiffusion veränderte Plutoniumverteilung bestimmt. Es folgt dann die Neuberechnung der Temperaturverteilung, die im nachfolgenden Zeitintervall als Basis der Rechnung dient.

4.2.3 Ergebnisse

Zu Beginn der Bestrahlung eines frischen Brennstabes spielt neben der Plutonium-Entmischung, die mit dem zur Porenwanderung führenden Verdampfungs- und Kondensationsmechanismus einhergeht, die Entmischung durch Thermodiffusion noch keine Rolle. Mit zunehmendem Abbrand wird die Verteilung der Plutoniumkonzentration jedoch immer stärker durch den Einfluß der Thermodiffusion geprägt. Ein Vergleich der in den Abb. 25 bis 27 dargestellten Rechenergebnisse macht diesen Einfluß deutlich.

Die Abb. 25 zeigt die radiale Verteilung der Plutoniumkonzentration, wie sie sich nach einer Bestrahlungszeit von 500 h allein aufgrund der Verdampfung und Kondensation einstellen würde. Die Verteilung, die sich allein aufgrund der Thermodiffusion zum gleichen Zeitpunkt ergeben würde, ist in der Abb. 26 dargestellt. Die Überlagerung beider Effekte führt zu der in der Abb. 27 dargestellten Konzentrationsverteilung.

Nach einer Bestrahlungszeit von 5000 h ist der Einfluß der Thermodiffusion auf die Form der Konzentrationsverteilung unverkennbar, während das Ausmaß der Umverteilung und besonders der Grad der Anreicherung des Plutoniums in der Umgebung des Zentralkanals über den ursprünglichen Wert von 20 % hinaus im wesentlichen durch den zu Beginn der Bestrahlung ablaufenden Verdampfungs- und Kondensationsmechanismus bestimmt ist.

In Abb. 26 ist die Verteilung dargestellt, die sich allein aufgrund der Thermodiffusion nach einer Bestrahlungszeit von 5000 h ergeben würde, in Abb. 27 diejenige Verteilung, die aus der Überlagerung der beiden Entmischungseffekte folgt. Der Einfluß der Verdampfung und Kondensation ist deutlich an dem Unterschied der Plutoniumkonzentrationswerte in unmittelbarer Umgebung des Zentralkanals zu sehen, wie die Abb. 28 zeigt. Diese modelltheoretische Aussage wird in Abschnitt 4.3 durch einen Vergleich der Rechenergebnisse mit experimentell bestimmten Werten überprüft.

Das Maximum, das die beiden Kurven in Abb. 28 zu Beginn der Bestrahlung durchlaufen, ist auf die Bildung des Zentralkanals und die thermischen Bedingungen im Zentrum der Brennstofftablette zu Beginn und während der Verdichtungsphase zurückzuführen. Der zugehörige zeitliche Verlauf der Zentraltemperatur ist in der Abb. 29 dargestellt.

Wie aus dieser Abbildung ersichtlich ist, fällt durch die Zunahme des Plutoniumanteils in der Umgebung des Zentralkanals der mit der Zentralkanalbildung und teilweisen Verdichtung des Brennstoffes einhergehende Temperaturabfall geringer aus, als sich bei einer Vernachlässigung der Plutonium-Entmischung ergeben würde.

Der anfänglich sehr rasch ablaufenden Verdichtung der inneren Brennstoffzone folgt eine langsame Verdichtung des nach außen anschließenden Brennstoffbereiches nach, verbunden mit einer weiteren, aber geringen Zunahme des Zentralkanalradius, wie es in den Abb. 26 und 27 aus der Veränderung der Porositätsverteilung bei 5000 h gegenüber der bei 500 h ersichtlich ist. Dieser Effekt wirkt sich auf das Temperaturprofil der Brennstofftablette stärker aus als die zunehmende Plutoniumkonzentration in der Umgebung des Zentralkanals (siehe Abb. 27 und 28), so daß insgesamt eine weitere, geringe Abnahme der Zentraltemperatur mit der Zeit errechnet wird. Dieser Verlauf ist aus der Abb. 29 direkt zu erkennen. In der Abb. 30 wird er durch den Vergleich der radialen Temperaturprofile bei 500 h und 5000 h deutlich.

In dieser Abbildung ist daneben noch einmal der Einfluß der Plutonium-Entmischung auf das Temperaturprofil der Brennstofftablette dargestellt.

Zur Vereinfachung der Parameterstudie wurde bei allen Rechnungen der Einfluß der sich bildenden Spaltgasblasen außer Acht gelassen. Ihre Berücksichtigung würde zu einer Abnahme der Dichte der inneren Zone der Brennstofftablette führen. Aufgrund der dadurch verursachten Verschlechterung der Wärmeleitfähigkeit können sich etwas höhere Zentraltemperaturen als die in dieser Parameter-Studie berechneten ergeben.

4.3 Vergleich mit dem Experiment

Mit den Modellen bzw. Materialdaten, die zur Beschreibung der Plutonium-Umverteilung durch Verdampfung und Kondensation über Leervolumen des Brennstoffes und Thermodiffusion in der Brennstoffmatrix zur Verfügung stehen /37,46/, wurde gefunden, daß bis zu den experimentell erreichten Abbränden der Hauptbeitrag zur radialen Plutonium-Umverteilung in stöchiometrischem Brennstoff durch Verdampfung und Kondensation in Verbindung mit der Wanderung von Leervolumen geliefert werden sollte. Diese Aussage wird im folgenden durch den Vergleich gemessener und berechneter Plutonium-Verteilungen überprüft.

4.3.1 Experimentelle Daten

Für den Vergleich wurde der Bestrahlungsversuch DFR-350 herangezogen /22/. Aus den radialen Plutonium-Konzentrationsprofilen, die zu diesem Experiment vorliegen /49/, wurden die des Querschliffes "Probe 4" des Stabes G6 und des Querschliffes "Probe 3" des Stabes G43 ausgewählt (s. Abb. 36 und 37). Beide Schliffe liegen am "heißen" Ende des jeweiligen Stabes, d.h. im Bereich maximaler Hüllrohrtemperaturen. Die axialen Positionen sind:

$$\begin{aligned} a &= 17 \text{ mm} && \text{für den Stab G 6 und} \\ a &= 10 \text{ mm} && \text{für den Stab G43,} \end{aligned}$$

wobei a den Abstand vom unteren Ende der Brennstoffsäule angibt. Da die Höhen der Brennstofftabletten 5 mm betragen haben, liegt der Querschliff "Probe 3" des Stabes G43 in der Nähe der Stoßstelle zweier Tabletten, während der Querschliff "Probe 4" des Stabes G6 etwa in der Mitte einer Tablette angebracht worden war.

Die Betriebsbedingungen, die an den betrachteten Positionen geherrscht haben, wurden aus dem in /22/ zusammengestellten Datenmaterial abgeleitet. Danach ist zu Beginn der Bestrahlung mit folgenden Werten für schnellen Neutronenfluß \mathcal{P} ($E > 0,1 \text{ MeV}$), lineare Stableistung χ und Hülloberflächentemperatur T_{Ha} zu rechnen:

$$\begin{aligned} \text{für Stab G6 :} \quad \mathcal{P} &= 1,45 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \text{ s,} \\ \chi &= 324 \text{ W/cm} \quad \text{und} \\ T_{\text{Ha}} &= 582 \text{ }^\circ\text{C,} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{für Stab G43:} \quad \mathcal{P} &= 1,40 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \text{ s,} \\ \chi &= 315 \text{ W/cm} \quad \text{und} \\ T_{\text{Ha}} &= 592 \text{ }^\circ\text{C.} \end{aligned}$$

Die Bestrahlungsdauer betrug rund 4862 h. An ihrem Ende sind lineare Stableistung und Hülltemperatur um etwa 8 % niedriger als zu Beginn der Bestrahlung.

Die charakteristischen Daten des Brennstoffes und der Hülle sind in der Tabelle 16 zusammengestellt.

4.3.2 Modelltheoretische Annahmen

Die Berechnung der Plutoniumverteilung erfolgte mit der Version 1e des Rechenprogrammsystems SATURN-1. In diese Version sind die Unterprogramme PØUMEC und PUDIIF integriert. Das Unterprogramm PØUMEC gestattet die Berechnung der durch Verdampfung und Kondensation in Zusammenhang mit der Porenwanderung auftretenden Entmischung von Uran und Plutonium (vgl. Abschnitt 4.1). Es stützt sich auf das von Lackey et al. /37/ angegebene Modell. Mit dem Unterprogramm PUDIIF ist die Berücksichtigung der durch Thermodiffusion /46/ verursachten Umverteilung der plutonium- bzw. uranhaltigen Komponente des Brennstoffes möglich (vgl. Abschnitt 4.2).

Die Zeitabhängigkeit der Betriebsbedingungen wurde in der Weise nachvollzogen, daß erstens die während der Bestrahlungszeit aufgetretenen 19 Abschaltungen in 3 Zyklen zusammengefaßt und zweitens für Stableistung und Hülltemperaturen zeitlich gemittelte Werte verwendet wurden.

Wie frühere Rechnungen zu dem Bestrahlungsversuch DFR-350 gezeigt haben /50,51/ müssen mindestens drei Zyklen berücksichtigt werden, um die gegenwärtig bestmögliche Annäherung der Rechenergebnisse an den in der Bestrahlungsnachuntersuchung gefundenen Endzustand der Brennstäbe zu erhalten.

Eine weitere sehr vereinfachende Näherung wurde für die Bestimmung des Wärmedurchgangs durch den Spalt bzw. durch die Kontaktzone zwischen Brennstoff und Hülle gewählt. Infolge der großen Unsicherheiten bezüglich der Abbrandabhängigkeit des Wärmedurchgangs wurde es als ausreichend angesehen, mit einem zeitlich gemittelten effektiven Wärmedurchgangskoeffizienten in der Größe von $h = 0,4 \text{ W/}^{\circ}\text{C cm}^2$ zu rechnen. Dieser Wert wurde aus den früher durchgeführten Rechnungen abgeleitet.

Zur Berechnung der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes wurde die in /5/ angegebene Beziehung mit der in /16/ vorgeschlagenen Korrektur zur Berücksichtigung der Porositätsabhängigkeit verwendet.

Die den Rechnungen zugrundeliegenden Daten sind in Tabelle 17 für den Stab G6 und in Tabelle 18 für den Stab G43 zusammengestellt.

4.3.3 Diskussion der Ergebnisse

Der anhand der vorliegenden Modelle zu erwartende Einfluß der beiden Umverteilungsmechanismen auf das Plutonium-Konzentrationsprofil ist in den Abb. 31 bis 33 dargestellt. Diese Ergebnisse basieren auf den für den Stab G43 charakteristischen Daten.

Abb. 31 zeigt die am Ende der Bestrahlung zu erwartende Plutonium-Verteilung, wenn allein Verdampfung und Kondensation als Umverteilungsmechanismus angenommen wird. Thermodiffusion allein würde die in Abb. 32 gezeigte Verteilung ergeben. Die Überlagerung beider Mechanismen führt auf die in Abb. 33 wiedergegebene Plutonium-Verteilung.

Eine Umverteilung des Plutoniums durch Verdampfung und Kondensation findet zu Beginn der Bestrahlung in Zusammenhang mit der Wanderung der Herstellungsporen statt. Es ist anzunehmen, daß sie auch während des gesamten Bestrahlungszeitraumes in Verbindung mit der Bildung und Wanderung von Spaltgasblasen vorkommt. Mit welchem Einwirken auf das Plutoniumkonzentrationsprofil dadurch im Rahmen des verwendeten Modells /37/ zu rechnen ist, soll durch die beiden in Abb. 33 angegebenen Plutonium-Verteilungen angedeutet werden. Bei der Berechnung der einen Verteilung wurde Blasenbildung und -wanderung völlig vernachlässigt, während für die zweite ein sehr vereinfachtes Modell der Spaltgasblasenbildung /52/ verwendet wurde.

Die Temperaturverhältnisse, die entsprechend den modelltheoretischen Annahmen zu Beginn und am Ende der Bestrahlung in dem Querschliff DFR-350-G43-3 geherrscht haben, sind in der Abb. 34 dargestellt.

Abb. 35 gibt die Verteilung der Plutoniumkonzentration für den Querschliff DFR-350-G6-4 wieder, die unter Berücksichtigung der beiden Umverteilungsmechanismen und unter Einschluß von Spaltgasblasenbildung und -wanderung berechnet wurde.

Der Vergleich der berechneten mit den gemessenen Plutonium-Verteilungen wird in Abb. 36 für den Querschliff G43-3 und in Abb. 37 für den Querschliff G6-4 durchgeführt. Er zeigt für den Querschliff G43-3 neben einer exzentrischen Lage des Zentralkanals deutliche Unterschiede der Konzentrationswerte des Plutoniums in der Umgebung des Zentralkanals und im Randbereich des Brennstoffes. Beim Quer-

schliff G6-4 fallen die großen Schwankungen des gemessenen Plutonium-Anteils in der Randzone und der gegenüber dem gemessenen Wert zu klein berechnete Zentralkanalradius auf.

Zu hohe Werte für die berechnete Plutonium-Konzentration in der Umgebung des Zentralkanals können darauf hindeuten, daß das verwendete Modell zur Behandlung der Verdampfung und Kondensation den Einfluß dieses Mechanismus überschätzt. Daneben kann aber auch das zur Beschreibung der Thermodiffusion verwendete Modell den Einfluß dieses Mechanismus unterschätzen. Unter den vorliegenden Verhältnissen führt der Verdampfungs- und Kondensationsmechanismus zu einer starken Anreicherung des Plutoniums in unmittelbarer Umgebung des Zentralkanals unter Ausbildung eines steilen Plutoniumgradienten. Unter seinem Einfluß findet durch Thermodiffusion eine teilweise Rückführung des Plutoniums und damit eine Verringerung der Plutonium-Konzentration in allernächster Umgebung des Zentralkanals statt. Verdampfung und Kondensation und Thermodiffusion wirken im innersten Bereich der Brennstofftablette gegenläufig auf das Plutonium-Konzentrationsprofil ein (vgl. Abschnitt 4.2).

Die Modellrechnung läßt unberücksichtigt, daß längs des Zentralkanals sowohl durch Verdampfung und Kondensation als auch durch Diffusion ein axialer Transport von Materie stattfinden (siehe /53/) und damit eine zusätzliche Beeinflussung der Plutonium-Konzentration, die in einem Querschliff gemessen wird, auftreten kann /49/. Axiale Transportphänomene können möglicherweise auch für die Abweichungen der Konzentrationswerte in der Außenzone der Querschliffe von dem spezifizierten Plutonium-Konzentrationswert von 20 % verantwortlich sein.

Eine Verdichtung des Brennstoffes wurde modellmäßig nur durch Porenwanderung im inneren Bereich des Brennstoffes erfaßt. Durch strahlenbedingtes Nachsintern und durch Heißpressen bei zyklischer Belastung des Brennstabes tritt im äußeren Bereich des Brennstoffes jedoch ebenfalls eine Verdichtung auf. Diese ist modellmäßig in dem Rechenprogrammsystem SATURN-1e noch nicht enthalten. Das erklärt die Differenz zwischen berechnetem und gemessenem Zentralkanalradius bei dem Stab G6. Bei dem Stab G43 würde die gleiche Differenz auftreten. Sie wird durch die exzentrische Lage des Zentralkanals und das Vorhandensein eines Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle, der in der Modellrechnung nicht auftritt, überdeckt.

Trotz der Unsicherheiten, die bei der Bewertung des Vergleiches einkalkuliert werden müssen, deutet das Ergebnis darauf hin, daß bis zu dem experimentell erreichten Abbrand die Intensität der in radialer Richtung erfolgten Umverteilung stärker durch den Mechanismus der Verdampfung und Kondensation als durch den der Thermodiffusion geprägt ist.

Ein erheblicher Teil der Unsicherheiten resultiert aus der unterschiedlichen Gestalt der gemessenen Plutonium-Verteilungen. Sie kann möglicherweise aus der unterschiedlichen axialen Position der Querschliffe (Stoßstelle bei G43-3, Pellet-Mitte bei G6-4) erklärt werden.

5. Einfluß des Sauerstoffgehaltes

Der Sauerstoffgehalt einer $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstofftablette bestimmt neben deren Wärmeleitfähigkeit sowohl die durch Porenwanderung erfolgende Umstrukturierung als auch die damit verbundene bzw. über Thermodiffusion ablaufende Plutonium-Umverteilung. Die Auswirkung dieser Phänomene auf das thermische Verhalten einer Brennstofftablette kann deshalb je nach Sauerstoffgehalt unterschiedlich sein. Eine weitere Beeinflussung erfolgt in unterstöchiometrischem Brennstoff durch die Sauerstoff-Umverteilung und die mit fortschreitendem Abbrand einhergehende Zunahme des Sauerstoffgehaltes.

Zwischen dem thermischen Verhalten und den jeweiligen Materialphänomenen besteht eine enge Wechselwirkung, da diese Materialphänomene einerseits von dem Temperaturprofil der Brennstofftablette abhängen, andererseits aber über die Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von den einzelnen Materialphänomenen auf das Temperaturprofil zurückwirken. Die auf diese Weise sehr komplexen Verhältnisse wurden in einer Parameterstudie untersucht. Dabei stand der Einfluß des Sauerstoffgehaltes im Vordergrund.

5.1 Qualitative Analyse

Wie die vorangegangenen Untersuchung gezeigt haben, führt neben der Porenwanderung auch die Sauerstoff-Umverteilung in unterstöchiometrischem Brennstoff zu einer Absenkung des Temperaturprofils. Dieser Effekt sollte umso größer sein, je niedriger der Sauerstoffgehalt, d.h. das mittlere O/Me-Verhältnis und je niedriger die Brennstoffrandtemperatur ist. Da bei niedriger Temperatur der Einfluß des Sauerstoffgehaltes auf die Wärmeleitfähigkeit größer ist als bei hoher Temperatur (siehe /3/ und /5/), führt eine Anhebung des O/Me-Verhältnisses in Richtung auf den Wert 2,00 in der Randzone des Brennstoffes im ersten Fall zu einer stärkeren Verbesserung der Wärmeleitfähigkeit als im zweiten Fall. Der Verbesserung in der Außenzone der Brennstofftablette steht eine Verschlechterung in der inneren Zone gegenüber, die jedoch nicht den gleichen Einfluß auf das Temperaturprofil erreicht (vgl. Abschnitt 3.).

Mit geringer werdendem Sauerstoffgehalt nimmt bei gleicher Temperatur der Dampfdruck der Uran- bzw. Plutonium-haltigen Brennstoffkomponenten ab, was zu einer Verlangsamung der Umstrukturierung des Brennstoffes durch Porenwanderung führt /37/. Da aber infolge der schlechteren Wärmeleitfähigkeit bei gleichen äußeren Bedingungen das Temperaturniveau höher liegt und der Temperaturgradient größer ist, ist dieser Verlangsamung eine temperaturbedingte Beschleunigung überlagert. Insgesamt ist ein größerer Umstrukturierungseffekt zu erwarten.

Die Plutonium-Umverteilung erfolgt über die beiden Mechanismen Verdampfung und Kondensation /37/ und Thermodiffusion /43,46,54/. Das für die Parameterstudie verwendete Modell zur Beschreibung des Verdampfungs- und Kondensationsmechanismus sagt eine Verminderung der Plutonium-Umverteilung, d.h. eine geringere Plutonium-Anreicherung in der innersten Zone der Brennstofftablette mit abnehmendem Sauerstoffgehalt voraus. Während zu Beginn der Bestrahlung dieser Mechanismus in Zusammenhang mit der Umstrukturierung des Brennstoffes die Plutonium-Umverteilung bestimmt, kann mit zunehmendem Abbrand damit gerechnet werden, daß die Thermodiffusion zu einer Verstärkung des Umverteilungseffektes führt. Auch dieser Mechanismus ist vom Sauerstoffgehalt des Brennstoffes abhängig /54/. Da der mittlere Sauerstoffgehalt in einer ursprünglich unterstöchiometrischen Brennstofftablette mit zunehmendem Abbrand ansteigt, sollte der Grad der durch

Thermodiffusion hervorgerufenen Plutonium-Umverteilung sowohl durch die Ausgangstöchiometrie als auch durch die Abbrandrate, d.h. die Stableistung beeinflußt werden. Der direkten Abhängigkeit der beiden Mechanismen von der Stöchiometrie ist ähnlich wie bei der durch Porenwanderung erfolgenden Umstrukturierung eine indirekte über das von der Stöchiometrie abhängige Temperaturprofil überlagert.

Die durch die Plutonium-Umverteilung hervorgerufene Erhöhung der Plutonium-Konzentration in der innersten Zone des Brennstoffes führt sowohl zu einer Erniedrigung der Schmelztemperatur in diesem Bereich als auch zu einer Erhöhung der Zentraltemperatur oder, zutreffend ausgedrückt, zu einer weniger starken Abnahme der Zentraltemperatur als sie allein durch Porenwanderung und Sauerstoff-Umverteilung verursacht werden würde.

5.2 Quantitative Analyse

Der Einfluß, den die erwähnten Materialphänomene bei verschiedenen O/Me-Verhältnissen auf das thermische Verhalten einer Brennstofftablette haben, wurde anhand von Modellrechnungen unter Verwendung des Rechenprogrammsystems SATURN untersucht. Eine repräsentative Auswahl aus den Ergebnissen wird in den Abb. 38 bis 43 wiedergegeben. Die Brennstofftablette war für diese Rechnungen durch die in der Tabelle 19 zusammengestellten Daten charakterisiert.

Der Übersichtlichkeit halber wurde die Randtemperatur mit 900 °C für alle Rechnungen fest vorgegeben. Dieser Wert wurde ebenso wie der für die lineare Stableistung als konstant über die betrachtete Bestrahlungszeit von 10000 h angesetzt. Die Umstrukturierung des Brennstoffes durch Porenwanderung und die Umverteilung des Plutoniums durch Verdampfung und Kondensation wurden mit Hilfe der in /37/ vorgeschlagenen Modellvorstellungen beschrieben. Zur Behandlung der Umverteilung des Sauerstoffes und des Plutoniums durch Thermodiffusion wurden die in /36,38/ und /54/ angegebenen Verfahren verwendet mit folgenden Beziehungen und Werten für die Modellparameter:

- Überführungswärme für den Plutonium-Transport

$$Q = - 35 \text{ kcal/mol,}$$

- Diffusionskoeffizient für den Plutonium-Transport

$$D = 0,5 \exp(-Q/RT),$$

mit $Q = f(v_{\text{Pu}})$ nach /54/, wobei v_{Pu} die Plutonium-Valenz des Brennstoffes ist, und

- Überführungswärme der Sauerstoffleerstellen

$$Q_v^+ = - (27 - 38 \cdot (4 - v_{\text{Pu}})) \text{ kcal/mol.}$$

Der Anstieg des Sauerstoffgehaltes mit dem Abbrand, d.h. mit der Bestrahlungszeit, wurde entsprechend den gewählten Daten durch eine lineare Beziehung der Form

$$O/Me = (O/Me)_0 + 4,33 \cdot 10^{-6} \cdot t$$

in Anlehnung an /54/ angenähert. Es wurde angenommen, daß der Sauerstoffgehalt einen Wert von 2,00 nicht überschreitet. Die Wärmeleitfähigkeit des $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Brennstoffes wurde mit der in /5/ vorgeschlagenen Beziehung beschrieben. Eine Abbrandabhängigkeit wurde nicht berücksichtigt. Ebenso blieb der Einfluß axialer Transportvorgänge unberücksichtigt.

Eine für das thermische Verhalten einer Brennstofftablette charakteristische Größe ist deren Zentraltemperatur. Der unter den geschilderten Annahmen vorausgesagte zeitliche Verlauf dieser Größe ist in den Abb. 38 bis 40 für drei verschiedene Spezifikationswerte des O/Me-Verhältnisses dargestellt. Die Abbildungen lassen zunächst zu Beginn der Bestrahlung den erwarteten Anstieg der Zentraltemperatur mit abnehmendem Sauerstoffgehalt entsprechend der schlechter werdenden Wärmeleitfähigkeit erkennen. Diese Abhängigkeit ist in der Abb.41 durch die oberste Kurve wiedergegeben. Die Abb. 39 und 40 vermitteln darüberhinaus einen Eindruck über den Einfluß der Sauerstoffumverteilung und der bestrahlungsbedingten Zunahme des mittleren Sauerstoffgehaltes.

Der Verringerung der Zentraltemperatur, die durch die Ausbildung des Zentralkanals und durch die radiale Umverteilung und die zeitliche Änderung des Sauerstoffgehaltes hervorgerufen wird, steht eine Erhöhung durch die Umverteilung des Plutoniums gegenüber.

Die Verhältnisse, die nach einer Bestrahlungszeit von 10 h zu erwarten sind, sind in der Abb. 41 dargestellt. Für ein O/Me-Verhältnis von 2,00 ergibt sich nur eine geringfügige Änderung der Zentraltemperatur, da aufgrund des niedrigen Temperaturniveaus die Umstrukturierung infolge Porenwanderung noch kaum ausgeprägt und dementsprechend auch nur eine geringe Plutonium-Umverteilung aufgetreten ist. Mit abnehmendem O/Me-Verhältnis steigt sowohl der Einfluß der Porenwanderung infolge des höheren Temperaturniveaus als auch der Einfluß der Sauerstoff-Umverteilung infolge des größeren Effektes auf die Wärmeleitfähigkeit, so daß die Zentraltemperatur verstärkt abnimmt. Demgegenüber ist die Zunahme aufgrund der Plutonium-Umverteilung gering.

Nach 10000 h ergibt sich das in der Abb. 42 dargestellte Bild. Der Einfluß der Plutonium-Umverteilung ist bei einem O/Me-Verhältnis von 2,00 am größten. Er nimmt ab, wenn der Wert des ursprünglichen Sauerstoffgehaltes gesenkt wird in Übereinstimmung mit den in /54/ zusammengestellten experimentellen Ergebnissen.

Die nach 10000 h unter Berücksichtigung aller betrachteten Phänomene berechnete Zentraltemperatur liegt zum Teil erheblich unter den für die Volltablette zu Beginn der Bestrahlung gefundenen Werten. Die gesamte Abnahme ist dabei für stöchiometrischen Brennstoff am geringsten. Sie wird mit sinkendem Wert des ursprünglichen Sauerstoffgehaltes rasch größer.

Die thermischen Verhältnisse, die zu Beginn und am Ende der Bestrahlungszeit herrschen, werden in der Abb. 43 anhand der radialen Temperaturprofile für drei verschiedene O/Me-Verhältnisse des Brennstoffes verglichen. Zu Beginn gibt es aufgrund der unterschiedlichen Wärmeleitfähigkeiten eine deutliche Staffelung der Profile. Am Ende - im gezeigten Beispiel nach 10000 h - haben sich die ursprünglichen Unterschiede im Sauerstoffgehalt ausgeglichen. Verbesserte Wärmeleitfähigkeit und Zentralkanalbildung haben zur Absenkung der Temperatur geführt. Die Temperaturprofile fallen in ein verhältnismäßig schmales Band, dessen Breite im wesentlichen durch den unterschiedlichen Grad der Plutonium-Umverteilung bestimmt wird. Dieses Ergebnis ist zum Teil auf die hier getroffenen Annahmen zurückzuführen.

6. Zusammenfassung

Die in diesem Bericht zusammengestellte Auswahl von Ergebnissen mehrerer Parameterstudien sollte einen Eindruck darüber vermitteln, in welcher Weise einige wichtige Materialphänomene, wie Porenwanderung, Sauerstoff-Umverteilung und Plutonium-Umverteilung auf das thermische Verhalten einer für den SNR-300 typischen Brennstofftablette aus Mischoxid einwirken. Im besonderen wurde der Einfluß gezeigt, den der Sauerstoffgehalt auf das thermische Verhalten ausübt als Folge der Abhängigkeit der genannten Phänomene und einer wichtigen Materialeigenschaft, der Wärmeleitfähigkeit, von dieser Größe.

Die aufgeführten Ergebnisse sind Beispiele zu einigen fest gewählten Betriebsbedingungen. Die wesentlichen Aussagen können jedoch auf alle Betriebsbedingungen, wie sie bei SNR-300 typischen Brennstäben vorkommen, übertragen werden. Dabei ist mit Unterschieden in der Stärke des jeweiligen Einflusses der einzelnen Materialphänomene auf das thermische Verhalten der Brennstofftablette zu rechnen. Es ergeben sich aber keine Änderungen am Gesamtbild, so wie es besonders im vorangehenden Abschnitt dargestellt wurde.

Literatur:

- /1/ H. Kämpf, H. Elbel, F. Depisch:
Das Rechenprogramm SATURN-1a für Brennstäbe,
KFK 1575 (Sept. 1972)
- /2/ H. Kämpf, G. Karsten:
Effects of Different Types of Void Volumes on the Radial
Temperature Distribution of Fuel Pins,
Nucl. Appl. and Techn. 9, 288 (Sept. 1970)
- /3/ H. Kämpf, H. Elbel, K. Kummerer (Herausgeber):
Brennstabmodelltheorie: Modelle und Materialdaten,
KFK 1400 (Okt. 1971)
- /4/ G.V. Massey:
The Thermal Properties of Gases for Use in Reactor Heat-Transfer
Calculations,
DEG-Report 14 (D) (1960)
- /5/ H.E. Schmidt:
Die Wärmeleitfähigkeit von Uran- und Plutonium-Dioxid bei hohen
Temperaturen,
High Temp., High Press. 3, 345 (1971)
- /6/ R.A. Laskiewicz et al.:
Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium-Oxide,
GEAP-13733 (Sept. 1971)
- /7/ R.L. Gibby:
Fabrication Microstructure and Thermal Conductivity in UO₂-
25 wt-% PuO₂ Sintered Pellets,
HEDL-TME 72-88 (Mai 1972)
- /8/ A. Boltax et al.:
unveröffentlicht
- /9/ R.L. Gibby:
The Thermal Diffusivity and Thermal Conductivity of Stoichiometric
(U_{0,8}Pu_{0,2})O₂,
BNWL-704 (Mai 1968)
- /10/ M. Serizawa et al:
Thermal Diffusivity and Thermal Conductivity of Uranium- Plutonium-
Dioxide,
J. Nucl. Mat. 34, 224 (1970)
- /11/ L.A. Goldsmith, J.A. M. Douglas:
The Thermal Conductivity of Plutonium-Uranium-Dioxide at Temperatures
up to 1273 K,
J. Nucl. Mat. 43, 225 (1972)
- /12/ A.L. Loeb:
Thermal Conductivity, VIII: A Theory of Thermal Conductivity of
Porous Materials,
J. Am. Cer. Soc. 37, 96 (1954)

- /13/ A.L. Loeb:
Thermal Conductivity of Uranium Dioxide,
Technical Reports Series No. 59, IAEA, Wien (1966)
- /14/ A. Biancheria et al.:
unveröffentlicht
- /15/ G. Ondracek B. Schulz:
Zum Ansatz der Porositätsabhängigkeit für die Wärmeleitfähigkeit
keramischer Brennstoffe,
Beitrag in KFK 1272/3 (Dez. 1972), S. 112-27
- /16/ G. Ondracek, B. Schulz:
The Porosity Dependence of the Thermal Conductivity for Nuclear
Fuels,
J. Nucl. Mat. 46, 253 (1973)
- /17/ J. Belle et al.:
Thermal Conductivity of Bulk Oxide Fuels,
WAPD-TM-586 (1967)
- /18/ H. Kleykamp:
Änderung der Wärmeleitfähigkeit in einem oxidischen Brennelement
während des Abbrandes,
KFK 1245 (Juli 1970)
- /19/ S.M. Hartlib et al.:
Simulated "Burnt" Mixed Oxide Fuel: Preparation, Creep and Thermal
Diffusivity,
AERE-R 7325 (1973)
- /20/ G. Ondracek, B. Schulz:
Der Einfluß abbrandbedingter Phänomene auf die Zentraltemperatur,
Beitrag in KFK 1999 (Sept. 1974), S. 43
- /21/ E.-M. Müller:
Untersuchung der Unsicherheit der Wärmeleitfähigkeit von oxidischem
Brennstoff in Abhängigkeit von der Porosität,
Atomwirtschaft (Sept./Okt. 1970), S. 434
- /22/ D. Geithoff, K. Kummerer:
Auslegung, Bestrahlung und zerstörungsfreie Nachuntersuchung des
UO₂-PuO₂-Brennstabbündels DFR-350,
KFK 1377 (Mai 1972)
- /23/ G. Karsten:
Das Betriebsverhalten eines Brennelementstabes,
Beitrag in KFK 700 (Dez. 1967), S. V-1
- /24/ J. Roth, E.K. Halteman:
Thermal Expansion of Coprecipitated (U,Pu)O₂ Powders by X-Ray
Diffraction Techniques,
NUMEC -2389-9 (Okt. 1965)

- /25/ J. Roth et al.:
The Effects of Stoichiometry on the Thermal Expansion of 20 wt-%
PuO₂-UO₂ Fast Reactor Fuel,
Trans. Am. Nucl. Soc., 10, 457 (1967)
- /26/ G. Ondracek, H. Kämpf:
Thermische Ausdehnung oxidischer Brennstoffe,
Beitrag in KFK 1400 (Okt. 1971), S. 253
- /27/ G.R. Horn, F.E. Panisko:
User's Guide for GAPCON: a Computer Program to Predict Fuel-
to - Cladding Heat Transfer Coefficients in Oxide Fuel Pins,
HEDL-TME 72-128 (1972)
- /28/ B.F. Rubin:
Summary of (U,Pu)O₂ Properties and Fabrication Methods,
GEAP-13582 (Nov. 1970)
- /29/ A. Boltax, J.H. Saling:
unveröffentlicht
- /30/ S. Oldberg:
BEHAVE-2: Oxide Fuel Performance Code in Two Spatial Dimensions
and Time,
GEAP-13788 (Febr. 1972)
- /31/ J.B. Conway, R.M. Fincel, R.A. Hein:
The Thermal Expansion and Heat Capacity of UO₂ to 2000 °C,
Trans. Am. Nucl. Soc. 6, 153 (1963)
- /32/ M. Tokar et al.:
Linear Thermal Expansion of Plutonium Dioxide,
Nucl. Techn. 17, 147 (1973)
- /33/ P. Royle et al.:
Transient Fuel-Cladding Deformation Analysis of the In-Pile
H3-TREAT-Test with the SAS2A/DEFORM-II-Code,
2nd Internat. Conf. on Structural Mech. in Reactor Techn.,
Berlin (Sept. 1973)
- /34/ M. Bober et al.:
Kinetics of Oxygen Transport from Mixed Oxide Fuel to the Clad,
Symp. on Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors,
IAEA/SM-173/III-52, Wien (1974)
- /35/ M. Bober, G. Schumacher:
Vergleich berechneter Sauerstoffverteilungen in unterstöchiome-
trischen Mischoxidbrennstäben mit dem Ergebnis einer Bestrahlungs-
nachuntersuchung,
KFK 1273/3 (1973), S. 112-8
- /36/ M. Bober, G. Schumacher:
Berechnung der vom Abbrand abhängigen Stöchiometrieverschiebung
und der radialen Sauerstoffverteilung in unterstöchiometrischen
Mischoxid-Brennstäben,
KFK 1965 (Mai 1975)

- /37/ W.J. Lackey et al:
Porosity and Actinide Redistribution during Irradiation of (U,Pu)O₂,
Nucl. Techn. 16, 120 (1972)
- /38/ C. Sari, G. Schumacher:
Radial Transport of Oxygen in Mixed Oxide Fuel Pins,
IAEA-SM-190/33, Wien (1974)
- /39/ M. Bober et al.:
Kinetik des Sauerstofftransportes im oxidischen Brennelement,
Beitrag in KFK 1272/3 (1972), S. 112-15
- /40/ W. Dienst et al.:
Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten UO₂-PuO₂-
Brennstäben der Versuchsgruppe FR 2-4a,
KFK 1727 (Januar 1973)
- /41/ W. Dienst et al.:
UO₂-PuO₂-Brennstabbündel-Bestrahlung Mol-7A. Auswertung der Unter-
suchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben,
KFK 1736 (Juni 1973)
- /42/ K. Ehrlich et al.:
UO₂-PuO₂-Brennstab-Bestrahlung im Trefoil-Einsatz DFR-304. Auswertung
der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben,
KFK 1864 (Januar 1974)
- /43/ M. Bober, C. Sari, G. Schumacher:
Redistribution of Plutonium and Uranium in Mixed (U,Pu) Oxide Fuel
Materials in a Thermal Gradient,
J. Nucl. Mat. 39, 265 (1971)
- /44/ D.R. Olander:
The Kinetics of Actinide Redistribution by Vapor Migration in Mixed
Oxide Fuels (II). By Pores,
J. Nucl. Mat. 49, 35 (1973/74)
- /45/ R.O. Meyer:
Analysis of Plutonium Segregation and Central-Void Formation in
Mixed-Oxide Fuels,
J. Nucl. Mat. 50, 11 (1974)
- /46/ M. Bober, G. Schumacher:
Transport Phenomena in Mixed Oxide Fuel Pins,
KFK 1887 (Dezember 1973)
- /47/ H. Hoffmann:
Wanderung der Herstellungsporen,
Beitrag in KFK 1400 (Oktober 1971), S. 161
- /48/ M.H. Rand, T.L. Markin:
Some Thermodynamic Aspects of (U,Pu)O₂ Solid Solutions and Their
Use as Nuclear Fuels,
in Thermodynamics of Nucl. Mat., IAEA, Wien (1967), S. 637

- /49/ H. Kleykamp:
Mikrosondenuntersuchungen,
Beitrag in: UO_2 - PuO_2 -Brennstab-
bündel-Bestrahlung DFR-350. Auswertung
der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten
Brennstäben,
KFK 1960 (Juni 1974), S. 27
- /50/ H. Elbel:
Analyse des Bestrahlungsversuches DFR-350
mit Hilfe des Rechenprogrammes SATURN-1a,
Beitrag in KFK 1273/2 (September 1973),
S. 112-2
- /51/ K. Kummerer, H. Elbel:
Experimental and Modelling Results
Concerning the Operational Behaviour
of a SNR-Type Fuel Pin,
IAEA-SM-173/25, Wien (1974)
- /52/ H. Hoffmann:
Analyse der Leervolumenverteilung
in oxidischem Kernbrennstoff während
der Bestrahlung, Reaktortagung
Karlsruhe (1973), S. 405
- /53/ H. Hoffmann:
Analyse der Leervolumenverteilung
in Oxid-Brennstäben hoher Stableistung,
KFK 1863 (September 1973)
- /54/ M. Bober, G. Schumacher:
Erhöhung der Zentraltemperatur
durch Uran-Plutonium-Entmischung
in Mischoxid-Brennstäben schneller
Reaktoren, KFK 1904 (April 1974)

Tabelle 1 Stabspezifikation

Hüllrohr:	
Material	1.4988
Außendurchmesser	6,00 mm
Innendurchmesser	5,24 mm
Brennstofftablette:	
Material	UO ₂ + 20 % PuO ₂
Stöchiometrie	2,00
Dichte	84 % th.D.
Durchmesser	5,04 mm
Brennstab:	
Füllgas	Helium
Innendruck	1 atm
Außendruck	5 atm

Tabelle 2 Betriebszustand bei Erreichen der vollen Leistung
(Anfahrzeit 5 h)

Lineare Stableistung	435 W/cm
Hüllaußentemperatur	348 °C
Hüllinnentemperatur	398 °C
Hüllaußenradius	3,018 mm
Hüllinnenradius	2,636 mm
Brennstoffinnenradius	0,0 mm

Tabelle 3 Zusammenstellung verschiedener Beziehungen zur Darstellung der Wärmeleitfähigkeit von (U,Pu)O₂-Brennstoff (T in °C, T_K in K)

Autor	λ in W/cm °C bzw. W/cm K	Porosität	Pu-Anteil in Gew.-%	Stöchiometrie	Temperaturbereich in °C
Schmidt [5]	$\frac{1 - (0,350 \cdot 10^{-7} - 0,300 \cdot 10^{-6} \cdot X) \cdot T^2 + (0,284 \cdot 10^{-13} - 0,131 \cdot 10^{-12} \cdot X) \cdot T^4}{10,8 + 360 \cdot X + 0,0235 \cdot T'}$ <p>mit $T' = \begin{cases} T & \text{für } T < \theta \\ \theta & \text{für } T > \theta \end{cases}$ $\theta = (1930 - 5000 \cdot X)^\circ\text{C}$ $X = 2 - O/\text{Me}$</p>	0,05	20	1,93 - 2,00	200 - 2700
Laskiewicz et al. [6]	$0,01524 + \frac{1}{ 0,9702 - 0,4465 \cdot (1-P) \cdot T} + (0,5841 \cdot 10^{-12}) \cdot T^3 + \frac{360,2}{(2,04 - O/\text{Me}) \cdot T^2}$	0,09 - 0,16	20	1,94 - 2,00	800 - 2300
Gibby [7]	$\frac{1}{2,88 + 0,0252 \cdot T_K} + 5,82 \cdot 10^{-13} \cdot T_K^3 (\pm 10 \%)$	0,0	25	2,00	700 - 1500
Boltax et al. [8]	$\frac{1}{0,78 + 0,0293 \cdot T_K} + 6,6 \cdot 10^{-13} \cdot T_K^3$	0,05		2,00	700 - 2700
Gibby [9]	$\frac{1}{0,0307 \cdot T_K - 0,45}$	0,05	20	2,00	200 - 1400
Serizawa et al. [10]	$\frac{1}{9,388 + 0,0158 \cdot T_K}$	0,039	10 - 20	2,00	800 - 1800
Goldsmith et al. [11]	graphische Darstellung	0,04	16 - 30	2,00	400 - 1000

Tabelle 4 Verschiedene Darstellungen der Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit

	$\lambda_P / \lambda_0 =$
Loeb /12/	$(1 - P)$
Loeb /13/	$(1 - 2,5 \cdot P)$
Blancheria et al. /14/	$(1 - P - 10 \cdot P^2)$ für $0,05 < P \leq 0,5$ $(1 - 1,5 \cdot P)$ für $0 \leq P < 0,05$
Kämpf /2/	$(1 - P^{2/3})$
Ondracek /15,16/	$(1 - P)^{3/2}$
Belle et al. /17/	$(1 - P) / (1 + 0,5 \cdot P)$
Gibby /7/	$(1 - P) / (1 + \beta \cdot P)$ mit $\beta = 1,25$
Boltax et al. /8/	$(1 - P) / (1 + \beta \cdot P)$ mit $\beta = 1 + 10 P$

Tabelle 5 Charakteristische Brennstabgrößen bei einer angenommenen Unsicherheit der Wärmeleitfähigkeit von $\pm 20\%$

Darstellung von λ_0 nach /5/

Porosität $P = 16\%$, Stöchiometrie $O/Me = 2,00$

λ	$T_Z / ^\circ\text{C}$	$T_{Ba} / ^\circ\text{C}$	r_{Ba} / mm	$\delta / \mu\text{m}$
$0,8 \cdot \lambda_0$	2610	751	2,612	24
λ_0	2396	820	2,601	35
$1,2 \cdot \lambda_0$	2220	868	2,593	43

Tabelle 6 Charakteristische Brennstabgrößen bei verschiedener Darstellung der Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes

Porosität $P = 16\%$, Stöchiometrie $O/Me = 2,00$

	$T_Z / ^\circ\text{C}$	$T_{Ba} / ^\circ\text{C}$	r_{Ba} / mm	$\delta / \mu\text{m}$
Blancheria /14/	2640	740	2,614	22
Kämpf /2/	2370	810	2,599	37
Ondracek /15,16/	2270	830	2,595	41

Tabelle 7 Charakteristische Brennstabgrößen in Abhängigkeit von der Porosität
Stöchiometrie O/Me = 2,00

P/%	T _Z /°C	T _{Ba} /°C	r _{Ba} /mm	δ / μm
Darstellung nach Kämpf /2/				
5	2173	850	2,590	46
10	2273	831	2,594	42
15	2367	812	2,598	38
20	2461	794	2,602	34
Darstellung nach Ondracek /15,16/				
5	2097	864	2,587	49
10	2180	849	2,590	46
15	2270	832	2,594	42
20	2366	812	2,598	38

Tabelle 8 Charakteristische Brennstabgrößen in Abhängigkeit von der Stöchiometrie
Porosität P = 16 %

S	T _Z /°C	T _{Ba} /°C	r _{Ba} /mm	δ / μm
2,00	2396	820	2,601	35
1,99	2511	788	2,606	30
1,98	2591	763	2,610	26
1,96	2722	715	2,617	19

Tabelle 9 Differentielle lineare thermische Ausdehnungskoeffizienten als Funktion der Temperatur T in Abhängigkeit vom vom PuO₂-Anteil für (U,Pu)O₂ nach /24/, T ≤ 1200 °C

PuO ₂ -Konzentration (in Gew.-%)	Stöchio- metrie	$\alpha_D(T_0, T)$ (in 10 ⁻⁶ cm/cm °C)
0	2,24	11,1442 x (1 + 0,0187 x 10 ⁻⁴ T/°C)
0	2,08	9,6985 x (1 + 0,9796 x 10 ⁻⁴ T/°C)
5	2,11	7,4189 x (1 + 7,8943 x 10 ⁻⁴ T/°C)
12,5	2,13	9,0176 x (1 + 2,9893 x 10 ⁻⁴ T/°C)
20	2,10	7,5353 x (1 + 13,8453 x 10 ⁻⁴ T/°C)
35	2,09	7,7180 x (1 + 6,3313 x 10 ⁻⁴ T/°C)
50	2,01	7,9772 x (1 + 5,9733 x 10 ⁻⁴ T/°C)
80	-	7,7176 x (1 + 10,4012 x 10 ⁻⁴ T/°C)
100	-	6,7614 x (1 + 3,2460 x 10 ⁻⁴ T/°C)
100	-	6,7046 x (1 + 14,7319 x 10 ⁻⁴ T/°C)

Tabelle 10 Integrale lineare thermische Ausdehnungskoeffizienten als Funktion der Temperatur T in Abhängigkeit vom PuO₂-Anteil für (U,Pu)O₂ nach /24/, T ≤ 1200°C

PuO ₂ -Konzentration (in Gew.-%)	Stöchio- metrie	$\alpha_I(T_0, T)$ (in 10 ⁻⁶ cm/cm °C)
0	2,24	11,1442 + 0,01042 x 10 ⁻³ T/°C
0	2,08	9,6985 + 0,47503 x 10 ⁻³ T/°C
5	2,11	7,4189 + 2,92835 x 10 ⁻³ T/°C
12,5	2,13	9,0176 + 1,34781 x 10 ⁻³ T/°C
20	2,10	7,5353 + 5,21642 x 10 ⁻³ T/°C
35	2,09	7,7180 + 2,44325 x 10 ⁻³ T/°C
50	2,01	7,9772 + 2,38251 x 10 ⁻³ T/°C
80	-	7,7176 + 4,01361 x 10 ⁻³ T/°C
100	-	6,7614 + 1,09737 x 10 ⁻³ T/°C
100	-	6,7046 + 4,93857 x 10 ⁻³ T/°C

Tabelle 11 Verschiedene Beziehungen für den integralen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von UO_2 -20 Gew.-% PuO_2

Literaturquelle	$\alpha_I (T_0, T) =$
/24/	$\left[7,5353 + 0,00522 \times T / ^\circ C \right] \times 10^{-6} / ^\circ C$
/27/	$\left[8,8282 + 0,00147 \times T / ^\circ C \right] \times 10^{-6} / ^\circ C$
/28,29,30/	$\frac{4,36 \times 10^{-4}}{T - 25 ^\circ C} + \left[6,720 + 0,00292 \times T / ^\circ C \right] \times 10^{-6} / ^\circ C$
/33/	$\left[6,5693 + 0,002997 \times T / ^\circ C \right] \times 10^{-6} / ^\circ C$
/25/	$11,3 \times 10^{-6} / ^\circ C$ für $T = 1500 ^\circ C$ und $O/Me = 2,00$

Tabelle 12 Verschiedene Beziehungen für die relative Längenänderung von UO_2 -20 Gew.-% PuO_2 $\Delta L/L_0 = \alpha_I (T_0, T) \times (T - T_0)$

Literaturquelle	$\Delta L/L_0 =$
/27/	$- 2,2071 \times 10^{-4} + 8,791 \times 10^{-6} T / ^\circ C + 1,47 \times 10^{-9} T^2 / (^\circ C)^2$
/28,29,30/	$4,36 \times 10^{-4} + 6,793 \times 10^{-6} T / ^\circ C + 2,92 \times 10^{-9} T^2 / (^\circ C)^2$
/33/	$- 1,77 \times 10^{-4} + 6,482 \times 10^{-6} T / ^\circ C + 2,997 \times 10^{-9} T^2 / (^\circ C)^2$

Tabelle 13

Integrale lineare thermische Ausdehnungskoeffizienten als Funktion der Temperatur für verschiedene Stöchiometriewerte (Extrapolation anhand von /25/)

O/Me	$\alpha_I(T_0, T)$ $\left[10^{-6} \text{ cm/cm } ^\circ\text{C} \right]$ unter Verwendung von	
	/27/	/33/
2,00	$8,8282 + 1,47 \times 10^{-3} T/^\circ\text{C}$	$6,5693 + 2,997 \times 10^{-3} T/^\circ\text{C}$
1,97	$10,170 + 1,693 \times 10^{-3} T/^\circ\text{C}$	$7,568 + 3,453 \times 10^{-3} T/^\circ\text{C}$
1,94	$11,512 + 1,917 \times 10^{-3} T/^\circ\text{C}$	$8,566 + 3,908 \times 10^{-3} T/^\circ\text{C}$

Tabelle 14 Charakteristische Brennstabgrößen in Abhängigkeit von der Stöchiometrie O/Me mit $\lambda = \lambda(T, O/Me)$ nach /5/ und $\lambda = \lambda(P)$ nach /15/

O/Me	$T_Z/^\circ C$	$T_{Ba}/^\circ C$	r_{Ba}/mm	$\delta/\mu m$	$h/W/^\circ C \text{ cm}^2$
$\alpha_I = \alpha_I (O/Me = 2,00)$, nach /23/					
2,00	2396	820	2,601	35	0,62
$\alpha_I = \alpha_I (O/Me)$, nach /27/					
2,00	2494	923	2,584	52	0,50
1,97	2660	827	2,600	36	0,61
1,94	2767	725	2,616	20	0,80
$\alpha_I = \alpha_I (O/Me)$, nach /33/					
2,00	2471	897	2,588	48	0,53
1,97	2630	788	2,606	30	0,67
1,94	2742	670	2,623	13	0,97
$\alpha_I = \alpha_I (O/Me = 2,00)$, nach /33/					
2,00	2471	897	2,588	48	0,53
1,97	2669	849	2,597	39	0,58
1,94	2791	805	2,604	32	0,64

- T_Z = Zentraltemperatur
 - T_{Ba} = Randtemperatur
 - r_{Ba} = Außenradius
 - δ = radiale Spaltbreite
 - h = Wärmedurchgangszahl im Spalt
- } des Brennstoffes

Tabelle 15 Zusammenstellung der für die Parameterstudie zu Abschnitt 4.1 und 4.2 verwendeten Material- und Betriebsdaten

Brennstoffaußenradius	2,55 mm
Theoretische Dichte des Brennstoffes	10 g/cm ³
Porositätsanteil	15 %
O/Me-Verhältnis	2,00
Pu-Anteil	20 %
U-235-Anreicherung	0 bzw. 0,864 x)
Integraler linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient	1 x 10 ⁻⁵ /°C
Brennstoffrandtemperatur	800 bzw. 900 °C
Lineare Stableistung	500 W/cm

x) nach dem Bestrahlungsversuch DFR-350 /22/

Tabelle 16 Charakteristische Daten von Brennstoff und Hülle des Bestrahlungsversuches DFR-350 (nach /22/)

Brennstoff:	
Material	UO ₂ -PuO ₂
U-235-Anreicherung	86,4 %
Pu-Anteil	20,0 %
O/Me-Verhältnis	1,99 - 2,00
theoretische Dichte	10,98 g/cm ³
Porositätsanteil	11 %
Durchmesser	5,04 mm
Hülle:	
Material	1.4988
Außendurchmesser	6,00 mm
Innendurchmesser	5,25 mm

Tabelle 17

LISTE DER EINGABEDATEN

ANFANGSZUSTAND DES BRENNSTABES						
BRENNSTOFF		HUELLE				
INNENRADIUS	RI(1) = 0.0010 MM	RI(2) = 2.6200 MM				
ZONENRADIEN	RZR1 = 2.5200 MM RZR2 = 2.5200 MM					
AUSSENRADIUS	RO(1) = 2.5200 MM	RO(2) = 3.0000 MM				
ANZAHL DER RINGE	NZR1 = 40 NZR2 = 0 NZR3 = 0	NR(2) = 5				
HERSTELLUNGSPOROSITAET	PORO = 0.1100					
THEORETISCHE DICHT	RHOTH0 = 10.980 G/CM3					
ANFANGSTEMPERATUR	TQ = 20.0 GRD C					
O/M - VERHAELTNIS	OMVO = 2.000					
U-235-ANREICHERUNG	AB5 = 0.8640					
PU - ANTEIL	PUO = 0.2000					
MATERIALEIGENSCHAFTEN UND -VERHALTEN						
HUELLE	FLASTIZITAETSMODUL	TVYM (GRD C)	VVYM (KP/MM2)			
		20.0	0.2000E+05			
		200.0	0.1900E+05			
		300.0	0.1850E+05			
		400.0	0.1800E+05			
		500.0	0.1700E+05			
		600.0	0.1600E+05			
		700.0	0.1500E+05			
		800.0	0.1400E+05			
		900.0	0.1300E+05			
	POISSON-ZAHL	VMU = 0.300				
	WAERMELEITFAEHIGKEIT	TLS (GRD C)	ATLS (W/CM GRD C)			
		20.0	0.1510E+00			
		100.0	0.1590E+00			
		200.0	0.1720E+00			
		300.0	0.1800E+00			
		400.0	0.1930E+00			
		500.0	0.2010E+00			
		600.0	0.2180E+00			
		700.0	0.2500E+00			
	LIN. THERM. AUSDEHNUNGSKOEFFIZIENT	TS (GRD C)	ATS (1/GRD C)			
		20.0	0.0			
		100.0	0.1570E-04			
		200.0	0.1670E-04			
		300.0	0.1710E-04			
		400.0	0.1740E-04			
		500.0	0.1760E-04			
		600.0	0.1780E-04			
		700.0	0.1800E-04			
		800.0	0.1870E-04			
		900.0	0.1950E-04			
		999.0	0.2050E-04			
	SEKUNDAERES KRIECHEN	TNKT /GRD C	VKT VNT			
		20.0	0.0 1.0			
		800.0	0.0 1.0			
	SCHWELVERHALTEN	SWA = 8.5000 X SWB = 100.0 GRD C SWT = 460.0 GRD C SW00 = 0.1000E+24 N/CM2 SWN = 1.6000				
BRENNSTOFF	ELASTIZITAETSMODUL	VYM = 16000.0 KP/MM2	POISSON-ZAHL VMU = 0.276			
	WAERMELEITFAEHIGKEIT	AKFO = 0.2740E-07 AKF1 = 0.2500E-13 AKF2 = 0.2520E+02 AKF3 = 0.2350E-01 AKF4 = 0.8650E+00				
	LIN. THERM. AUSDEHNUNGSKOEFFIZIENT	AF1 = 0.65693E-05 AF2 = 0.29970E-08 AF3 = 0.0				
	SEKUNDAERES KRIECHEN	CRE1 = 0.1540E-05 CRE2 = 0.4500E+05 CRE3 = 0.4000E+00 CRE4 = 0.9800E+15				
	VOLUMENSCHWELLRATEN					
	BRENNST. UNTER SPANNUNG	BSOL1 = 0.4500E-08 CM3/WH				
	BRFNNST. GER. ODER HYDR.	BEDF1 = 0.4500E-08 CM3/WH				
		TBE0F (GRD C) BEOFF (CM3/WH)				
		20.0 0.0				
		1300.0 0.0				
		1500.0 0.3500E-09				
		2000.0 0.2200E-08				
		3000.0 0.5000E-07				
	PORFNWANDERUNG	APOROS = 0.1211E+06 BPRDS = 0.3000E+01 TPOR = 1900.0 PORMAX = 0.500 PORMIN = 0.040				
	WAERMEDURCHGANG DURCH DEN SPALT	EXPS = 0.790 CRAD3N = 0.3780E-11 THCNI = 0.1580E-04 THCJ2 = 0.7800E-06				
	DIE KONTAKTZONE	PKCNO = 0.4000E+00 PKONI = 0.0				
	SPALTGASFREISETZUNG	TEPLEN = 680.00 GRD C AXFA = 1.00 PLELGM = 700.00 MM BRELGM = 950.00 MM				
		TGR (GRD C) GFR (1/100)				
		20.0 0.1000				
		500.0 0.1000				
		900.0 0.1000				
		1250.0 0.1000				
		1300.0 0.5000				
		1700.0 0.5000				
		1750.0 0.9500				
		2000.0 0.9500				
		3000.0 0.9500				
GRENZWERTE, KONVERGENZSCHRANKEN UND BESTIMMUNGSGROESSEN						
DEHNUNGSITERATIONSVERFAHREN	EPSDS1 = 0.1000E+00 EPSDS2 = 0.5000E-01 EPSTIL = 0.1000E-13 H					
PLASTISCHES VERHALTEN	ETADEP(1) = 0.2000E-04 ETADEP(2) = 0.2000E-04					
RISSVERHALTEN	TRISS = 1.0 GRD C EPSTGR = 0.1000E+01 GRD C/H SCRACK = 1.0 KP/MM2 TPL = 1150.0 GRD C TSIN = 1850.0 GRD C					
ZWEIZONEN-MODELL	EPSSQ = 0.5000E-01 EPSCRQ = 0.5000E+01 ETATBR = 0.2000E+02 GRD C/H TZONE = 1400.0 GRD C					
TEMPERATURVERTEILUNG	EPSILS = 0.10 GRD C EPSILF = 0.10 GRD C EPSILG = 1.00 GRD C ETEMPI = 25.00 GRD C ETEMPI2 = 5.00 GRD C ETATEM = 50.00 GRD C					
PHASENWECHSEL	EPSDEL = 0.5000E-02 MM EPSKON = 0.1000E+01 KP/MM2					
WAERMEDURCHGANGSZAHL	ETADGX = 0.5000E-02 MM ETASGX = 0.1000E+02 KP/MM2 DELTA = 0.2000E-01 MM PKJNTR = 0.5000E+01 KP/MM2					
RECHENZEITINTERVALL	DTMCCY = 1.00 H DTMSTD = 50.0 H DTMIN = 0.5000E-02 H					
HANDHABUNG DES PROGRAMMS	SDT = 580.5 IPGEE = 300					
STEUERPARAMETER						
WAHL VON PROGRAMMTHEILEN	IPTCRE(1) = 1 IPTCRE(2) = 0 IPTPLA(1) = 0 IPTPLA(2) = 0 IPTPR = 1 IPTGAP = 0 IPTTRA = 0 IFLUX = 0 IPTFGA = 0 IHULE = 0					
AUSGABE VON DATEN	DTPRI = 1000.0 H DTPR2 = 1000.0 H TPRINT = 1000.0 H IPR1 = 0 IPR2 = 0 IPR3 = 0 IPR4 = 0 IPR5 = 0 IPR6 = 0 IPR7 = 0 IPR8 = 0 SCHRITTWEITE ISTO = 1					
BETRIEBSBEDINGUNGEN						
TIMEI (H)	CHI W/CM	THA GRD C	PSO KP/CM2	PG KP/CM2	PHI N/SCM2	
0.0	0.0	20.00	5.00	1.00	0.0	
5.00	324.00	582.00	5.00	2.87	1.4400E+16	
10.00	324.00	582.00	5.00	2.87	1.4400E+16	
50.00	324.00	582.00	5.00	2.87	1.4400E+16	
100.00	324.00	582.00	5.00	2.87	1.4400E+16	
1000.00	324.00	582.00	5.00	2.87	1.4400E+16	
1000.50	0.0	582.00	5.00	2.87	0.0	
1000.50	0.0	20.00	5.00	1.00	0.0	
1006.00	0.0	20.00	5.00	1.00	0.0	
1010.00	316.00	568.00	5.00	2.87	1.4400E+16	
2000.00	316.00	568.00	5.00	2.87	1.4400E+16	
2002.50	0.0	568.00	5.00	2.87	0.0	
2005.00	0.0	20.00	5.00	1.00	0.0	
2006.00	0.0	20.00	5.00	1.00	0.0	
2010.00	308.00	553.00	5.00	2.87	1.4400E+16	
3000.00	308.00	553.00	5.00	2.87	1.4400E+16	
4865.00	308.00	553.00	5.00	2.87	1.4400E+16	
4870.00	0.0	553.00	5.00	2.87	0.0	
4880.00	0.0	20.00	5.00	1.00	0.0	
4890.00	0.0	20.00	5.00	1.00	0.0	
ERGAENZUNG FUER THERM. NEUTR.-FLUSS						
TIMEQA	QIQAQA	QUAQA1	QUAQA2			

153

Tabelle 18

LISTE DER EINGABEDATEN

ANFANGSZUSTAND DES BRENNSTABES
 BRENNSTOFF HUELLE
 INNENRADIUS RI(1) = 0.0010 MM RI(2) = 2.6200 MM
 ZONENRADIEN RZR1 = 2.5200 MM RZR2 = 2.5200 MM
 AUSSENRADIUS RO(1) = 2.5200 MM RO(2) = 3.0000 MM
 ANZAHL DER RINGE NZR1 = 40 NZR2 = 0 NZR3 = 0 NR(2) = 5
 HERSTELLUNGSPOROSITAET POR = 0.1100
 THEORETISCHE DICHTHE RHO THO = 10.980 G/CM3
 ANFANGSTEMPERATUR T0 = 20.0 GRD C
 O/M - VERHAELTNIS OMO = 2.000
 METALLDICHTHE SPMASS = 0.8000

MATERIALEIGENSCHAFTEN UND -VERHALTEN

HUELLE ELASTIZITAETSMODUL TVYM (GRD C) VVYM (KPF/MM2)
 20.0 0.1500E+00
 200.0 0.1900E+05
 300.0 0.1850E+05
 400.0 0.1800E+05
 500.0 0.1700E+05
 600.0 0.1600E+05
 700.0 0.1500E+05
 800.0 0.1400E+05
 900.0 0.1300E+05
 POISSON-ZAHL VMU = 0.300
 WAERMELEITFAEHIGKEIT TLS (GRD C) ATLS (W/CM GRD C)
 20.0 0.1510E+00
 100.0 0.1500E+00
 200.0 0.1720E+00
 300.0 0.1800E+00
 400.0 0.1930E+00
 500.0 0.2110E+00
 600.0 0.2180E+00
 700.0 0.2500E+00
 LIN. THERM. AUSDEHNUNGSKOEFFIZIENT TS (GRD C) ATS (1/GRD C)
 20.0 0.0
 100.0 0.1570E-04
 200.0 0.1670E-04
 300.0 0.1710E-04
 400.0 0.1740E-04
 500.0 0.1760E-04
 600.0 0.1780E-04
 700.0 0.1800E-04
 800.0 0.1870E-04
 900.0 0.1950E-04
 999.0 0.2050E-04
 SEKUNDAERES KRIECHEN TNKT /GRD C VKT VNT
 20.0 0.0 1.0
 800.0 0.0 1.0
 SCHWELLVERHALTEN SWA = 8.5000 E SWB = 100.0 GRD C SWT = 460.0 GRD C
 SWD = 0.1000E+24 N/CM2 SWN = 1.6000
 BRENNSTOFF ELASTIZITAETSMODUL VYM = 16000.0 KPF/MM2 POISSON-ZAHL VMU = 0.276
 WAERMELEITFAEHIGKEIT AKF1 = 0.2740E-07 AKF2 = 0.2500E-13 AKF3 = 0.2520E+02
 AKF4 = 0.2350E-01 AKF5 = 0.8450E+00
 LIN. THERM. AUSDEHNUNGSKOEFFIZIENT AF1 = 0.65693E-05 AF2 = 0.29970E-08 AF3 = 0.0
 SEKUNDAERES KRIECHEN CRE1 = 0.15470E-05 CRE2 = 0.45000E+05
 CRE3 = 0.40000E+00 CRE4 = 0.98000E+15
 VOLUMENSCHWELLRATEN
 BRENNST. GER. COER HYDR. BEOFI = 0.6000E-08 CM3/WH
 TROEF (GRD C) BEOFF (CM3/WH)
 20.0 0.0
 1300.0 0.0
 1500.0 0.3590E-09
 2000.0 0.2200E-08
 3000.0 0.5000E-07
 BRENNST. UNTER SPANNUNG BSOLI = 0.6000E-08 CM3/WH
 TBEOR (GRD C) BEDRR (CM3/WH)
 20.0 0.0
 1300.0 0.0
 1500.0 0.3500E-09
 2000.0 0.2200E-08
 3000.0 0.5000E-07
 PORENWANDERUNG APOROS = 0.12110E+06 BPOROS = 0.3000E+01 TPOR = 1900.0
 PORMAX = 0.891 PORMIN = 0.040
 WAERMEDURCHGANG DURCH DEN SPALT EXPS = 0.790 CRACON = 0.37800E-11
 THCON1 = 0.15800E-04 THCON2 = 0.7800E-06
 DIE KONTAKTZONE PKOND = 0.40000E+00 PKONI = 0.0
 SPALTGASFREISETZUNG TEPLEN = 690.00 GRD C AXFA = 1.00
 PLELG = 700.00 MM BRELG = 950.00 MM
 TGR (GRD C) GFR (%/100)
 20.0 0.1000
 500.0 0.1000
 900.0 0.1000
 1250.0 0.1000
 1300.0 0.5000
 1700.0 0.5000
 1750.0 0.9500
 2000.0 0.9500
 3000.0 0.9500

GRENZWERTF, KONVERGENZSCHRANKEN UND BESTIMMUNGSGROESSEN

DEHNUNGITERATIONSVERFAHREN EPSDS1 = 0.1000E+00 EPSDS2 = 0.5000E-01
 EPSTIL = 0.1000E-13 H
 PLASTISCHES VERHALTEN ETADEP(1) = 0.2000E-04 ETADEP(2) = 0.2000E-04
 RISSVERHALTEN TRISS = 1.0 GRD C EPSTGR = 0.1000E+01 GRD C/H
 SCRACK = 1.0 KPF/MM2 TPL = 1150.0 GRD C
 TSIN = 1850.0 GRD C
 ZWEIZONEN-MODELL EPSSOG = 0.5000E-01 EPSCRQ = 0.5000E+01
 ETATBR = 0.2000E+02 GRD C/H TZONE = 1400.0 GRD C
 TEMPERATURVERTEILUNG EPSTLS = 0.10 GRD C EPSTLF = 0.10 GRD C
 EPSTLG = 1.0 GRD C
 ETEMP1 = 25.00 GRD C ETEMP2 = 5.00 GRD C
 ETATEM = 50.00 GRD C
 PHASENWECHSEL EPSDEL = 0.5000E-02 MM EPSKON = 0.1000E+01 KPF/MM2
 WAERMEDURCHGANGSZAHLE ETADGX = 0.5000E-02 MM ETASGX = 0.1000E+02 KPF/MM2
 DELTAP = 0.2000E-01 MM PKONTR = 0.5000E+01 KPF/MM2
 RECHENZEITINTERVALL DTMCYC = 1.00 H DTMSTD = 50.0 H DTIMIN = 0.5000E-02 H
 HANDHABUNG DES PROGRAMMS SDT = 580.5 IPGEE = 300

STEUERPARAMETER

WAHL VON PROGRAMMTEILEN IPTCRE(1) = 1 IPTCRE(2) = 0 IPTPLA(1) = 0 IPTPLA(2) = 0
 IPTPR = 1 IPTGAP = 0 IPTTRA = 0 IFLUX = 0
 IPTFGA = 0 IHOLE = 0
 AUSGABE VON DATEN DTPR1 = 1050.0 H DTPR2 = 1000.0 H TPRINT = 1000.0 H
 IPR1 = 0 IPR2 = 0 IPR3 = 0 IPR4 = 0
 IPR5 = 0 IPR6 = 0 IPR7 = 0 IPR8 = 0

BETRIEBSBEDINGUNGEN

TIMEI (H)	CHI W/CM	THA GRD C	PSO KP/CM2	PG KP/CM2	PHI N/SCM2
0.0	0.0	20.00	5.00	1.00	.0
5.00	374.00	568.00	5.00	2.87	.1400E+16
10.00	394.00	568.00	5.00	2.87	.1400E+16
50.00	374.00	568.00	5.00	2.87	.1400E+16
100.00	374.00	568.00	5.00	2.87	.1400E+16
1000.00	304.00	568.00	5.00	2.87	.1400E+16
10000.00	0.0	568.00	5.00	2.87	.0
100000.00	0.0	568.00	5.00	1.00	.0
1000000.00	0.0	568.00	5.00	1.00	.0
10000000.00	304.00	568.00	5.00	2.87	.1400E+16
20000000.00	304.00	568.00	5.00	2.87	.1400E+16
200000000.00	0.0	568.00	5.00	1.00	.0
2000000000.00	0.0	568.00	5.00	1.00	.0
20000000000.00	0.0	568.00	5.00	1.00	.0
200000000000.00	304.00	568.00	5.00	2.87	.1400E+16
2000000000000.00	304.00	568.00	5.00	2.87	.1400E+16
4865.00	304.00	568.00	5.00	2.87	.1400E+16
4870.00	0.0	568.00	5.00	2.87	.0
4880.00	0.0	568.00	5.00	1.00	.0
4890.00	0.0	568.00	5.00	1.00	.0

ERGAEZUNG FUER THERM. NEUTR.-FLUSS
 TIMQUA QUAV4 QUAV1 QUAV2
 (H) (CM-2) (CM-4)
 .0 1.0000 .0 .0

151

Tabelle 19 Zusammenstellung der für die Parameterstudie zu Abschnitt 5. verwendeten Material- und Betriebsdaten

Brennstoffmaterial	UO ₂ -PuO ₂
Pu-Anteil	20 %
U-235-Anreicherung	-
O/Me-Verhältnis	1,96; 1,98; 2,00
Theoretische Dichte	11,0 g/cm ³
Porosität	13,5 %
Integraler linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient	1,0 x 10 ⁻⁵ /°C
Außenradius	2,55 mm
Brennstoffrandtemperatur	900 °C
Lineare Stableistung	350 W/cm

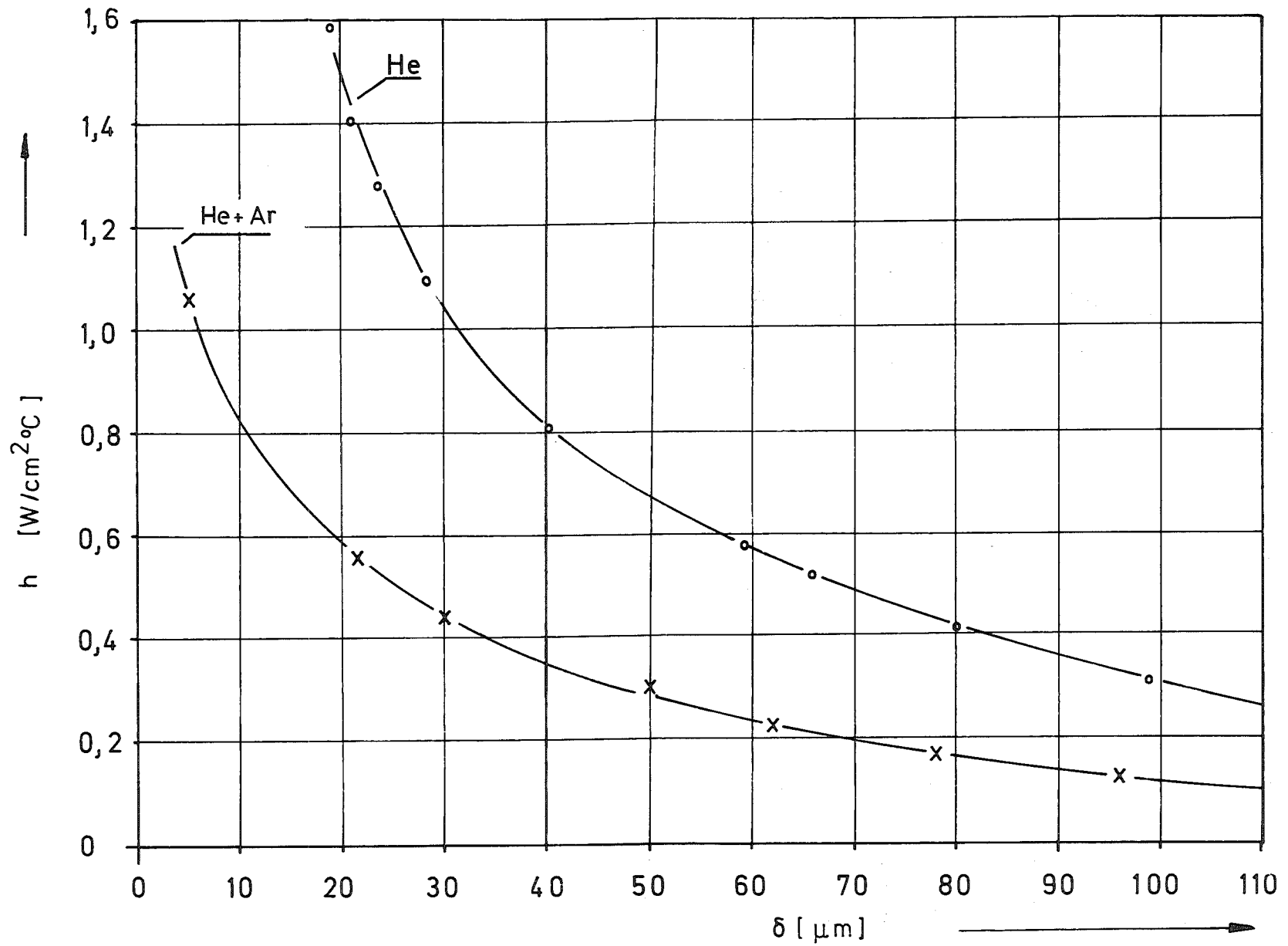


Abb. 1 Wärmedurchgangszahl h durch den gasgefüllten Spalt als Funktion der Spaltbreite für reines Helium und für ein Gasgemisch aus 50 % Helium und 50 % Argon, Gasdruck 1 kp/cm^2 , Hüllinnentemperatur 400 °C

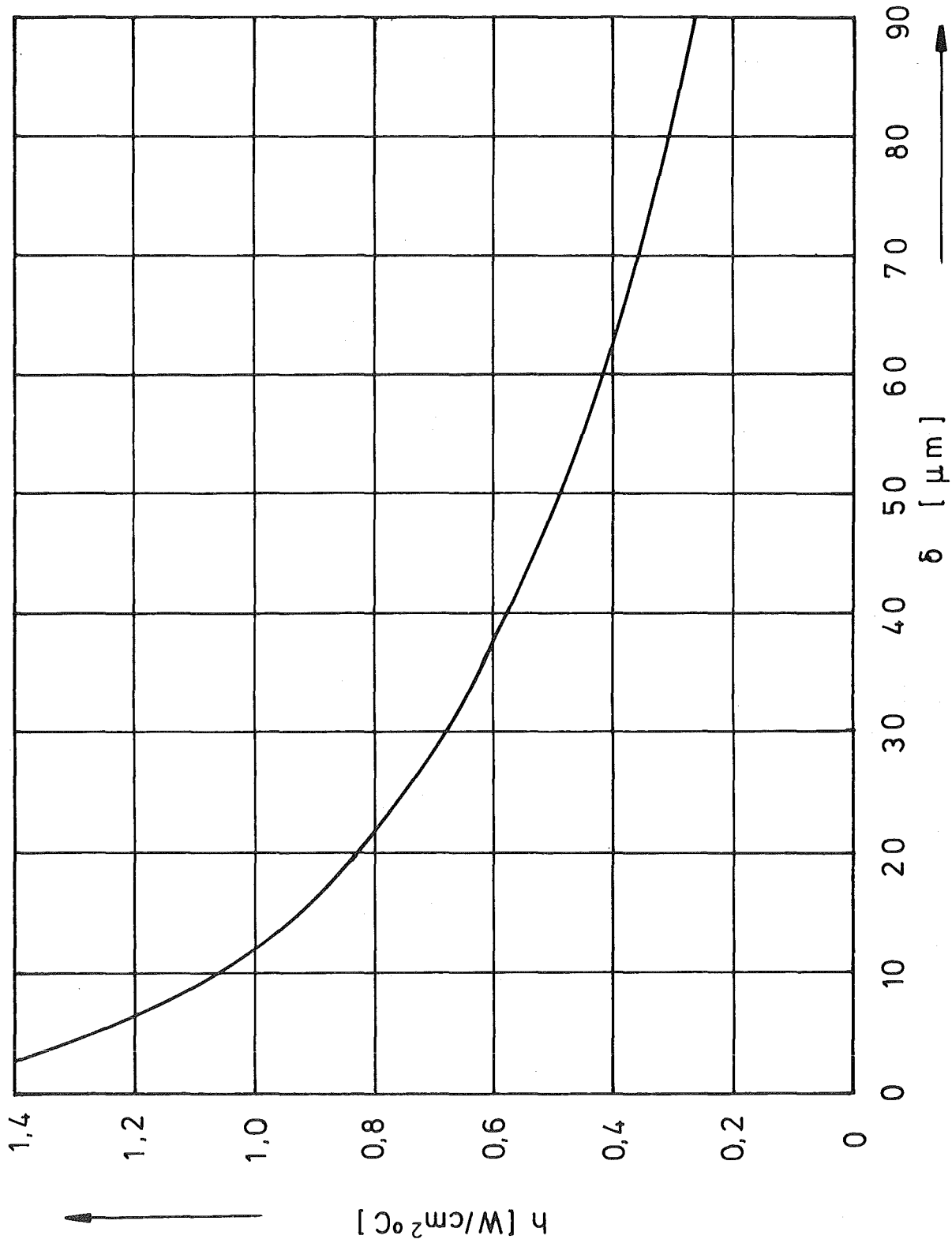


Abb. 2 Wärmedurchgangszahl h als Funktion der Spaltbreite, Füllgas 85 % He und 15 % Ar, Gasdruck 1 kp/cm^2 , Summe der mittleren Oberflächenrauigkeiten von Brennstoff und Hülle $5 \mu\text{m}$, Hüllinnentemperatur 500 °C

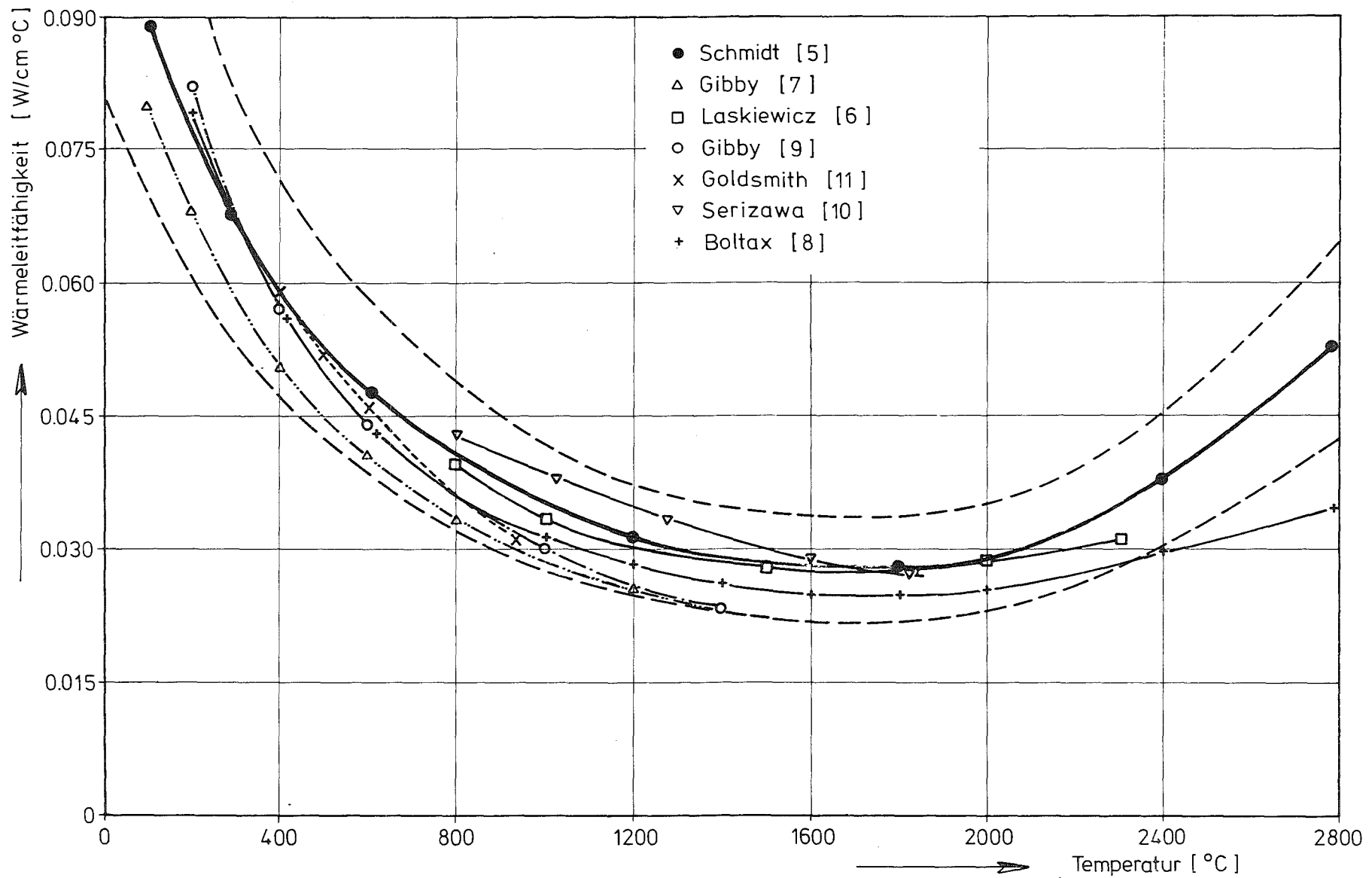


Abb. 3 Vergleich verschiedener Beziehungen für die Wärmeleitfähigkeit von 100 % dichtem stöchiometrischem UO₂-PuO₂-Brennstoff mit 20 % Pu-Anteil

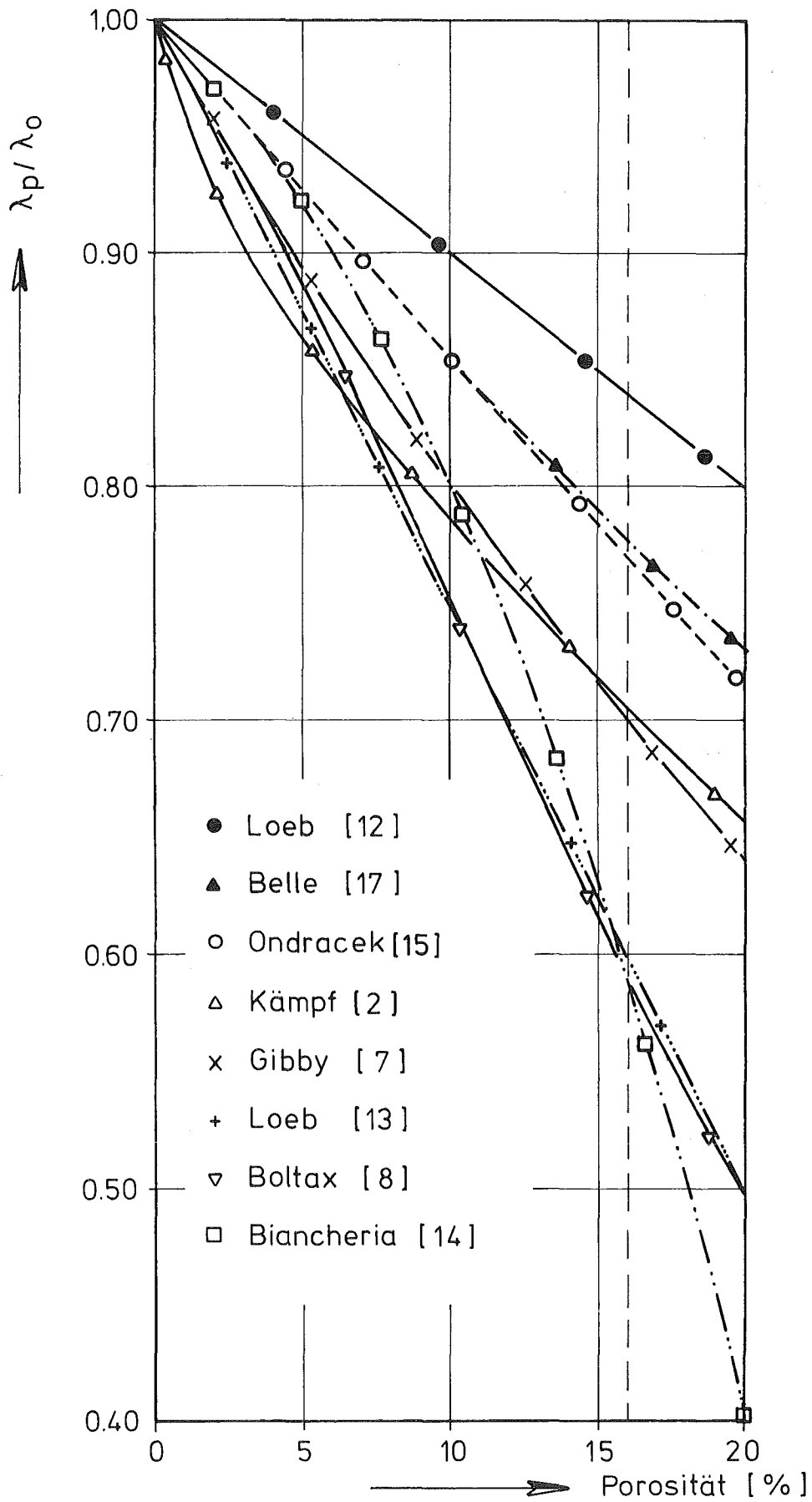


Abb. 4 Vergleich verschiedener Darstellungen der Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit

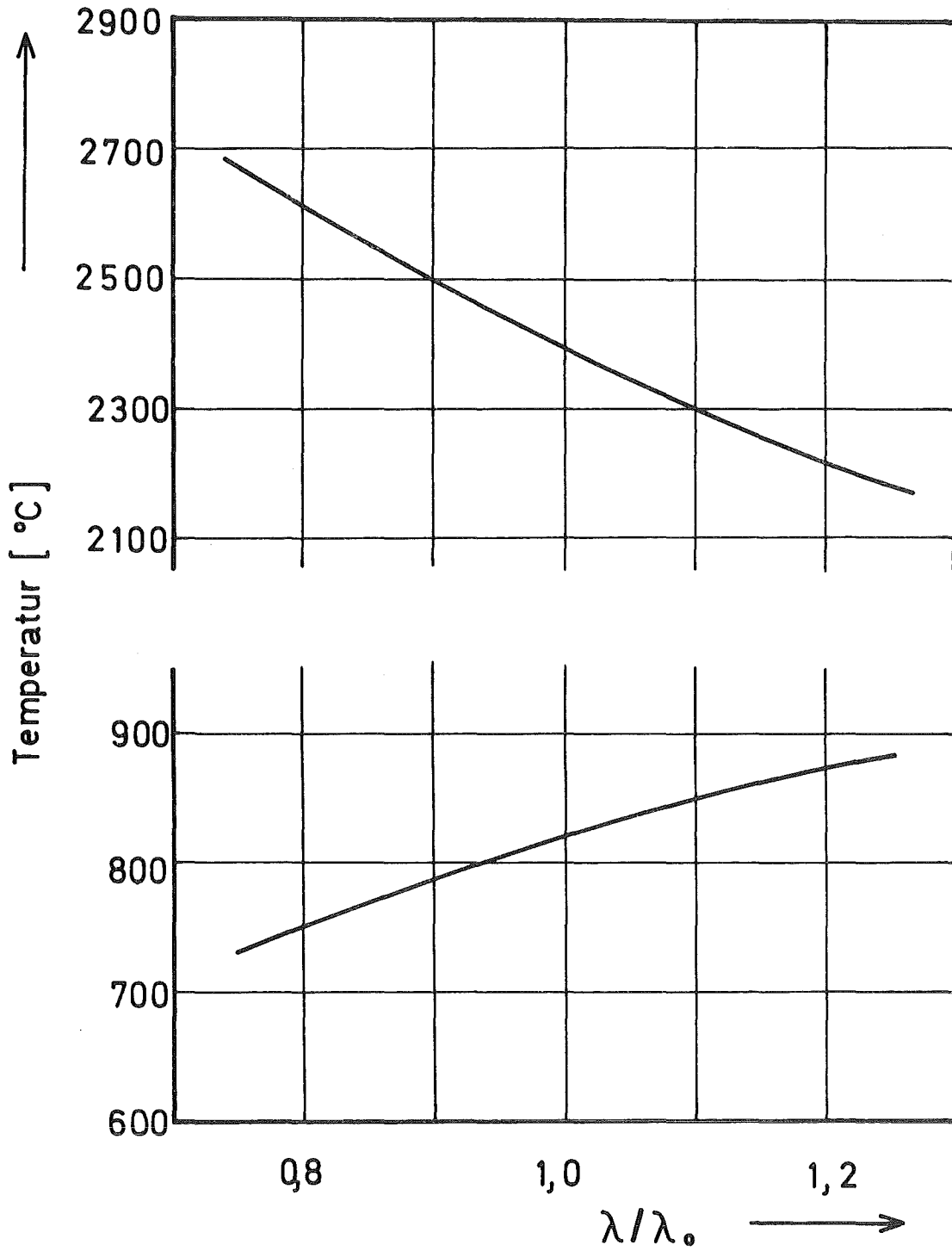


Abb. 5 Zentral- und Randtemperatur des Brennstoffes in Abhängigkeit von einer pauschalen Unsicherheit der Wärmeleitfähigkeit zwischen - 20 % und + 20 % bezogen auf λ_0 nach /5/
Porosität $P = 16 \%$, Stöchiometrie $O/Me = 2,00$

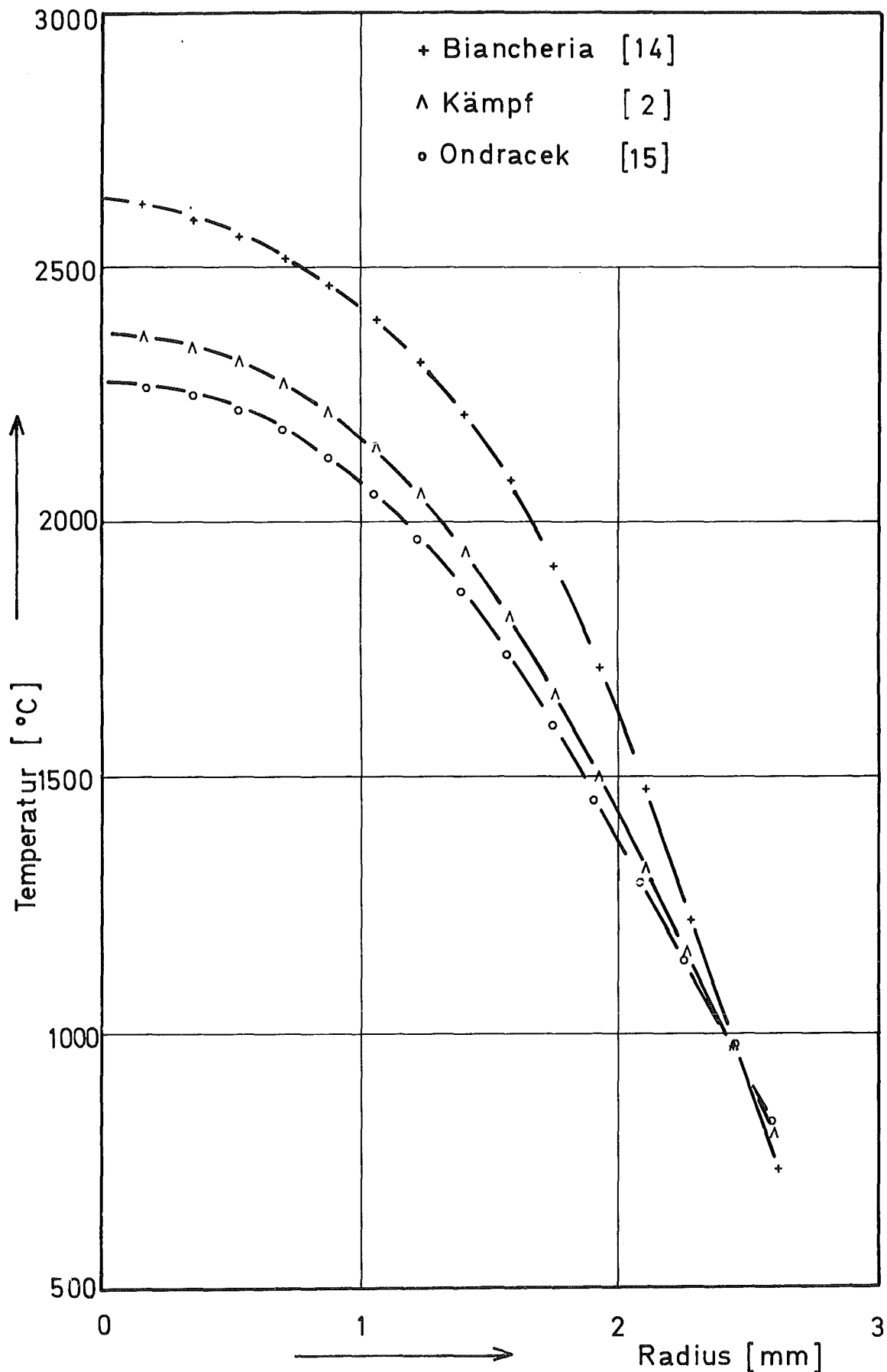


Abb. 6 Temperaturprofil in der Brennstofftablette bei verschiedener Darstellung der Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffes; Porosität $P = 16\%$, Stöchiometrie $O/Me = 2,00$

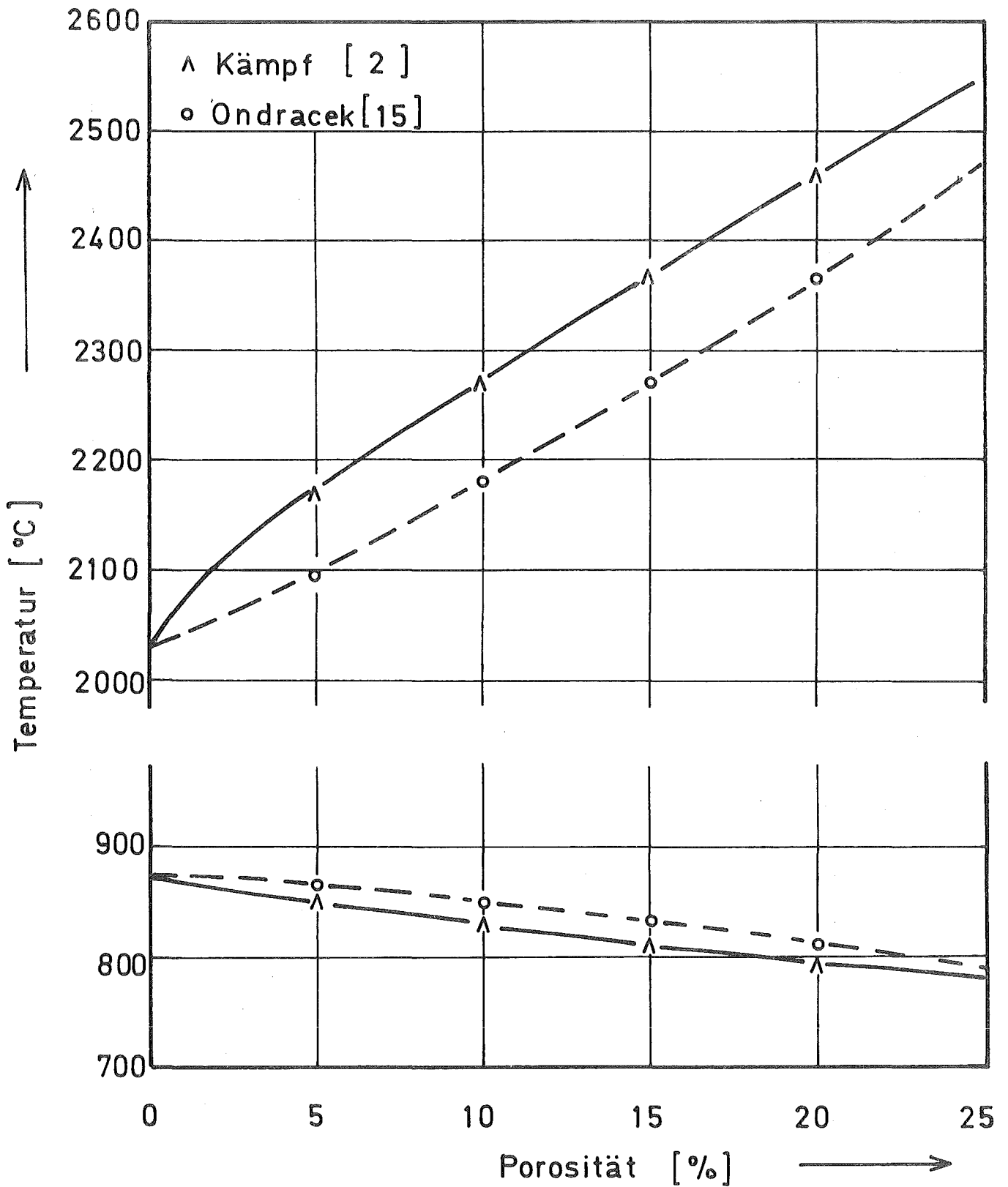


Abb. 7 Zentral- und Randtemperatur des Brennstoffes in Abhängigkeit von der Porosität für die Porositätsabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit nach Kämpf /2/ bzw. Ondracek /15/; Stöchiometrie O/Me = 2,00

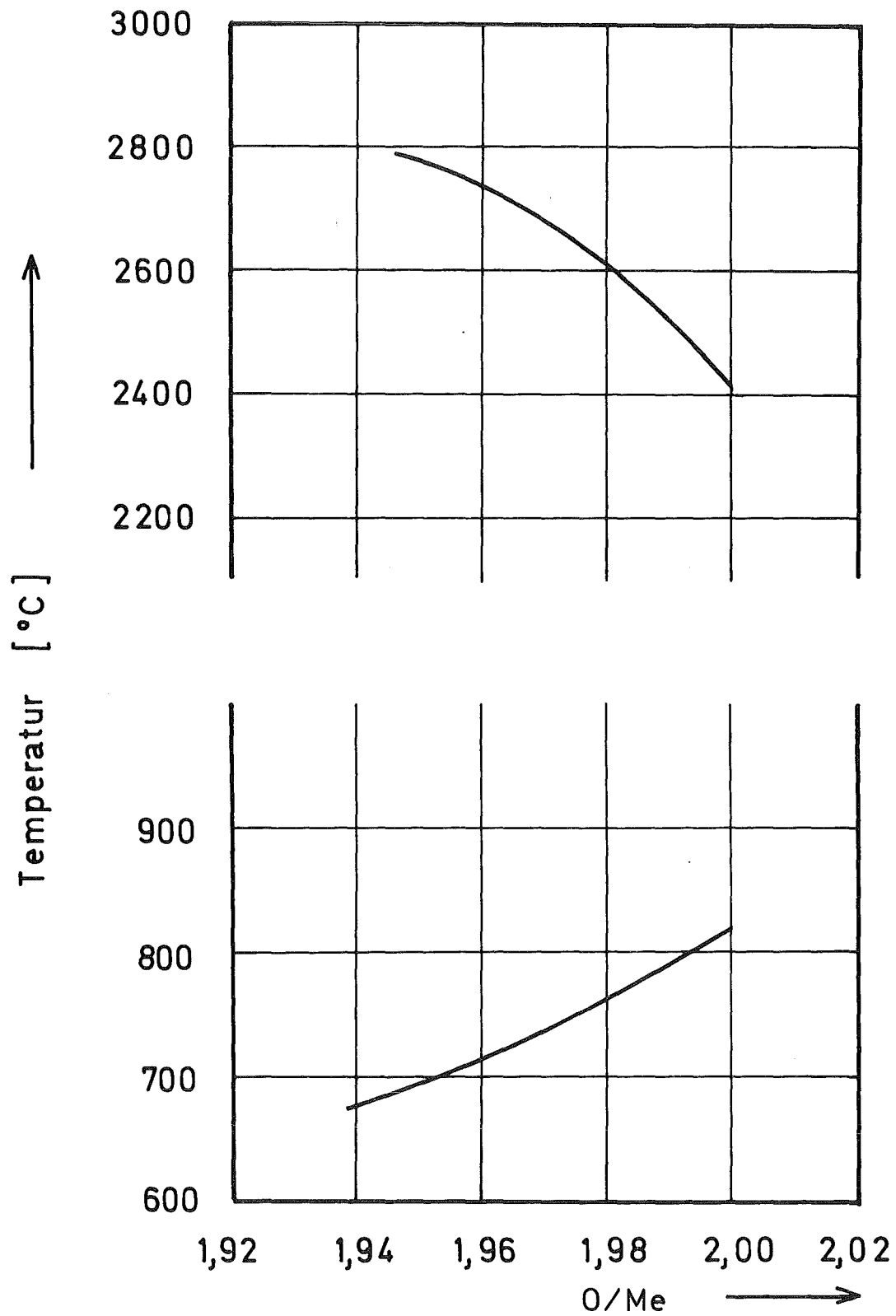


Abb. 8 Zentral- und Randtemperatur des Brennstoffes in Abhängigkeit von der Stöchiometrie; Porosität $P = 16\%$

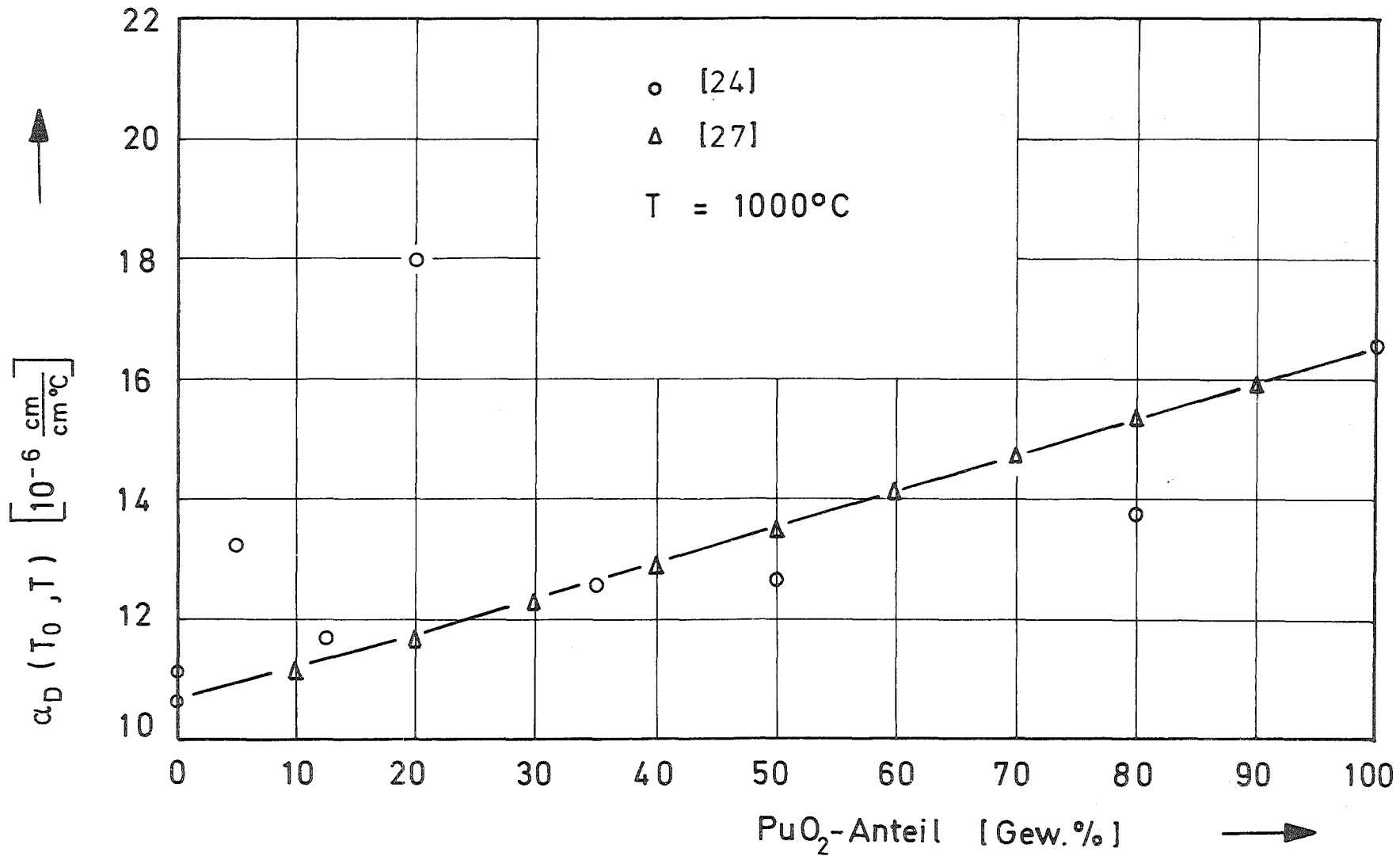


Abb. 9

Differentieller linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient in Abhängigkeit vom PuO₂-Anteil bei T = 1000 °C

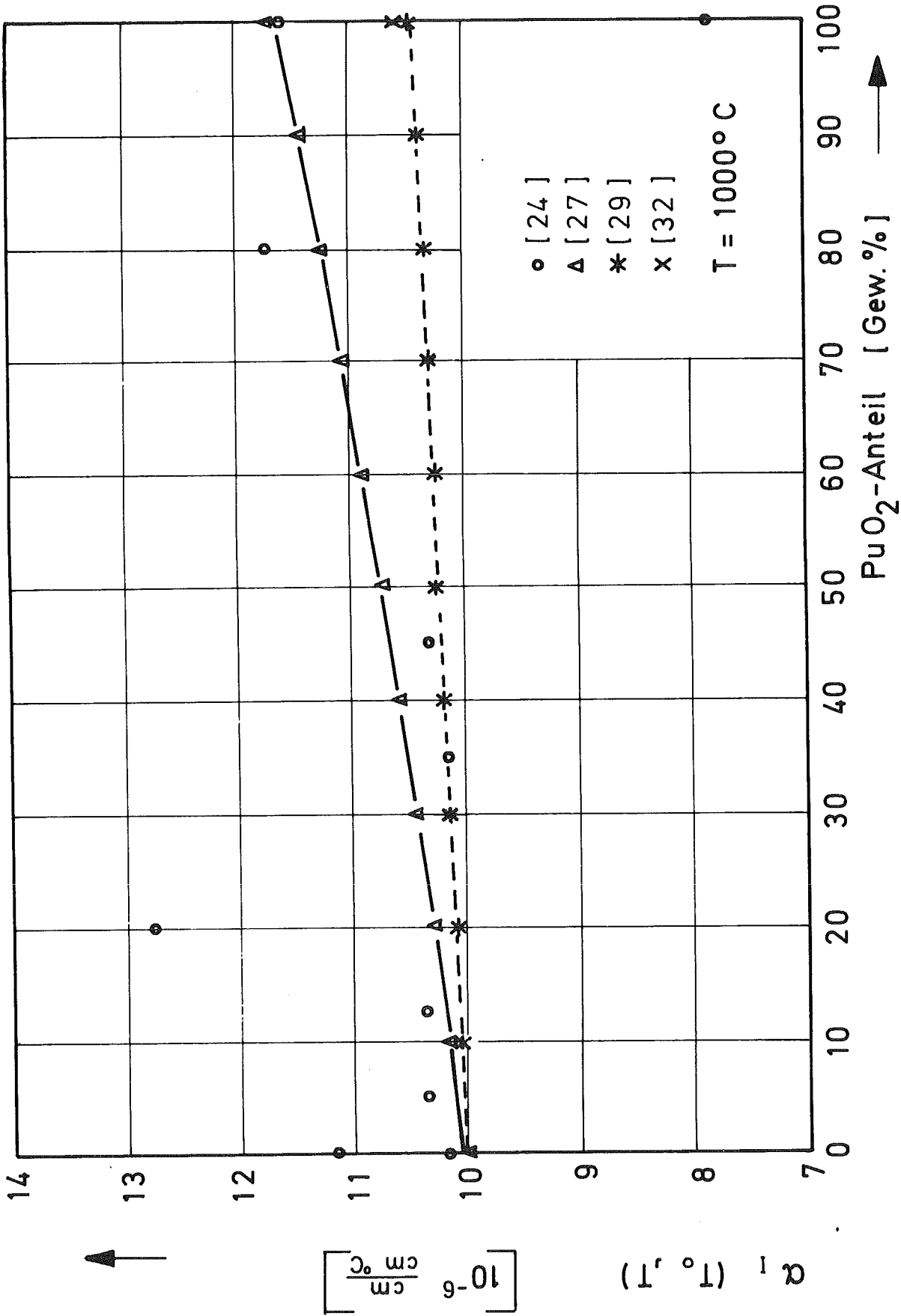


Abb. 10 Integraler linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient in Abhängigkeit vom PuO₂-Anteil bei T = 1000 °C

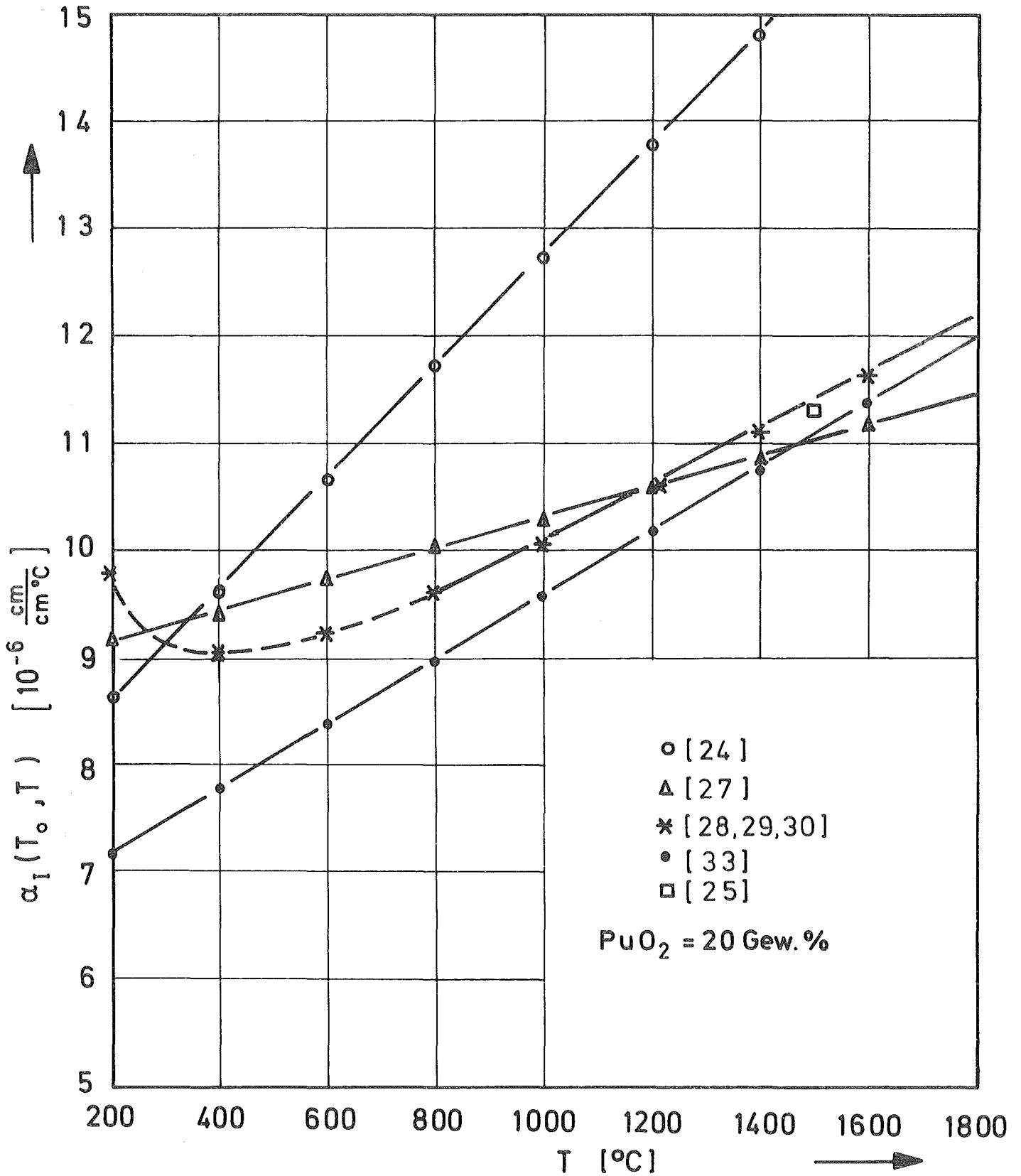


Abb. 11 Integraler linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient als Funktion der Temperatur für $\text{UO}_2 - 20 \text{ Gew.}\% \text{ PuO}_2$

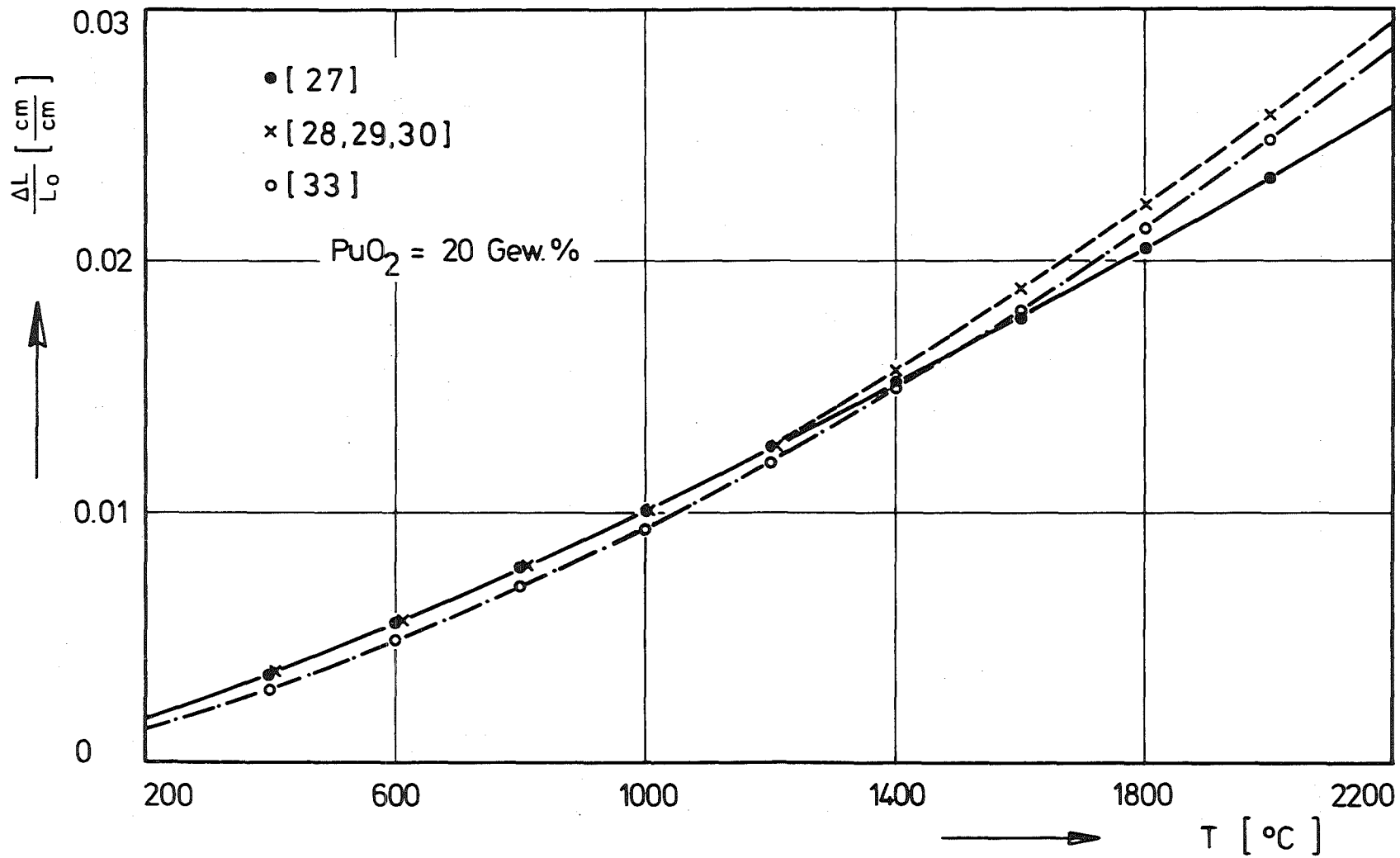


Abb. 12 Relative Längenänderung als Funktion der Temperatur für UO₂-20 Gew.-% PuO₂

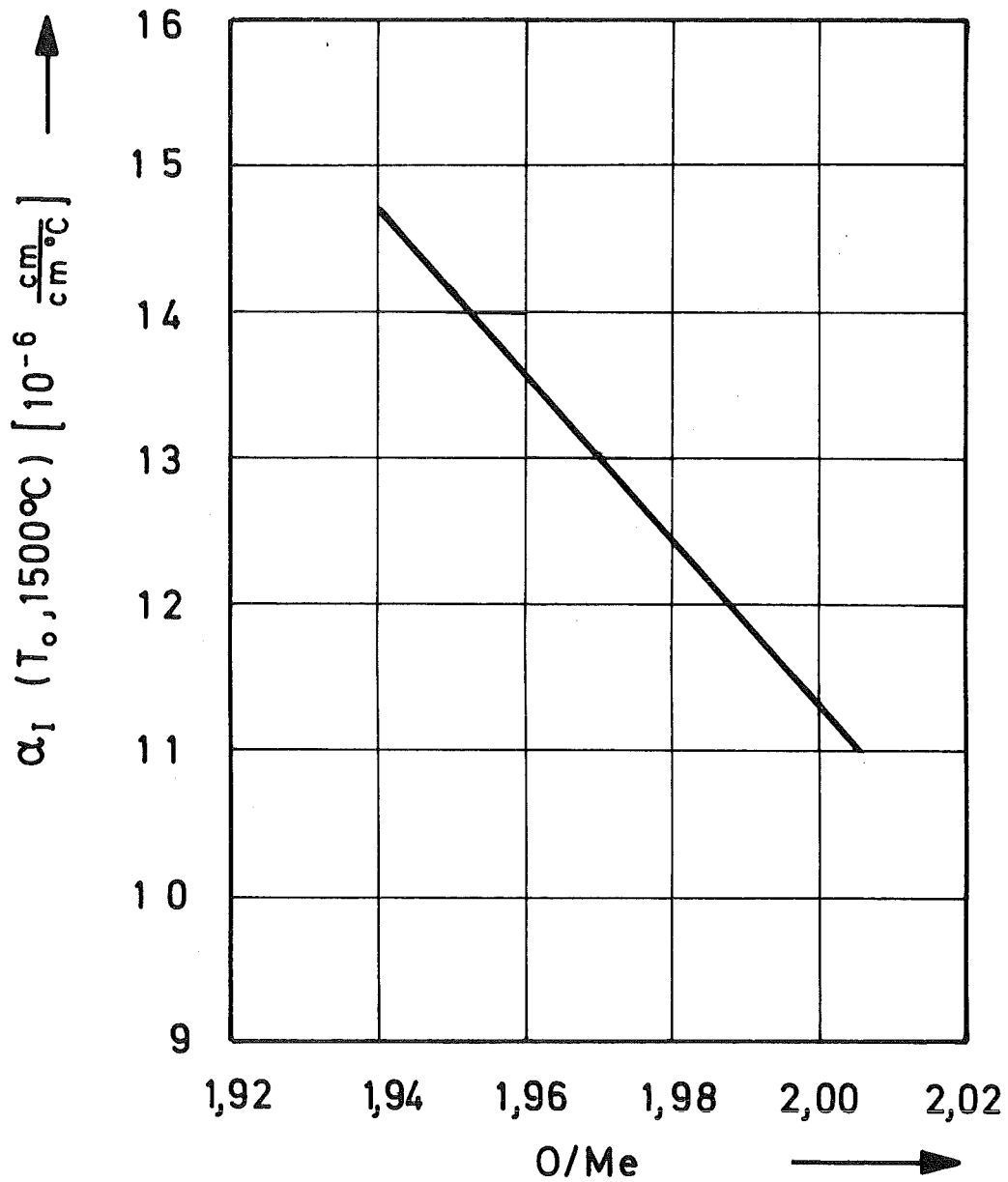


Abb. 13 Integraler linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient als Funktion der Stöchiometrie für UO_2 -20 Gew.-% PuO_2 bei $T = 1500^\circ\text{C}$ nach /25/

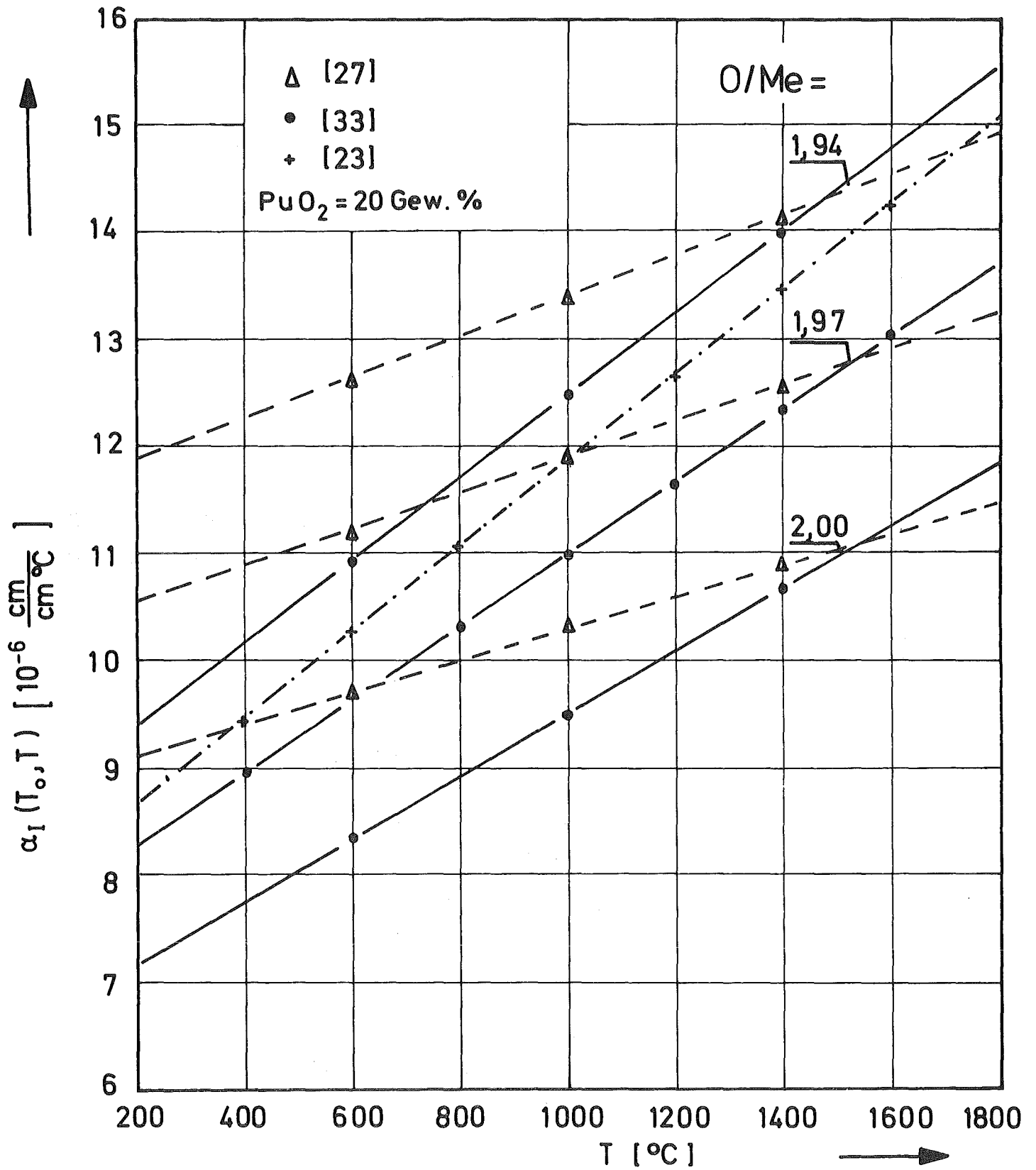
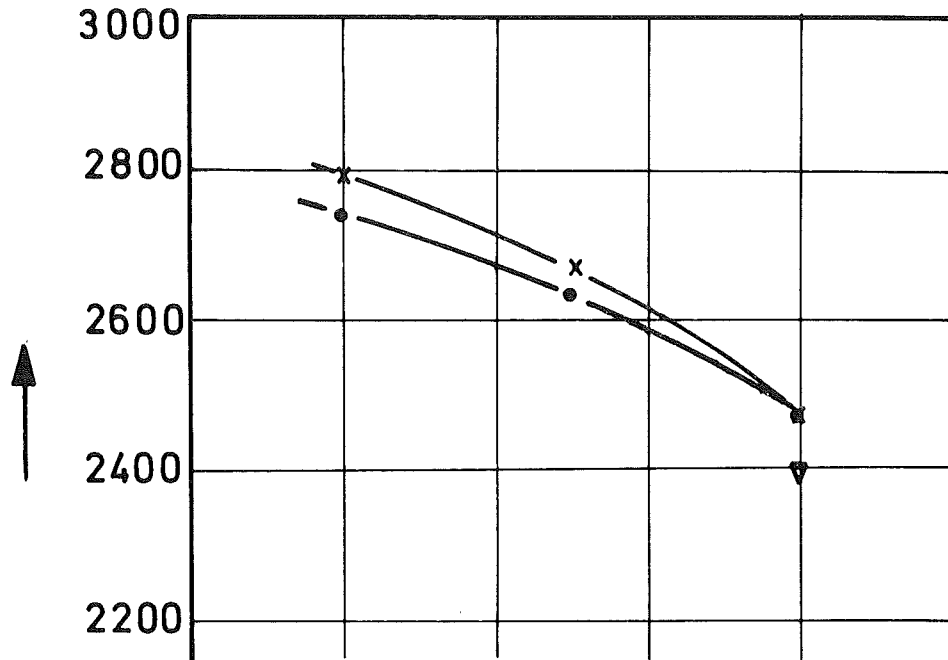


Abb. 14 Integrale lineare thermische Ausdehnungskoeffizienten als Funktion der Temperatur für verschiedene Stöchiometriewerte (Extrapolation anhand von /25/)



° } [33] { mit } Stöch. Abh. d.
x } { ohne } therm. Ausd.
▽ [23]

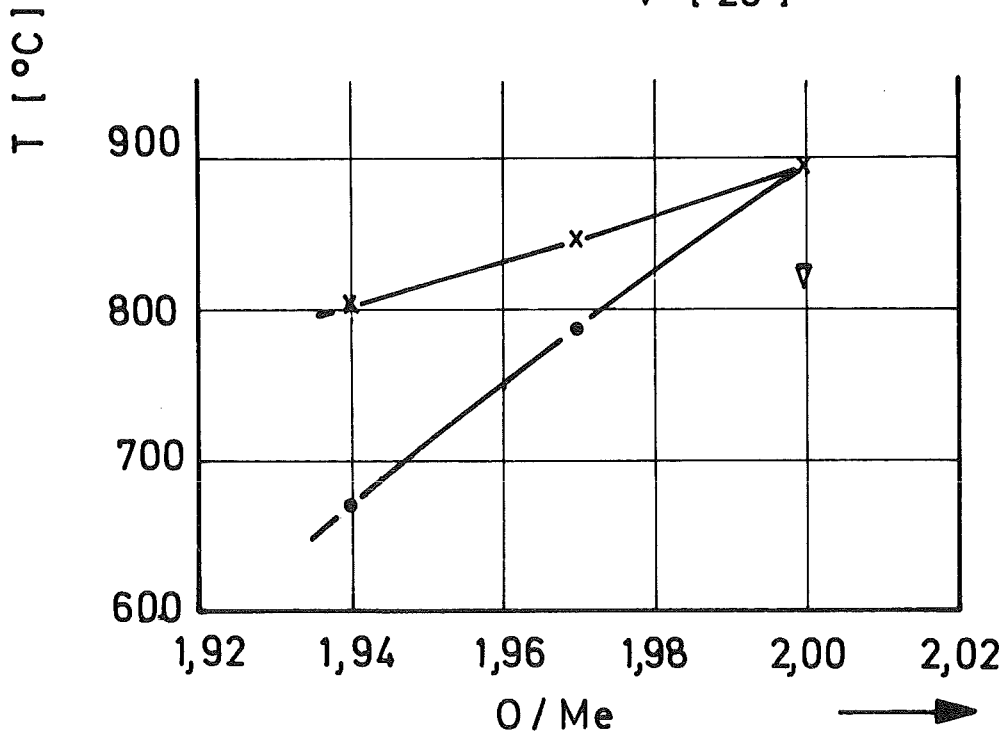
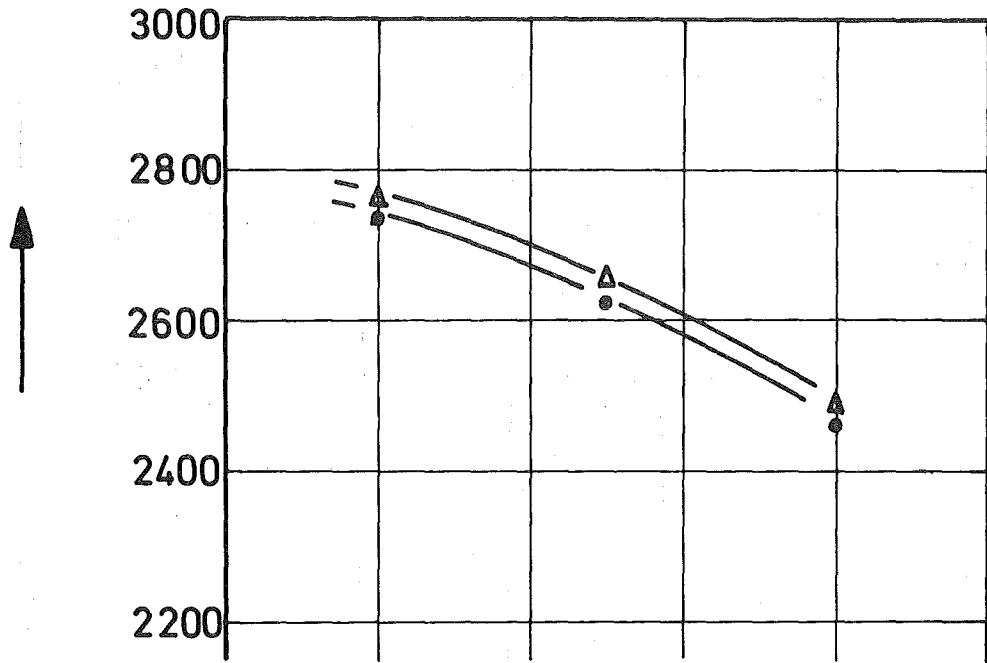


Abb. 15 Einfluß der Stöchiometrieabhängigkeit der thermischen Ausdehnung auf die Zentral- und Randtemperatur der Brennstofftablette aus UO_2 -20 Gew.-% PuO_2



Δ[27] } mit [25]
•[33]

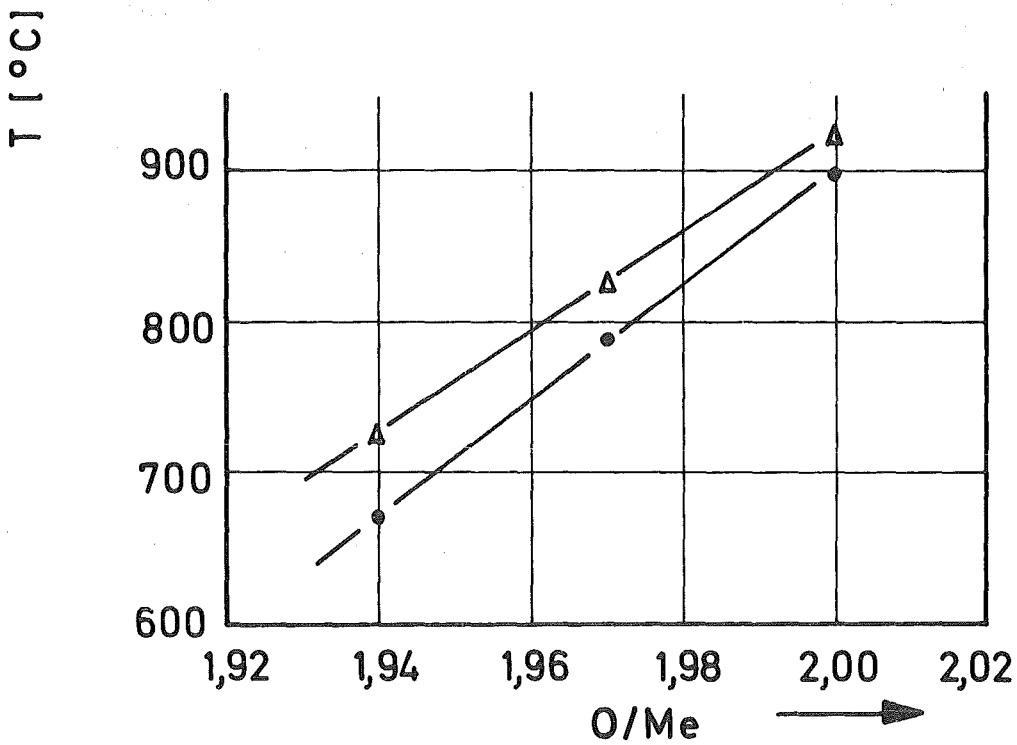


Abb. 16 Zentral- und Randtemperatur der Brennstofftablette aus UO_2 -20 Gew.-% PuO_2 in Abhängigkeit von der Stöchiometrie unter Berücksichtigung der Stöchiometrieabhängigkeit der thermischen Ausdehnung (s. Tabelle 13) und der Wärmeleitfähigkeit (s. /5/)

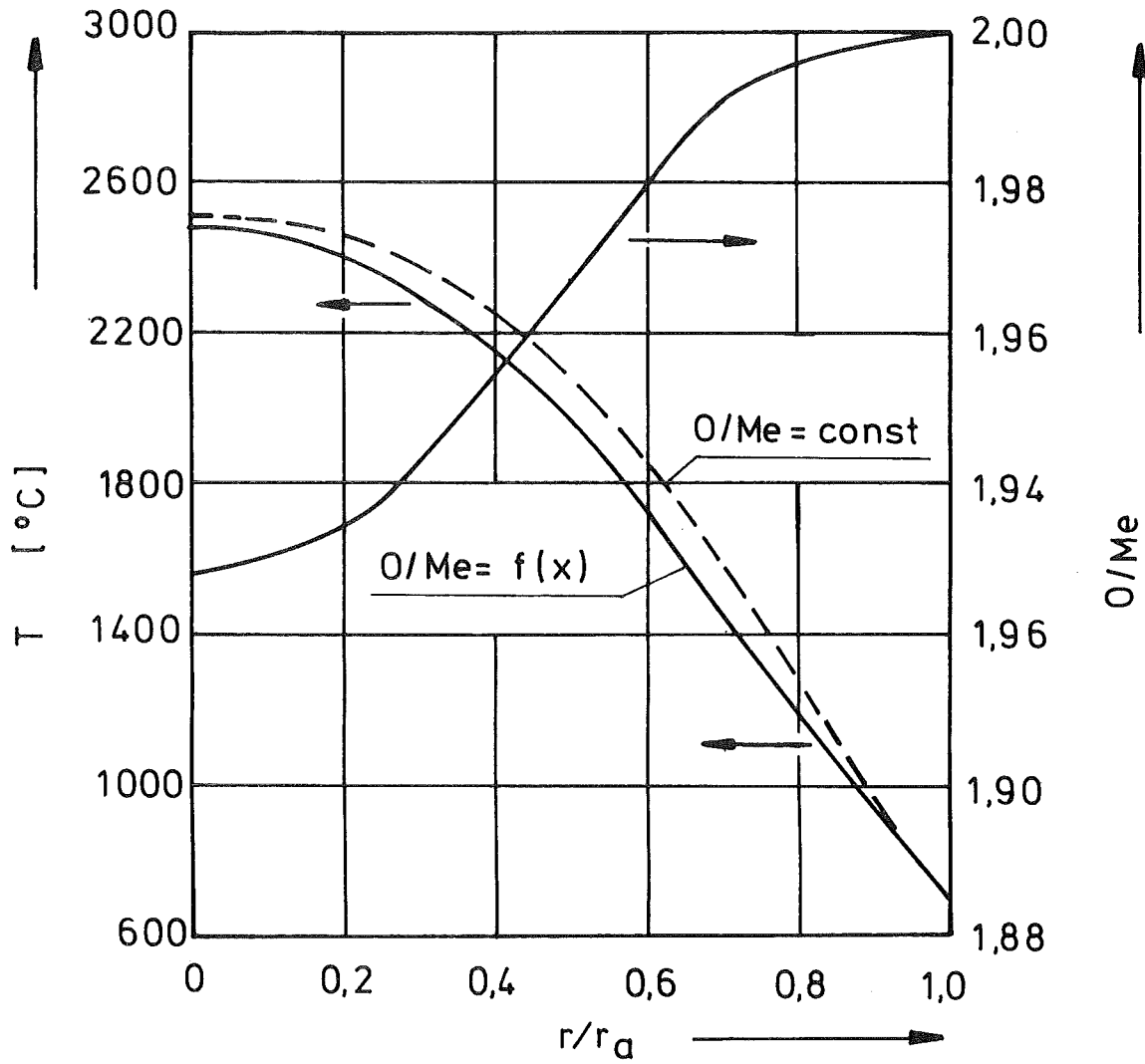


Abb. 17 Radiale Sauerstoff- und Temperaturverteilung im Brennstoff, $O/Me = 1,98$

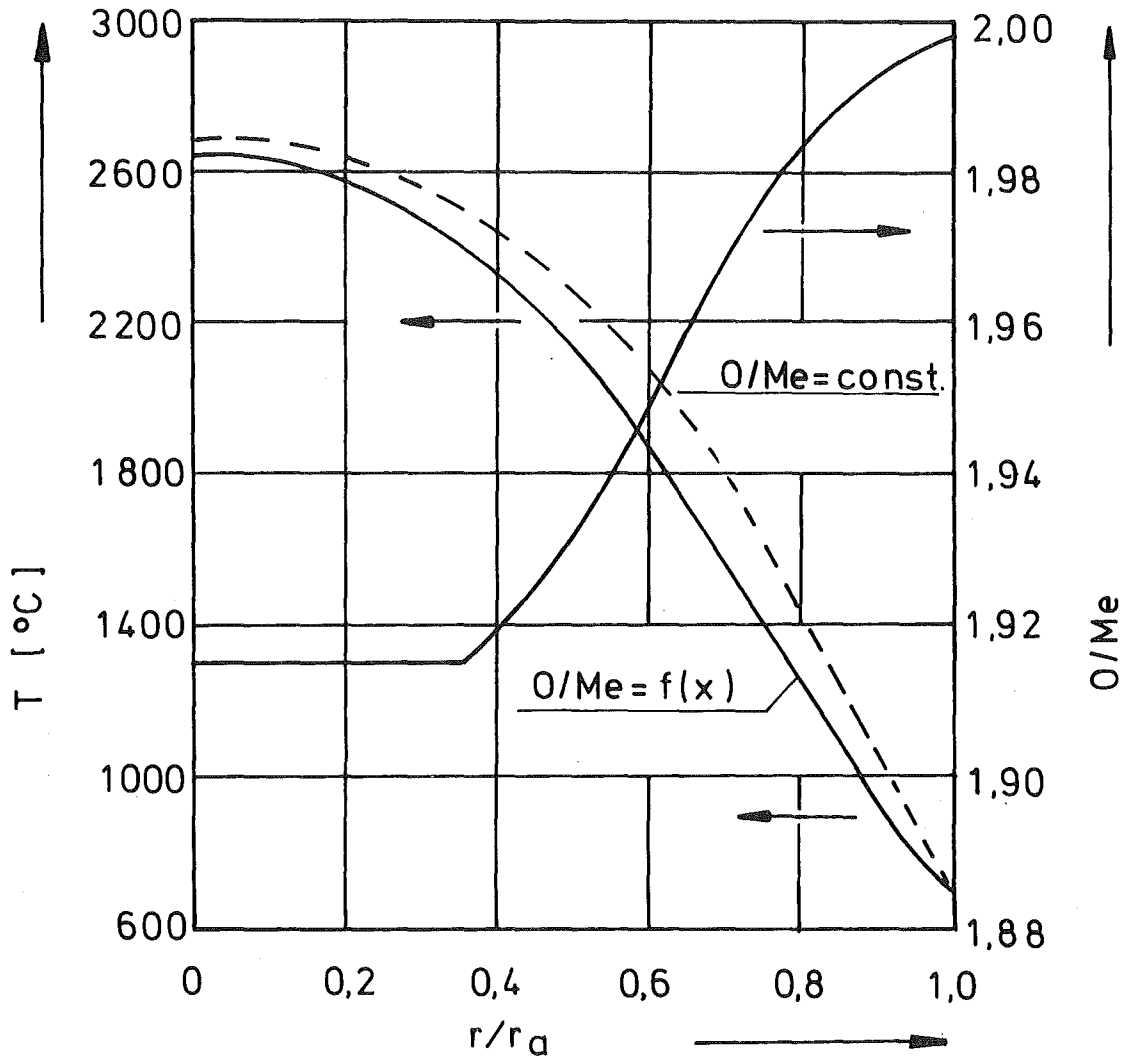


Abb. 18 Radiale Sauerstoff- und Temperaturverteilung im Brennstoff, $O/Me = 1,96$

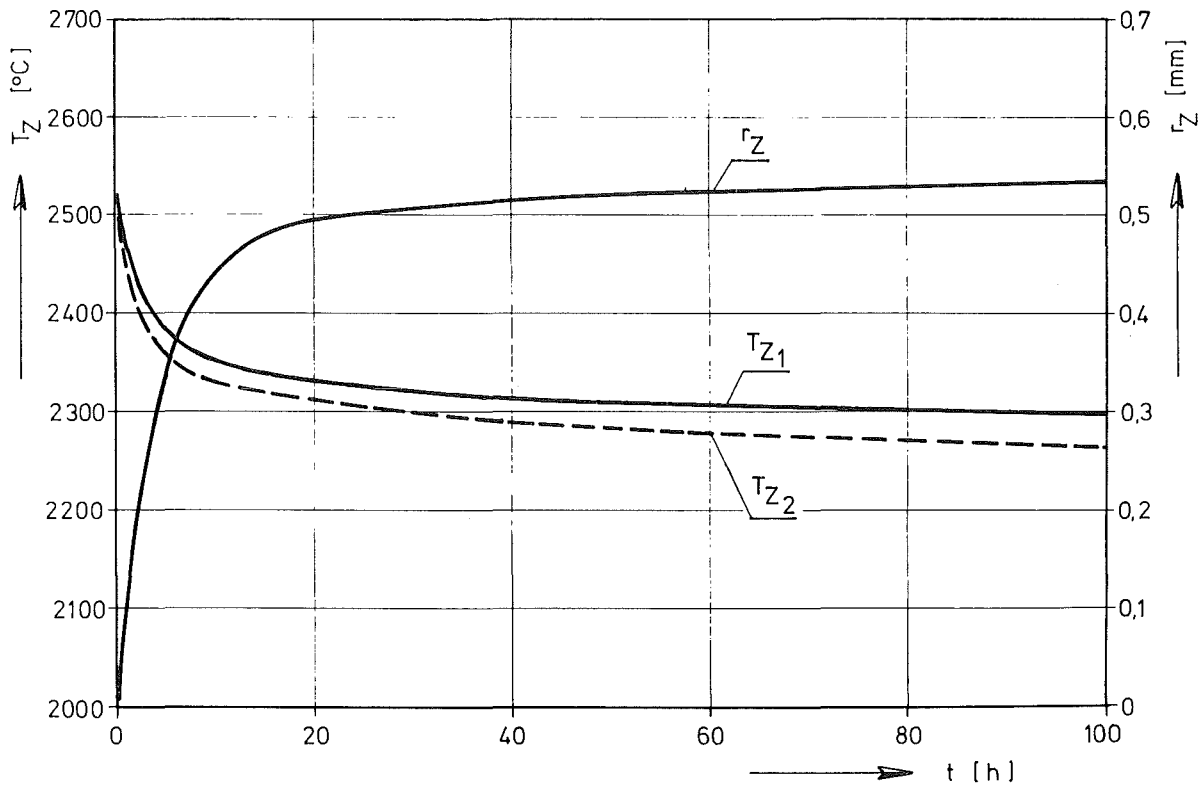


Abb. 19 Zentraltemperatur T_Z und Zentralkanalradius r_Z als Funktion der Zeit t

T_{Z_1} : 20 % Pu, 80 % U-238; T_{Z_2} : 20 % Pu, 80 % U
 (davon 86,4 % U-235)

Brennstoffrandtemperatur $T_{Ba} = 800 \text{ } ^\circ\text{C}$

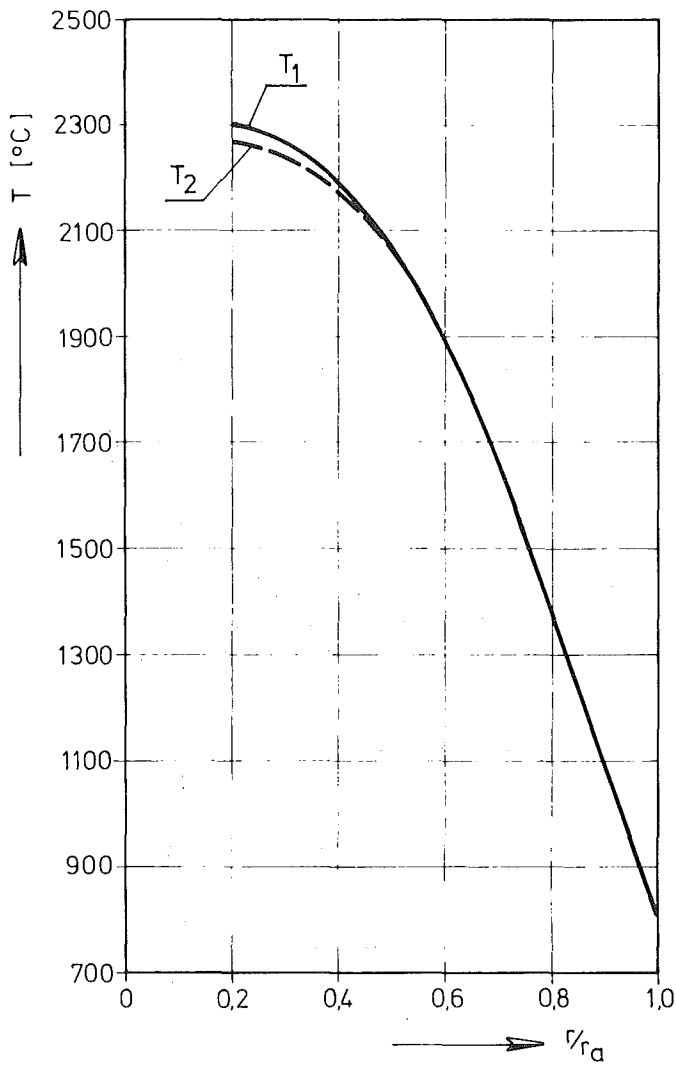


Abb. 20

Temperaturverteilung als Funktion des Brennstoffradius nach $t = 100$ h

T_1 : 20 % Pu, 80 % U-238

T_2 : 20 % Pu, 80 % U

(davon 86,4 % U-235)

Brennstoffrandtemperatur $T_{Ba} = 800^\circ\text{C}$

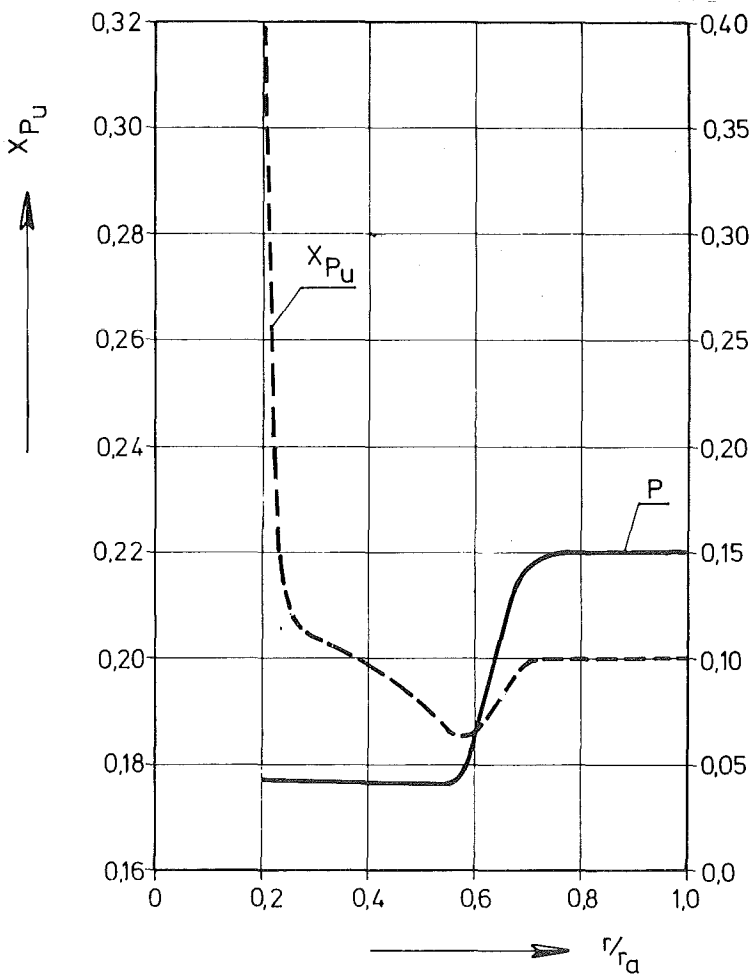


Abb. 21

Porositätsverteilung P und Plutoniumverteilung X_{Pu} in Abhängigkeit vom Brennstoffradius nach $t = 100$ h

Brennstoffrandtemperatur $T_{Ba} = 800^\circ\text{C}$

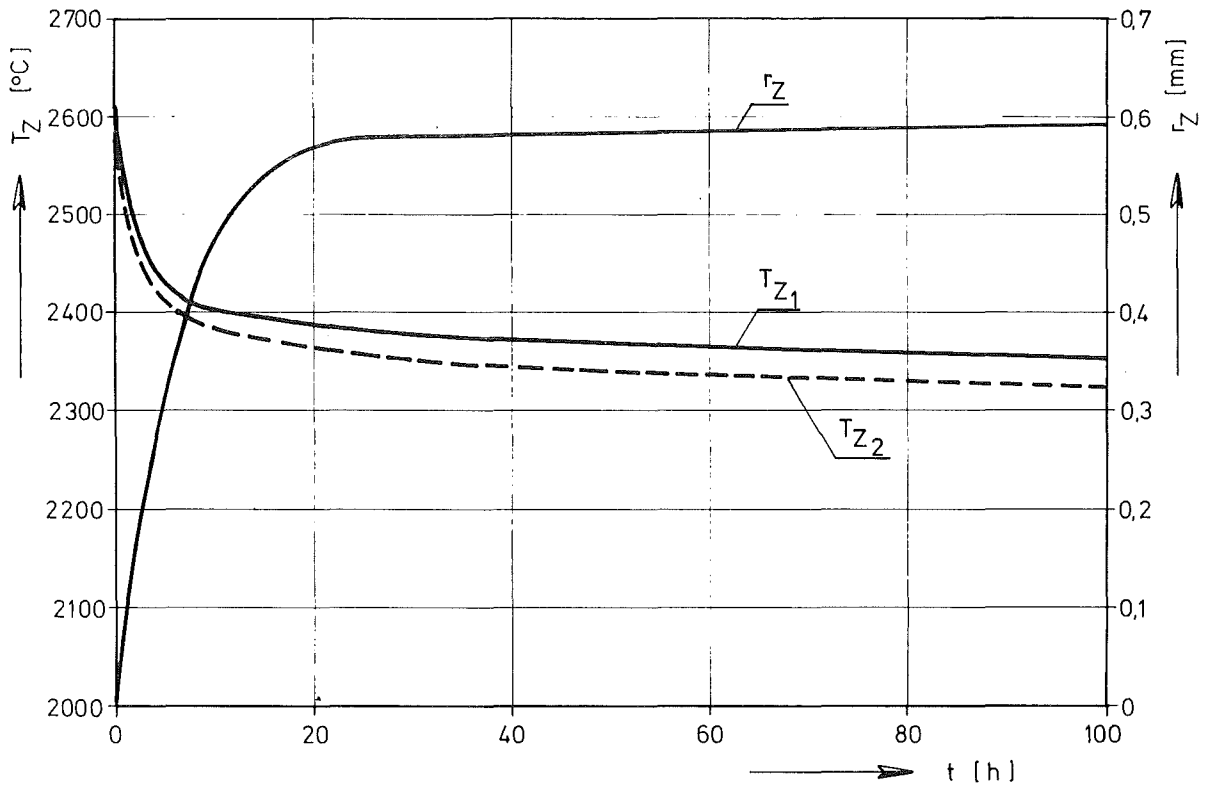


Abb. 22 Zentraltemperatur T_Z und Zentralkanalradius r_Z als Funktion der Zeit t

T_{Z_1} : 20 % Pu, 80 % U-238 ;

T_{Z_2} : 20 % Pu, 80 % U
(davon 86,4 % U-235)

Brennstoffrandtemperatur $T_{Ba} = 900$ °C

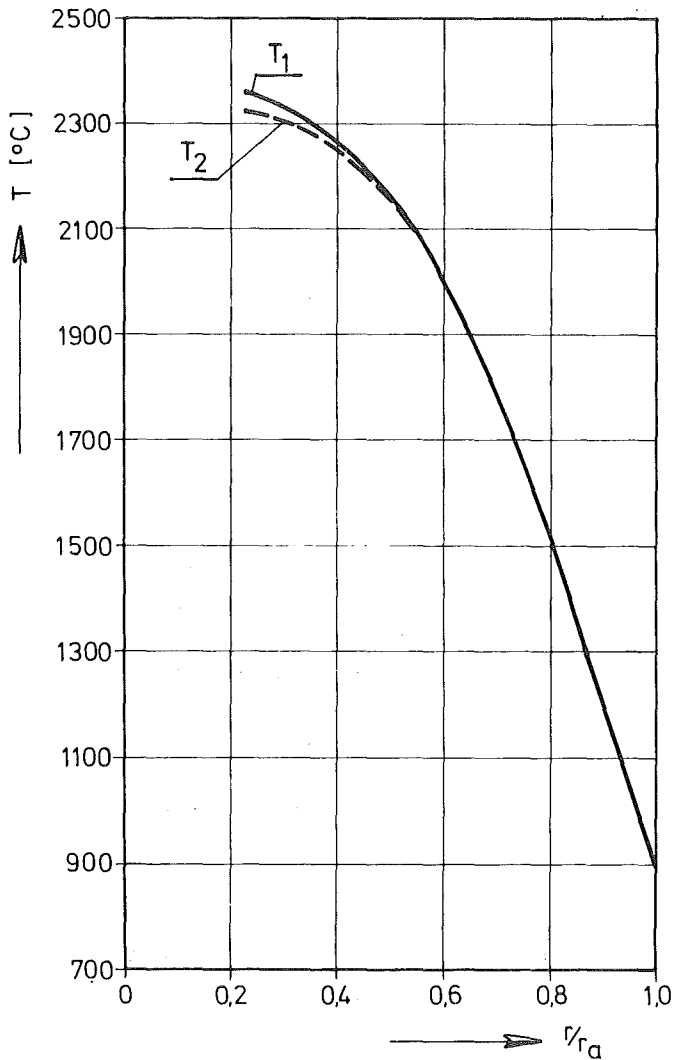


Abb. 23

Temperaturverteilung als Funktion des Brennstoffradius nach $t = 100$ h

T_1 : 20 % Pu, 80 % U-238

T_2 : 20 % Pu, 80 % U
(davon 86,4 % U-235)

Brennstoffrandtemperatur $T_{Ba} = 900^\circ\text{C}$

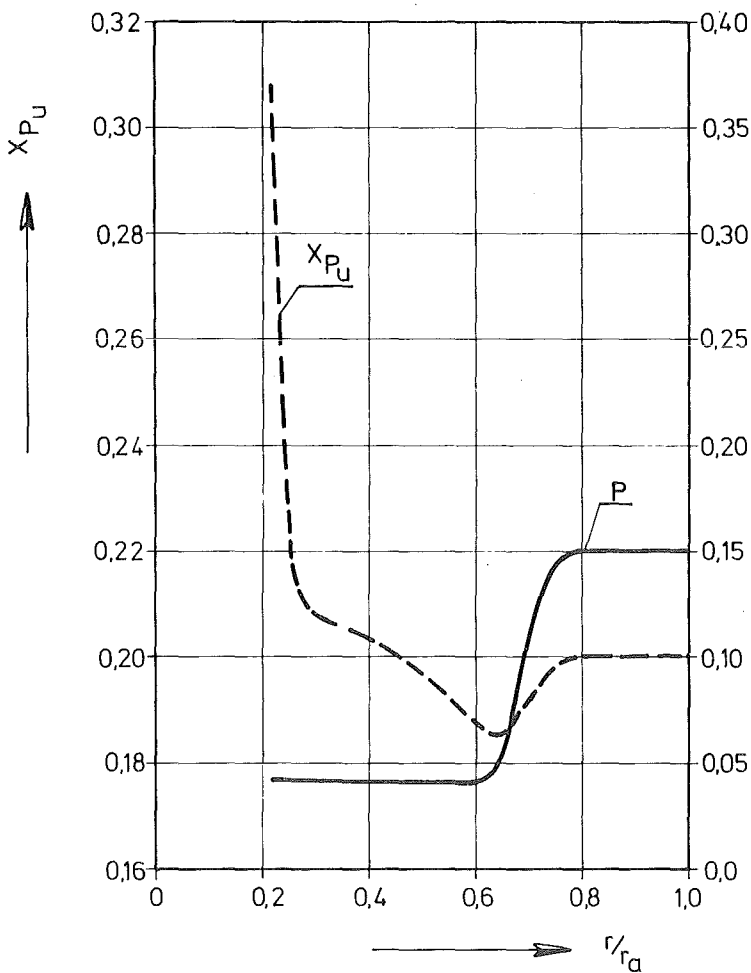


Abb. 24

Porositätsverteilung P und Plutoniumverteilung X_{Pu} in Abhängigkeit vom Brennstoffradius nach $t = 100$ h

Brennstoffrandtemperatur $T_{Ba} = 900^\circ\text{C}$

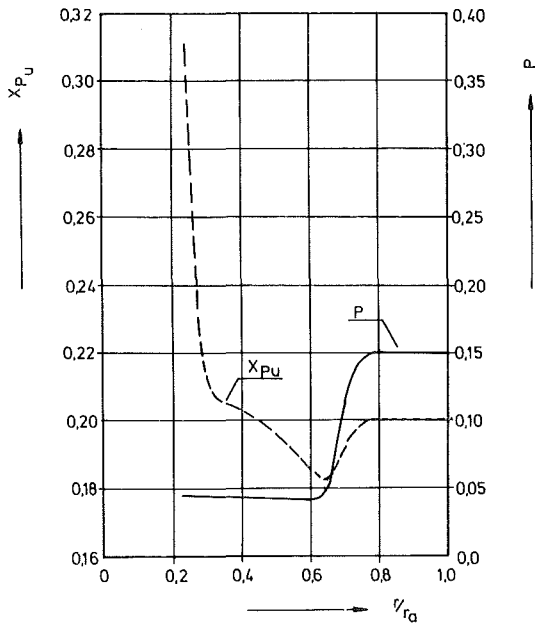


Abb. 25 U/Pu-Entmischung durch Verdampfung und Kondensation

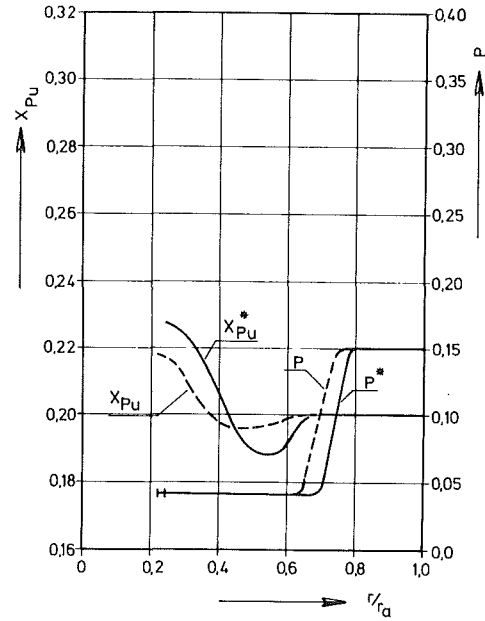


Abb. 26 U/Pu-Entmischung durch Thermodiffusion

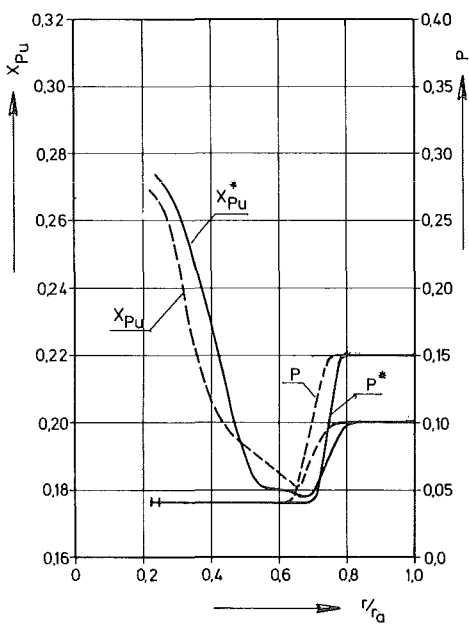


Abb. 27 U/Pu-Entmischung durch Verdampfung und Kondensation und durch Thermodiffusion

Plutoniumkonzentration X_{Pu} und Porositätsanteil P in Abhängigkeit vom Brennstoffradius,

X_{Pu} und P nach $t = 500$ h,

X_{Pu}^+ und P^+ nach $t = 5000$ h,

Brennstoffrandtemperatur $T_{Ba} = 800^\circ\text{C}$

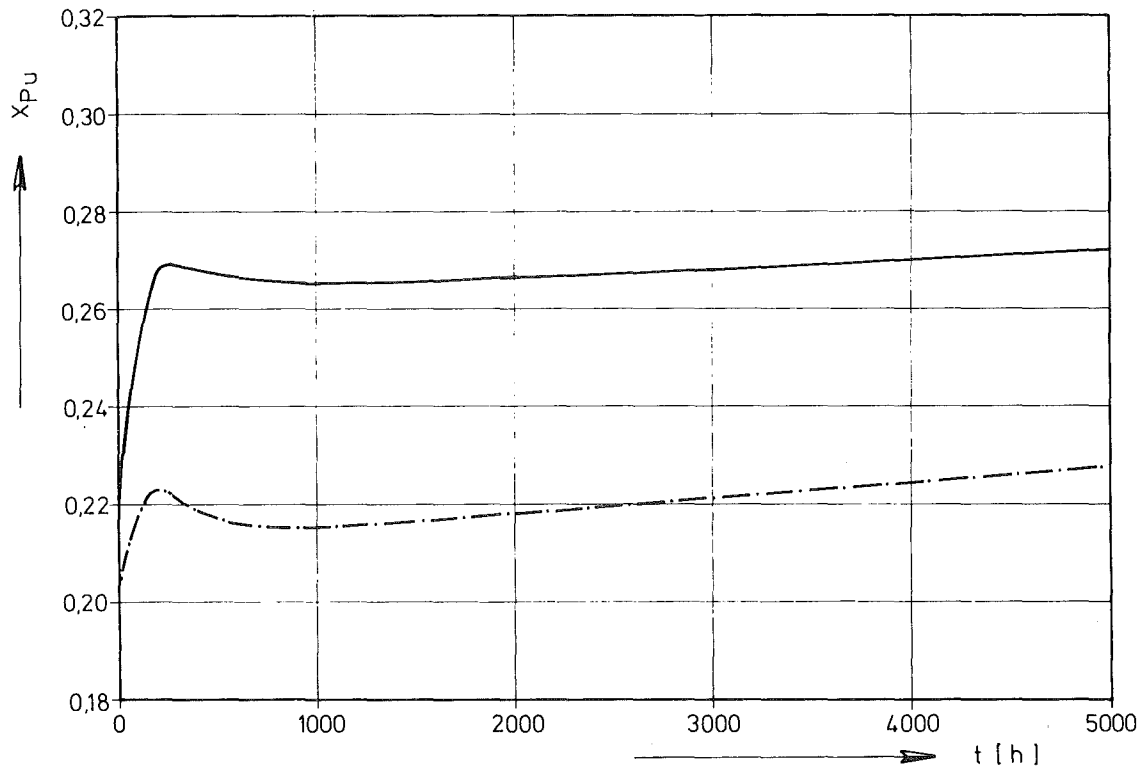


Abb. 28 Plutoniumkonzentration X_{Pu} in der unmittelbaren Umgebung des Zentralkanals als Funktion der Zeit t ,
ausgezogene Kurve: beide U/Pu-Entmischungseffekte;
gestrichelte Kurve: nur Thermodiffusion

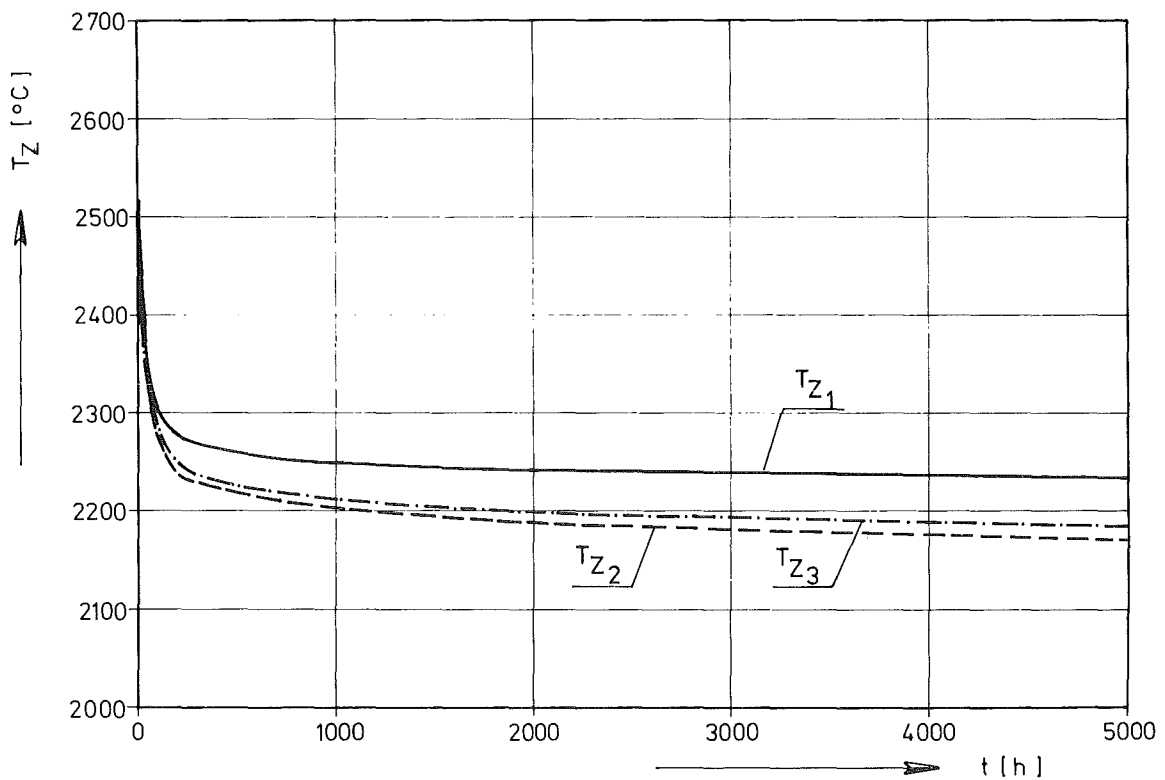


Abb. 29 Zentraltemperatur T_Z als Funktion der Zeit t ,
 T_{Z1} : beide U/Pu-Entmischungseffekte,
 T_{Z2} : ohne Berücksichtigung der U/Pu-Entmischungseffekte
 T_{Z3} : nur Thermodiffusion

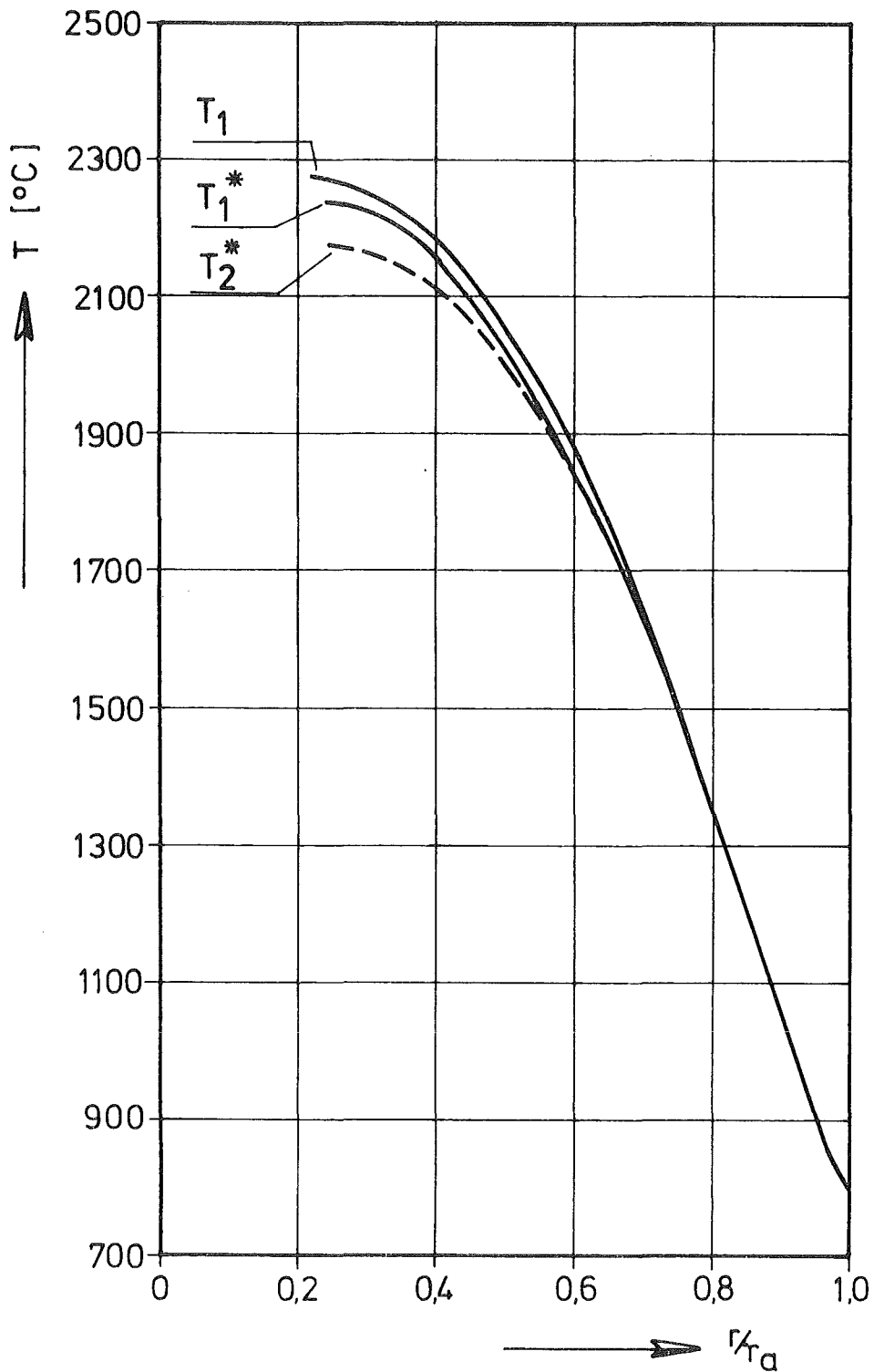


Abb. 30 Brennstofftemperatur T als Funktion des Brennstoffradius, T_1 nach $t = 500$ h und T_1^+ nach $t = 5000$ h mit beiden U/Pu-Entmischungseffekten, T_2^+ nach 5000 h ohne Berücksichtigung der U/Pu-Entmischungseffekte

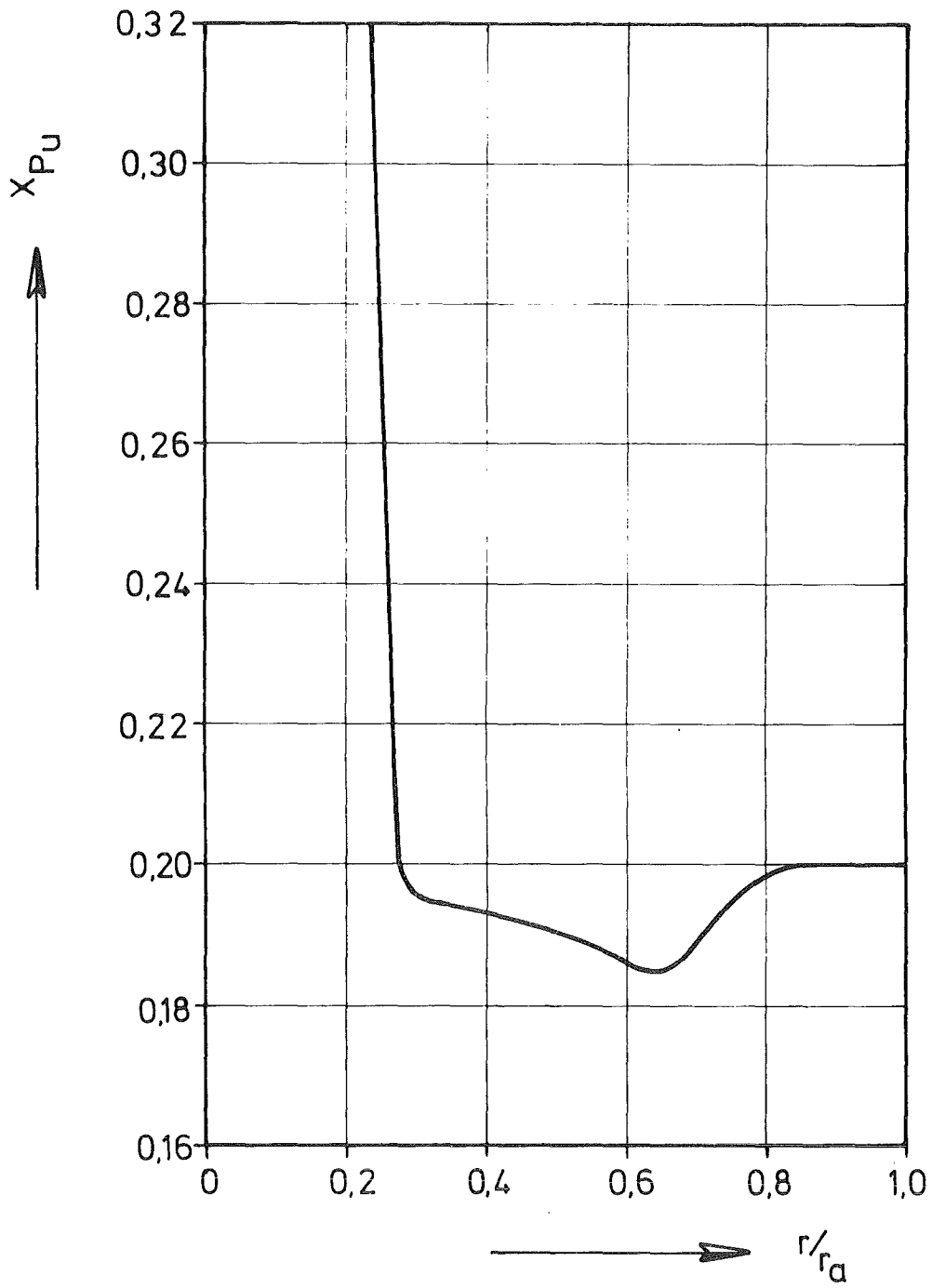


Abb. 31 Plutoniumkonzentration in Abhängigkeit vom Brennstoffradius bei DFR-350-G43-3,
U/Pu-Entmischung durch Verdampfung und Kondensation

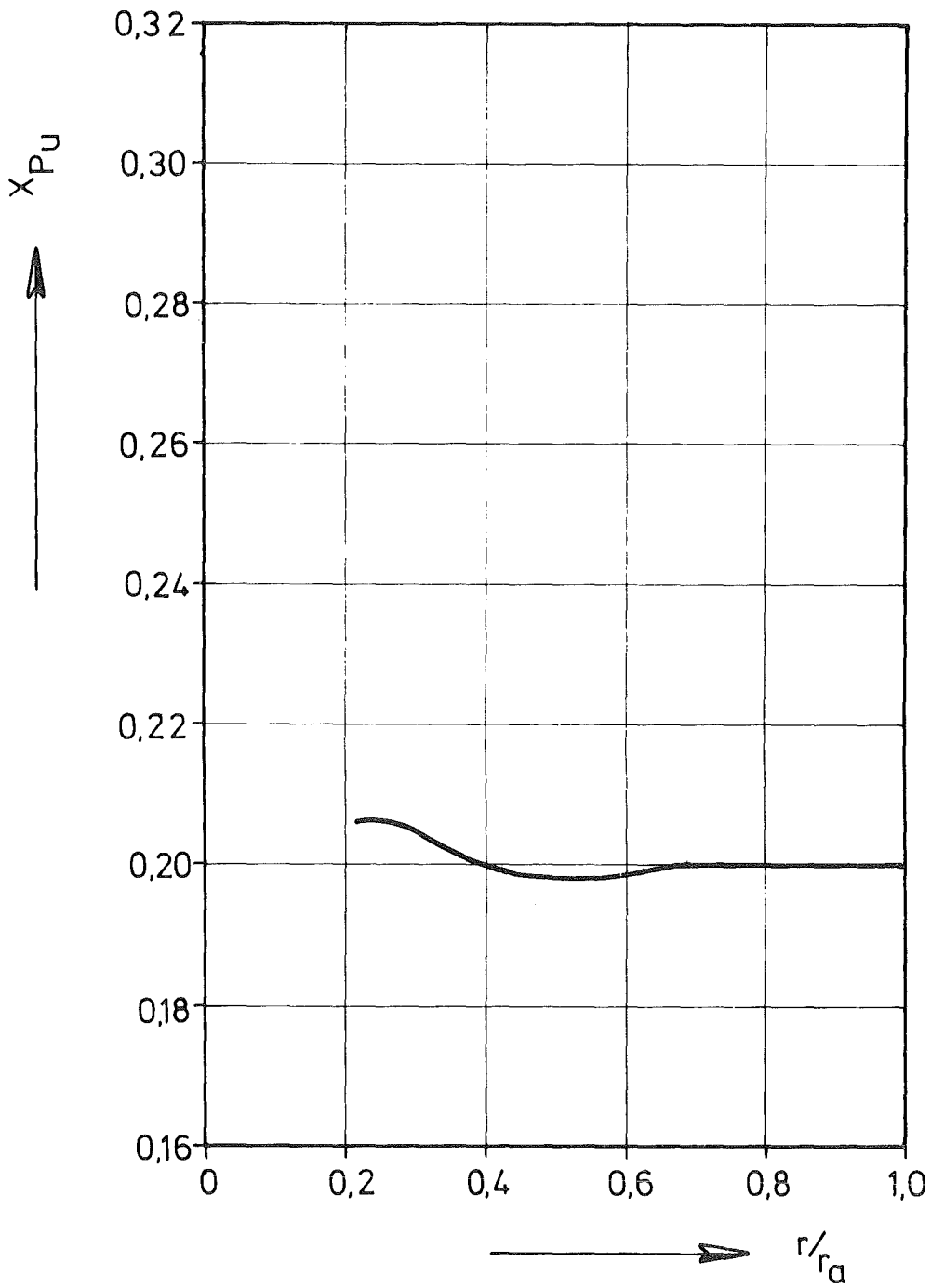


Abb. 32 Plutoniumkonzentration in Abhängigkeit vom Brennstoffradius bei DFR-350-G43-3, U/Pu-Entmischung durch Thermodiffusion

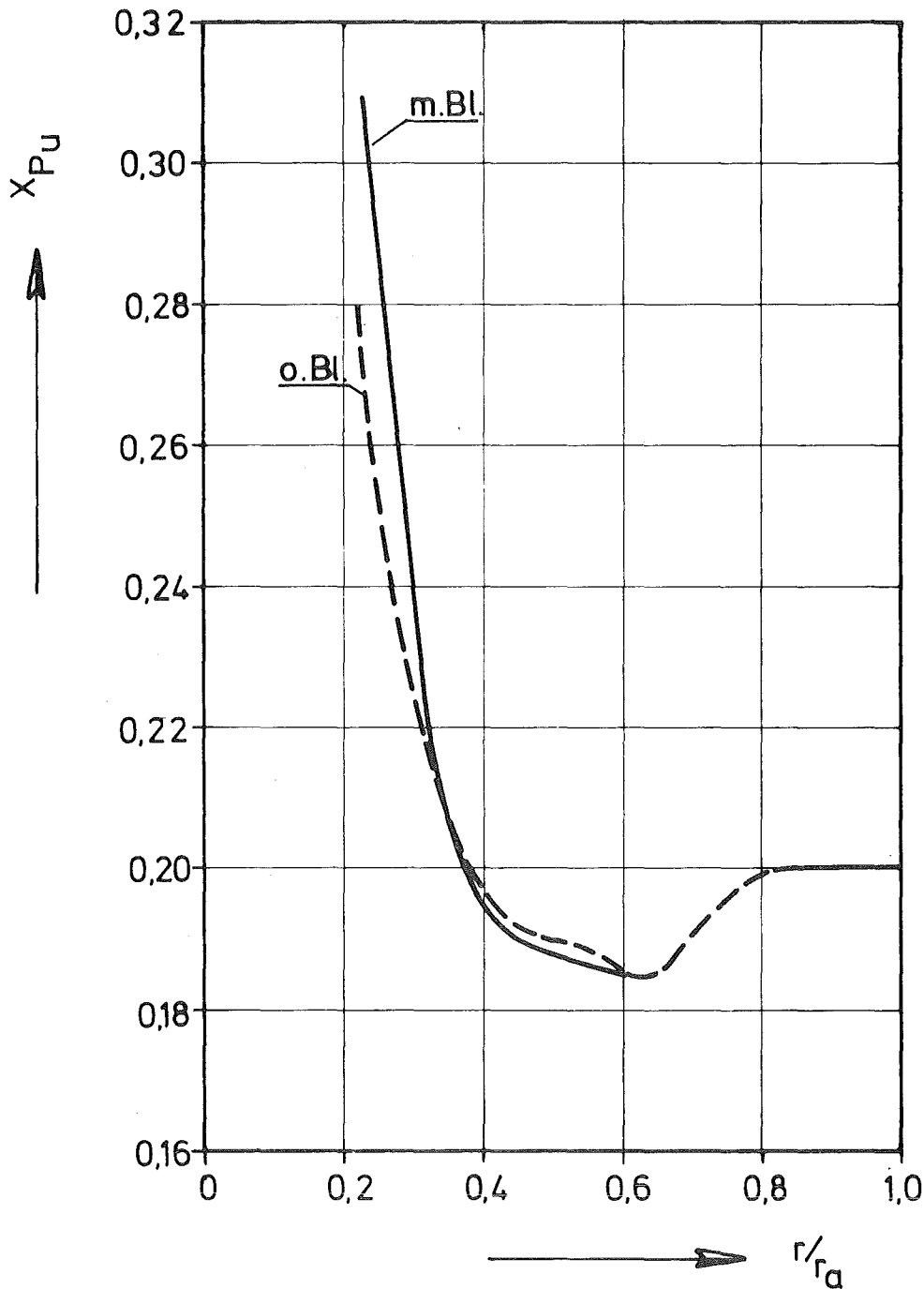


Abb. 33 Plutoniumkonzentration in Abhängigkeit vom Brennstoffradius bei DFR-350-G43-3, U/Pu-Entmischung durch Verdampfung und Kondensation und Thermodiffusion

o.Bl.	ohne Berücksichtigung	} der Spaltgasblasen- bildung und -wanderung
m.Bl.	mit Berücksichtigung	

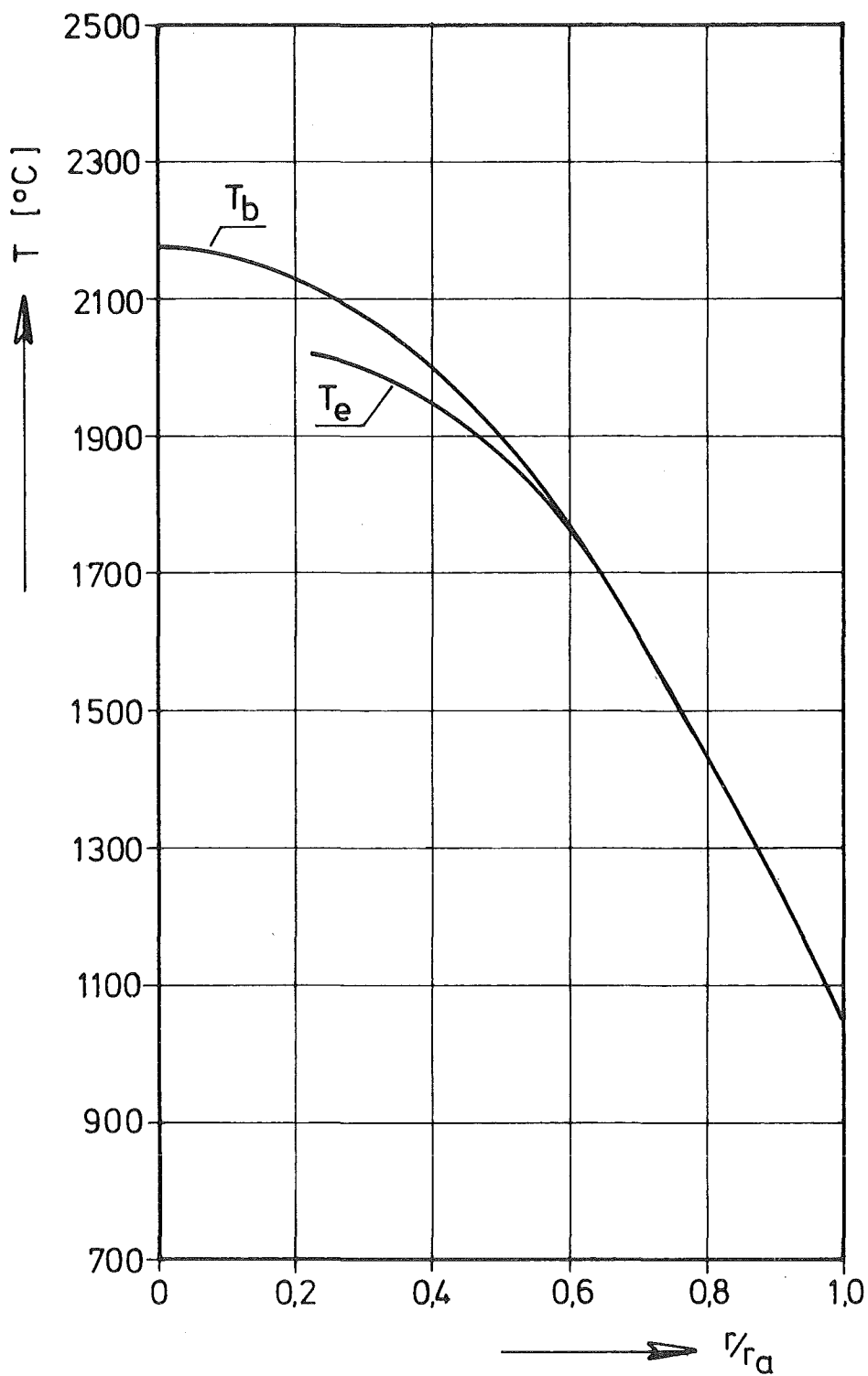


Abb. 34 Brennstofftemperatur in Abhängigkeit vom Brennstoffradius bei DFR-350-G43-3

T_b zu Beginn
 T_e am Ende) der Bestrahlung

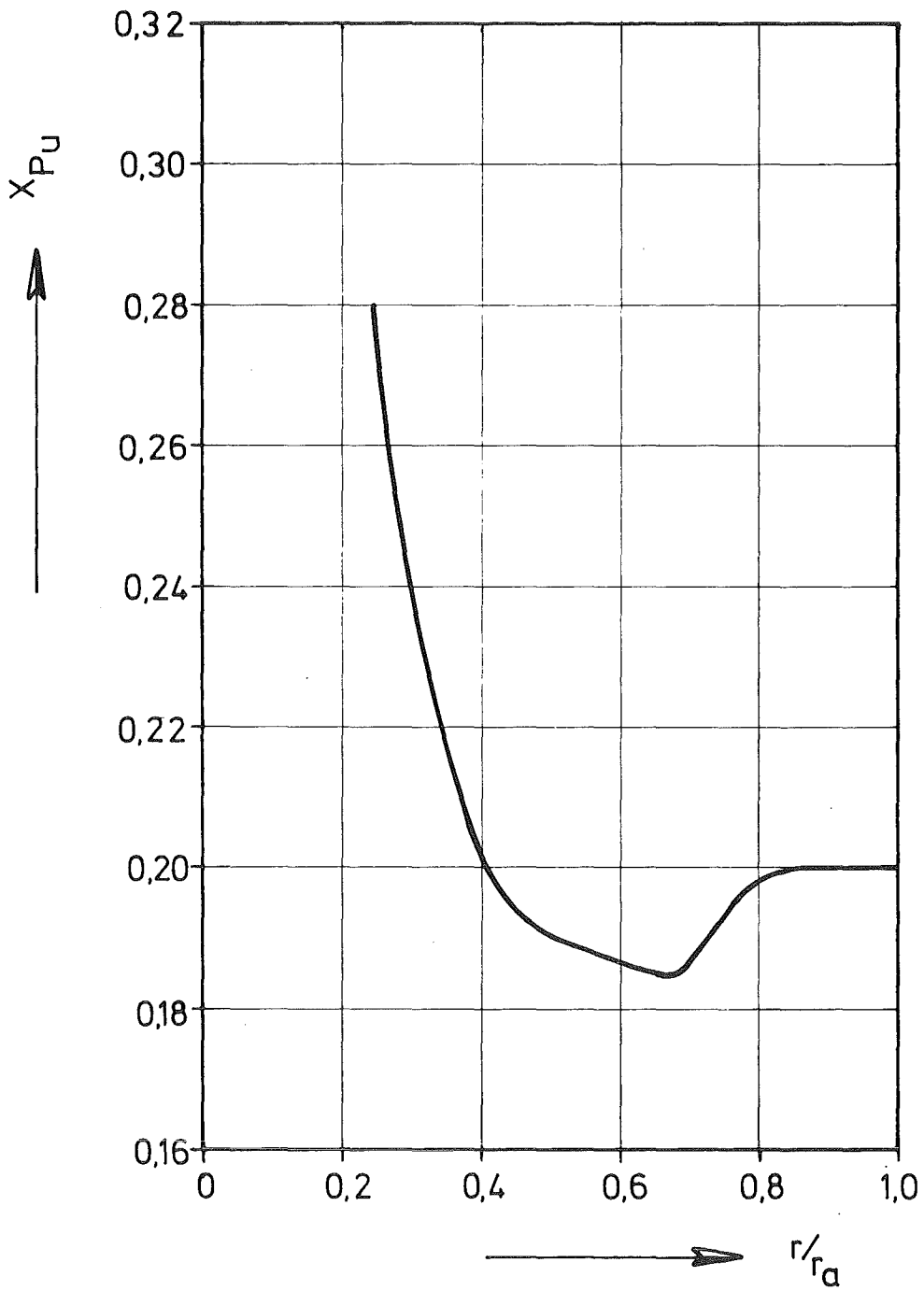


Abb. 35 Plutoniumkonzentration in Abhängigkeit vom Brennstoffradius bei DFR-350-G6-4 (entsprechend Abb.33)

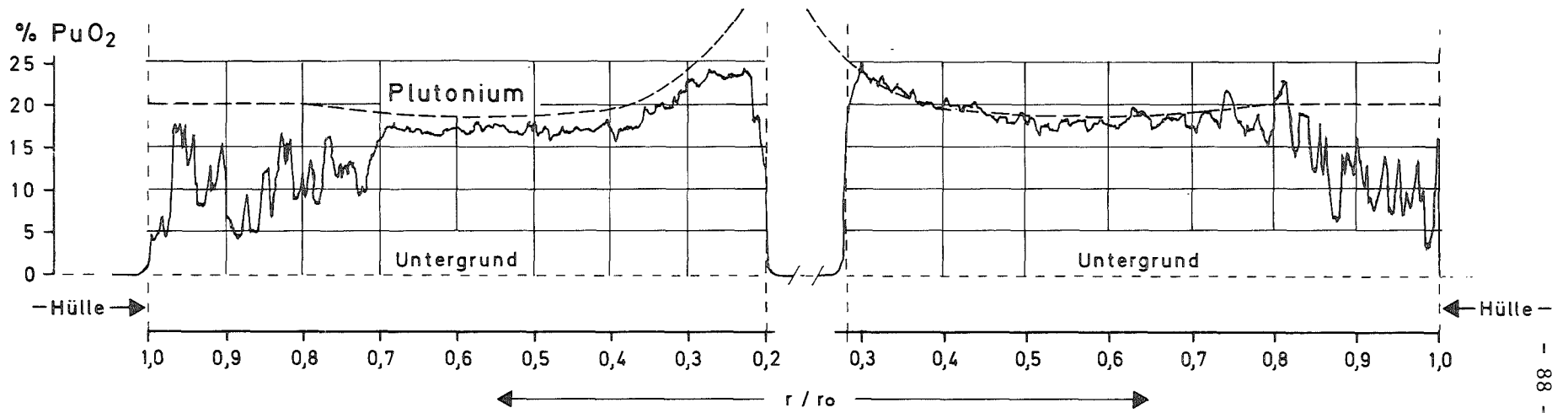


Abb. 36

Plutoniumkonzentration in Abhängigkeit vom Brennstoffradius bei DFR-350-G43-3

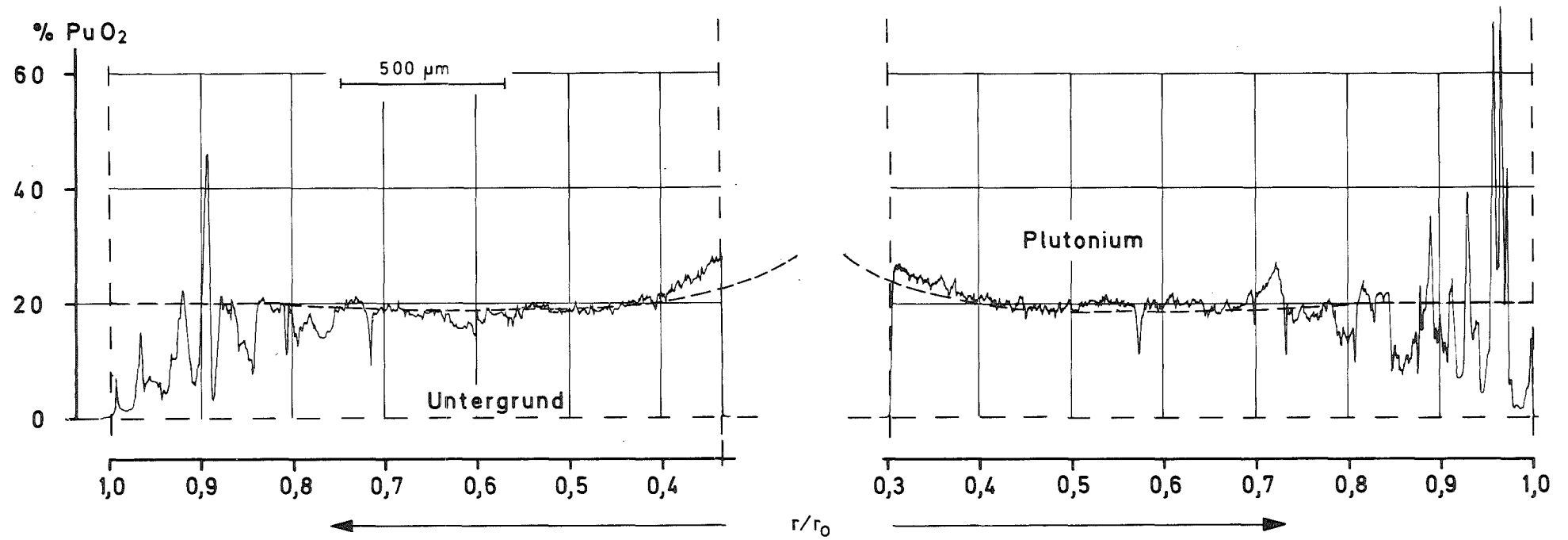


Abb. 37 Plutoniumkonzentration in Abhängigkeit vom Brennstoffradius bei DFR-350-G6-4

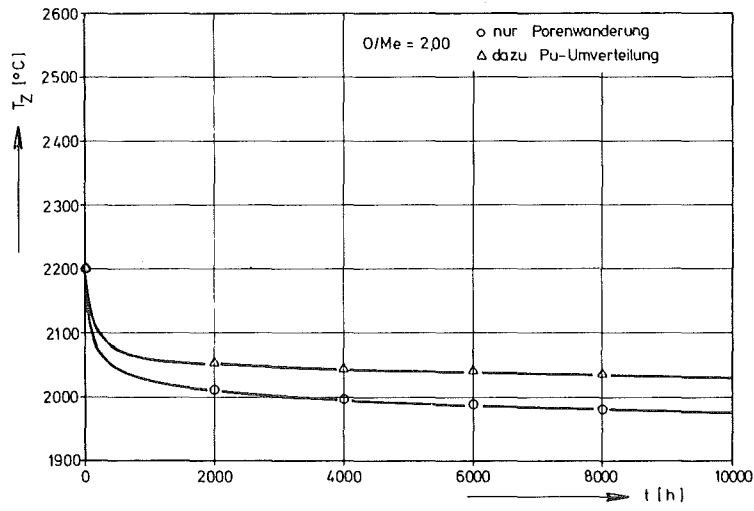


Abb. 38

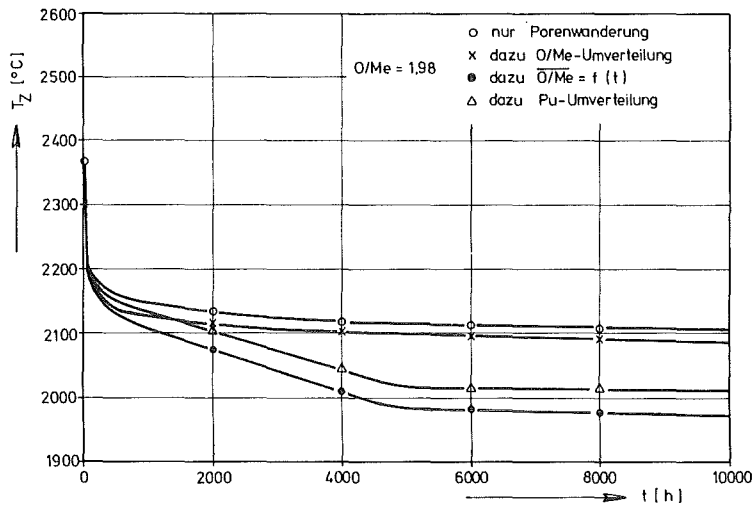


Abb. 39

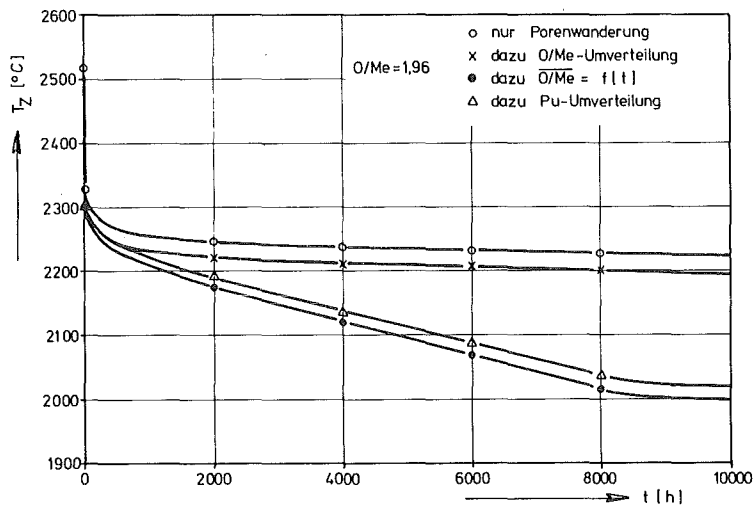


Abb. 40

Brennstoffzentraltemperatur T_Z in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit t

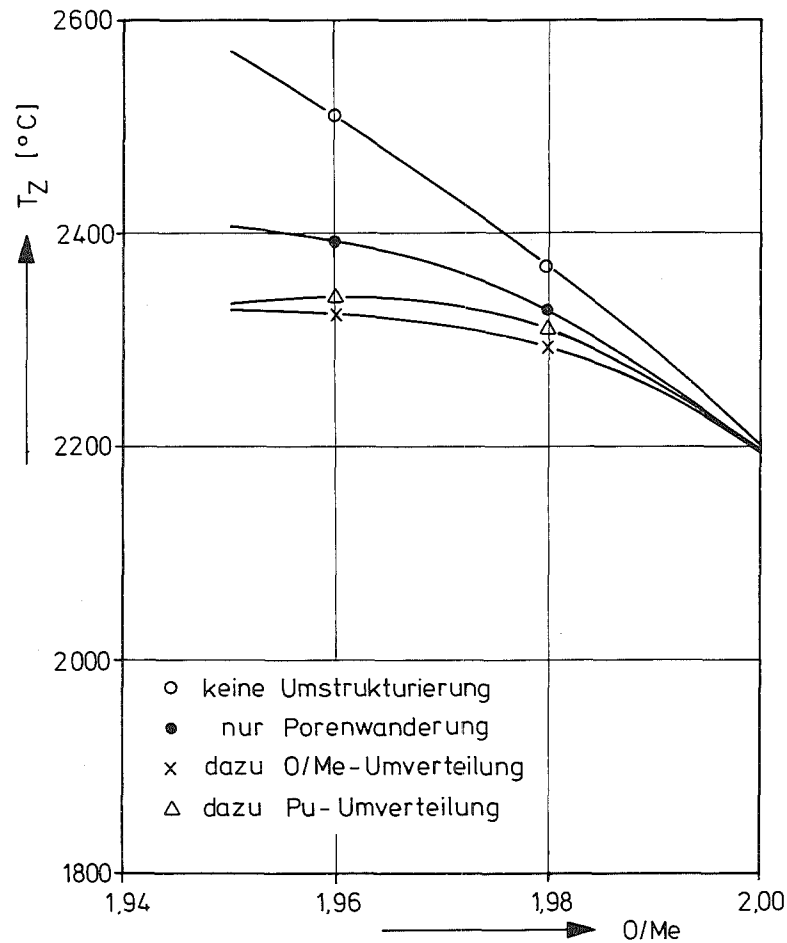


Abb. 41 Brennstoffzentraltemperatur T_Z in Abhängigkeit vom O/Me-Verhältnis nach einer Bestrahlungszeit von 10 h unter Berücksichtigung der Zentralkanalbildung durch Porenwanderung, der Sauerstoff- und der Plutonium-Umverteilung

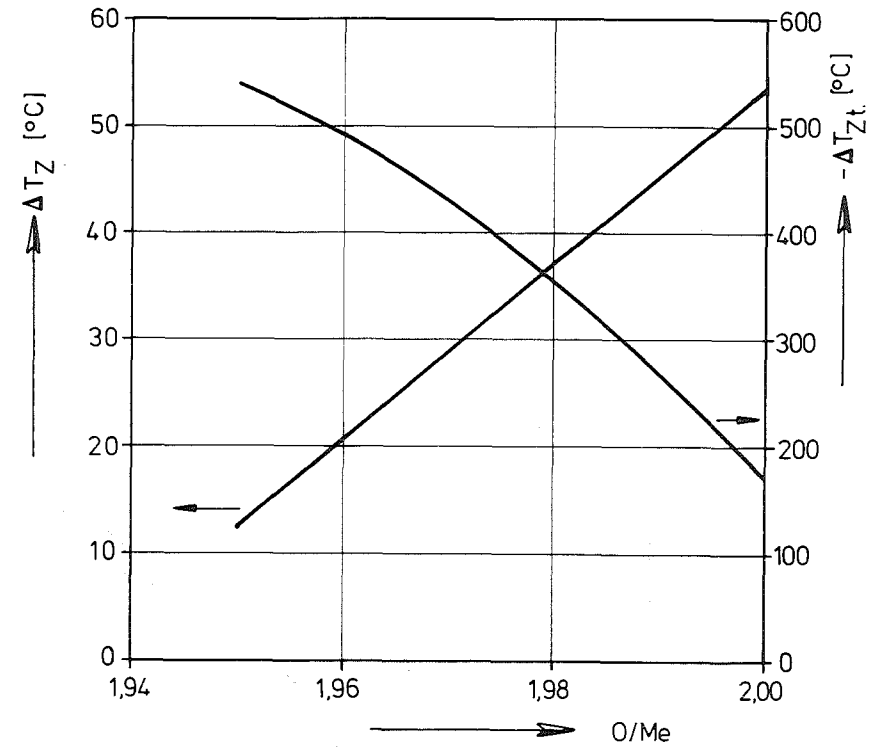


Abb. 42 Einfluß der Plutonium-Umverteilung auf die Brennstoffzentraltemperatur ΔT_Z nach einer Bestrahlungszeit von 10.000 h und gesamte Absenkung der Brennstoffzentraltemperatur $-\Delta T_{Zt}$ über die Bestrahlungszeit von 10000 h in Abhängigkeit vom O/Me-Verhältnis

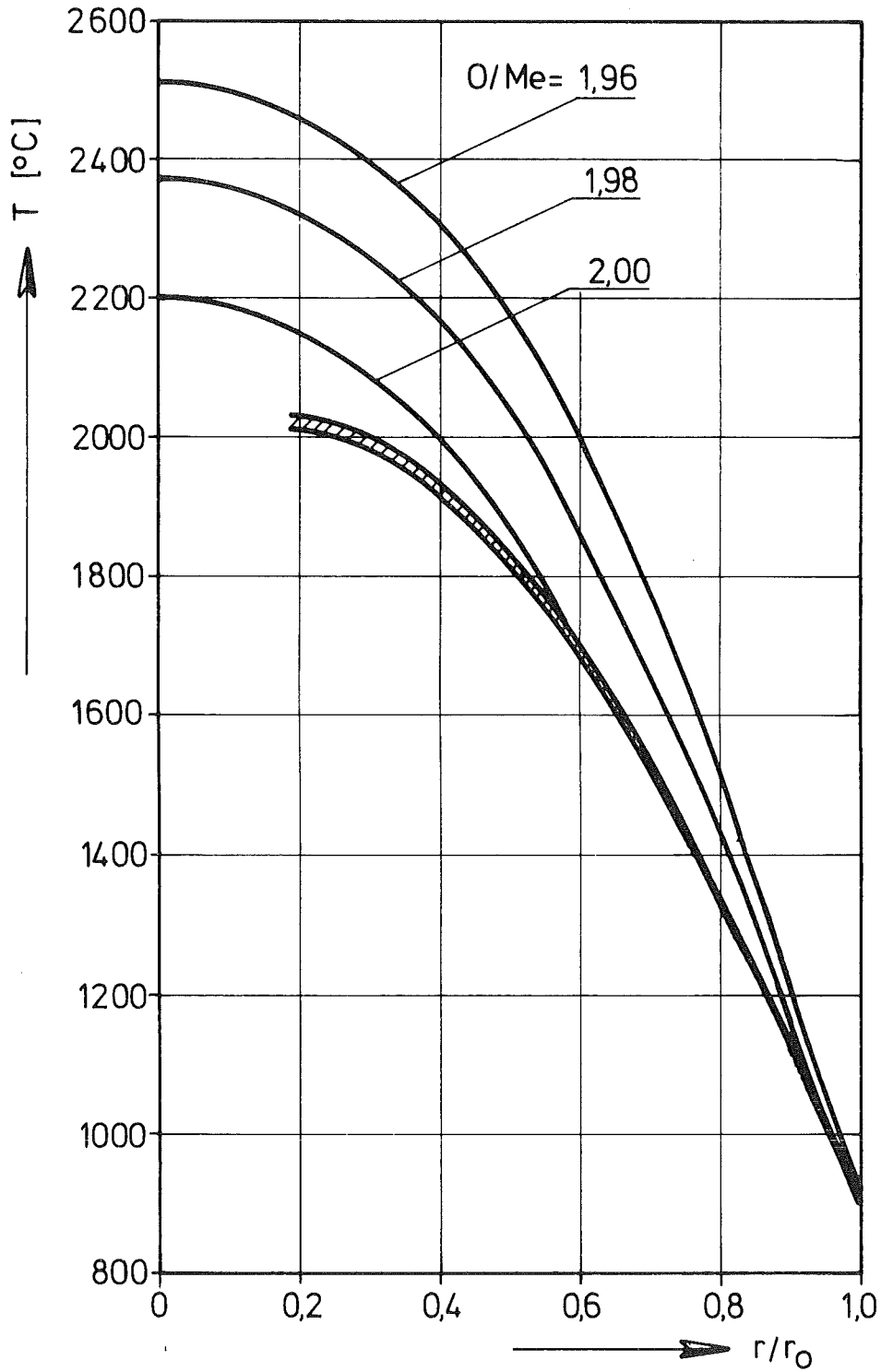


Abb. 43 Radiales Temperaturprofil zu Beginn der Bestrahlung und nach einer Bestrahlungszeit von 10.000 h für verschiedene O/Me-Verhältnisse