

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

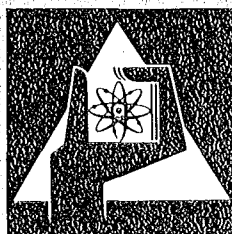
Mai 1976

KFK 2218

Institut für Material- und Festkörperforschung  
Projekt Schneller Brüter

**UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstab-Bestrahlung DFR-435.  
Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den  
bestrahlten Brennstäben**

W. Dienst, O. Götzmann, H. Kleykamp, H. Zimmermann



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

**KARLSRUHE**

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 2218

Institut für Material- und Festkörperforschung  
Projekt Schneller Brüter

$\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstab-Bestrahlung DFR-435.

Auswertung der Untersuchungsergebnisse an den bestrahlten Brennstäben

---

von

W.Dienst, O.Götzmann, H.Kleykamp, H.Zimmermann

unter Mitarbeit von

J.Burbach, G.Gausmann, H.D.Gottschalg, H.Späte

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe



Dieser Bericht beruht auf Bestrahlungsdaten und Untersuchungsergebnissen aus den Heissen Zellen, für deren Zusammenstellung und Aufbereitung bzw. Erarbeitung und Vorauswertung wir allen beteiligten Mitarbeitern von IMF und RBT danken, im besonderen den Herren W.Ernst, D.Geithoff (IMF III) und H.Enderlein, W.Hellriegel, R.Pejsa.

Als Manuskript eingereicht am 8.April 1976

## Zusammenfassung

Beim Bestrahlungsversuch DFR-435 wurden 8  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstäbe aus der Brennstabbündelbestrahlung DFR-350 übernommen und in 3 Stab-Einsätzen ("Treffoils") weiterbestrahlt. Der maximale Abbrand betrug 9,7%; bei diesem Abbrand traten Hüllrisse auf. Die Stableistung lag zwischen 275 und 390 W/cm, die Hüllinnenwandtemperatur zwischen 290 und 650°C. Die maximale schnelle Neutronenfluenz ( $E > 0,1 \text{ MeV}$ ) erreichte  $6,8 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$ .

Die Messung des im Brennstoff zurückgehaltenen Spaltgases ergab, dass die Spaltgaskonzentration während der Weiterbestrahlung abgenommen hat, möglicherweise durch break-away-Freisetzung aus den kälteren Brennstoffzonen. Die Konzentration betrug  $1-2 \cdot 10^{-3}$  Gasatom/U+Pu-Atom, je nach lokaler Stableistung.

Die Hülldurchmesservergrößerung zeigte einen mit dem Abbrand steigenden Überschuss über die Hüllschwellung, der auf plastische Hülldehnung zurückgeführt wird. Diese scheint sowohl durch Spaltgasdruck als auch durch Brennstoff-Festkörperdruck verursacht zu sein, wobei der Spaltgasdruck nur über bestrahlungsbedingtes, durch Porenbildung beschleunigtes Kriechen der Hülle wirksam werden kann. Am rissgefährdeten, heißen Brennstabende scheint der Einfluss des Festkörperdruckes zu überwiegen.

Für die Hüllinnenkorrosion wurde die maximale Angriffstiefe bei der Weiterbestrahlung von 5,7% max. Abbrand (DFR-350) bis zu 9,7% max. Abbrand vielleicht nicht erhöht, aber die Häufigkeit des Auftretens grosser Angriffstiefen schien gestiegen zu sein. Die Hüllinnenkorrosion trug beträchtlich zum Auftreten von Hüllrissen unter innerem Druck im Brennstab bei.

Es wurden Hüllrisse nach beträchtlicher Verformung am heißen Brennstabende gefunden, die wahrscheinlich lebensdauerbegrenzend waren, daneben aber auch verformungsarme Risse im mittleren Brennstoffabschnitt, die an Spannungsrisskorrosion erinnerten.

Die Elektronenstrahl-Mikrosonden-Analyse zeigte im Bereich maximaler Stableistung Na-K-Cs-U-Oxid-Phasen zwischen Brennstoff und Hülle, die sich wegen der auftretenden Hüllschäden bilden konnten und den Brennstoff auf stark unterstöchiometrischen O-Gehalt reduzierten. Dadurch wurde auch die

Pu-Verteilung verändert. Am Brennstoffende maximaler Hülltemperatur wurde gezeigt, dass die schichtförmigen Reaktionszonen zwischen Brennstoff und Hülle nur aus oxidierten Hüllmaterialkomponenten bestanden. Der Brennstoff war durch die Reaktion in diesem Bereich schwach unterstöchiometrisch. Zwischen Hülle und Brutstoff wurde eine Cs-Uranat-Plutonat-Schicht gefunden. Das Innere der Brutstofftablette war aber Cs-frei.

### Abstract

$\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$  fuel pin irradiation DFR-435.  
Evaluation of the post-irradiation examination results.

In the irradiation test DFR-435, 8  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$  fuel pins were taken over from the fuel pin bundle irradiation DFR-350 and were irradiated further on in "trefoils". The maximum burnup amounted to 9.7%; cladding failures occurred at this burnup. The specific rod power was between 275 and 390 W/cm, the cladding inside temperature between 290 and 650°C. The maximum fast neutron fluence amounted to  $6.8 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup> (E > 0.1 MeV).

The measurement of the fission gas retained in the fuel proved the fission gas concentration to have decreased during the continued irradiation. This is possibly due to break-away release from the colder fuel zones. The concentration measured was  $1-2 \times 10^{-3}$  gas atom per (U+Pu)-atom, depending on the local rod power.

The pin diameter increase showed a surplus over the cladding swelling, which grew with increasing burnup and is attributed to cladding plastic deformation. This seems to be caused both by fission gas pressure and by fuel contact pressure, the fission gas pressure becoming operative only through irradiation-induced, void-enhanced cladding creep. It seems, that at the crack-endangered, hot fuel end the influence of the fuel contact pressure was prevailing.

For the cladding inside corrosion, the maximum penetration depth perhaps did not increase during the continued irradiation from 5.7% (DFR-350) to 9.7% maximum burnup. However, the probability of large penetration depths occurring seemed to have increased. There was a considerable contribution of cladding inside corrosion to formation of cladding cracks under internal pressure in the fuel pin.

Cladding cracks with considerable deformation, probably representing endurance failures, were found at the hot fuel end. Besides, there were cracks with very low deformation in the middle fuel section suggesting stress corrosion cracking.

Electron microprobe analysis showed Na-K-Cs-U-oxide phases between fuel and cladding in the pin section of maximum rod power. Such phases could form because of the cladding failures occurring and reduced the fuel to a much hypostoichiometric oxygen content. For this reason, the Pu-distribution was also changed. At the fuel end of maximum cladding temperature the reaction layers between fuel and cladding were found to consist of oxidized cladding components only. By the reaction the fuel had become slightly hypostoichiometric in this section. A Cs-uranate-plutonate layer was found between cladding and blanket  $UO_2$ , but the interior of the blanket pellet was free of Cs.



<u>Inhaltsverzeichnis</u>	Seite
1. Bestrahlungsversuchsdaten	1
1.1 Allgemeines	3
1.2 Probenmaterial, Bestrahlungsbedingungen	3
Literatur, Abbildungen	5 - 7
2. Spaltgasfreisetzung und -rückhaltung (H.Zimmermann)	9
2.1 Brennstoff und Bestrahlungsdaten	11
2.2 Freies Spaltgas	11
2.3 Gebundenes Spaltgas	11
2.4 Diskussion	12
Literatur, Abbildung, Tabelle	13 - 16
3. <u>Bestrahlungsverhalten des Hüllwerkstoffes</u>	17
Dieser Abschnitt ist noch in Vorbereitung und wird gesondert veröffentlicht.	
4. Plastische Hülldehnung (W.Dienst)	19
4.1 Versuchsergebnisse	21
4.2 Diskussion	22
Literatur, Abbildungen, Tabelle	24 - 29
5. Hüllschäden (O.Götzmann, W.Dienst)	31
5.1 Chemischer Angriff an der Hüllinnenseite	33
5.2 Hüllrissbildung	34
5.2.1 Verteilung der Risse	34
5.2.2 Auslegungsbedingte Risse	35
5.3 Folgerungen	37
Literatur, Abbildungen	38 - 44

	Seite
6. Mikrobereichsanalyse (H.Kleykamp)	45
6.1 Einleitung	47
6.2 Uran-Plutonium-Verteilung im Brennstoff	49
6.3 Sauerstoff-Verteilung im Brennstoff	50
6.4 Brennstoff-Kühlmittel-Hüllmaterial- Reaktionen	51
6.5 Reaktionsverhalten der Brutstofftablette	52
6.6 Aufkohlung der Hülle	53
6.7 Zusammenfassung	53
Literatur, Abbildungen	54 - 74

1. Bestrahlungsversuchsdaten



## 1.1 Allgemeines

Von den  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstäben der Brennstabbündelbestrahlung DFR-350, über deren Auswertung bereits berichtet wurde /1.1, 1.2/, wurden 8 Stäbe zur Weiterbestrahlung im anschliessenden Versuch DFR-435 übernommen. Da im Versuch DFR-350 bis zu einem maximalen Abbrand von 5,7% noch keine Hüllschäden aufgetreten waren, sollten die ausgewählten Brennstäbe bis zu einem maximalen Abbrand von etwa 9,5% weiterbestrahlt werden, um einen ersten Eindruck von ihrem Verhalten und den auftretenden Problemen in der Nähe des eigentlich angestrebten Zielabbrandes für den SNR 300 zu geben. Dabei ist anzumerken, dass das Spaltgasplenum der Brennstäbe für den ursprünglichen Zielabbrand des Versuches DFR-350 ausgelegt war, so dass sich schliesslich ein sehr hoher Betriebs-Spaltgasdruck von maximal etwa 120 at (bei 9,7% max.Abbrand) ergab.

Im vorliegenden Bericht werden bereits bekannte Beobachtungen und Resultate (siehe z.B. /1.2/) nicht oder nur kurz zu Vergleichszwecken wiederholt. Im besonderen enthält der Bericht keine Beiträge über das Brennstoffgefüge. Im Vordergrund stand die Untersuchung von Vorgängen die mit der Entstehung von Hüllrissen in Verbindung gebracht werden können, ferner die Untersuchung der Auswirkung der chemischen Reaktion des Kühlmittels mit dem Brennstoff nach der Hüllrissbildung.

## 1.2 Probenmaterial, Bestrahlungsbedingungen

Die Konstruktion und die Abmessungen der Brennstäbe gehen aus Abb.1.1 hervor. Der Aussendurchmesser der Stäbe beträgt 6,00 mm, die Hüllwanddicke 0,38 mm. An den oberen Endstopfen schliesst sich zunächst der Spaltgasraum an. Eine Feder im Spaltgasraum verhindert die Verschiebung der Brennstoff-Brutstoff-Säule bei Handhabung und Transport des Brennstabes. Kurz unterhalb des oberen Endstopfens ist ein Sintermetallfilter eingesetzt, das den Austritt von Brennstoffpartikeln verhindern soll, wenn bei der zerstörenden Nachuntersuchung die freigesetzten Spaltgase entnommen werden. Auf den Spaltgasraum folgen die Brutstoffzone und die

Brennstoffzone. Der untere Endstopfen ist vom Brennstoff durch eine Tablette aus natürlichem  $UO_2$  thermisch isoliert.

Die Hüllrohre der für den Versuch DFR-435 ausgewählten Brennstäbe bestanden alle aus dem austenitischen Cr-Ni-Stahl 1.4988 (0,05% C, 16,3% Cr, 13,7% Ni, 1,4% Mo, 0,65% Nb, 0,75% V, 0,1% N). Dieser Stahl hatte im Versuch DFR-350 ein viel besseres Schwellverhalten gezeigt als der dort ebenfalls eingesetzte Stahl 1.4961.

Die für den vorlaufenden Versuch DFR-350 eingesetzten Brennstofftablets bestanden aus 20 Gew.%  $PuO_2$  und 80 Gew.%  $UO_2$ . Das Uran enthielt 86% U-235, das Plutonium 91,1% Pu-239, 8,2% Pu-240 und 0,7% Pu-241. Das Sauerstoff/Metall-Verhältnis wurde mit  $O/M = 2,00$  angegeben (Spezifikation  $O/M = 1,98 \pm 0,02 - 0,015\%$ ). Die mittlere Tablettdichte lag bei 89,4% der theoretischen Dichte, die mittlere Schmierdichte bei 80,5% TD, der Brennstoffdurchmesser bei  $5,04 \pm 0,01$  mm. In die Schmierdichte geht eine einseitige Stirnflächeneinsenkung der Brennstofftablets von 3,2 Vol.% mit ein. Die mittlere diametrale Kaltspaltbreite ergab sich zu 200  $\mu m$ .

Die Bestrahlung der Brennstäbe im Versuch DFR-435 erfolgte in 3-Stub-Einsätzen ("Treffoils"), die nach jedem DFR-Bestrahlungszyklus demonstriert wurden, um die Veränderungen an den Brennstäben auch zwischenzeitlich vor Erreichen des Zielabbrandes untersuchen zu können. Die Brennstäbe wurden jeweils einer zerstörungsfreien Prüfung unterzogen, die u.a. eine visuelle Inspektion, im besonderen im Hinblick auf Hüllrisse, und eine Vermessung der Längen- und Durchmesseränderungen beinhaltete.

Der Zielabbrand konnte mit 3DFR-Zyklen erreicht werden. Jedoch nur ein Trefoil wurde in unveränderter Zusammenstellung (der Brennstäbe G 8, G 12 und G 16) wirklich 3 Zyklen lang bestrahlt. Abb. 1.2 zeigt die für die Bestrahlungsdauer gemittelten Werte der Hüllinnenwandtemperatur und der Stabileistung sowie den Abbrand für die Brennstäbe in diesem Trefoil. In den anderen Treffoils mussten Brennstäbe wegen zwischenzeitlich aufgetretener Hüllschäden ausgewechselt werden, so dass dort der Zielabbrand bei keinem Brennstab mehr erreicht wurde. Die Brennstäbe in dem zuerst erwähnten Trefoil erlitten alle im

3. DFR-Zyklus Hüllrisse, die somit erst beim Zielabbrand entdeckt wurden. In der folgenden Zusammenstellung sind die Bezeichnung, der maximale Abbrand und ggf. die Beschädigung aller Brennstäbe im Versuch DFR-435 vermerkt:

Brennstab Nr.	max. Abbrand %	Hüllrisse
G 7	6,9	ja
G 8	9,7	ja
G 9	8,3	nein
G 12	9,7	ja
G 16	9,7	ja
G 17	6,9	nein
G 19	6,9	nein
G 24	6,9	ja

Die Hülltemperaturen und Stableistungen der Brennstäbe, die nicht bis zum Zielabbrand bestrahlt wurden, wichen nur geringfügig von der Darstellung in Abb. 1.2 ab. Ihr Abbrandprofil hat einen ähnlichen Verlauf und liegt nur um den Faktor niedriger, der sich aus dem Verhältnis der oben angegebenen Werte des maximalen Abbrandes ergibt.

Die maximale schnelle Neutronenfluenz ( $E > 0,1 \text{ MeV}$ ) erreichte nach 6,9, 8,3 und 9,7% max. Abbrand Werte von etwa 4,8, 5,8 und  $6,8 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$ . Das axiale Neutronenflussprofil zeigte etwa den gleichen relativen Verlauf wie die Stableistung in Abb. 1.2.

Detaillierte Angaben über die Auslegung der Brennstäbe und über die Bestrahlungsbedingungen sind in besonderen Berichten über die Durchführung der Versuche DFR-350 /1.3/ und DFR-435 /1.4/ enthalten.

#### Literatur

- /1.1/ D.Geithoff  
KFK 1877, Juni 1975
- /1.2/ K.Ehrlich, O.Götzmann, H.Kleykamp, L.Schäfer, B.Schulz,  
H.Zimmermann, W.Dienst  
KFK 1960, Juni 1974
- /1.3/ D.Geithoff, K.Kummerer  
KFK 1377, Mai 1972
- /1.4/ D.Geithoff, W.Ernst  
GfK, interner Bericht, Februar 1973.

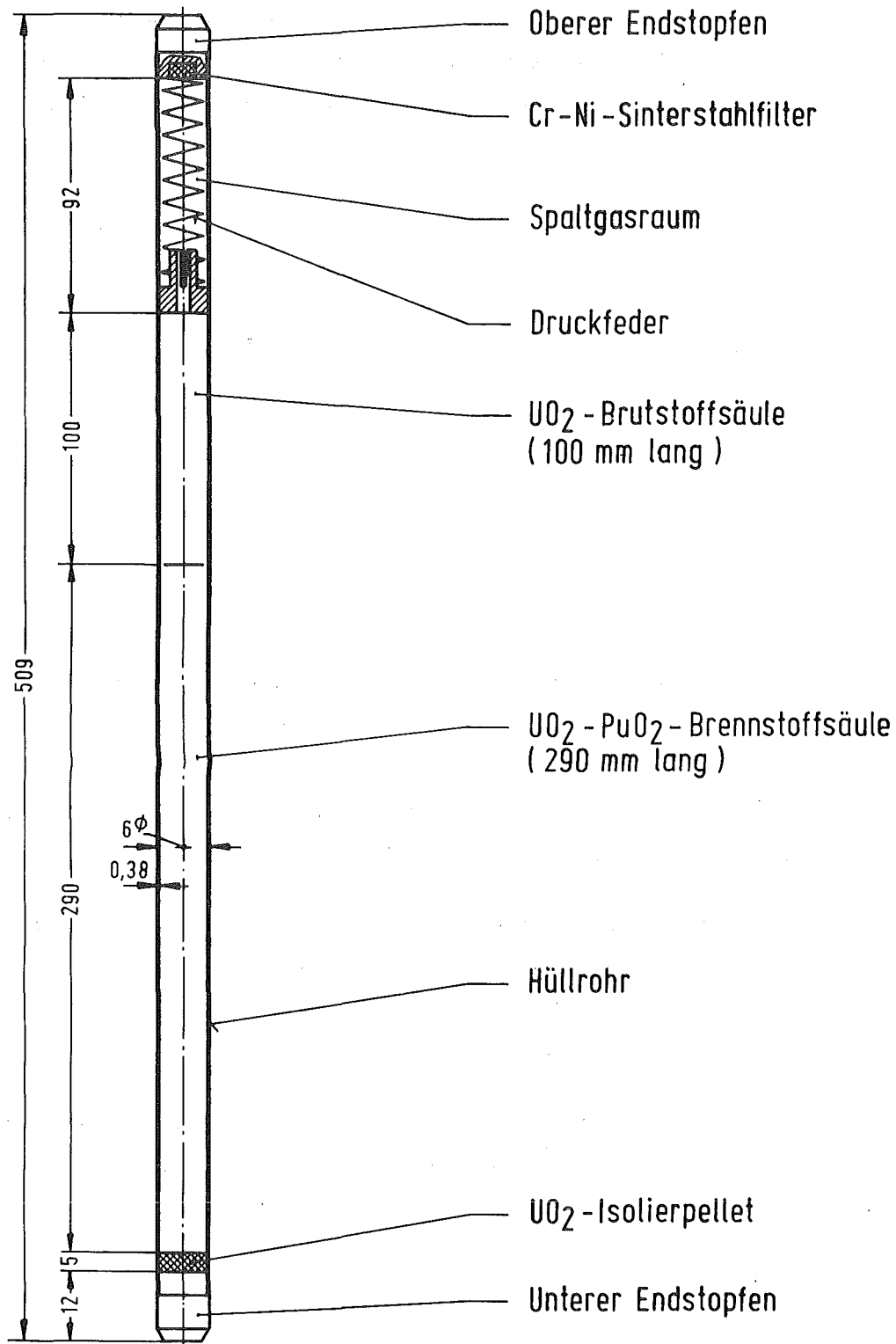


Abb. 1.1  
Brennstab für die 3-Stub-Bestrahlung DFR-435



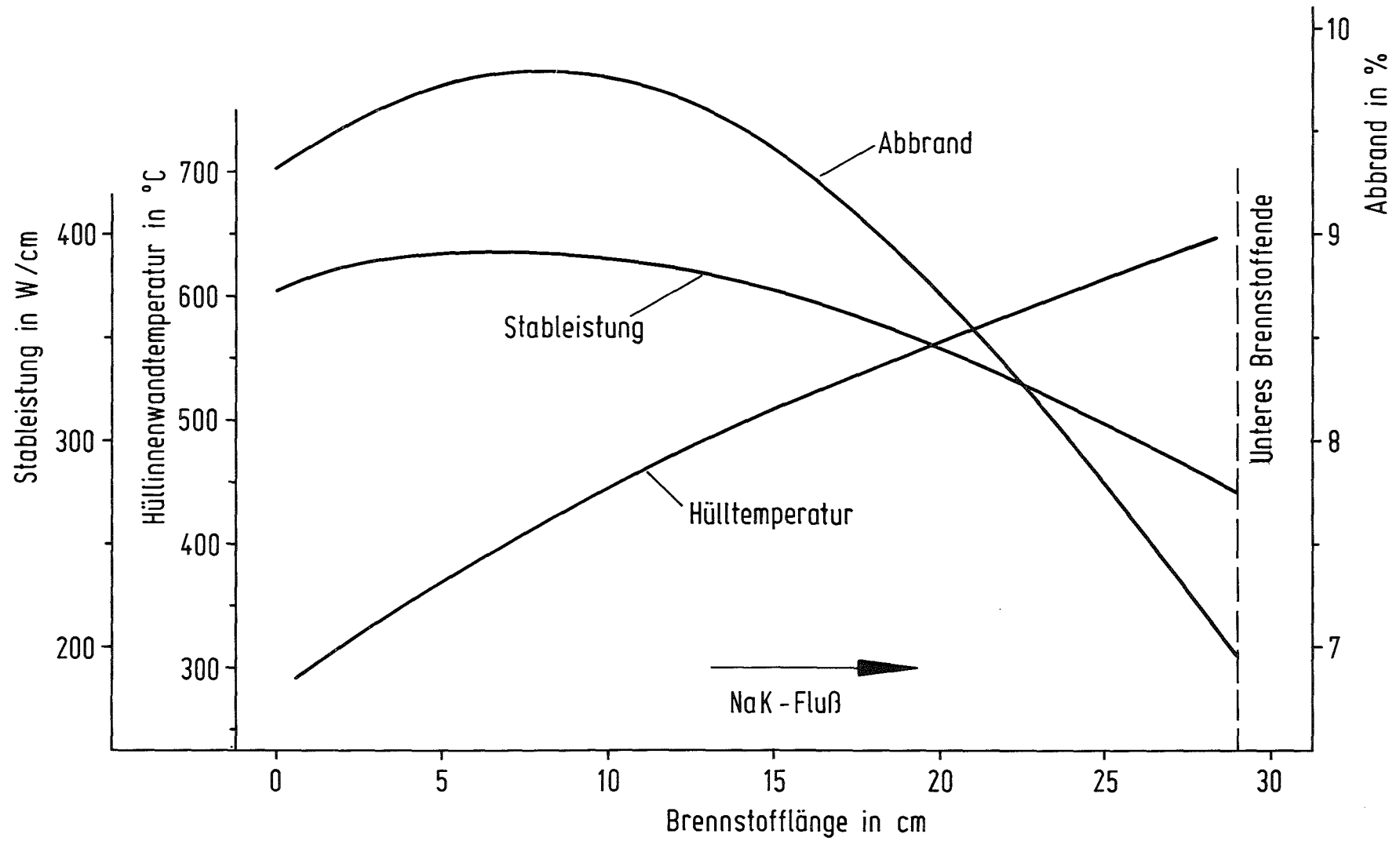


Abb. 1.2

Axialer Verlauf der Hüllinnenwandtemperatur, der Stableistung und des Abbrandes im Brennstab



2. Spaltgasfreisetzung und -rückhaltung

H. Zimmermann



## 2.1 Brennstoff und Bestrahlungsdaten

Bei der Versuchsauswertung wurden folgende Brennstoff- und Bestrahlungsdaten benutzt:

Stab	Brennstoffmenge nach /2.1/, g	mittl. Abbrand nach /2.2/, %
G 8	55,3	9,00
G 9	55,7	7,61
G 12	54,5	9,00
G 17	55,3	6,39
G 19	56,4	6,39

## 2.2 Freies Spaltgas

Das freigesetzte Spaltgas konnte nur an den unbeschädigten Stäben G 9, G 17 und G 19 bestimmt werden. Folgende Mengen wurden in den Heissen Zellen gefunden:

Stab	freies Spaltgas cm <sup>3</sup>	Xe/Kr
G 9	97,04	5,9
G 17	93,37	6,4
G 19	95,93	6,7

## 2.3 Gebundenes Spaltgas

In der Tab. 2.1 und in Abb. 2.1 sind die in verschiedenen axialen Positionen gefundenen Werte des gebundenen Spaltgases und seiner Anteile, des Poren- und des Gitterspaltgases, eingetragen. In Abb. 2.1 wurden noch die axialen Verläufe der Stableistung und der Hüllmittentemperatur gegen Bestrahlungsende nach /2.2/ eingezeichnet. Die Konzentration des gebundenen Spaltgases liegt an den unteren Brennstabenden (niedrige Stableistung) bei ca.  $2 \cdot 10^{-3}$  Gasatomen pro U- und Pu-Atom. Sie sinkt dann mit steigender Stableistung auf Werte um  $1 \cdot 10^{-3}$  Gasatome/Metallatom.

## 2.4 Diskussion

Die Mengen des freigesetzten und des gebundenen Spaltgases gestatten die Aufstellung einer Spaltgasbilanz für die unbeschädigten Stäbe G 9, G 17 und G 19. Die über die Brennstoffsäulenlängen aller untersuchten Stäbe gemittelte Konzentration des gebundenen Spaltgases beträgt ca.  $1,2 \cdot 10^{-3}$  Gasatome/Metallatom. Sie gilt im einzelnen auch für die Stäbe G 9 und G 19. Die Konzentration des Stabes G 17 liegt etwas höher. Sie wird zu  $1,4 \cdot 10^{-3}$  Gasatome/Metallatom abgeschätzt. Die Konzentration des gebundenen Spaltgases und die freigesetzten Mengen sowie die Summen beider Mengen sind in der Tab. 2.2 aufgeführt. Mit den entstandenen Spaltgasmengen und den Brennstoffgewichten und Abbränden des Abschnittes 2.1 wurde die Zahl der pro Spaltung entstandenen Spaltgasatome berechnet. Sie ist ebenfalls in der Tab. 2.2 aufgeführt. Die für die drei Brennstäbe erhaltenen Werte liegen ca. 20% über den üblicherweise in der Literatur angegebenen Werten (0,25-0,26). Ursachen dieser Diskrepanz können sein: zu niedrig berechneter Abbrand und/oder Fehler bei den Spaltgasbestimmungen. Die gute Übereinstimmung zwischen experimentell gefundenen und berechneten Spaltgasmengen bei thermischen Bestrahlungen lässt jedoch vermuten, dass die Fehler bei den Spaltgasbestimmungen relativ klein sind und nicht allein für die Differenz verantwortlich sein können. Die Hauptursache der Differenz ist also vermutlich in den benutzten Abbrandwerten zu suchen, unter der Voraussetzung, dass die Spaltgasausbeuten von 0,25-0,26 Gasatomen pro Spaltung richtig sind.

Beim Vergleich der Konzentrationen der gebundenen Spaltgase der DFR-435-Stäbe mit den der DFR-350-Stäbe fällt auf, dass die Konzentration während der Weiterbestrahlung abgenommen hat. Ursache hierfür könnte eine break-away-Freisetzung aus den kälteren Brennstoffzonen sein, wie sie auch bei anderen Experimenten beobachtet wurde /2.3/. Ähnlich niedrige Konzentrationen des gebundenen Spaltgases wurden gefunden bei den DFR-304-Brennstäben mit niedrigerem Abbrand und höherer Stableistung sowie bei den Stäben Mol 8 B 1 und B 2 mit vergleichbaren Bestrahlungsbedingungen.

Literatur

- /2.1/ D.Geithoff, K.Kummerer  
KFK 1377, Mai 1972
- /2.2/ D.Geithoff, W.Ernst  
GfK, interner Bericht, Februar 1973
- /2.3/ H.Zimmermann  
KFK 2057, Oktober 1974

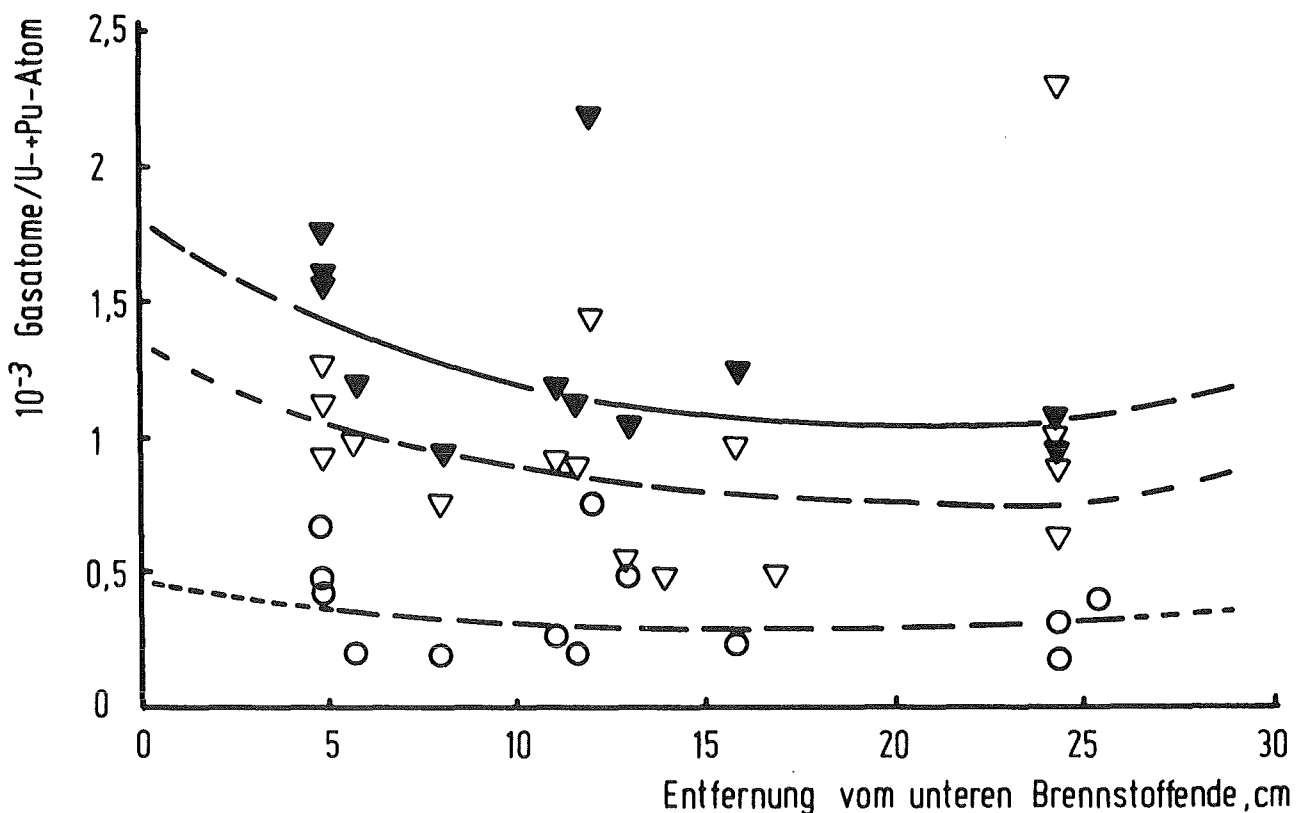
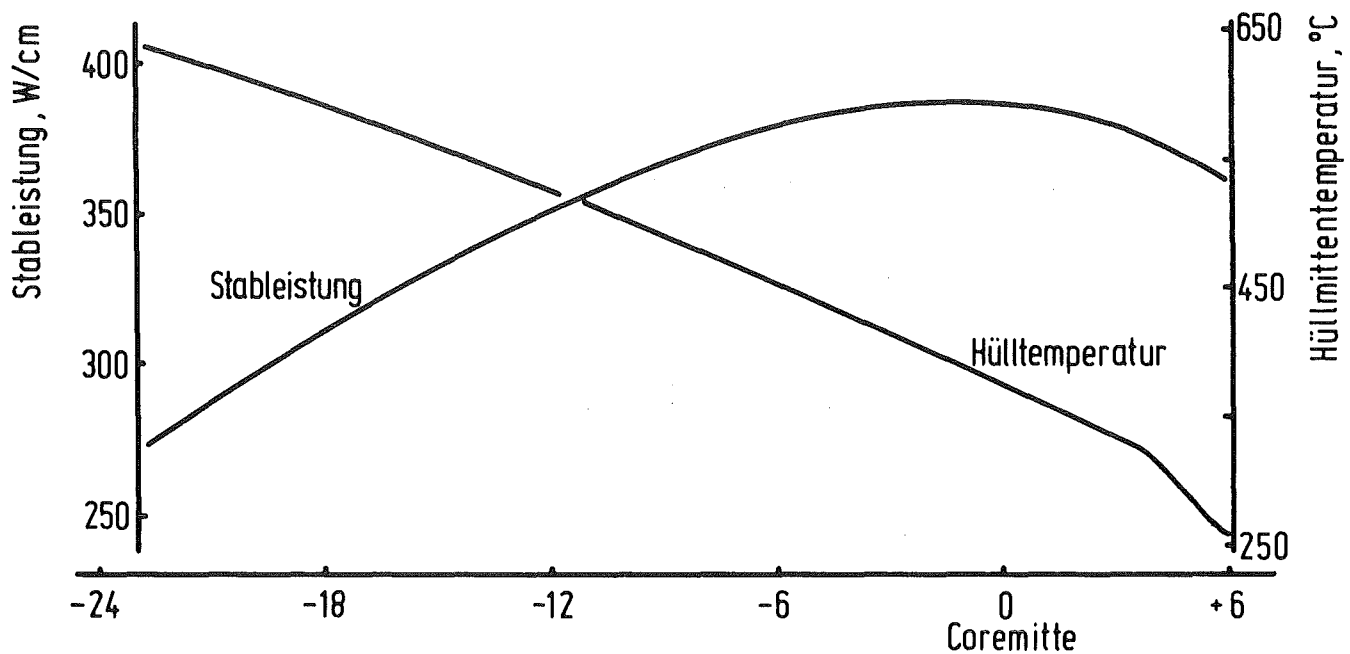


Abb. 2.1: Verteilung des gebundenen Spaltgases in den DFR-435-Stäben

- Gitterspaltgas G,
- ▽ Porenspaltgas P,
- ▼ gebundenes Spaltgas P+G



Tab. 2.1: Gebundenes Spaltgas der DFR-435-Brennstäbe

Stab	Position 1)	Poren - Spaltgas P			Gitter - Spaltgas G			P + G		
		cm <sup>3</sup> g Brennstoff	Gasatome Metallatom	Xe Kr	cm <sup>3</sup> g Brennstoff	Gasatome Metallatom	Xe Kr	cm <sup>3</sup> g Brennstoff	Gasatome Metallatom	Xe Kr
G 8	26,0	0,0746	$8,92 \cdot 10^{-4}$	6,0	0,0140	$1,68 \cdot 10^{-4}$	6,5	0,0836	$1,06 \cdot 10^{-3}$	6,1
	13,6	0,1195	$1,43 \cdot 10^{-3}$	5,6	0,0624	$7,46 \cdot 10^{-4}$	6,8	0,1819	$2,18 \cdot 10^{-3}$	6,0
	6,5	0,0770	$9,21 \cdot 10^{-4}$	5,7	0,0557	$6,66 \cdot 10^{-4}$	5,9	0,1327	$1,59 \cdot 10^{-3}$	5,8
G 9	27,1	-	-	-	0,0335	$4,01 \cdot 10^{-4}$	9,3	-	-	-
	18,5	0,0413	$4,94 \cdot 10^{-4}$	6,5	-	-	-	-	-	-
	15,6	0,0407	$4,86 \cdot 10^{-4}$	6,4	-	-	-	-	-	-
	12,7	0,0769	$9,20 \cdot 10^{-4}$	6,3	0,0219	$2,62 \cdot 10^{-4}$	9,5	0,0988	$1,18 \cdot 10^{-3}$	7,0
	9,8	0,0632	$7,56 \cdot 10^{-4}$	4,6	0,0157	$1,88 \cdot 10^{-4}$	13,0	0,0789	$9,44 \cdot 10^{-4}$	6,3
G 12	26,0	0,0521	$6,24 \cdot 10^{-4}$	5,6	0,0261	$3,12 \cdot 10^{-4}$	6,3	0,0783	$9,36 \cdot 10^{-4}$	5,8
	14,5	0,0436	$5,21 \cdot 10^{-4}$	5,8	0,0430	$5,14 \cdot 10^{-4}$	6,4	0,0865	$1,04 \cdot 10^{-3}$	6,1
	7,4	0,0810	$9,69 \cdot 10^{-4}$	6,1	0,0173	$2,07 \cdot 10^{-4}$	7,0	0,0983	$1,18 \cdot 10^{-3}$	6,3
G 17	26,0	0,1910	$2,28 \cdot 10^{-3}$	6,2	-	-	-	-	-	-
	17,5	0,0805	$9,63 \cdot 10^{-4}$	4,4	0,0224	$2,24 \cdot 10^{-4}$	14,0	0,1029	$1,23 \cdot 10^{-3}$	6,5
	6,5	0,1054	$1,26 \cdot 10^{-3}$	4,7	0,0407	$4,87 \cdot 10^{-4}$	13,7	0,1462	$1,75 \cdot 10^{-3}$	7,2
G 19	26,0	0,0820	$9,80 \cdot 10^{-4}$	5,8	-	-	-	-	-	-
	13,2	0,0747	$8,94 \cdot 10^{-4}$	5,8	0,0180	$2,15 \cdot 10^{-4}$	13,5	0,0927	$1,11 \cdot 10^{-3}$	7,3
	6,5	0,0927	$1,11 \cdot 10^{-3}$	5,4	0,0368	$4,40 \cdot 10^{-4}$	13,3	0,1295	$1,55 \cdot 10^{-3}$	7,6

1) Entfernung vom unteren Brennstabende

Tab.2.2: Spaltgasbilanz der DFR-435-Brennstäbe

Stab	Freies Spaltgas		Gebund. Spaltgas		Entstandenes Spaltgas cm <sup>3</sup>	<u>Gasatome</u> Spaltung
	cm <sup>3</sup>	%	<u>Gasatome</u> Metallatom	cm <sup>3</sup>		
G 9	97,04	94,6	$1,2 \cdot 10^{-3}$	5,55	102,59	0,289
G 17	93,37	93,5	$1,4 \cdot 10^{-3}$	6,48	99,85	0,338
G 19	95,93	94,4	$1,2 \cdot 10^{-3}$	5,66	101,59	0,337

### 3. Bestrahlungsverhalten des Hüllwerkstoffes

Dieser Abschnitt ist noch in Vorbereitung  
und wird gesondert veröffentlicht.



4. Plastische Hülldehnung

W.Dienst



#### 4.1 Versuchsergebnisse

In früheren Berichten wurde bereits darauf hingewiesen, dass im DFR bestrahlte  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstäbe am unteren Brennstoffende Hülldurchmesser-Vergrösserungen aufwiesen, die nicht durch eine Hüllschwellung aufgrund der Porenbildung im schnellen Neutronenfluss verursacht waren /4.1, 4.2/. Es musste sich demnach um eine plastische Hülldehnung handeln. Inzwischen hat sich ergeben, dass bei hohen Abbränden immer ein deutlicher Überschuss der gesamten Hüllaufweitung über die Hüllschwellung gemessen wird, der sich über einen grossen Teil der Brennstofflänge erstreckt /4.3/.

Zur integralen Beschreibung dieses Überschusses wurde die folgende Methode gewählt: Es wurde angenommen, dass die Hüllschwellung isotrop ist und sich auf den Brennstoffabschnitt des Brennstabes beschränkt, und dass die gemessene Brennstablängenänderung nur auf dieser Hüllschwellung beruht. Dann ist die (auf die Brennstofflänge bezogene) prozentuale Längenänderung  $\delta L$  gleich der mittleren linearen Hüllschwellung über dem Brennstoffabschnitt. Wenn die über dem Brennstoffabschnitt gemessene mittlere prozentuale Hülldurchmesservergrösserung  $\overline{\delta D}$  grösser ist als  $\delta L$ , kann dann der Schluss gezogen werden, dass ein Anteil plastischer Hülldehnung vorliegt. Das gilt auch und erst recht, wenn zur Brennstablängenvergrösserung noch eine Hüllschwellung ausserhalb des Brennstoffabschnittes oder eine plastische Dehnung der Hülle beitragen sollte.

Es wurde bereits gezeigt, dass das Verhältnis  $\overline{\delta D}/\delta L$  nach Bestrahlungen bis zu hohem Abbrand tatsächlich viel grösser als 1 war /4.4/. Die Versuchsgruppen DFR-350 und DFR-435 bieten nun eine Folge von verschiedenen Abbrandstufen für Brennstäbe gleicher Auslegung bei etwa gleichen Bestrahlungsbedingungen. Dadurch kann auch die Abbrandabhängigkeit von  $\overline{\delta D}/\delta L$  untersucht werden. Die Messwerte für  $\delta D$  und  $\delta L$  wurden aus Berichten über die Nachbestrahlungsuntersuchungen zu DFR-350 und DFR-435 entnommen /4.5, 4.6/. Die ermittelten  $\overline{\delta D}$ - und  $\delta L$ -Werte sind in Tab. 4.1 zusammengestellt. In Abb. 4.1 ist  $\overline{\delta D}/\delta L$  für die untersuchten Brennstäbe über dem Abbrand aufgetragen. Zusätzlich sind die Ergebnisse des sehr ähnlichen 3-Stab-Einsatzes DFR-304 eingetragen.

Das Diagramm zeigt, dass oberhalb 4% Abbrand eine plastische Hülldehnung auftrat ( $\overline{\delta D}/\delta L > 1$ ), und dass die plastische Hülldehnung schneller zunahm als die Hüllschwellung ( $\overline{\delta D}/\delta L$  steigt dauernd). Letzteres besagt, dass kein ganz einfacher Zusammenhang zwischen plastischer Hülldehnung und Hüllschwellung besteht. Diese Feststellung kann durch einen Vergleich mit anderen Versuchsgruppen bestätigt werden. Zu diesem Zweck enthält das  $\overline{\delta D}/\delta L$ -Diagramm in Abb. 4.1 die entsprechenden Ergebnisse der französischen DFR 409-Bestrahlung /4.7/ und einer (eigenen) Bestrahlung von  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstäben im Rapsodie-Reaktor. Es zeigt sich, dass die Abbrandschwelle, oberhalb deren  $\overline{\delta D}/\delta L$  deutlich grösser als 1 wird, und damit der Beginn beträchtlicher plastischer Hülldehnung für diese Versuchsgruppen viel höher liegt. Das gilt dann auch für die entsprechende Neutronendosis-Schwelle, weil das Neutronendosis/Abbrand-Verhältnis aller Versuchsgruppen ziemlich übereinstimmte. Für die Hüllschwellung ist dagegen für alle Versuchsgruppen eine ähnliche Abhängigkeit von der Neutronendosis zu erwarten.

#### 4.2 Diskussion

Damit erscheint bestätigt, dass es sich bei dem Überschuss der Hüll-durchmesserergrößerung über die Hüllschwellung um eine plastische Hülldehnung handelt, die nicht in erster Linie von der Hüllneutronendosis, sondern vom Druckaufbau an der Hüllinnenwand abhängt. Dieser zeigt bei verschiedener Auslegung der Brennstäbe auch unterschiedliche Abhängigkeit vom Abbrand. Es kann sich dabei sowohl um den Spaltgasdruck handeln, dessen Anstieg vor allem von der relativen Grösse des Spaltgasplenums abhängt, als auch um den Brennstoff-Festkörperdruck, der vom Brennstoff/Hülle-Spalt, von der Brennstoffporosität und vom O/M-Verhältnis im Brennstoff abhängen könnte.

Die hier erwähnten Ergebnisse deuten darauf hin, dass beide Druckbeiträge für die plastische Hülldehnung von Bedeutung sind. Die in Abb. 4.1 gezeigten Unterschiede im  $\overline{\delta D}/\delta L$ -Verlauf scheinen mit unterschiedlichen Volumenanteilen des Spaltgasplenums in den Brennstäben zu korrespondieren. Der Beginn der plastischen Hülldehnung scheint etwa übereinstimmend bei 6-8 MPa Spaltgasdruck gelegen zu haben, der  $\overline{\delta D}/\delta L$ -Höchst-



wert  $\approx 2,5$  wurde (nach verschiedenen Abbränden) bei jeweils etwa 12 MPa erreicht. Andererseits trat bei der erwähnten französischen DFR-Bestrahlung auch nach Ablassen des Spaltgases aus einem Brennstab eine weitere plastische Hülldehnung unter Bestrahlung auf /4.7/, die nur durch Brennstoffdruck verursacht worden sein kann.

Zum vermuteten Einfluss des Spaltgasdruckes auf die plastische Hülldehnung ist zu vermerken, dass er mit den bisher vorliegenden Ansätzen für das bestrahlungsbedingte Hüllkriechen nicht ausreichen würde, die gemessenen plastischen Hülldehnungen zu bewirken. Das hat sich aus eigenen Brennstabmodellrechnungen ergeben und wurde auch von anderen Autoren bestätigt /4.7, 4.8/. Der Spaltgasdruck kann nur beim Auftreten eines durch Porenbildung stark beschleunigten ("void-enhanced") Bestrahlungskriechens der Hülle hinreichend wirksam sein. In diesem Fall spricht aber die Bildung verformungsbedingter Hüllrisse (s. Abschnitt 5.2) am heissen Brennstoffende von im DFR bestrahlten Brennstäben für einen entscheidenden Einfluss des Brennstoffdruckes, mindestens im rissanfälligen Bereich. Denn das Bestrahlungskriechen der Hülle sollte nach der zur Zeit vorherrschenden Meinung nicht zur Rissbildung führen.

So ergibt sich nach dem derzeitigen Kenntnisstand der folgende Eindruck: Zu radialen plastischen Dehnungen der Brennstabhülle scheinen sowohl der Spaltgasdruck als auch der Brennstoff-Festkörperdruck beizutragen. Dabei scheint der Spaltgasdruck über einem grösseren Teil des Brennstoffabschnittes im Brennstab wirksam zu sein, wo seine Wirkung auf einem durch Porenbildung beschleunigten Bestrahlungskriechen der Hülle beruht. Möglicherweise kann dort auch eine Kombination von Spaltgas- und Brennstoffdruck vorliegen. Zum Beispiel könnte die grosse Anzahl gleichmässig verteilter, relativ kleiner Spaltgasblasen, die an Brennstoffgefügebildern der beschädigten DFR-435-Brennstäbe nach hohem Abbrand ziemlich regelmässig beobachtet wurden (Abb.4.2), für eine Kompensation des entfallenen Spaltgasdruckes durch eine schnelle Spaltgas-schwellung mit entsprechendem Schwelldruck des Brennstoffes sprechen.

Gerade in besonders gefährdeten Brennstababschnitten, wie hier am heissen Brennstoffende, scheint jedoch der Festkörperdruck auf die Hüllinnenseite die entscheidende Rolle zu spielen. Er verursacht dort

eine plastische Hülldehnung nach einem Versetzungsmechanismus, der zur Rissbildung führen kann. Diese Situation kann lokal eng begrenzt auftreten. Das wird durch Abb. 4.3 demonstriert, die die starke Hülldehnung am heissen, unteren Brennstoffende deutlich abgesetzt von dem viel geringeren, gleichmässigen Effekt über dem grössten Teil des Brennstoffabschnittes zeigt.

Die Bilder der Brennstabquerschnitte am heissen Brennstoffende zeigten einen festen Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle über eine dicke Reaktionsproduktschicht (Abb. 4.4), die sich durch chemische Reaktion zwischen Brennstoff, Spaltprodukten und Hüllmaterial gebildet hat. Die plastische Hülldehnung in diesem Bereich scheint zu einem beträchtlichen Teil auf der Vergrößerung der spezifischen Festkörpervolumen durch die chemischen Reaktionen (Reaktionsschwellung) zu beruhen. Dabei spielen sich diese Vorgänge deutlich noch im Bereich der Brennstoffsäule ab, so dass sie nicht entscheidend durch Eigenschaften des Brutstoffes beeinflusst erscheinen. Die bestrahlungsbedingte Kriechgeschwindigkeit des  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstoffes ist jedoch so hoch /4.9/, dass eine langsam verlaufende Reaktionsschwellung durch Brennstoffkriechen ohne beträchtliche Hülldehnung aufgefangen werden könnte. Daher ist in Betracht zu ziehen, dass die beobachtete Hülldehnung eventuell beträchtlich durch Brennstableistungszyklen gefördert wird. Ein entsprechender Mechanismus der Brennstoffrissbildung und -ausheilung wurde bereits früher erwo-gen /4.10/. Die Ansammlung flüchtiger Spaltprodukte und die Reaktionsschwellung können die Ausheilung von Rissen oder Spalten fördern, die durch thermische Ausdehnungsdifferenzen entstanden sind, und zu einer Vergrößerung der Hülldehnung führen, die sich aufgrund der Ausheilungsvorgänge bei entgegengesetzter Stableistungsänderung ergibt.

#### Literatur

- /4.1/ K.Ehrlich, O.Götzmann, H.Hoffmann, H.Kleykamp, H.Zimmermann,  
W.Dienst  
KFK 1864, Januar 1974
- /4.2/ K.Ehrlich, O.Götzmann, H.Kleykamp, L.Schäfer, B.Schulz,  
H.Zimmermann, W.Dienst  
KFK 1960, Juni 1974

- /4.3/ K.Ehrlich, K.Herschbach, W.Schneider  
KFK 1999, September 1974, Abschnitt VIII, S. 149
- /4.4/ W.Dienst, K.Ehrlich  
European Nuclear Conference, Paris, April 1975  
Trans. ANS 20 (1975) 283
- /4.5/ D.Geithoff, K.Kummerer  
KFK 1377, Mai 1972
- /4.6/ DERE, Dounreay, interne Berichte 1972/73
- /4.7/ F.Anselin  
Bulletin Inform. Sci. Techn. No 196, Oct. 1974, 27
- /4.8/ R.F.Hilbert, E.A.Aitken, P.R.Pluta  
European Nuclear Conference, Paris, April 1975  
Trans. ANS 20 (1975) 315
- /4.9/ D.Brucklacher, W.Dienst, H.Zimmermann  
KFK 1999, September 1974, Abschnitt IV, S.59
- /4.10/ D.Brucklacher, W.Dienst  
in Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors,  
IAEA, Vienna, 1974, Vol. I, S. 147



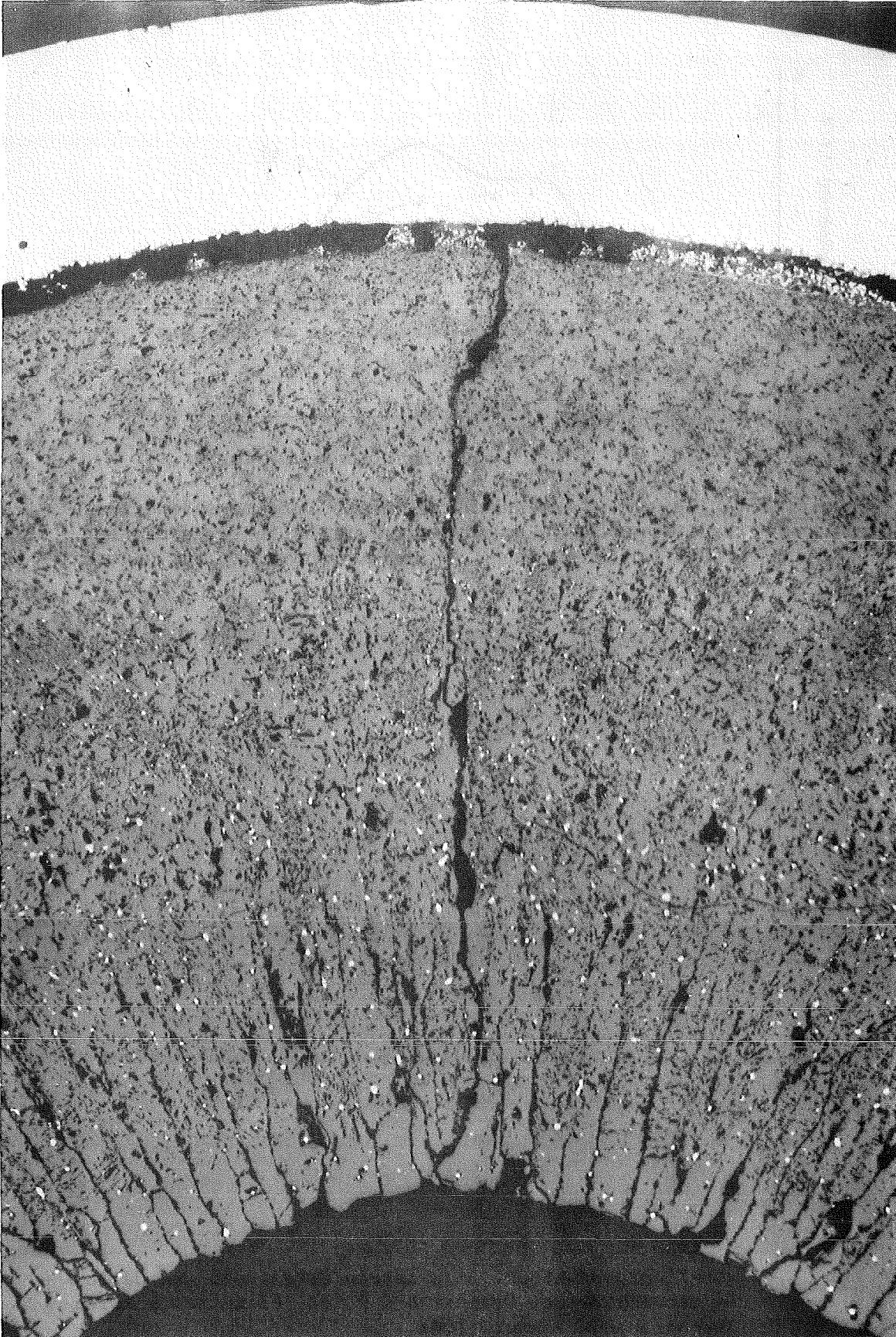


Abb. 4.2: Sehr feine Spaltgasblasen im gesamten Brennstoffquerschnitt des beschädigten Brennstabes G 16, ca. 95 mm vom unteren Brennstabende, dicht unterhalb des oberen Hüllrisses. Vergr. 100x

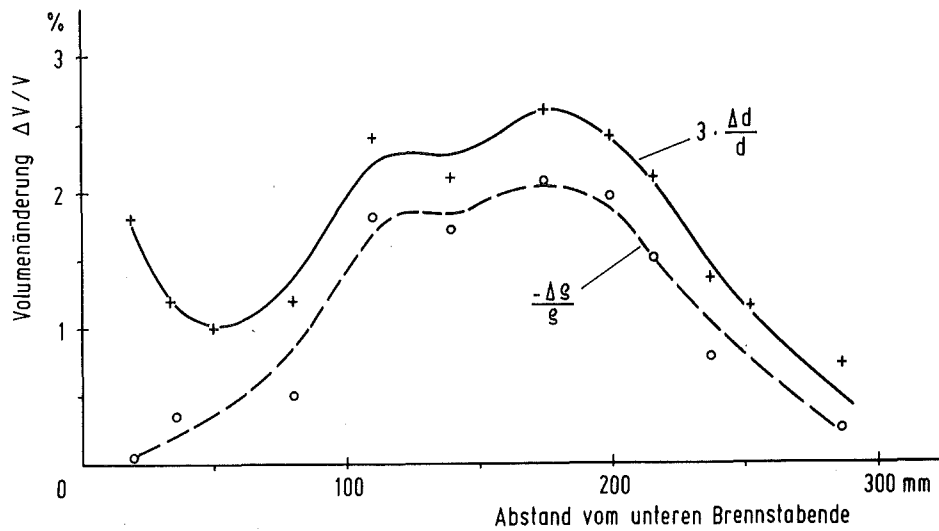


Abb.4.3: Vergleich der aus der Dichte- bzw. Durchmesseränderung resultierenden Volumenänderung der Hülle für den unbeschädigten Brennstab G 9. Max.Abbrand 8,3%, max.Neutronenfluenz  $6,5 \cdot 10^{22} \text{n/cm}^2$

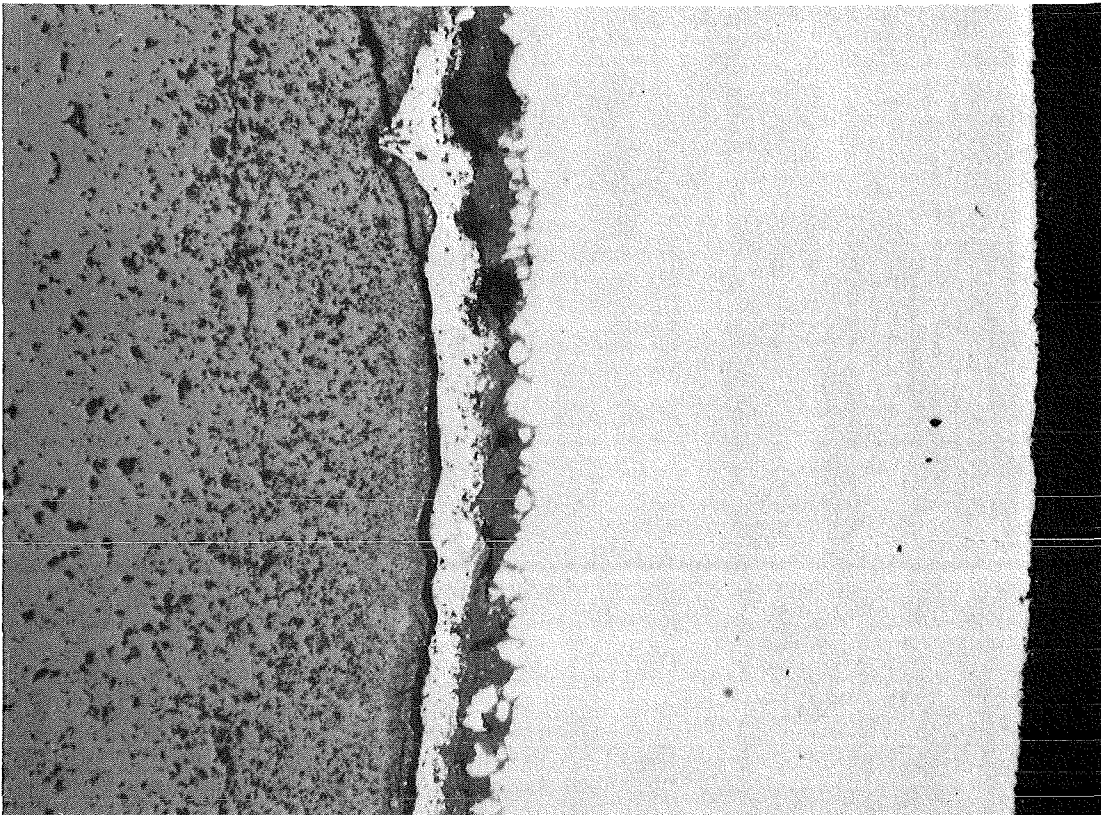


Abb. 4.4: Reaktionsproduktschicht zwischen Brennstoff und Hülle im unbeschädigten Brennstab G 9, ca. 65 mm vom unteren Brennstabende. Vergr. 200x

Tab. 4.1: Mittlere Durchmesseränderung  $\overline{\delta D}$  und Längenänderung  $\delta L$  der Brennstäbe in den Versuchsgruppen DFR-304, 350 und 435

Brennstab Nr.	Versuchsgruppe DFR-	max. Abbrand %	$\overline{\delta D}$ %	$\delta L$ %
G 2	350	5,7	0,21	0,14
G 4	350	5,7	0,31	0,22
G 6	350	5,7	0,36	0,23
G 7	350	5,7	0,30	0,24
	435	5,7	0,32	0,24
	435	6,9	0,49	0,31
G 8	350	5,7	0,30	0,18
	435	5,7	0,30	0,18
	435	6,9	0,44	0,27
	435	8,3	0,80	0,39
	435	9,7	1,56	0,63
G 9	350	5,7	0,20	0,19
	435	5,7	0,29	0,19
	435	6,9	0,41	0,30
	435	8,3	0,55	0,32
G 12	435	5,7	0,27	0,30
	435	6,9	0,41	0,31
	435	8,3	0,76	0,45
	435	9,7	1,31	
G 14	350	5,7	0,23	0,17
G 16	350	5,7	0,29	0,21
	435	5,7	0,27	0,21
	435	6,9	0,44	0,32
	435	8,3	0,84	0,39
	435	9,7	1,51	0,73
G 17	350	5,7	0,21	0,17
	435	5,7	0,28	0,22
	435	6,9	0,43	0,24
G 19	350	5,7	0,25	0,20
G 21	350	5,7	0,28	0,20
G 24	350	5,7	0,27	0,19
G 1 <sup>+</sup>	304	6,2	0,27	0,27
G 2 <sup>+</sup>	304	6,2	0,22	0,24
G 3 <sup>+</sup>	304	6,2	0,26	0,21





5. Hüllschäden

O.Götzmann, W.Dienst



### 5.1 Chemischer Angriff an der Hüllinnenseite

Wie die anderen Nachbestrahlungsuntersuchungsergebnisse aus den Stäben des DFR-435-Versuchs müssen auch die Ergebnisse über den Hüllmaterialangriff im Zusammenhang mit denjenigen aus dem DFR-350 Bündel-Experiment gesehen werden, weil DFR-435 ein Folgeexperiment von DFR-350 war. Im Diagramm der Abb. 5.1 sind die in den einzelnen Schliffebenen gemessenen Angriffstiefen sowohl für die untersuchten Stäbe aus dem DFR-350-Experiment, wie auch für die DFR-435 Stäbe über der maximalen Hüllinnentemperatur aufgetragen, die für die entsprechenden Positionen ermittelt wurde. Es sieht so aus, als ob der höhere Abbrand des DFR-435-Versuchs nicht zu grösseren maximalen Angriffstiefen geführt hat als jene, die aus der Nachuntersuchung des DFR-350-Experiments bekannt waren.

Dieser Vergleich ist jedoch nicht ganz einwandfrei. Im Falle des DFR-435-Versuchs kamen nur Stäbe mit Umhüllungen aus Stahl vom Typ 1.4988 zur Nachuntersuchung, während für das DFR-350-Experiment vier Stäbe mit Hüllen aus 1.4988-Stahl und acht Stäbe aus 1.4961-Stahl nachuntersucht wurden. Die maximalen Angriffstiefen bei den 1.4988-Hüllen im DFR-350-Versuch lagen bei 75  $\mu\text{m}$ , während für die 1.4961-Hüllen öfters maximale Angriffstiefen zwischen 100 und 130  $\mu\text{m}$  gefunden wurden. Im DFR-435-Versuch sind nun auch an den Hüllen aus 1.4988-Stahl maximale Angriffstiefen bis 120  $\mu\text{m}$  gemessen worden. Wenn man nur die Hüllen aus 1.4988-Stahl untereinander vergleicht, könnte man zu dem Schluss kommen, dass der Abbrand doch als Parameter für den Hüllangriff zu gelten hat. Da jedoch der Angriff von 120  $\mu\text{m}$  in einem Stab gefunden wurde, der nur bis zu einem maximalen Abbrand von 6,9% bestrahlt wurde (G19), ist eine Abbrandabhängigkeit keineswegs eindeutig erwiesen.

Wahrscheinlich trifft auch hier eher die Aussage zu, die schon früher gemacht wurde /5.1/, dass im wesentlichen die Hüllinnentemperatur die maximale Hüllangriffstiefe bestimmt, dass aber bei höherem Abbrand die Häufigkeit des Auftretens von grösseren Angriffstiefen ( $\geq 100 \mu\text{m}$ ) zunimmt. Die frühere Beobachtung, dass mit steigendem Abbrand auch die Menge der Reaktionsprodukte und damit die Dicke der beobachteten Reaktionsproduktzonen zunimmt, kann bei diesem Experiment nicht deutlich

belegt werden, weil das eindringende Natrium die Reaktionszone verändert hat. Ein dem DFR-435-Versuch eigenes, neues Ergebnis lässt sich jedoch klar erkennen: Die chemische Reaktion zwischen Brennstoff und Hülle mit dem entsprechenden starken Hüllangriff bei hohen Hülltemperaturen kann entscheidend an der Bildung von Hüllrissen beteiligt sein, wie im folgenden Abschnitt gezeigt wird.

## 5.2 Hüllrissbildung

### 5.2.1 Verteilung der Risse

Von den acht Brennstäben, die im DFR-435-Versuch weiterbestrahlt wurden, haben fünf Brennstäbe Hüllrisse erlitten. Darunter waren auch die drei Brennstäbe, die den Zielabbrand von max. 9,7% erreichten (G 8, G 12 und G 16). Die beiden anderen defekten Brennstäbe hatten nur einen Abbrand von max. 6,9% (G 7 und G 24). Abb. 5.2 zeigt die Lage der Hüllrisse an den fünf Brennstäben. Bei der Brennstabnachuntersuchung konnte kein Zusammenhang der Risse mit irgendeiner äusseren Beschädigung der Hüllen gefunden werden. Jeder Brennstab wies zwei Hüllrisse auf, die jeweils voneinander sehr verschiedene Abstände vom Brennstabende hatten und damit auch in Abschnitten sehr verschiedener Hülltemperatur lagen, wie der Vergleich mit Abb. 1.2 zeigt. Daraus lässt sich auf verschiedene Ursachen der Rissbildung an einem Brennstab schliessen. Die Verteilung der Risse, sowie der Vergleich mit dem Hüllriss im Versuch DFR-409 /5.3/, deutet darauf hin, dass es sich bei den Rissen in der Nähe des unteren, heisseren Brennstabendes um Primärrisse handelt, während die oberen Risse erst sekundär infolge der unteren Risse entstanden sein könnten.

Es ist zum Beispiel vorstellbar, dass die oberen Risse an den Brennstäben G 7 und G 24, deren Umgebung trotz normalerweise ziemlich niedriger Hülltemperatur (vgl. Abb. 5.2 und Abb. 1.2) deutliche Überhitzungseffekte aufwies, erst durch Spaltgas-Blasen im Kühlmittel verursacht wurden, die aus den unteren Rissen ausgetreten waren. Solche Gasblasen können zu einer vorübergehenden lokalen Beeinträchtigung der Wärmeabfuhr von der Brennstaboberfläche mit einer folgenden lokalen Überhitzung führen ("gas blanketing"). Aus Berichten über andere

bei DFR-Bestrahlungen gerissene Brennstäbe geht allerdings hervor, dass lokale Überhitzungsschäden auch primär auftreten können. Sie werden dann auf Blasen zurückgeführt, die aus der Schutzgasabdeckung über dem Kühlmittelspiegel des Reaktors stammen. Jedenfalls waren die Risse in der Nähe des oberen Brennstoffendes aber nicht durch Vorgänge innerhalb der Brennstäbe verursacht.

Schwieriger ist die Beurteilung der Hüllrisse im mittleren Teil des Brennstoffabschnittes, wie sie an den Brennstäben G 8, G 12 und G 16 aufgetreten sind. Hierzu ist noch kein Vorgang erkannt worden, durch den sich ein solcher Riss sekundär, d.h. infolge eines anderen Risses bilden würde. Die Kombination dieser Hüllrisse mit Rissen am unteren Brennstabende, die mit höherer Wahrscheinlichkeit als Primärschäden anzusehen sind, legt aber die Vermutung nahe, dass sie erst durch deren Bildung ausgelöst wurden. Trotzdem müsste zuvor ein kritisches Stadium der Hüllschädigung und/oder -belastung erreicht gewesen sein, das auch ohne Fremdauslösung zur Rissbildung führen könnte. Daher müssen auch Überlegungen zur Ursache der Hüllrisse im mittleren Teil des Brennstoffabschnittes in die Diskussion des Brennstabverhaltens einbezogen werden.

### 5.2.2 Auslegungsbedingte Risse

Als lebensdauerbegrenzende Schäden der Brennstäbe mit hohem Abbrand sind hier die Hüllrisse am unteren Brennstoffende anzusehen. Dabei ist nicht auszuschliessen, dass die Bildung dieser Risse in einem gewissen Zusammenhang mit den speziellen Bedingungen des DFR-435-Versuches steht (wiederholt demontierter 3-Stab-Einsatz, heisses Brennstabende unten). Von allgemeiner Bedeutung ist aber die Beobachtung, dass die Hüllinnen-seite direkt an der Bruchstelle wie auch in der näheren Umgebung einen starken chemischen Angriff zeigt (Abb. 5.3 und 5.4). Die Angriffstiefen reichen bis maximal 110  $\mu\text{m}$ . Der Spalt zwischen Brennstoff und Hülle ist ausgefüllt mit Reaktionsprodukten. Die Reaktionsproduktzone erscheint an den Stellen, an denen die Hülle nicht aufgerissen ist, zusammengepresst und an der Hülle wie auch am Brennstoff festhaftend. Neben dem Durchriss konnten keine weiteren Anrisse der Hülle beobachtet werden, im Gegensatz zum oberen Hüllschaden (s. Abb. 5.5 und 5.6).

Ein Grund für das Auftreten des Risses am unteren Brennstoffende ist sehr wahrscheinlich die Innenkorrosion, die die Hülle so stark schwächte, dass sie der wachsenden Belastung nicht mehr standhalten konnte. Man kann feststellen, dass der Riss an der Stelle des stärksten Hüllan- griffs seinen Anfang genommen hat. Diese Stelle liegt im Bereich der ersten fünf Brennstofftabletten am unteren Stabende. Der Riss wurde demnach nicht von einer mechanischen Wechselwirkung zwischen der  $UO_2$ -Iso- lierttablette und der Hülle hervorgerufen, wenn auch in zwei Fällen (G 8 und G 12) die Risspitzen 1 bis 2 mm in den Bereich der Isolierttablette hineinreichen. Auch die Schliffbilder enthalten keine Anzeichen für eine mechanische Wechselwirkung zwischen Isolierttablette und Hülle. Eher lassen die Schliffbilder auf eine mechanische Wechselwirkung zwischen dem Brennstoff und der Hülle schließen, die durch die Ausbreitung der Reaktionsproduktzone zwischen der Hülle und dem Brennstoff mitver- ursacht wurde. Die Betrachtung der Brennstabdurchmesseränderungen, die im Bereich der Hüllrisse am unteren Brennstoffende gemessen wurden, zeigt, dass dort eine beträchtliche Bruchdehnung von etwa 1% des Hüll- umfanges vorlag. Die Härte in unmittelbarer Nachbarschaft der Risse lag deutlich höher als in der weiteren Umgebung (MHV 50 = 360 bis 390  $kp/mm^2$  gegenüber 260  $kp/mm^2$ ); auch das könnte auf eine starke lokale Verfor- mung hindeuten. Der Hüllschaden scheint auf einem Verformungsbruch zu beruhen, bei dem interkristalline Risse entstanden sind. Der Mechanis- mus der Hüllverformung wurde bereits im Abschnitt 4.2 behandelt.

Einen deutlich anderen Charakter weisen die Hüllrisse in der Nähe der Brennstoffsäulenmitte auf, wie sie Abb. 5.2 an den Brennstäben hohen Abbrandes zeigt (G 8, G 12, G 16). Die Risse traten bei relativ hoher lokaler Stabileistung und bei Hüllinnentemperaturen auf, die noch etwa 500°C erreichten. Die Hüllrohre zeigen dort neben dem Durchriss noch viele kleine Anrisse an der Innenseite (Abb. 5.5 und 5.6). Reaktions- produkte aus einem chemischen Angriff der Hülle sind in den Schliffbil- dern nicht erkennbar. Die Bruchdehnung betrug wahrscheinlich nur 0,3%, höchstens 0,5% des Hüllumfanges und lag damit beträchtlich niedriger als bei den Hüllrissen am unteren Brennstabende. Die Härte am Hüllriss be- trug nur MHV  $\approx 300$   $kp/mm^2$  (am oberen, kälteren Brennstabende dagegen bis etwa 450  $kp/mm^2$ ) und lag auch nicht höher als in der weiteren Umgebung

des Risses. Der Hüllschaden scheint hier auf einem verformungsarmen Bruch zu beruhen, bei dem auch transkristalline Risse entstanden sind (s. Abb. 5.5 unten).

Im Hinblick auf die schon ziemlich hohe Temperatur und die relativ niedrige Härte der Hülle im Rissbereich kann man ausschliessen, dass die Hüllrisse in der Nähe der Brennstoffsäulenmitte durch eine starke Bestrahlungsversprödung des Hüllmaterials verursacht sind. Dagegen erscheint es den Beobachtungsergebnissen angemessen, einen Vorgang der Spannungsrisskorrosion in Erwägung zu ziehen. Wie in Abschnitt 5.1 behandelt, tritt in den Brennstäben bei höheren Hülltemperaturen ab etwa 500°C stets eine deutlich erkennbare Innenkorrosion der Hüllrohre auf. Es ist denkbar, dass in der Nähe dieser Schwelltemperatur besonders kritische Bedingungen für den extrem lokalisierten Korrosionsangriff bei der Spannungsrisskorrosion vorliegen. Es kann jedoch auch nicht ausgeschlossen werden, dass der Hüllschaden sekundär infolge der Risse am unteren Brennstabende entstanden ist, und dass dabei Reaktionen mit dem eingedrungenen NaK-Kühlmittel eine entscheidende Rolle gespielt haben. Selbstverständlich müsste für eine Spannungsrisskorrosion eine hinreichend hohe Spannung in der Hülle vorliegen. Sie kann auf mechanischer Wechselwirkung des Brennstoffes mit der Hülle durch Brennstoffrissrasten beruhen /5.4/, d.h. durch eine wiederholte Abfolge der Bildung thermischer Brennstoffrisse bei einer Stabileistungsabsenkung und von Rissausheilungsvorgängen, die das Schliessen der Risse bei Wiedererhöhung der Stabileistung gänzlich oder teilweise verhindern. Es ist denkbar, dass dieser Mechanismus im DFR-435-Versuch durch die Verschiebung von Brennstofffragmenten beim Ausbau und bei der Handhabung der Brennstäbe nach jedem Bestrahlungszyklus besonders gefördert wurde.

### 5.3 Folgerungen

Die Ausführungen über die beobachteten Hüllrisse ergeben einige allgemeine Folgerungen für die Herstellung und den Betrieb von  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstäben:

1. Für die Bildung von Hüllrissen spielen wahrscheinlich chemische Reaktionen zwischen Brennstoff und Hülle eine entscheidende Rolle. Deshalb muss der chemischen Zusammensetzung des Brennstoffes verstärkte Aufmerksamkeit gewidmet werden. Das gilt vor allem für das O/M-Verhältnis, aber unter Umständen auch für gewisse Verunreinigungen.
2. Die Hüllrisse am unteren Brennstabende können in mehrfacher Beziehung durch die hohe Hülltemperatur an der Rissposition begünstigt worden sein, und zwar in bezug auf die Hüllfestigkeit, die Hochtemperaturversprödung der Hülle und die Hüllinnenkorrosion. Daher erscheint eine Absenkung der maximalen Hülltemperatur erwägenswert.
3. Der in der Nähe der Brennstoffsäulenmitte auftretende Hüllrisstyp könnte gegebenenfalls durch Optimierung der Hüllschwellung vermeidbar sein, die in diesem Brennstababschnitt ihr Maximum aufweist.

#### Literatur

- /5.1/ O.Götzmann, P.Hofmann, H.Kleykamp  
KFK 1999, September 1974, Abschnitt V, S.81
- /5.2/ D.Geithoff, W.Ernst  
GfK, Karlsruhe, interner Bericht, 1973
- /5.3/ F.Anselin  
Bulletin Inform.Sci.Techn.No 196, Oct.1974, 27
- /5.4/ D.Brucklacher, W.Dienst, H.Zimmermann  
KFK 1999, September 1974, Abschnitt IV, S. 59



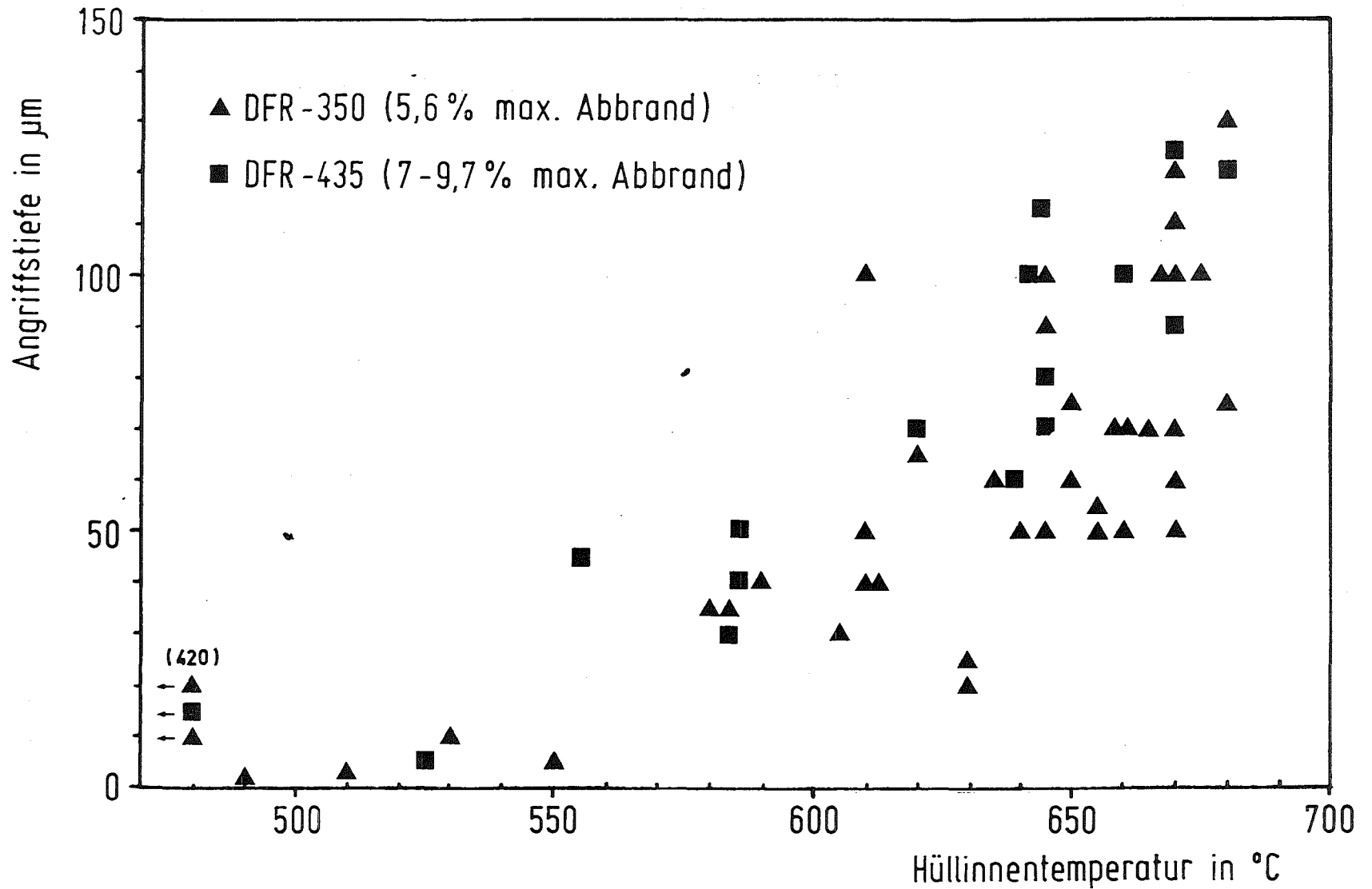


Abb. 5.1 Maximale Angriffstiefe der Hüllinnenkorrosion in den Versuchsgruppen DFR-350 und DFR-435 in Abhängigkeit von der Hüllinnentemperatur

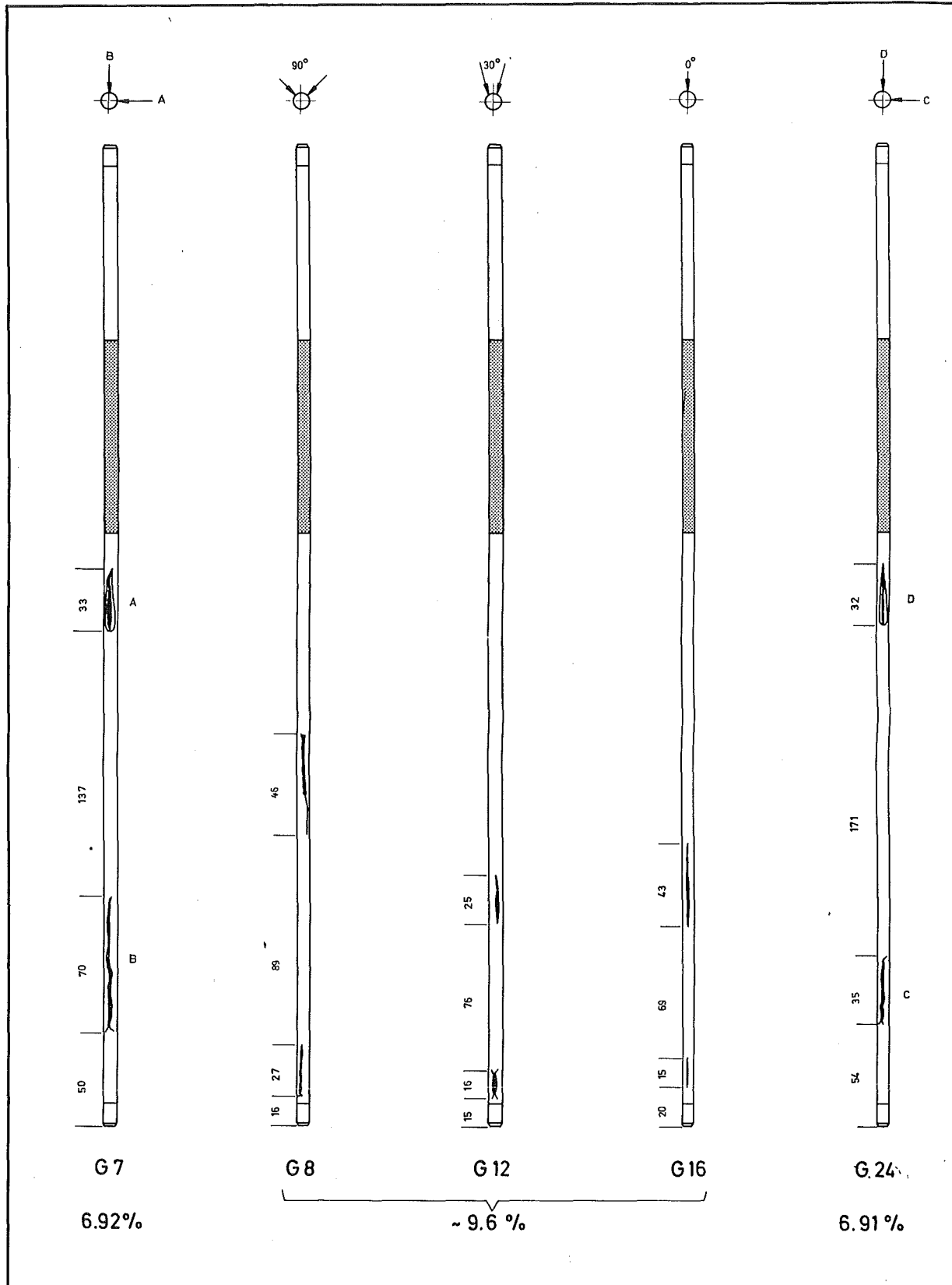


Abb. 5.2 Positionen der Hüllrisse an den beschädigten Brennstäben der Versuchsgruppe DFR-435 (aus [5.2])

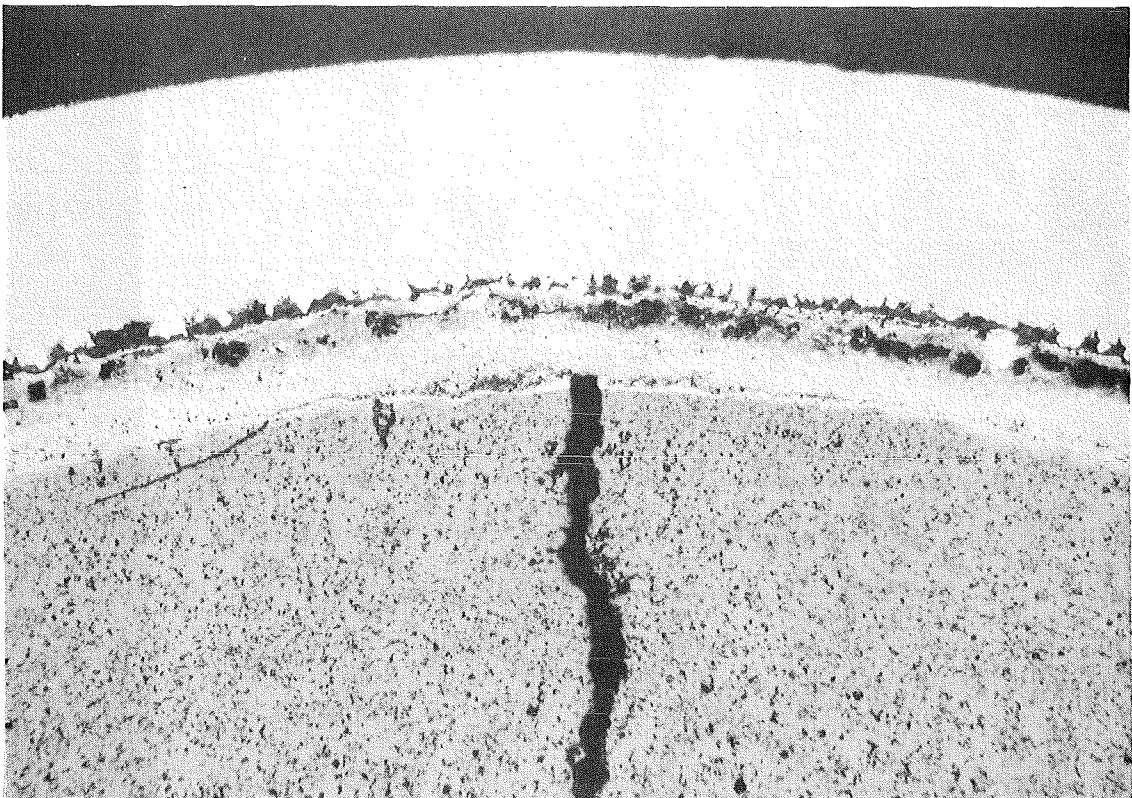
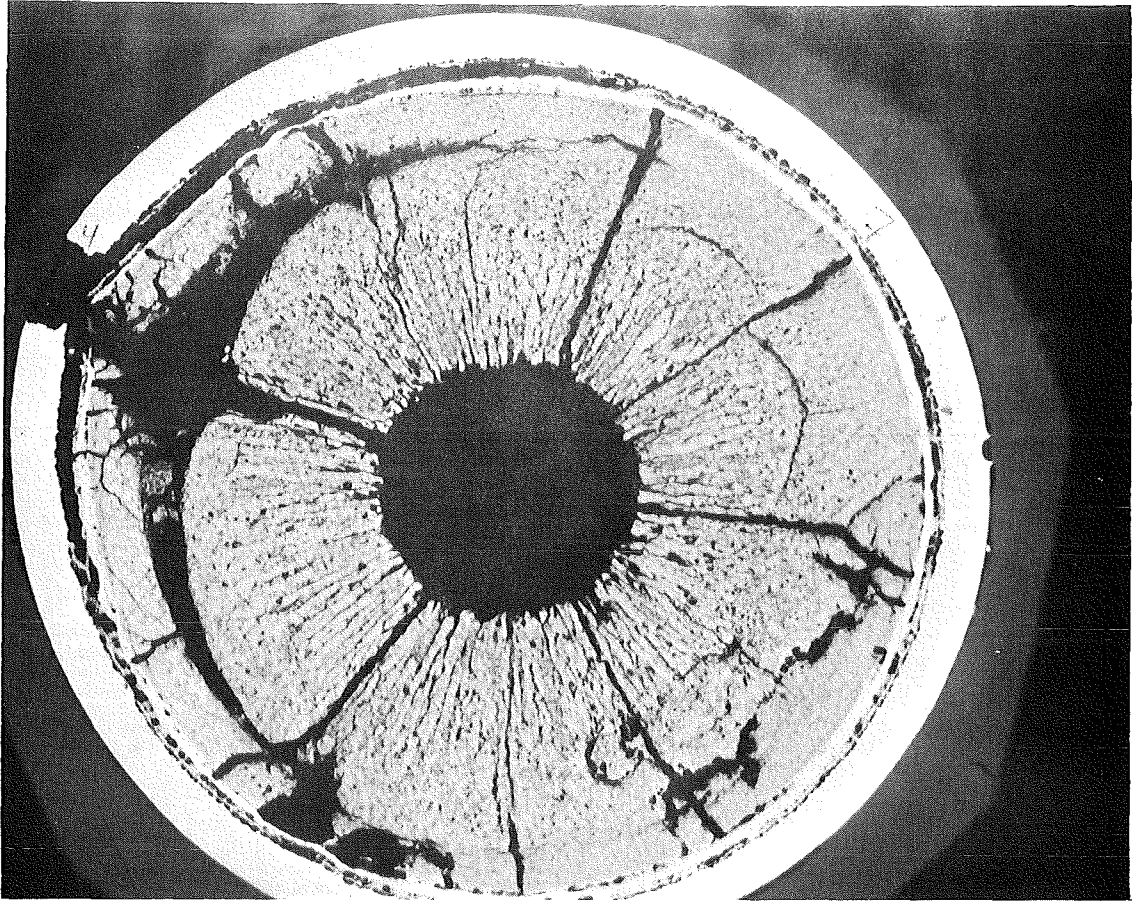


Abb. 5.3: Querschnitt des Brennstabes G 16 in Höhe des unteren Hüllrisses (oben, Vergr. 20x) mit Reaktionsproduktschicht zwischen Brennstoff und Hülle (unten, Vergr. 100x)

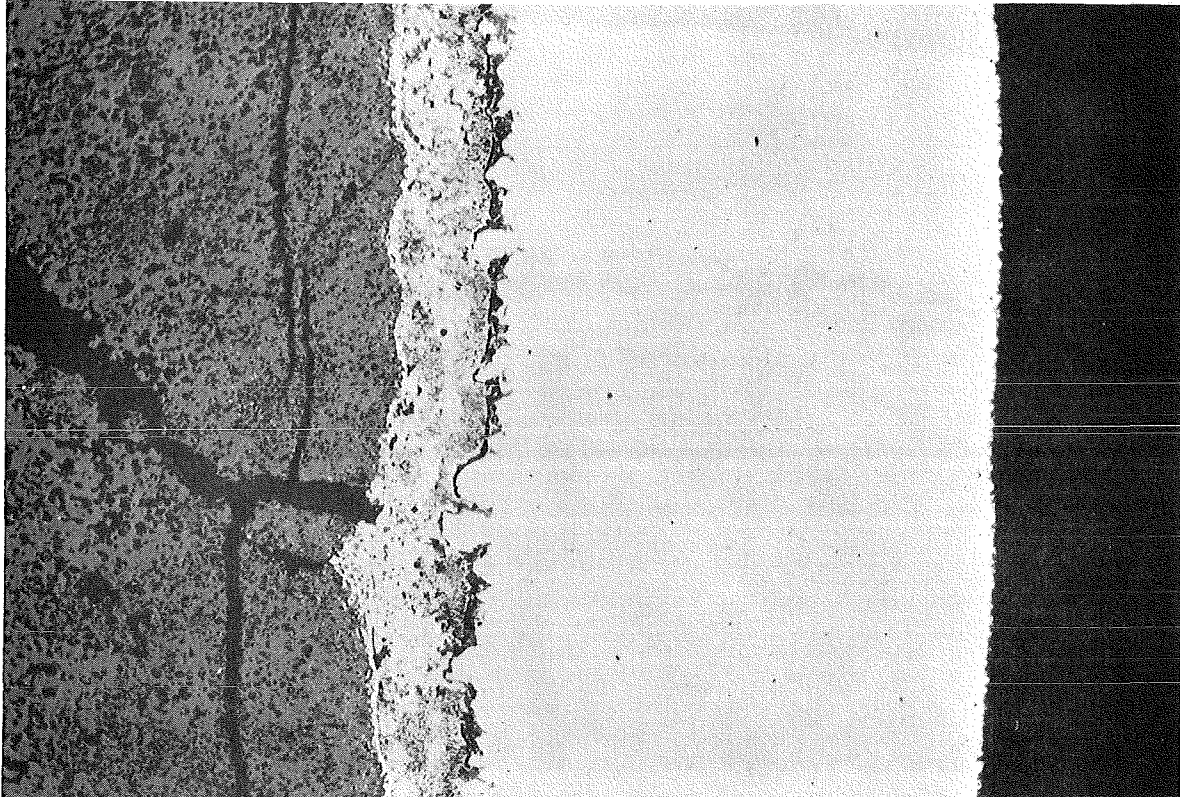
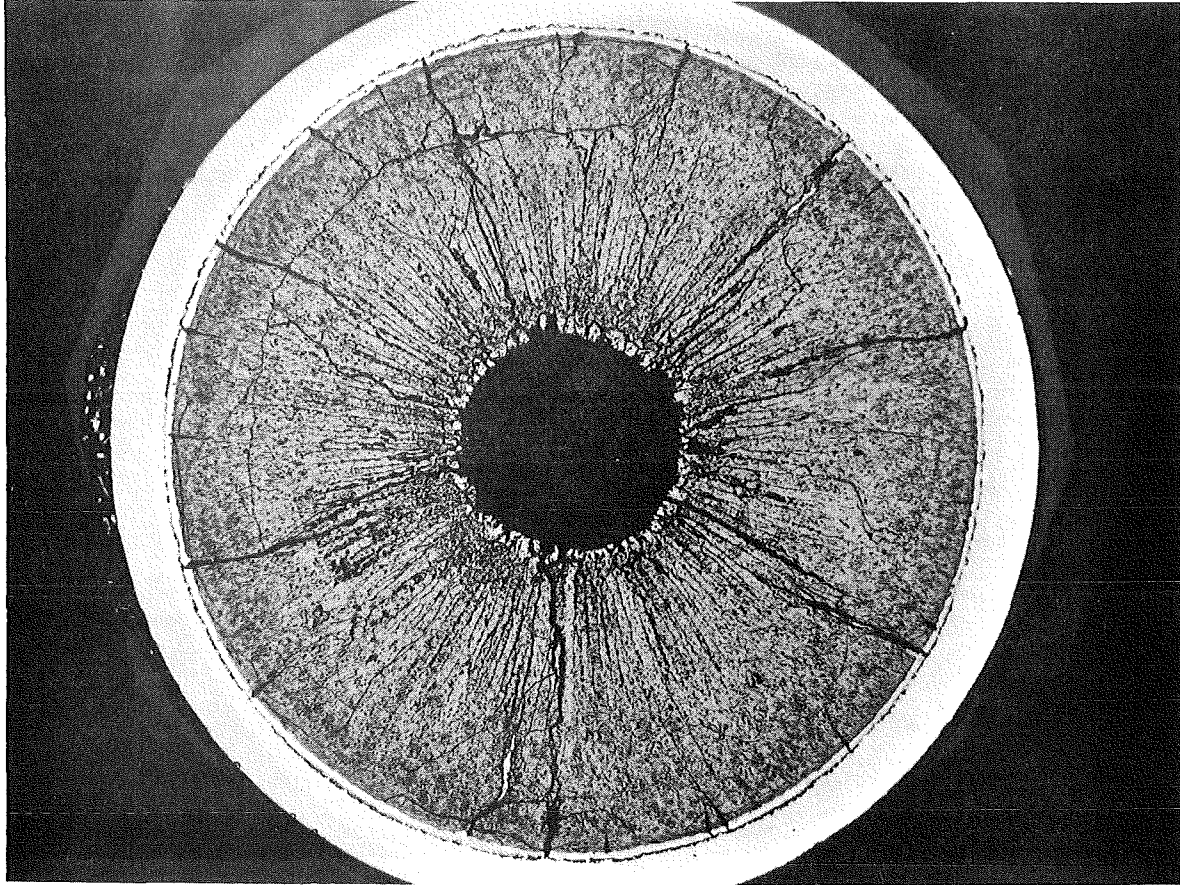


Abb. 5.4: Querschnitt des Brennstabes G 12 dicht über dem unteren Hüllriss (oben, Vergr. 20x) mit Reaktionsproduktschicht zwischen Brennstoff und Hülle (unten, Vergr.200x)

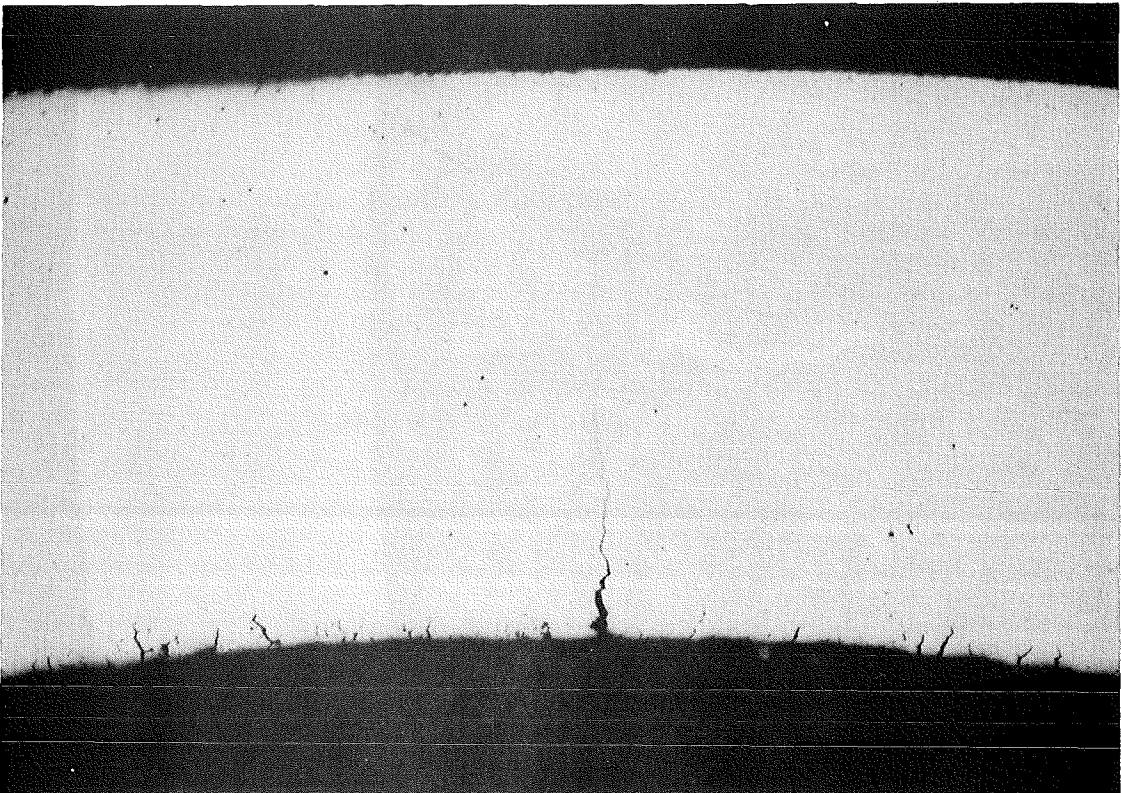
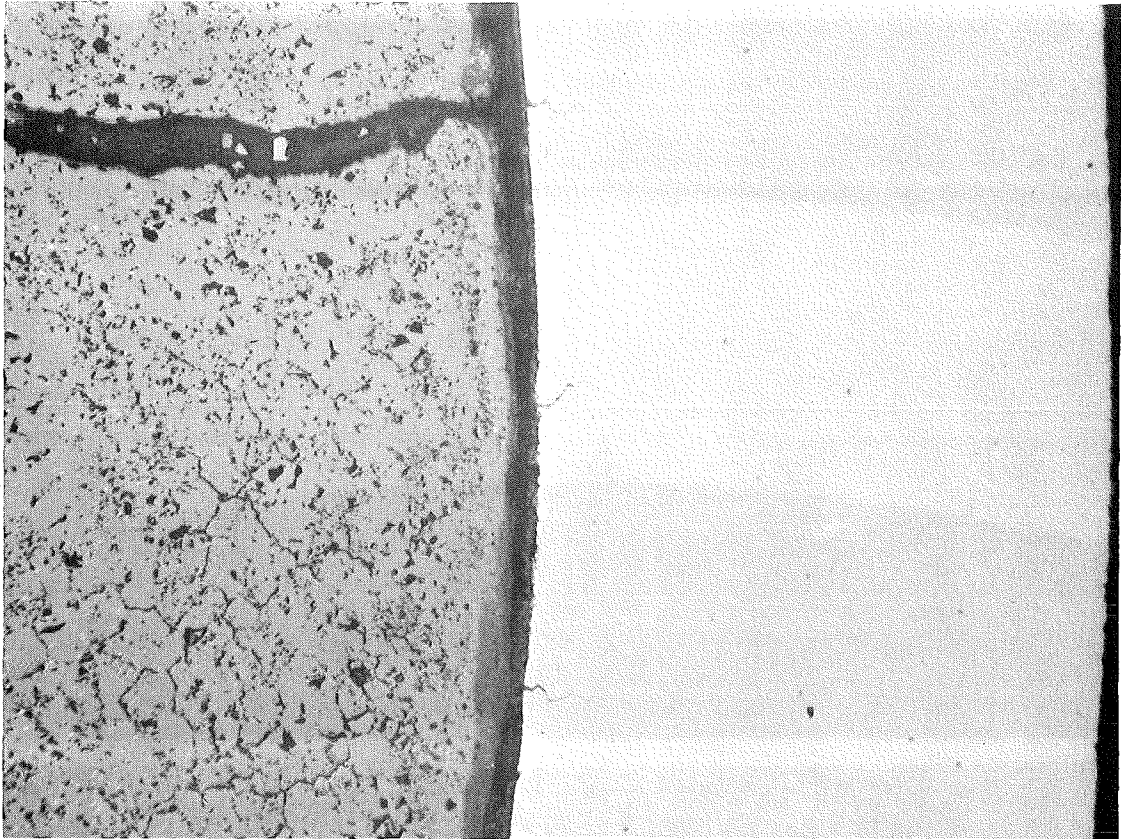


Abb. 5.5: Anrisse an der Hüllinnenseite des Brennstabes G 16 in einem Querschnitt dicht über dem oberen Hüllriss (oben) und in Höhe des Risses (unten, Brennstoff ausgebröckelt). Vergr. 200x

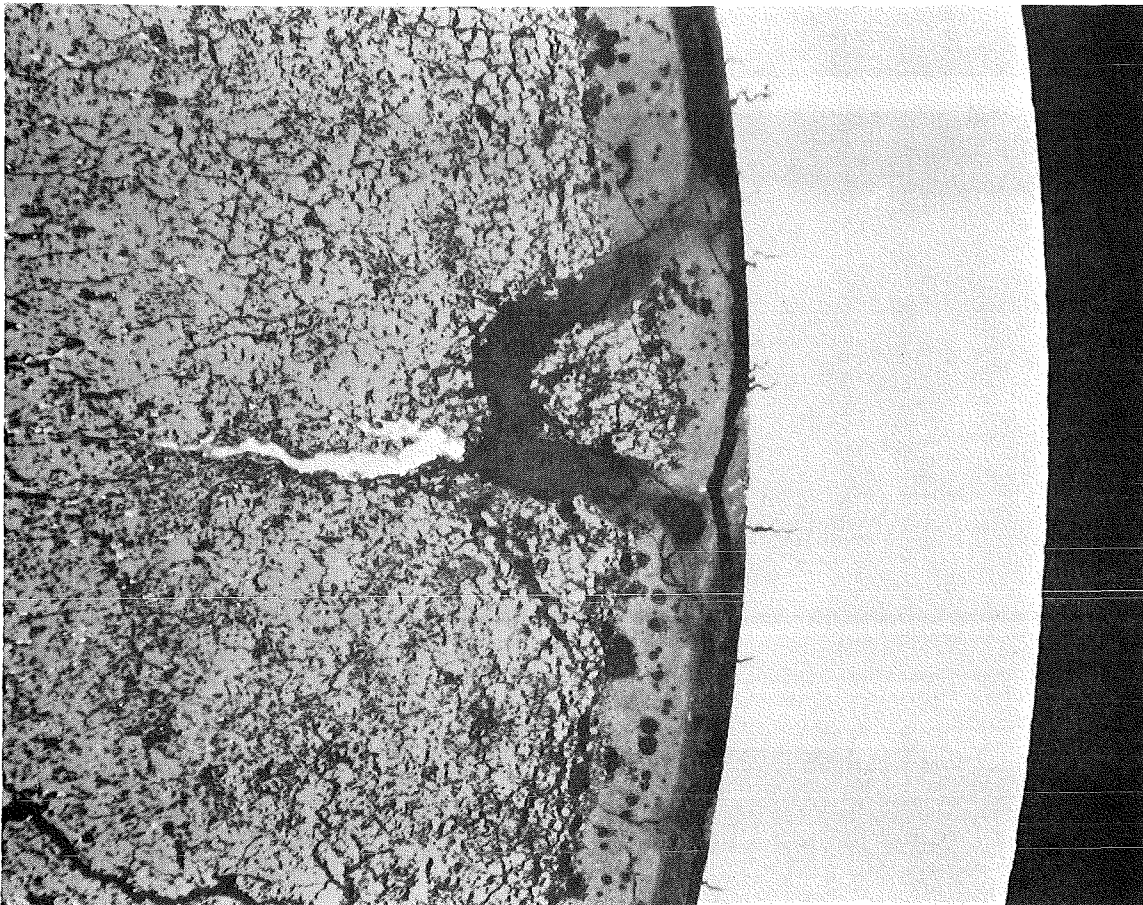
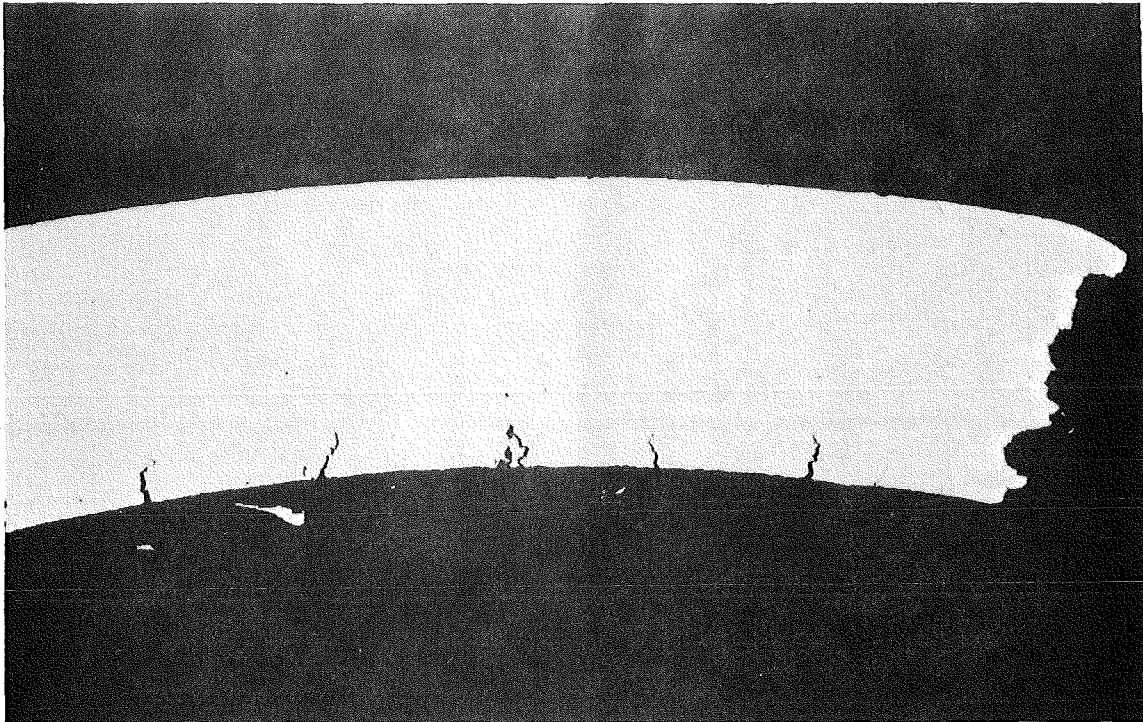


Abb. 5.6: Anrisse an der Hüllinnenseite des Brennstabes G 8 neben dem oberen Hüllriss (oben, Brennstoff ausgebröckelt) und auf der gegenüberliegenden Seite des Brennstabquerschnittes (unten). Vergr. 100x

## 6. Mikrobereichsanalyse

H.Kleykamp  
unter Mitarbeit von  
H.D.Gottschalg und H.Späte





## 6.1 Einleitung

Nach dem erfolgreichen Abschluß des Bündelbestrahlungsexperiments DFR-350 /6.1, 6.2/ mit einem maximalen Abbrand von 5,6% wurden neun Brennstäbe aus diesem Bündel als Trefoil-Bestrahlungsexperiment DFR-435 in der Zeit zwischen Februar 1971 und Februar 1972 zu höheren Abbränden bis zu 10% weiterbestrahlt. Sechs der neun Stäbe wurden von der GfK bereitgestellt; die Auswahl beschränkte sich auf die mit dem rostfreien Stahl 1.4988 umhüllten Stäbe mit den Stabnummern G8, G9, G12, G16, G19 und G24; zwei dieser Stäbe wurden wegen auftretender Hüllschäden während des Bestrahlungsverlaufs gegen die Reservestäbe G7 und G17 ausgetauscht. Von diesen acht eingesetzten Stäben wurden insgesamt fünf im Laufe der Bestrahlung defekt.

Anhand der Gefügebildungen und der  $\alpha$ -Autoradiographien wurden an Querschnittsproben der defekten Stäbe in sich differenzierte starke Reaktionszonen zwischen Brennstoff und Hülle sowie ein Korngrenzenangriff der Hülle und Plutonium-Verteilungen beobachtet, die in unbeschädigten Stäben nicht auftreten. Diese Phänomene sowie besondere Erscheinungen im Brutstoffbereich wurden mit der abgeschirmten Elektronenstrahl-Mikrosonde untersucht. Hierzu standen das Gerät MS 46 der Firma Cameca und das während dieser Untersuchungen für bestrahlte Proben zum ersten Einsatz gekommene kombinierte Gerät JRXA-50 der Firma Jeol, das die Funktion einer Elektronenstrahl-Mikrosonde und eines Rasterelektronenmikroskops in sich vereinigt, zur Verfügung.

Tab.6.1: Ausgewählte Proben für die Mikrobereichsanalyse

Stab	Probe	Position [mm] <sup>a)</sup>	Bemerkung
G8	8a <sup>b)</sup>	161 (5.Ebene)	Bereich mittlerer Stabileistung
G12	8b <sup>b)</sup>	-1 (4.Ebene)	unterer Brutstoffbereich
G16	6	218	Bereich max. Stabileistung
G16	17	26	} { unterer Brennstoffbereich; spez. Präparation für die Mikrobereichsanalyse
G16	18	22	
G16	19 <sup>b,c)</sup>	14-19	
G16	15 <sup>b)</sup>	12	

a) Abstand vom unteren Ende der Brennstoffzone

b) Riß in der Schnittebene

c) Wird in einem anderen Bericht dokumentiert

Die Untersuchungen beschränkten sich auf die defekten Stäbe und bei diesen im wesentlichen auf den Stab G16, damit mit Hilfe von Proben aus verschiedenen Schnittebenen eines Stabes auch Aussagen für das axiale Verhalten der Stäbe gewonnen werden konnten. In Tab.6.1 sind die untersuchten Proben sowie deren Schnittlage angegeben. In Tab.6.2 sind die wichtigsten Brennstoff- und Bestrahlungsdaten der untersuchten Proben zusammengestellt; sie sind ausführlich in /6.1/ beschrieben.

Die Aufgaben erstreckten sich schwerpunktmäßig auf die Uran- und Plutonium-Verteilung im Brennstoff, das Reaktionsverhalten des Brennstoffs und der Hülle gegenüber dem in die defekten Stäbe eingedrungenen Kühlmittel und auf die Aufkohlungserscheinungen der Hülle. Die Nachuntersuchungen am Bestrahlungsexperiment DFR-435 sind im Rahmen der Mikrobereichsanalyse noch nicht abgeschlossen und werden an der Probe 19 aus dem Stab G16 hinsichtlich der Bruchphänomene des Hüllmaterials abgeschlossen werden.

Tab.6.2: Die wichtigsten Brennstoff- und Bestrahlungsdaten

<u>Brennstoffdaten der Mischoxid-Tabletten</u>				
Zusammensetzung	20,4% Pu, 79,6% U			
Pu-239-Gehalt	92% Pu-spaltbar/Pu-gesamt			
Anreicherung	86% U-235/U-gesamt			
Ausgangsstöchiometrie	2,00			
Tablettendichte	89,4% th.D.			
Tablettendurchmesser	5,04 mm			
Radiale Spaltbreite	100 µm			
Hüllmaterial	1.4988			
Wandstärke	0,38 mm			
<u>Brutstoffdaten der UO<sub>2</sub>-Tabletten</u>				
Zusammensetzung	U-nat			
Ausgangsstöchiometrie	2,00			
Tablettendichte	95,3% th.D.			
Tablettendurchmesser	5,09 mm			
<u>Bestrahlungsdaten</u>				
Position (mm)	0	20	160	220
Max.Stableistung (W/cm)	275	290	370	390
Max.Hüllinnentemp. (°C)	650	630	480	400
Abbrand (%)	7,0	7,3	9,6	9,8
Bestrahlungszeit	15.2.71 - 22.2.72 (226 d Vollast)			
gesamte Bestrahlungszeit	(DFR-350 + DFR-435): 429 d Vollast			
Kühlmittel	70% Na, 30% K, 20-40 ppm Sauerstoff			

## 6.2 Uran-Plutonium-Verteilung im Brennstoff

Die Bestimmung der radialen Konzentrationsabhängigkeit des Urans und Plutoniums im Brennstoff wurde an vier Brennstabquerschnitten unterschiedlicher Schnittlage quantitativ durchgeführt (Abb.6.1, 6.5, 6.8 und 6.12). Wie bereits in den entsprechenden  $\alpha$ -Autoradiographien qualitativ zu erkennen ist, tritt in diesen Proben eine radiale Entmischung mit einer Plutonium-Anreicherung am Zentralkanal nur in sehr geringem Maße auf. Dagegen wird in den unbeschädigten Stäben G9, G17 und G19 die gewohnte Plutonium-Anreicherung am Zentralkanal beobachtet. Die experimentellen Ergebnisse sind in Tab.6.3 zusammengestellt.

Tab.6.3: Plutonium-Anreicherung am Zentralkanal (ZK) der untersuchten defekten Stäbe

Probe	G16/15	G16/17	G8/8a	G16/6
Position (mm) <sup>+</sup>	12	26	161	218
max.Stableistung (W/cm)	285	295	370	390
PuO <sub>2</sub> am ZK (%)	22	22	26	39

<sup>+</sup> Abstand vom unteren Ende der Brennstoffzone

Phänomene und Mechanismus der radialen Plutonium-Umverteilung in unbeschädigten Mischoxid-Brennstäben sind hinreichend bekannt /6.3/. In beschädigten Stäben wird die radiale Umverteilung durch den Einfluß des eindringenden Kühlmittels zum Teil wieder abgebaut, wobei zusätzlich ein starker axialer Brennstoffkomponententransport (U-Oxide) aus dem Bereich maximaler Stableistung des Brennstabs in Richtung zum unteren Stabende einsetzt (s.Tab.6.3). Diese Umverteilungsphänomene werden durch folgende Faktoren verursacht: (1) Erniedrigung der Stöchiometrie des Mischoxids durch Reaktion der äußeren Brennstoffzone mit dem Kühlmittel, insbesondere im Bereich der maximalen Stableistung des Brennstabs; daraus resultierende Erhöhung des PuO-Partialdrucks; (2) Erleichterung des axialen Materietransports durch den axialen Temperaturgradienten über den Spalt zwischen Brennstoff und Hülle infolge der Hüllaufweitung nach der Rißbildung; (3) bevorzugte Reaktion des Kühlmittels mit Uran und weniger mit Plutonium, insbesondere im Bereich maximaler Stableistung (Abb.6.2, 6.3, 6.6 und 6.7). Es ist wahrscheinlich, daß der Gasphasentransport von PuO in radialer und von UO<sub>2</sub> und UO<sub>3</sub> in axialer Richtung

jeweils entgegengesetzt zum Temperaturgradienten für die Umverteilungsphänomene in defekten Mischoxid-Brennstäben verantwortlich ist. Der starke Brennstoffkomponententransport mit einem Plutonium-Maximum im Stableistungsmaximum des Brennstabs wurde bereits im früher nachuntersuchten Bestrahlungsexperiment Mol 7A beobachtet, in dem der Stab 4 während der Bestrahlung defekt geworden war /6.4/.

### 6.3 Sauerstoff-Verteilung im Brennstoff

Der Einbruch des Kühlmittels in den Brennstab hat eine Änderung der Konzentration und der Verteilung des Sauerstoffs im Brennstoff zur Folge. Die Ausgangsstöchiometrie  $(O/M)_0$  des Brennstoffs beträgt 2,00 und erhöht sich während des Abbrands durch die Pufferwirkung der entstehenden Spaltprodukte Mo und Tc nur unwesentlich /6.5/. Durch die Reaktion des Kühlmittels mit dem Brennstoff unter Bildung mehrkomponentiger Alkali-(U,Pu)-Oxide wird die Stöchiometrie auf den Wert von etwa 1,96 erniedrigt, der aber noch von der Temperatur und der Plutonium-Konzentration im Mischoxid abhängt /6.6/. Experimentelle Hinweise in Probe 8a des Stabs G8, die auf der gemessenen Mo-Konzentration in den metallischen Ausscheidungen (Abb.6.4) und der  $MoO_2$ -Konzentration im Mischoxid beruhen, lassen darauf schließen, daß die Brennstoffstöchiometrie im Bereich maximaler Stableistung des Brennstabs den Wert  $O/M = 1,96$  erreicht hat, die thermodynamischen Rechnungen auf der Basis der  $Mo/MoO_2$ -Verteilung /6.7/ führen jedenfalls zu einem Wert  $O/M < 1,98$  in der Probe 8a des Stabs G8. Im Bereich maximaler Stableistung kann also thermodynamisches Gleichgewicht zwischen dem stark unterstöchiometrischen Brennstoff, dem Kühlmittel und der Alkali-(U,Pu)-Oxid-Phase angenommen werden. Diese Phase ist in der Schicht meistens nicht homogen ausgebildet, sondern ist nur an den Oberflächen der Brennstoffkörner entstanden.

Dagegen konnte der Wert  $O/M = 1,96$  in einer Untersuchung an der Probe 15 aus dem Stab G16 am unteren Ende der Brennstoffzone nicht bestätigt werden. Thermodynamische Rechnungen mit Hilfe des  $Mo/MoO_2$ -Gleichgewichts im Brennstoff /6.7/ und der experimentellen Ergebnisse an einer Querschnittsprobe in Höhe eines Risses im unteren Teil des Brennstabs zeigen (Abb.6.11), daß die Stöchiometrie des Brennstoffs nahezu radiusunabhängig ist und den Wert  $O/M = 1,99 - 0,003 + 0,005$  hat. Die Stöchiometrie des Brennstoffs ist im unteren Brennstoffbereich mit der höchsten Hülltemperatur durch die sehr starken Oxidationsreaktionen an der Hüllinnenseite (Abb.6.9, 6.10, 6.13, 6.14, 6.17 und 6.18), also durch das Sauerstoff-Potential dieser

Reaktionsschicht bestimmt. Hier ist also thermodynamisches Gleichgewicht zwischen dem leicht unterstöchiometrischen Brennstoff und der Hüllmaterialoxidschicht anzunehmen.

Unmittelbare Sauerstoff-Messungen im Brennstoff und der Reaktionszone wurden an Probe 18 des Stabs G16 durchgeführt (Abb.6.17 und 6.18). Das Sauerstoff-Verteilungsbild der Reaktionszone zwischen Brennstoff und Hülle und das Sauerstoff-Konzentrationsprofil zwischen Zentralkanal und Hülle zeigen deutlich einen starken Anstieg der Sauerstoff-Konzentration in der aus oxidierten Kühlmittel- und Hüllmaterialkomponenten bestehenden Reaktionszone um den Faktor zwei gegenüber dem reinen Brennstoff. Ein beträchtlicher Teil des ursprünglich an den Brennstoff gebundenen Sauerstoffs ist somit im unteren Brennstabbereich mit der höchsten Hülltemperatur zur Oxidation der inneren Hüllschicht verwendet worden.

#### 6.4 Brennstoff-Kühlmittel-Hüllmaterial-Reaktionen

In den defekten Stäben treten zwei verschiedene Typen oxidischer Reaktionsschichten zwischen Brennstoff und Hülle auf, deren Lage im Brennstab von der Hülltemperatur und der Stabileistung abhängt:

- (a) oxidierte Hüllmaterialkomponenten mit geringen Mengen Na-K-Oxid und Na-K-Ba-Chromat auf der Hüllinnenseite der Reaktionsschicht, die im Gefügebild hellgrau erscheinen (Abb.6.9, 6.13 und 6.17);
- (b) Na-K-Cs-U-Oxid-Phasen, die teilweise noch geringe Mengen Mo, Zr und Ba enthalten und im Gefügebild matt und dunkelgrau aussehen (Abb.6.2 und 6.6); die U-Konzentration in diesen Phasen liegt deutlich unter der im reinen Mischoxid.

Die vorwiegend Hüllmaterialkomponenten enthaltende Oxidschicht tritt nur am unteren heißen Brennstabende auf. Es wird ausschließlich ein flächenhafter Angriff der Hüllinnenseite beobachtet. Die Cs- und Te-Konzentration liegt hier im 1000 ppm-Bereich. Cr liegt als Oxid in erhöhter Konzentration oft an der Brennstoffseite der Reaktionszone angereichert vor. Der vor der Defektbildung dominierende Korngrenzenangriff, wie er in den unbeschädigten Stäben beobachtet wird, tritt stark zurück, da diese Zone von der fortschreitenden Reaktionsfront der Oxidschicht nach der Defektbildung aufgezehrt wird. In dem noch verbliebenen aufgelockerten Gefüge mit Korngrenzenangriff der Hülle konnten keine flüchtigen Spaltprodukte nachgewiesen werden (Abb.6.9, 6.13 und 6.17), hier wurden nur oxi-

dierte Hüllkomponenten beobachtet, wie aus den Sauerstoff-Verteilungsbildern in der Hüllangriffszone zu erkennen ist (Abb.6.17, 6.20 und 6.21). Die Brennstoffstöchiometrie im heißen Bereich des Brennstabs beträgt etwa  $O/M = 1,99$ , wie in Kap. 6.3 gezeigt wurde. Das diesem Wert entsprechende Sauerstoffpotential des Brennstoffs bei  $1000^{\circ}\text{C}$  stimmt mit dem Sauerstoffpotential des Stahl- $(\text{Fe,Cr})_3\text{O}_4$ -Gleichgewichts überein.

Im Bereich maximaler Stableistung dominiert ein anderes schichtförmiges Reaktionsprodukt zwischen Brennstoff und Hülle, das aus einem mehrkomponentigen Alkalimetall-Uran-Oxid besteht und eventuell als Uranat vorliegt (Abb.6.2 und 6.6). Eine quantitative Analyse konnte wegen ungenügend großer zusammenhängender Bereiche und abdampfenden Alkalimetalls während der Messung nicht durchgeführt werden, so daß im Augenblick nicht sichergestellt ist, ob es sich um ein Uranat der Form  $\text{KUO}_3$  oder  $\text{Na}_3\text{UO}_4$  handelt. In jedem Fall ist die Reaktion des Brennstoffs mit dem Kalium gegenüber der Reaktion mit dem Natrium bevorzugt. Wahrscheinlich ist  $\text{KUO}_3$  wegen seiner höheren Packungsdichte stabiler als  $\text{Na}_3\text{UO}_4$ , was die bevorzugte Kalium-Reaktion mit dem Brennstoff erklären könnte. Die bevorzugte Kalium-Reaktion hätte dann eine geringere Hüllaufweitung des defekten Stabs in einem Na-K-Kühlmittel als eine Natrium-Reaktion in einem reinen Na-Kühlmittel zur Folge. Eine Prüfung dieses Sachverhalts könnte im Defektstabprogramm erfolgen.

### 6.5 Reaktionsverhalten der Brutstofftablette

Aus dem Stab G12 wurde die Brutstofftablette etwa 1 mm unterhalb des unteren Übergangs Brennstoff-Brutstoff rasterelektronenmikroskopisch und mikrobereichsanalytisch untersucht (Abb.6.19, 6.20 und 6.21). Im Gefügebild in Abb.6.20 ist zu erkennen, daß zwischen dem Brutstoff und der Hülle zwei schichtförmige Reaktionszonen auftreten, deren innere aus Cs-U-Pu-Oxid und deren äußere vorwiegend aus oxidierten Hüllmaterialkomponenten besteht. Im Inneren der Brutstofftablette konnte in und zwischen den Körnern auch in ausgebrochenen Stellen des Kornverbands kein Cäsium festgestellt werden (Abb.6.19). Der durch das eingedrungene Kühlmittel induzierte schichtförmige Hüllangriff setzt sich in Höhe der Brutstofftablette als reiner Korngrenzenangriff im Hüllinneren fort (Abb.6.20 und 6.21), jedoch werden auch hier in den Korngrenzen außer oxidierten Hüllmaterialkomponenten keine Spaltprodukte nachgewiesen. Der schichtförmige und der

Korngrenzenangriff an der Hüllinnen- und -außenseite hat im Bereich der unteren Brutstofftablette des defekten Stabs G12 zu einer Hüllschwächung geführt, die die unangegriffene Hülle bis auf 170  $\mu\text{m}$  reduziert hat.

### 6.6 Aufkohlung der Hülle

Die Kohlenstoff-Konzentration im Hüllmaterial wurde in zwei Querschnittsebenen des Stabs G16 - Probe 6 im Bereich maximaler Stableistung und Probe 15 im Bereich maximaler Hülltemperatur - durch Punktanalysen bestimmt (Abb.6.15). In beiden Proben wird ein leichter Anstieg der Kohlenstoff-Konzentration im äußeren Bereich der Hülle beobachtet, die Probe mit der niedrigeren Hülltemperatur enthält dabei die höhere Kohlenstoff-Konzentration.

Bei der Würdigung der Absolutwerte für die Kohlenstoff-Konzentration sind drei Punkte zu beachten:

- (a) während der Präparation der Probe mit 0,25  $\mu\text{m}$ -Diamantpaste können Polierreste in das Hüllmaterial hineingetragen werden, so daß nicht auszuschließen ist, daß alle Meßpunkte um einen konstanten Wert zu hoch sind;
- (b) jeder Meßpunkt stellt den Mittelwert einer etwa 7  $\mu\text{m}^2$  großen Fläche dar, so daß auch die lichtoptisch nicht sichtbaren (Nb,V)C- und  $\text{Cr}_{23}\text{C}_6$ -Ausscheidungen während der Messung erfaßt werden können; die angegebene Kohlenstoff-Konzentration bezieht sich also nicht auf die Stahlmatrix, sondern auf den Gesamt-Kohlenstoff im betreffenden Meßpunkt von etwa 7  $\mu\text{m}^2$  Fläche;
- (c) die Kohlenstoff-Profile wurden unter Verwendung einer unbestrahlten Vergleichsprobe aus derselben Charge mit 0,05% C gewonnen.

Die Aufkohlung der Hüllaußenseite erfolgt wahrscheinlich durch den Kohlenstoff im Na-K-Kühlmittel, der bei der Zersetzung von Kohlenwasserstoff-Resten im Gasplenum des Kühlmittelkreislaufs in Lösung gegangen ist.

### 6.7 Zusammenfassung

Die Mikrobereichsanalyse hat ergeben, daß die radiale Uran-Plutonium-Umverteilung mit einer Plutonium-Anreicherung am Zentralkanal bei einer Defektbildung in einem Mischoxid-Brennstab zum größten Teil wieder ausgeglichen wird, dafür aber ein starker axialer Uran-Transport aus

dem Brennstabbereich maximaler Stabileistung erfolgt. Die durch das Kühlmittel induzierten Reaktionen zwischen Brennstoff und Hülle treten als zwei Typen auf: Im Bereich maximaler Stabileistung werden Na-K-Cs-U-Oxid-Phasen zwischen Brennstoff und Hülle beobachtet, durch die der Brennstoff in einen stark unterstöchiometrischen Bereich reduziert wird; im Bereich maximaler Hülltemperatur werden schichtförmige Reaktionszonen aus oxidierten Hüllmaterialkomponenten beobachtet, in den Korngrenzenspitzen zusätzlich Reste von K-Na-U-Oxid und reine Hüllmaterial-Oxide; flüchtige Spaltprodukte, wie Cäsium und Tellur werden in den Korngrenzen nicht festgestellt; durch die genannten Reaktionsprodukte wird der Brennstoff in diesem Brennstabbereich in einen schwach unterstöchiometrischen Bereich reduziert. Zwischen Hülle und Brutstoff wird eine Cs-Uranat-Plutonatschicht gebildet, das Innere der Brutstofftablette ist jedoch cäsiumfrei. Die Hülle wird von der Außenseite durch den im Kühlmittel gelösten Kohlenstoff geringfügig aufgekohlt.

#### Literatur

- /6.1/ D.Geithoff, K.Kummerer, KFK-1377 (1972)
- /6.2/ K.Ehrlich, O.Götzmann, H.Kleykamp, L.Schäfer, B.Schulz, H.Zimmermann, W.Dienst, KFK-1960 (1974)
- /6.3/ M.Bober, H.Kleykamp, G.Schumacher, Nucl.Technol.26 (1975) 172
- /6.4/ H.Kleykamp, Reaktortagung Karlsruhe 1973, Tagungsber.S.299
- /6.5/ H.Kleykamp, Reaktortagung Berlin 1974, Tagungsber. S.253
- /6.6/ M.G.Adamson, GEAP-12519 (1974)
- /6.7/ H.Kleykamp, in KFK-1275/1 (1975) 112-13



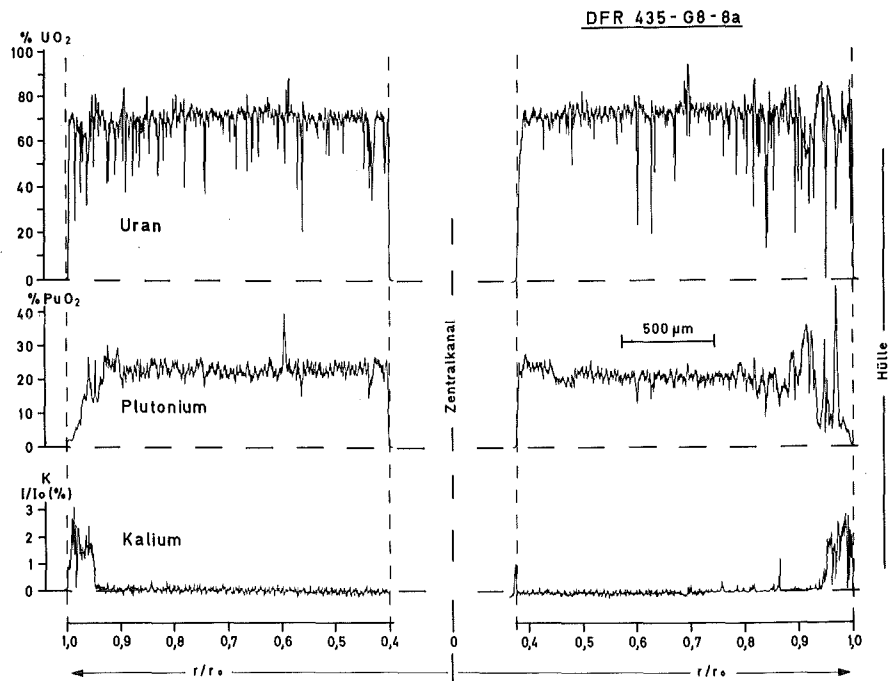
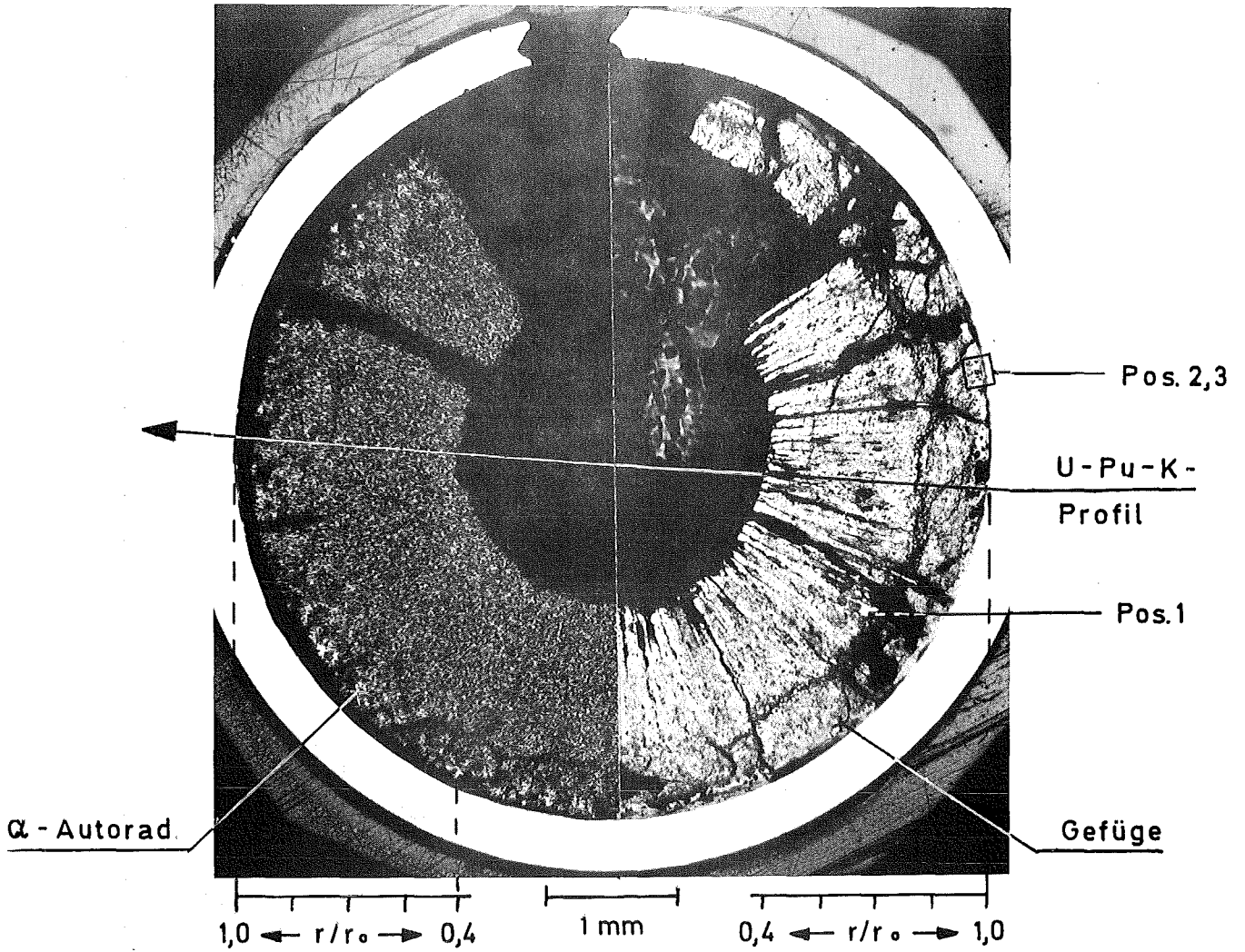


Abb.6.1: Gefüge,  $\alpha$ -Autoradiographie und diametrales Uran-, Plutonium- und Kalium-Konzentrationsprofil, Stab G8, Probe 8a; die äußere Brennstoffzone ist nahezu Pu-frei; die Positionen 1 bis 3 beziehen sich auf die nachfolgenden Abbildungen 6.2 bis 6.4

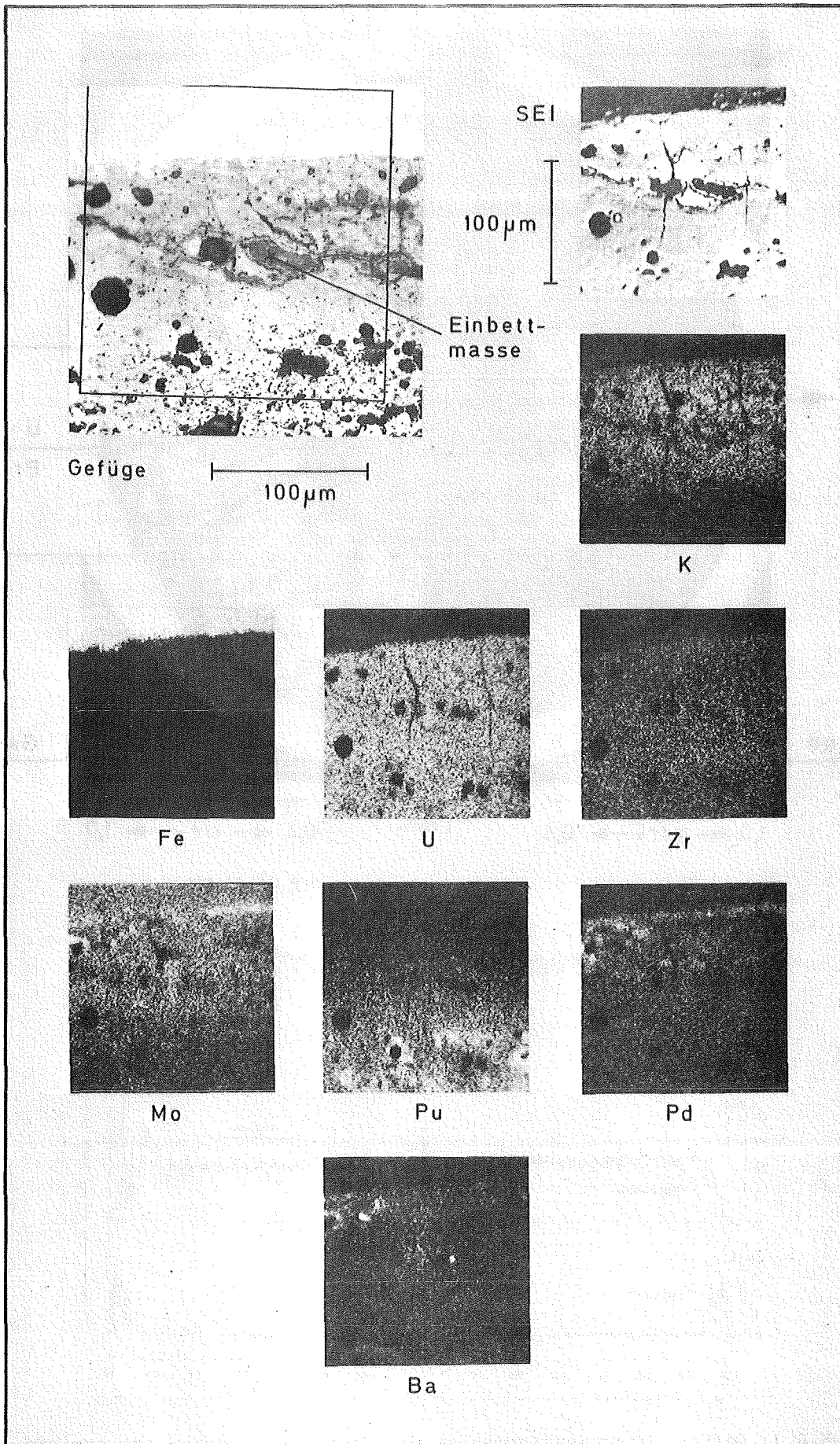


Abb.6.2: Gefügeausschnitt (Pos.2 in Abb.6.1) sowie Sekundärelektronenbild (SEI) und Elementverteilungsbilder desselben Ausschnitts; die Reaktionszone besteht aus K-Ba-U-Mo-Oxid; Stab G8, Probe 8a

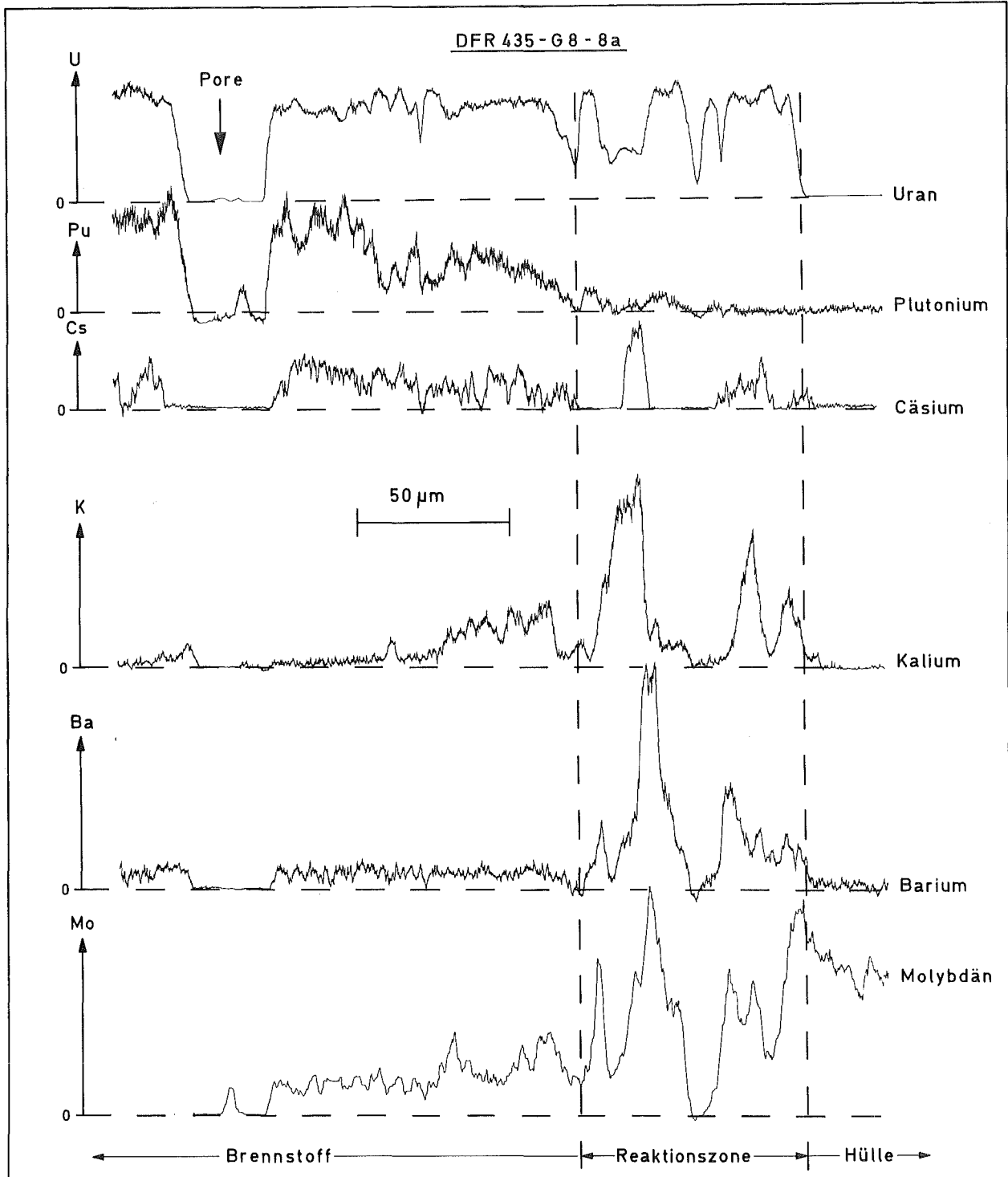


Abb.6.3: Relative Konzentrationsprofile einiger Elemente in der Reaktionszone zwischen Hülle und Brennstoff (Pos.3 in Abb.6.1); Hauptkomponenten in der Reaktionszone: Na, K, Cs, Ba, Mo und U; Stab G8, Probe 8a

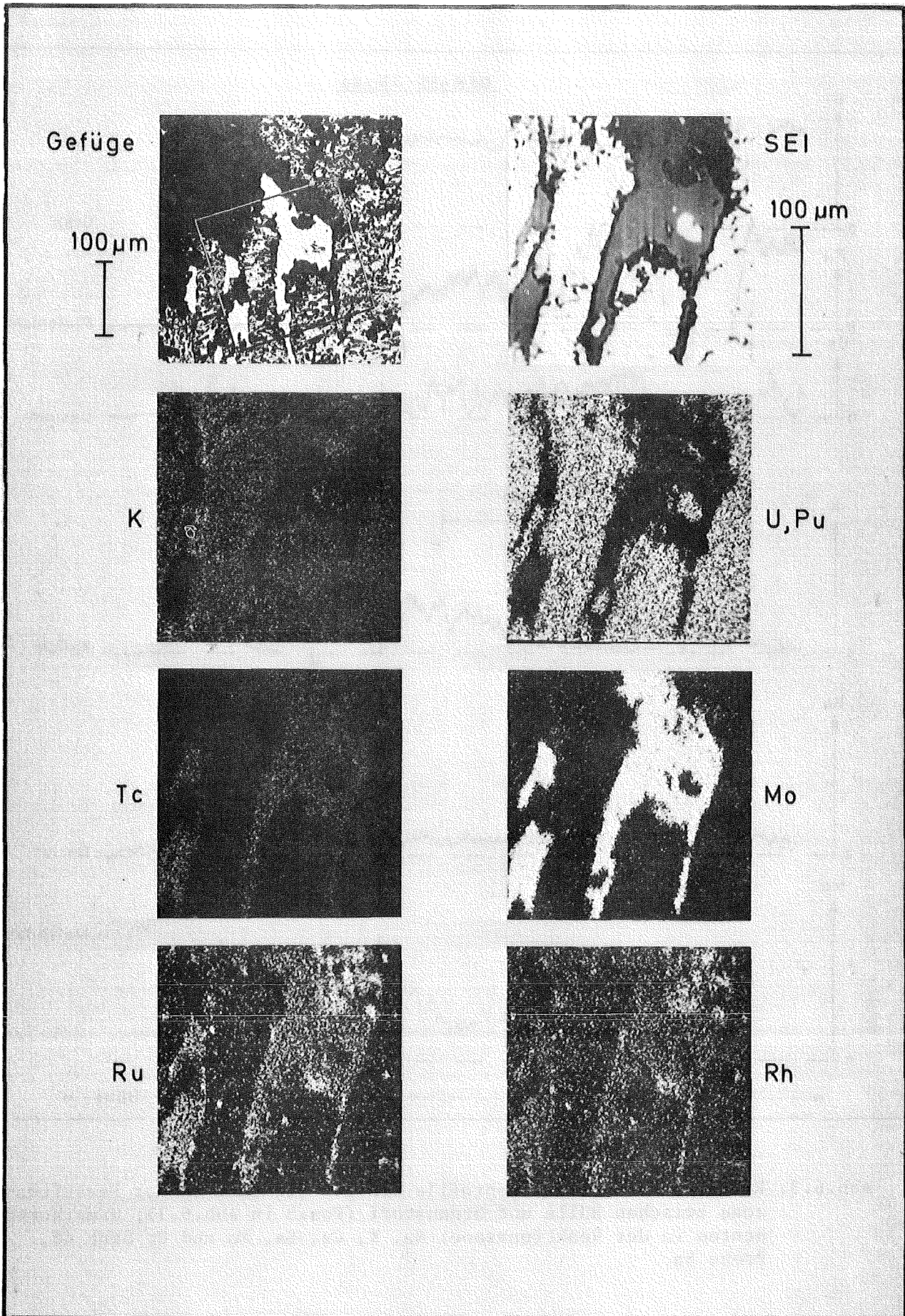


Abb.6.4: Mehrphasige metallische Ausscheidung im Brennstoff (Pos.1 in Abb.6.1) mit den Hauptkomponenten Mo, Tc, Ru und Rh; Stab G8, Probe 8a

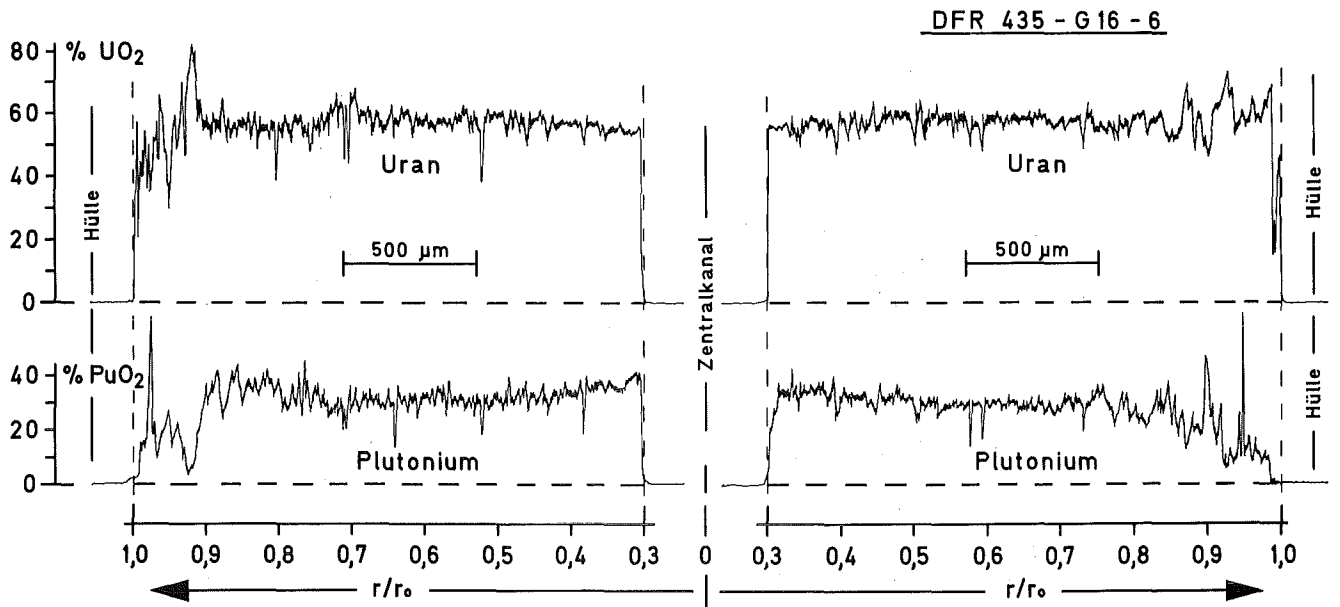
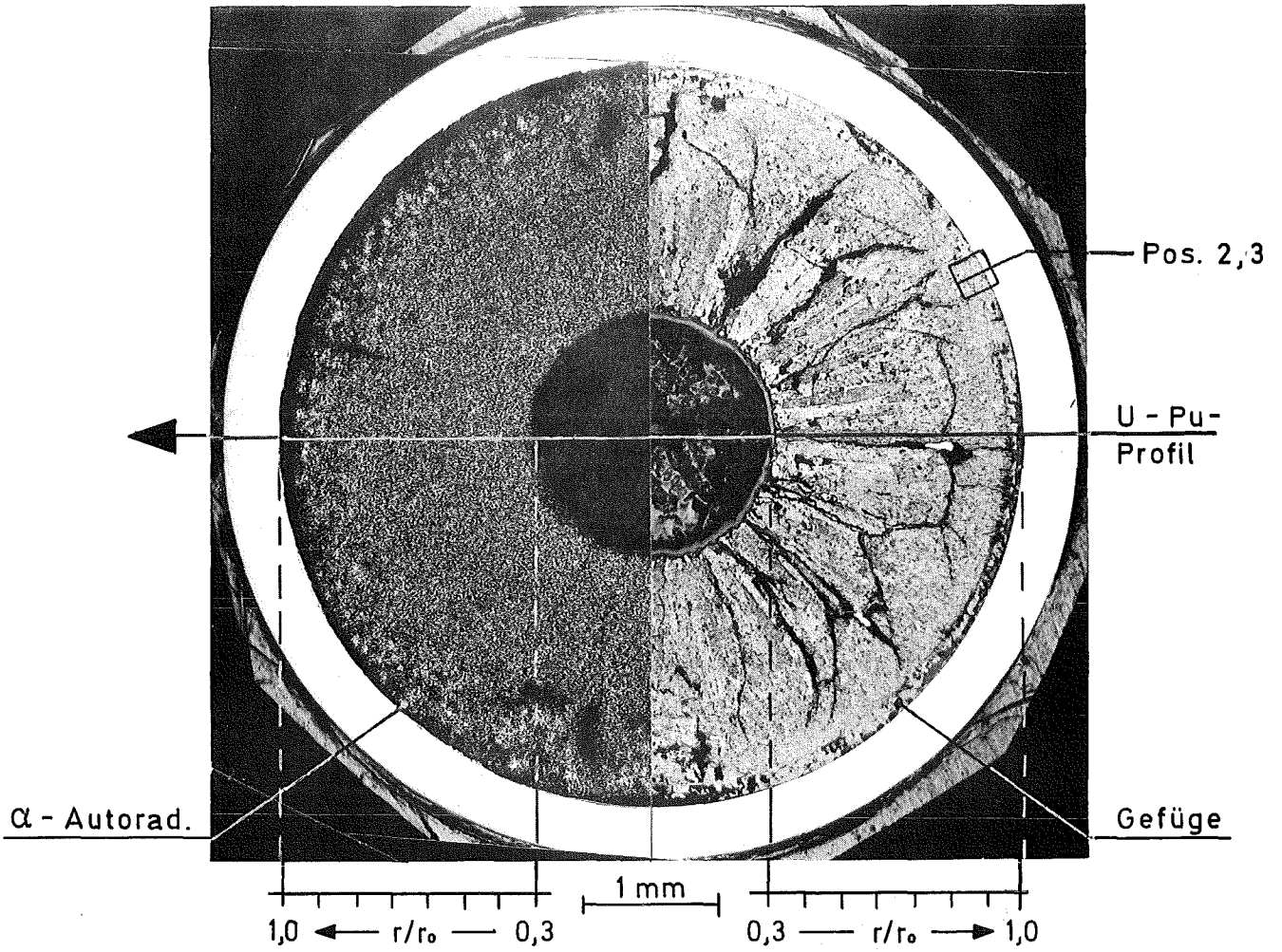


Abb.6.5: Gefüge,  $\alpha$ -Autoradiographie und diametrales Uran- und Plutonium-Konzentrationsprofil, Stab G16, Probe 6; die Positionen 2 und 3 beziehen sich auf die nachfolgenden Abbildungen 6.6 und 6.7

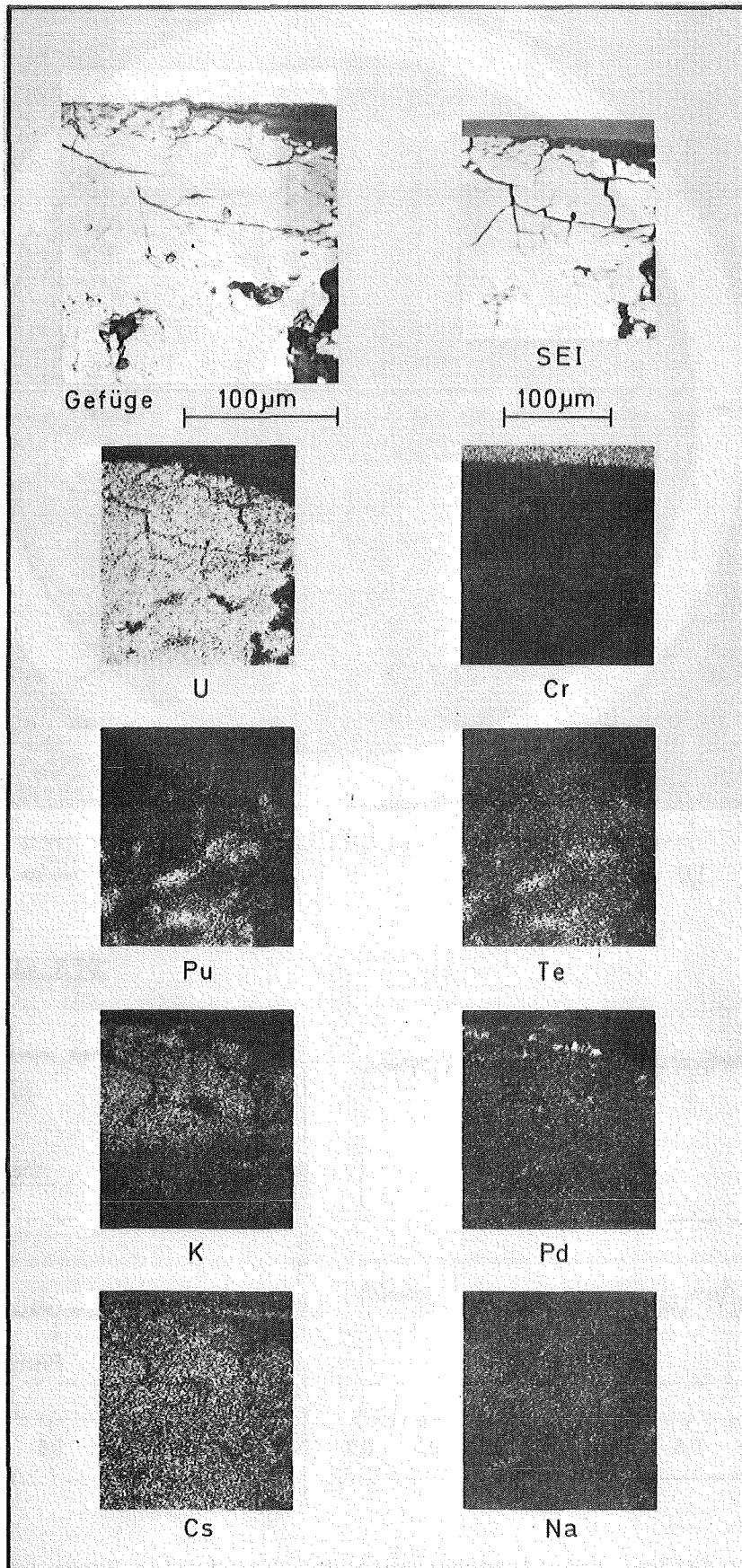


Abb.6.6: Gefügausschnitt (Pos.2 in Abb.6.5), Sekundärelektronenbild (SEI) und Elementverteilungsbilder desselben Ausschnitts; die Reaktionszone besteht aus Na-K-Cs-U-Oxid, ferner aus Pu-Tellurid-Ausscheidungen; Stab G16, Probe 6

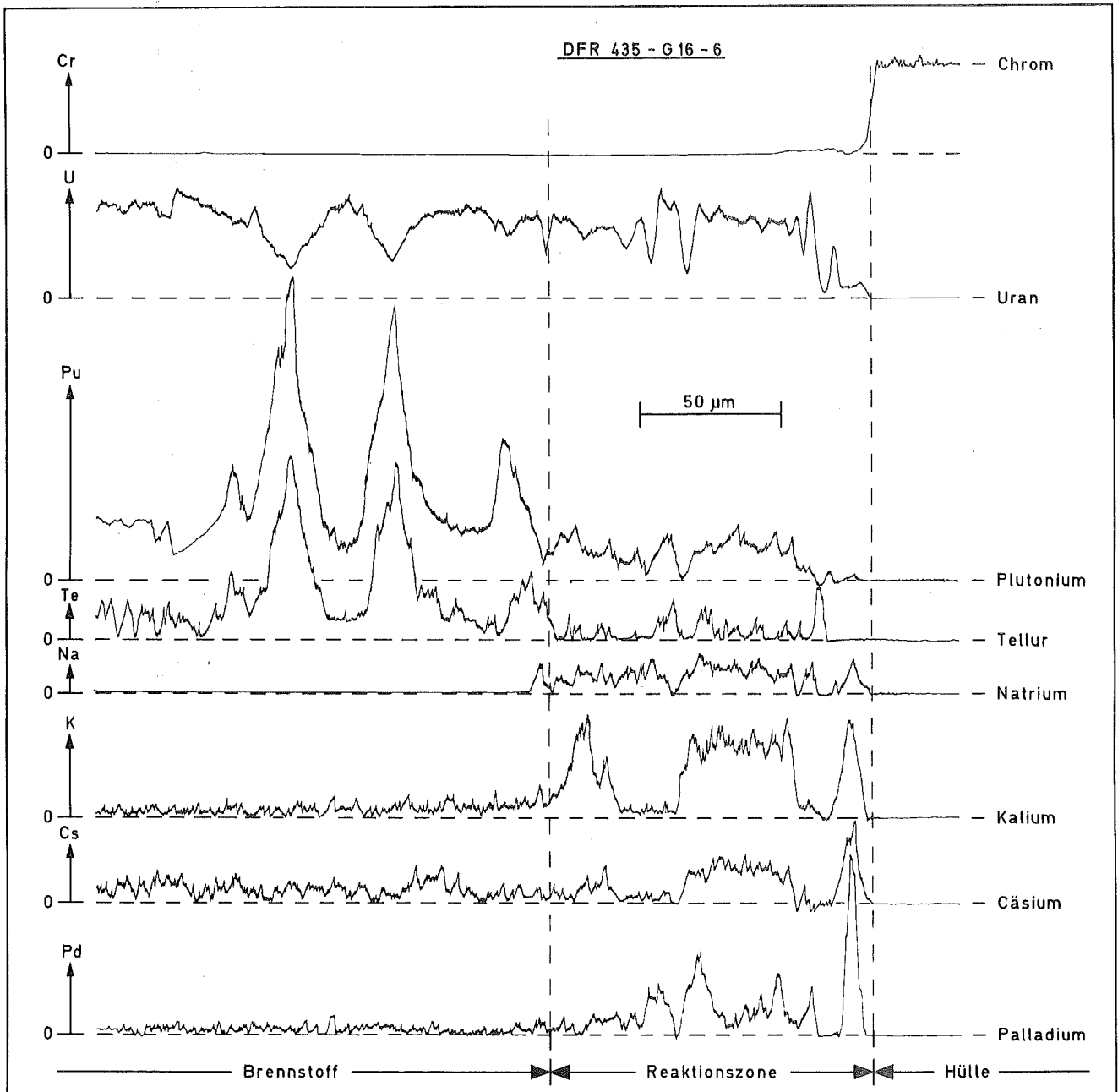


Abb.6.7: Relative Konzentrationsprofile einiger Elemente in der Reaktionszone zwischen Hülle und Brennstoff (Pos.3 in Abb.6.5); Hauptkomponenten in der Reaktionszone: Na, K, Cs und U; Stab G16, Probe 6

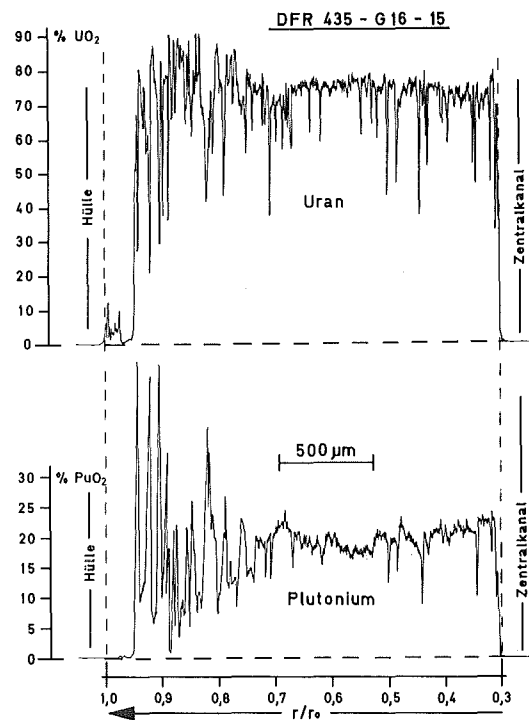
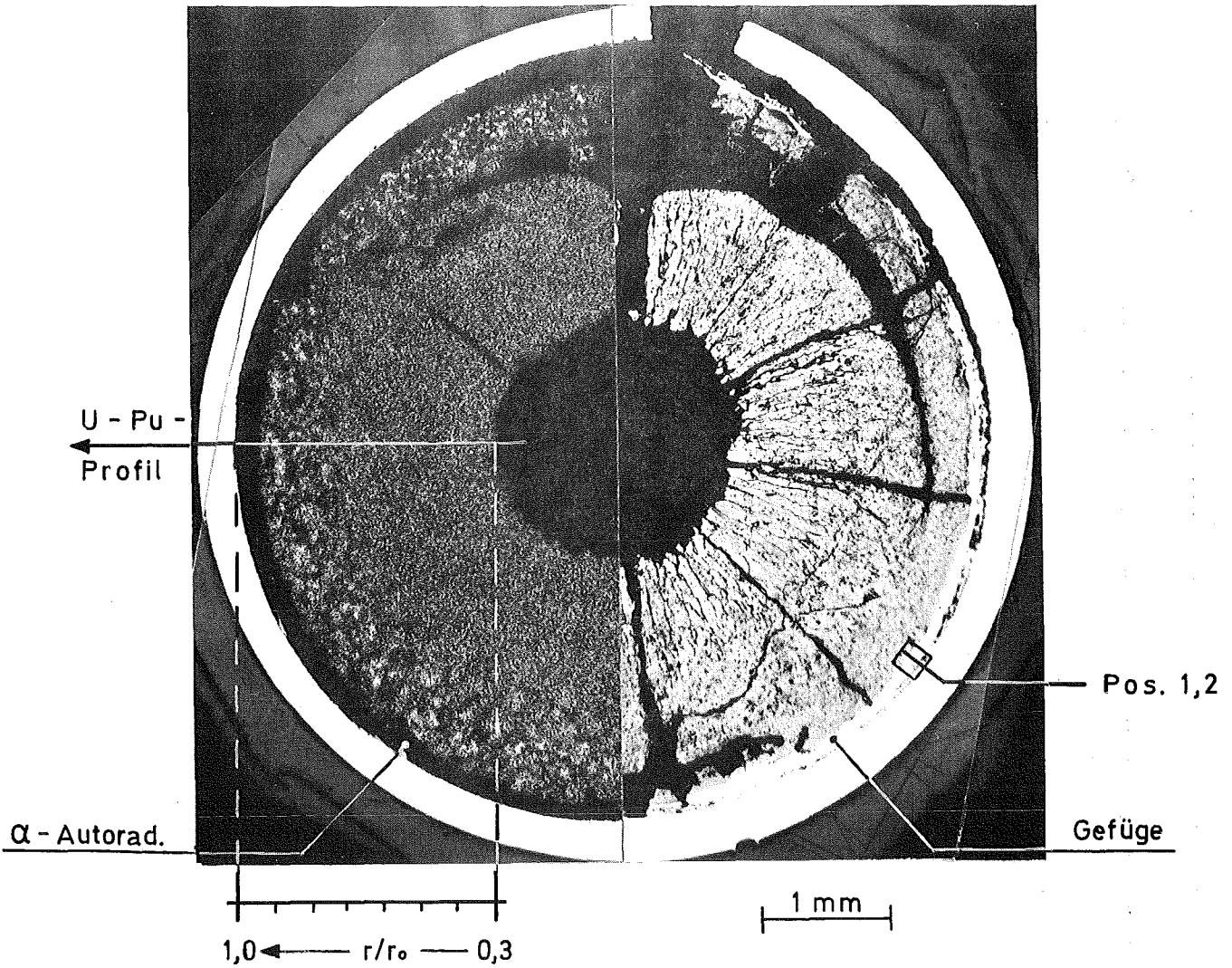


Abb.6.8: Gefüge,  $\alpha$ -Autoradiographie und radiales Uran- und Plutonium-Konzentrationsprofil, Stab G16, Probe 15; die Positionen 1 und 2 beziehen sich auf die nachfolgenden Abbildungen 6.9 und 6.10



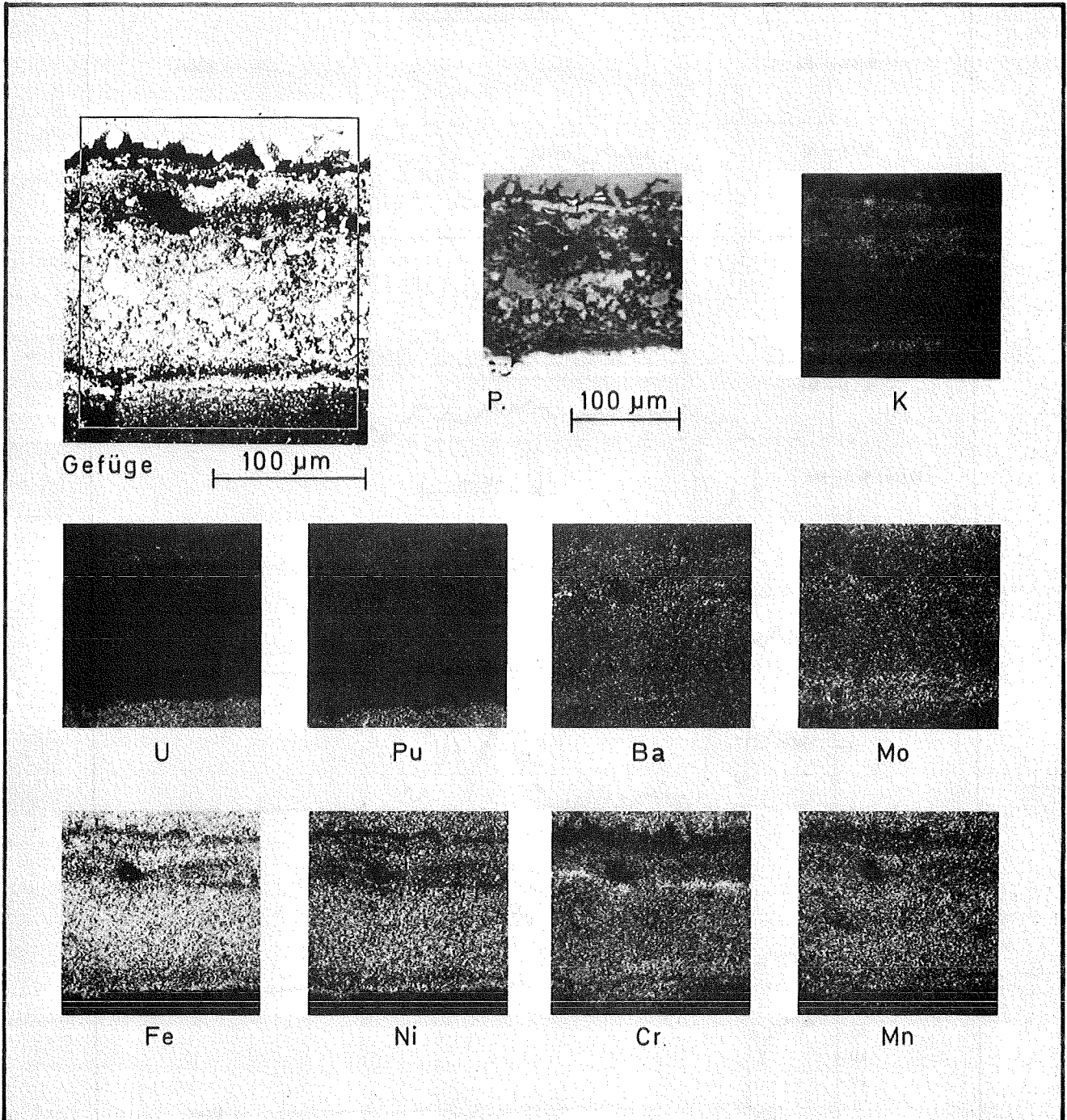


Abb.6.9: Gefügebrauch (Pos.1 in Abb.6.8), negatives Probenstrombild (P.) und Elementverteilungsbilder desselben Ausschnitts; die Reaktionszone ist nahezu brennstofffrei und besteht vorwiegend aus oxidierten Hüllmaterialkomponenten; Stab G16, Probe 15

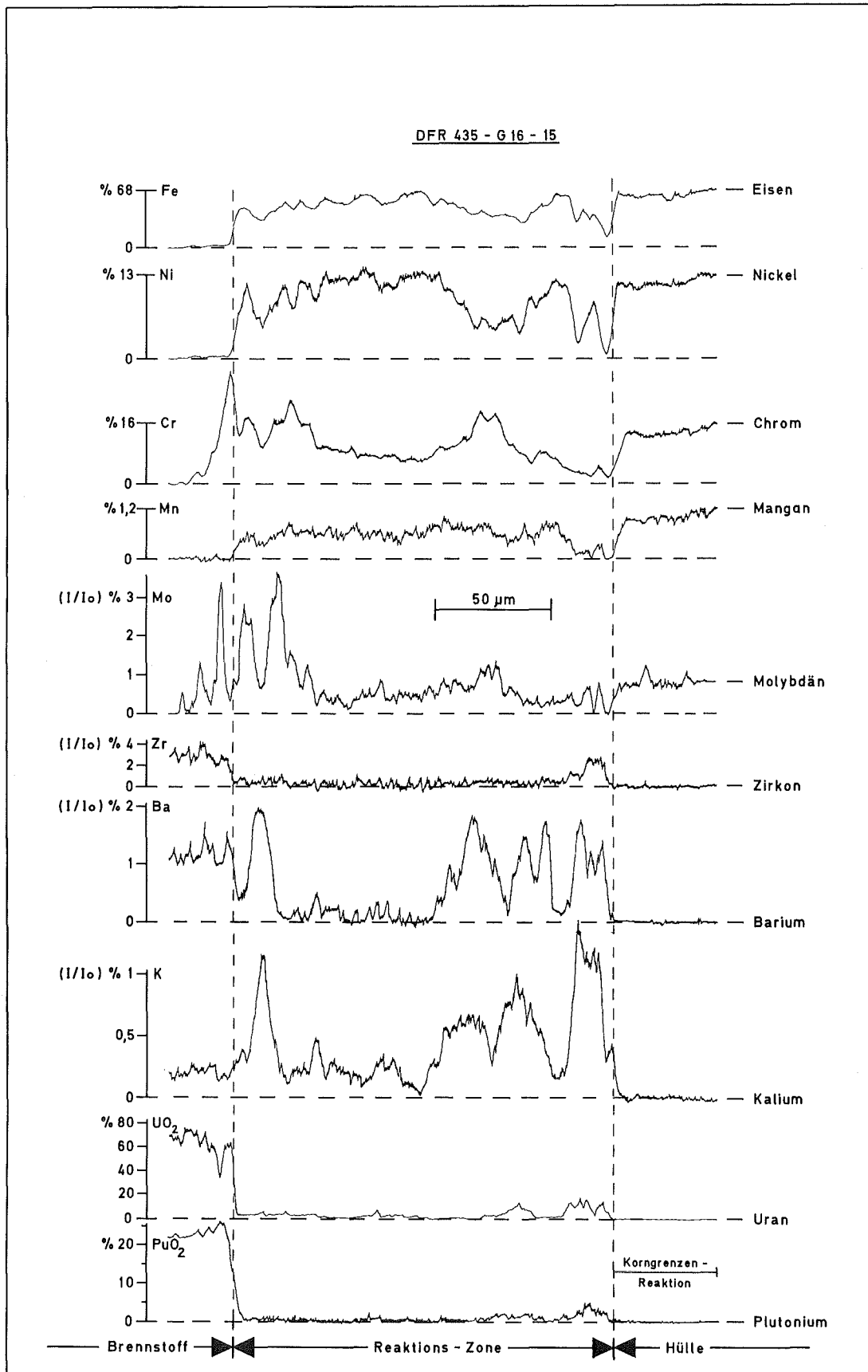


Abb.6.10: Relative Konzentrationsprofile in der Reaktionszone zwischen Brennstoff und Hülle (Pos.2 in Abb.6.8); die Reaktionszone ist nahezu brennstofffrei und besteht vorwiegend aus oxidierten Hüllmaterialkomponenten und K-Ba-Zirkonat; Stab G16, Probe 15

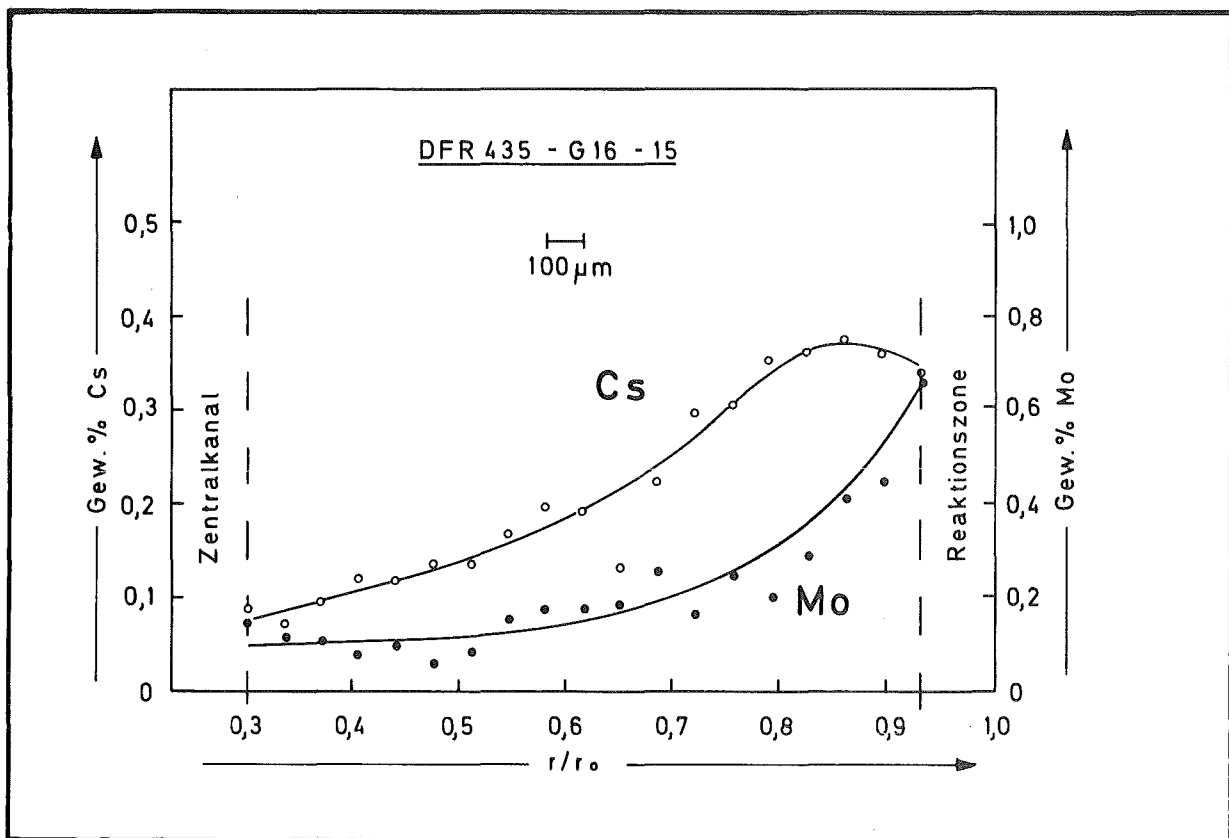
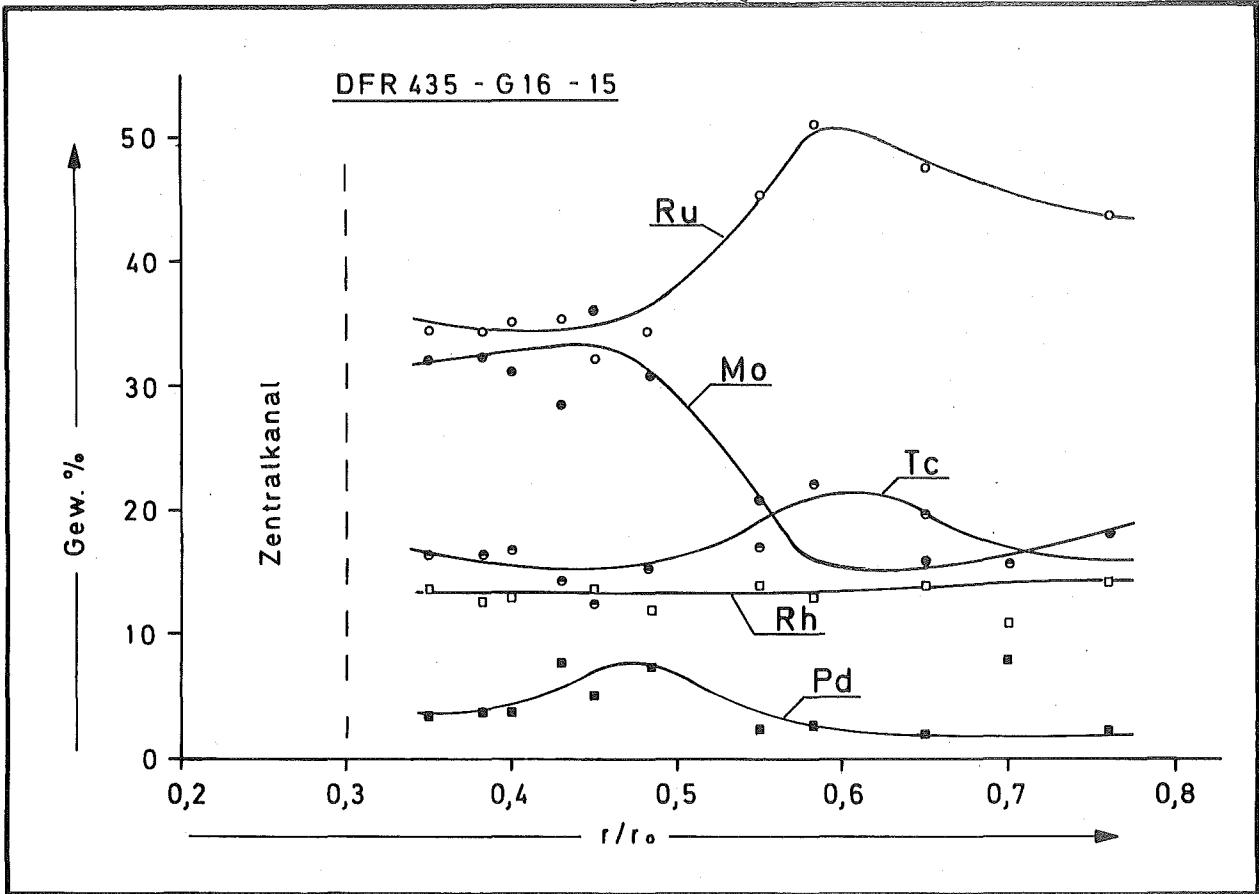


Abb.6.11: Mo-, Tc-, Ru-, Rh- und Pd-Konzentration in den metallischen Ausscheidungen (oberes Bild) sowie Konzentration des im Brennstoff gelösten Mo und Cs (unteres Bild) in Abhängigkeit vom relativen Brennstoffradius; Stab G16, Probe 15

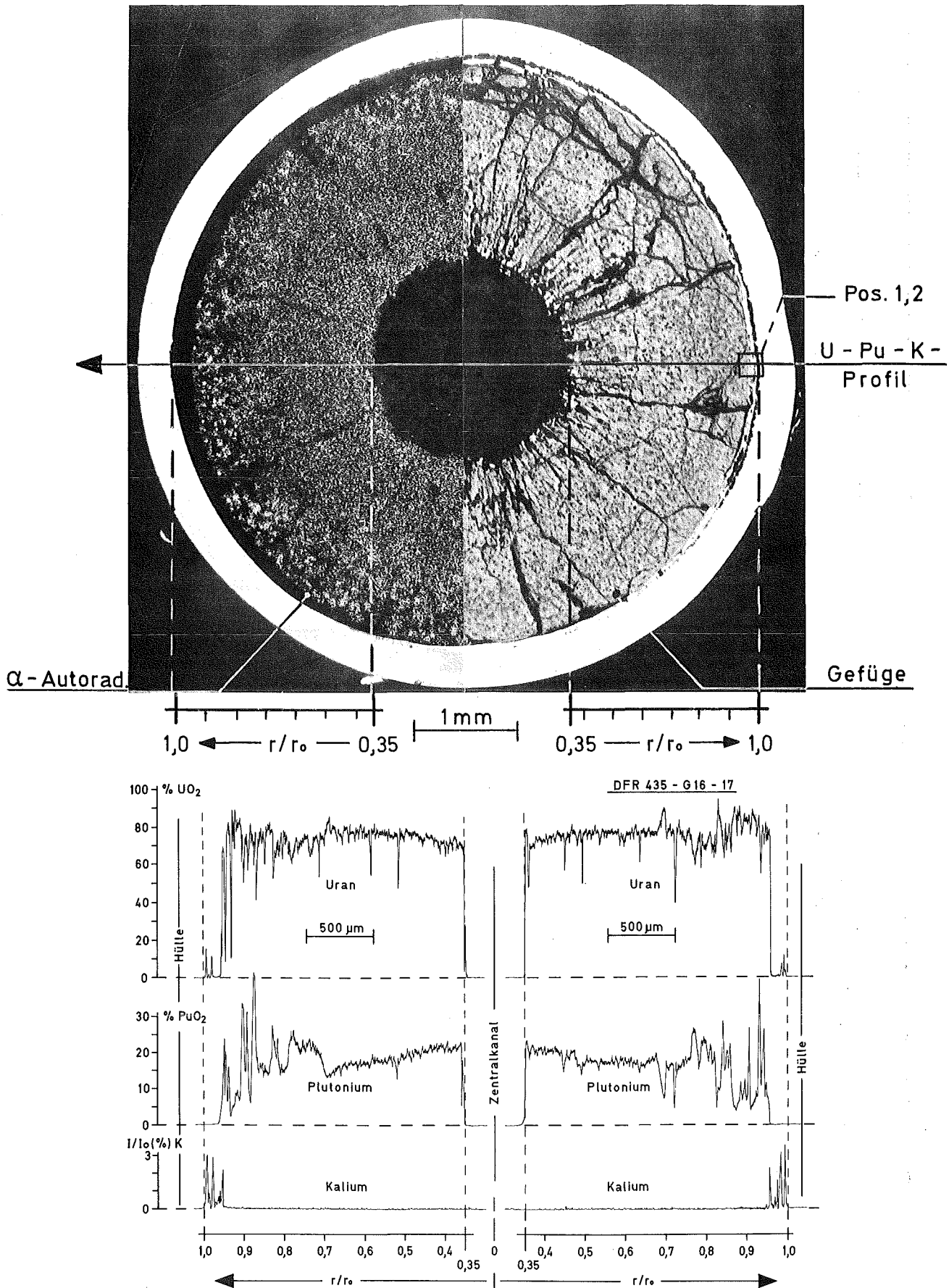


Abb.6.12: Gefüge,  $\alpha$ -Autoradiographie und diametrales Uran-, Plutonium- und Kalium-Konzentrationsprofil, Stab G16, Probe 17; die Reaktionszone ist nahezu brennstofffrei; die Positionen 1 und 2 beziehen sich auf die Abb.6.13 und 6.14

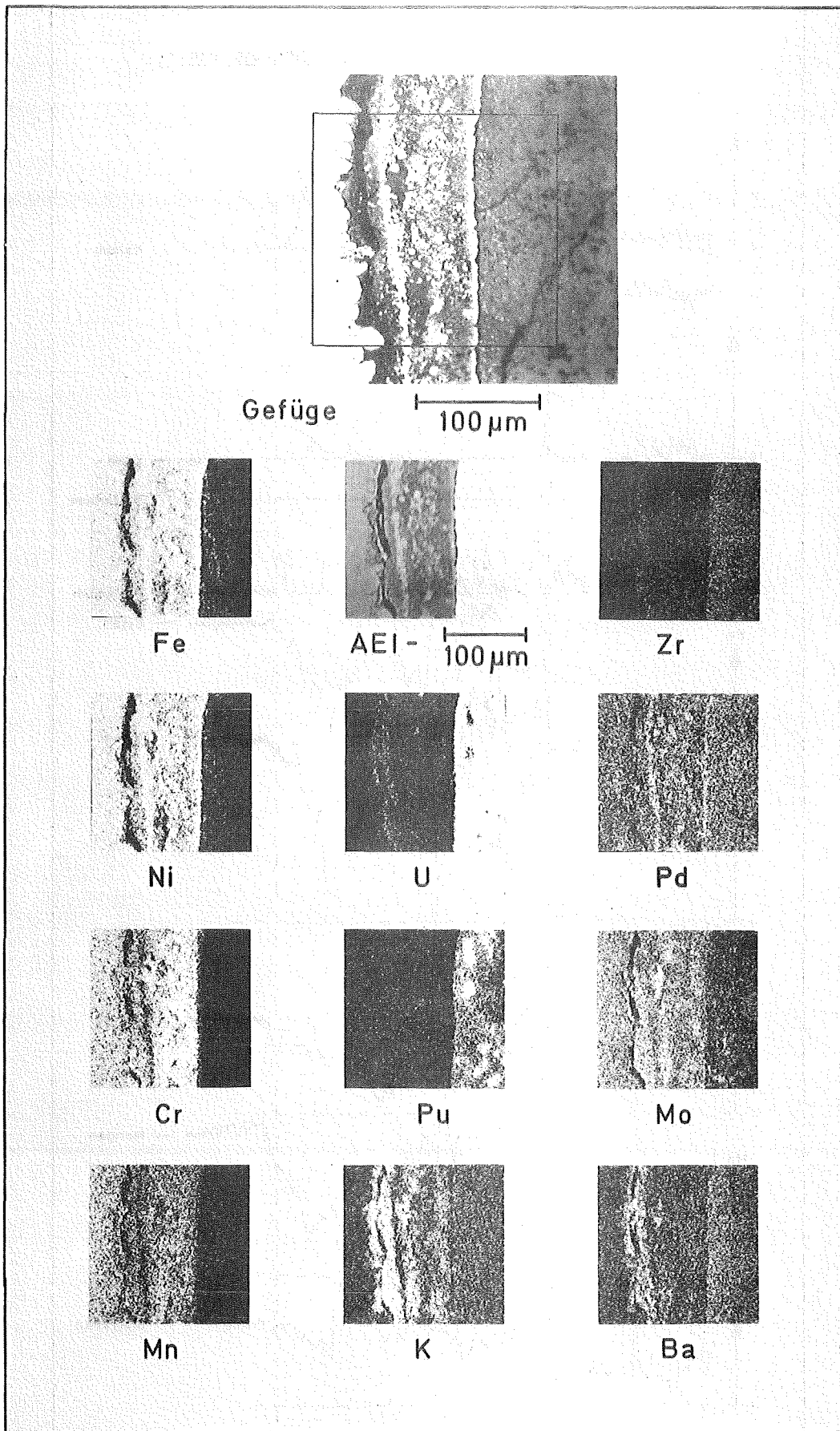


Abb.6.13: Gefügeausschnitt (Pos.1 in Abb.6.12), negatives Probenstrom-  
bild (AEI-) und Elementverteilungsbilder desselben Ausschnitts;  
die Reaktionszone besteht vorwiegend aus oxidierten Hüllmaterial-  
komponenten, mehrkomponentigen K-Ba-Oxiden und aus Pd-Fe-Ni-  
Ausscheidungen in der Reaktionszone und im Brennstoff; Stab G16,  
Probe 17

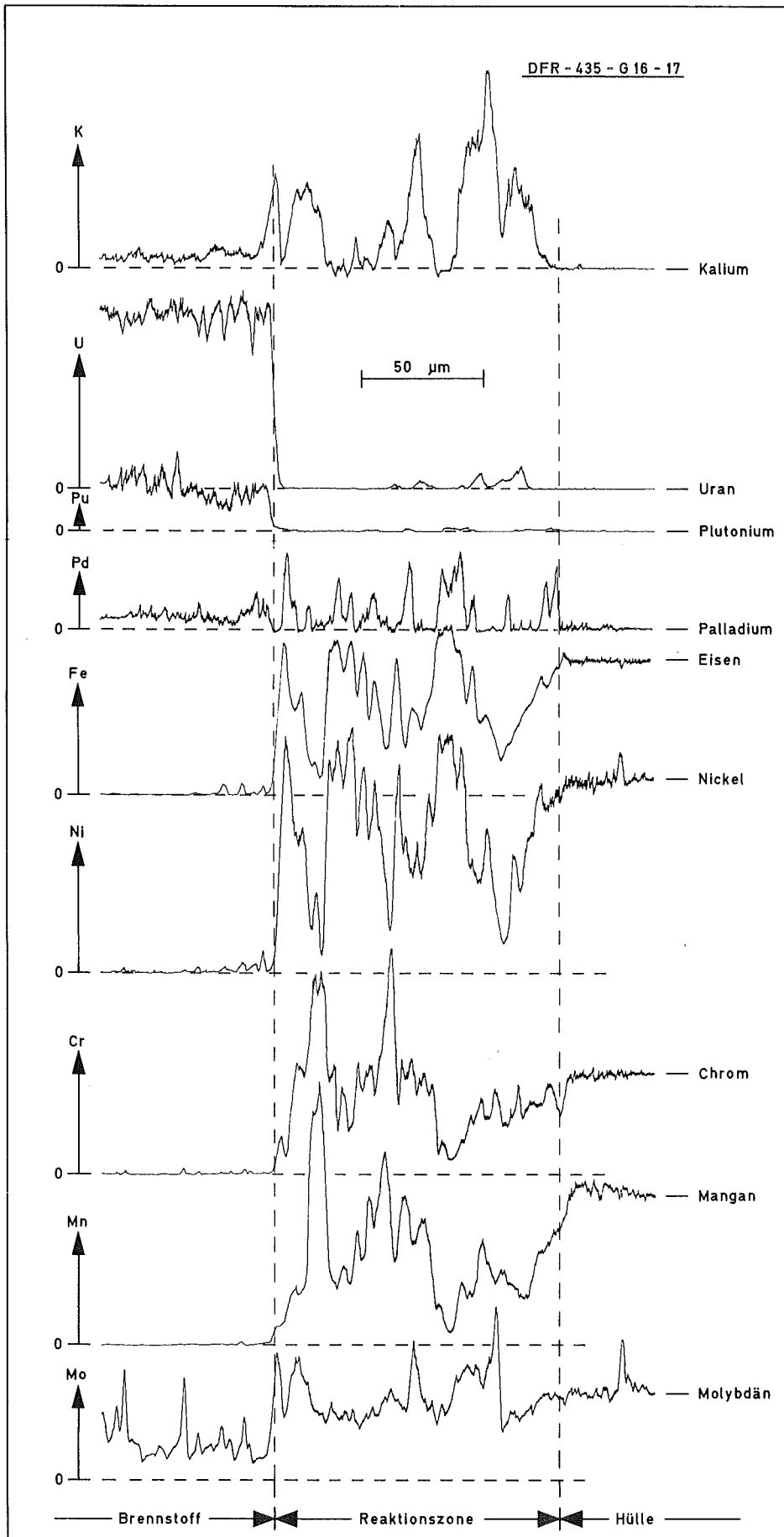


Abb.6.14: Relative Konzentrationsprofile einiger Elemente in der Reaktionszone zwischen Hülle und Brennstoff (Pos.2 in Abb.6.12); die Reaktionszone ist nahezu brennstofffrei und besteht vorwiegend aus oxidierten Hüllmaterialkomponenten, K-Chromat-Manganat und Fe-Ni-Pd-Ausscheidungen; Stab G16, Probe 17

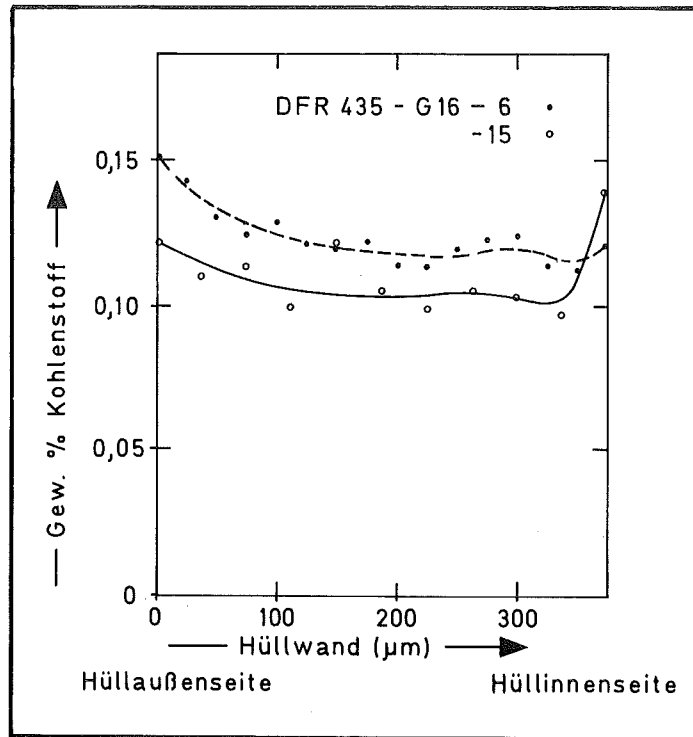


Abb.6.15: Kohlenstoff-Konzentrationsprofile in der Hülle der Proben 6 und 15 des Stabes G16. Die Profile ergeben sich unter Verwendung einer unbestrahlten Vergleichsprobe aus derselben Charge mit 0,05% C

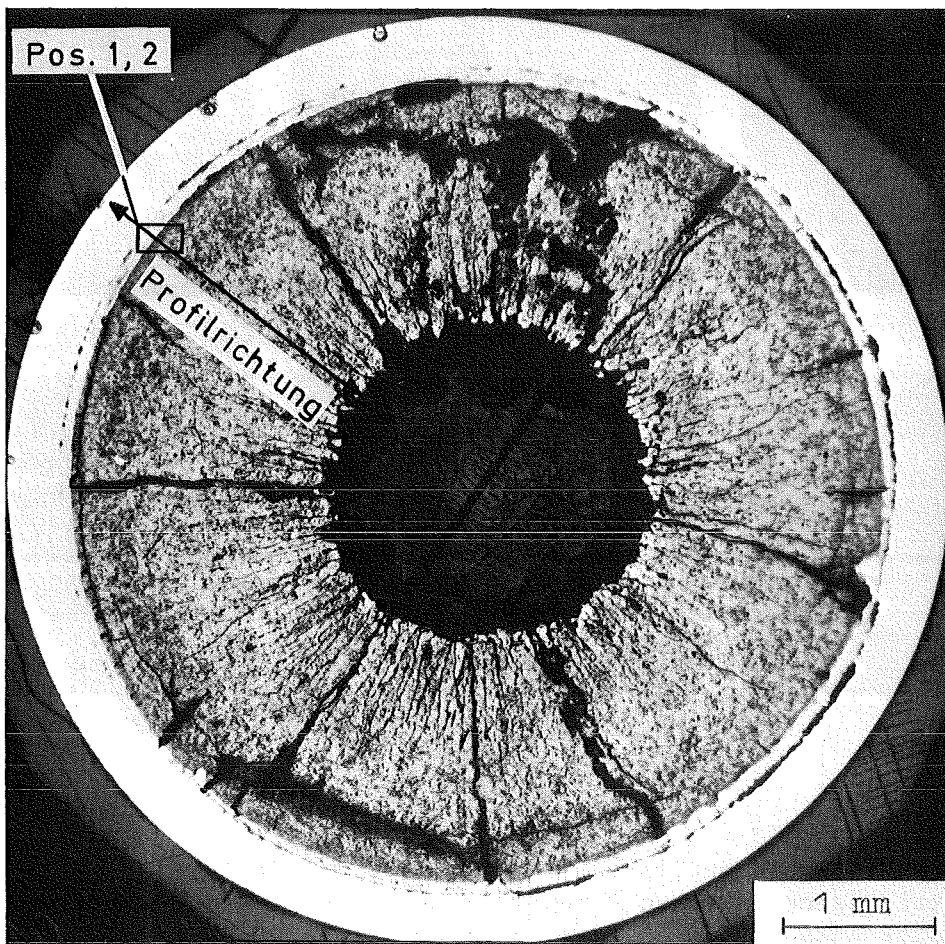


Abb.6.16: Gefüge der Probe 18 aus Stab G16; die Positionen 1 und 2 beziehen sich auf die nachfolgenden Abbildungen 6.17 und 6.18

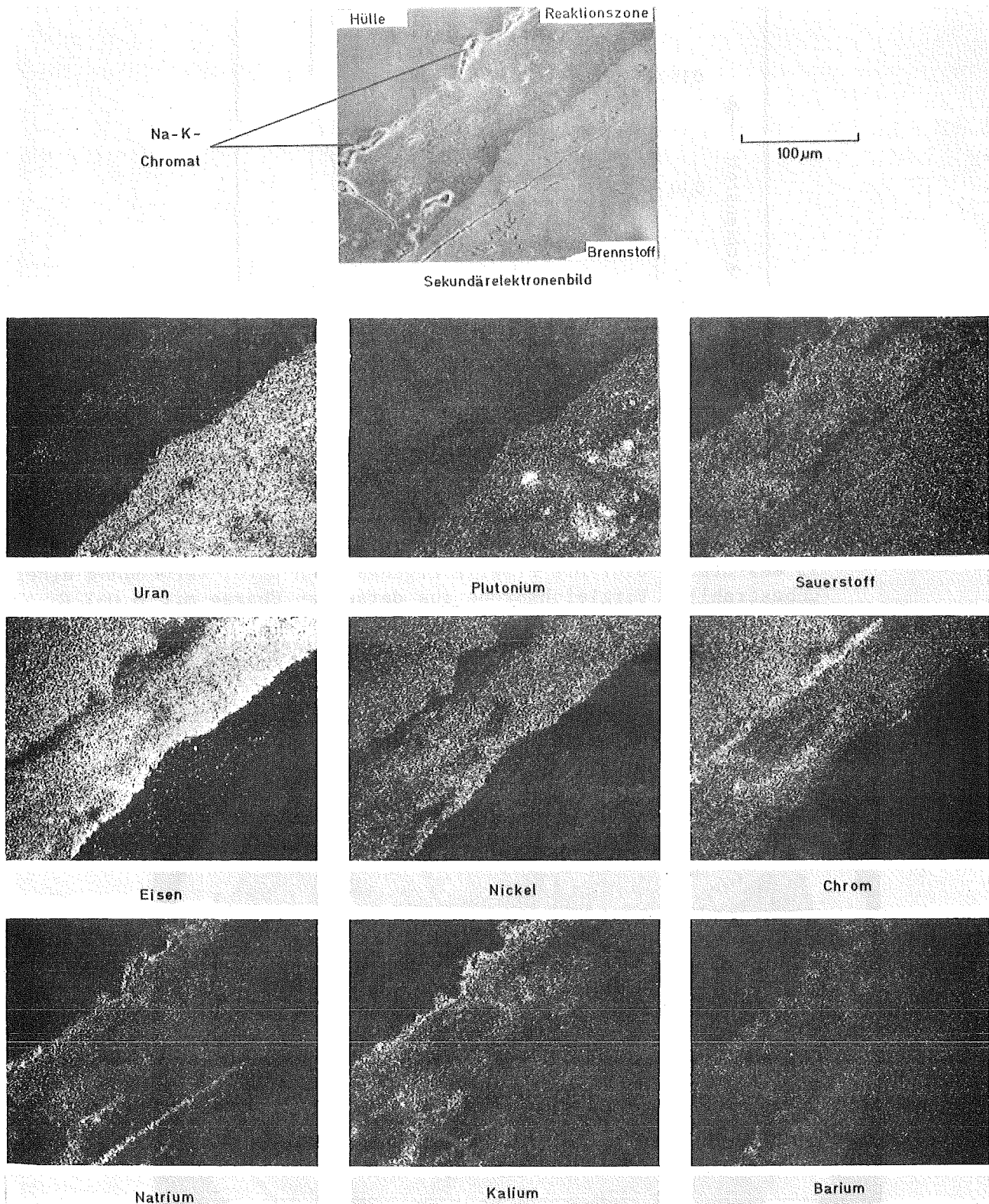


Abb.6.17: Sekundärelektronenbild und Elementverteilungsbilder in der Reaktionszone zwischen Brennstoff und Hülle; an der Hülle Na-K-Chromat-Ausscheidungen, die Reaktionszone besteht im wesentlichen aus aufoxidierten Hüllmaterialkomponenten; Stab G16, Probe 18



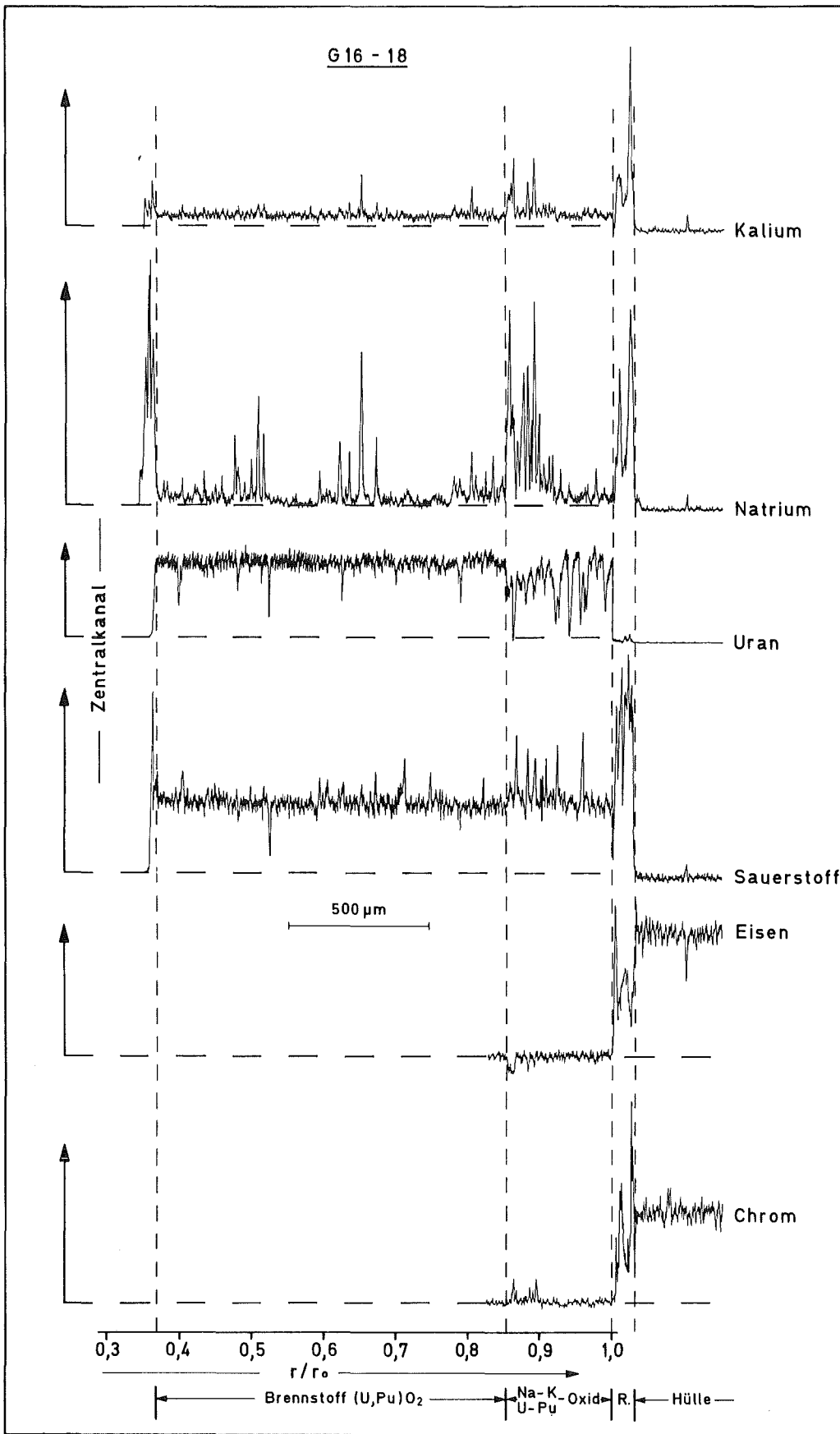
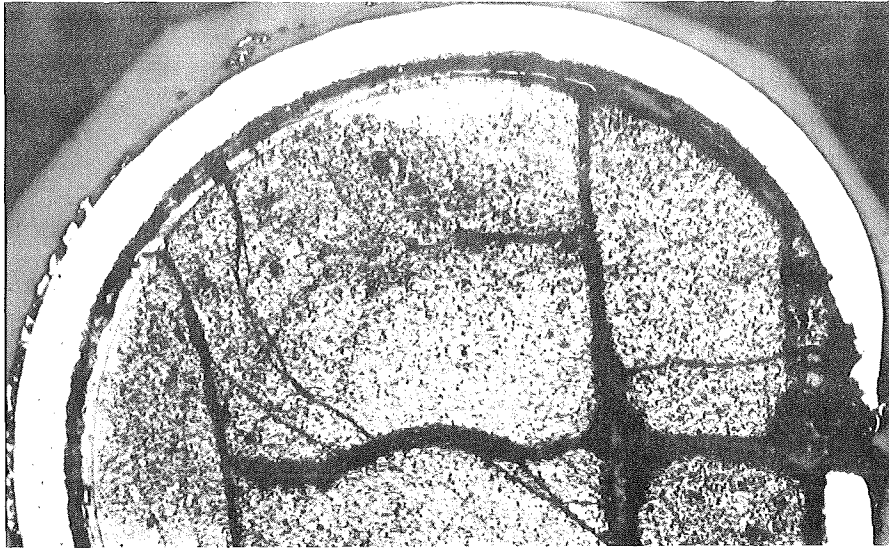
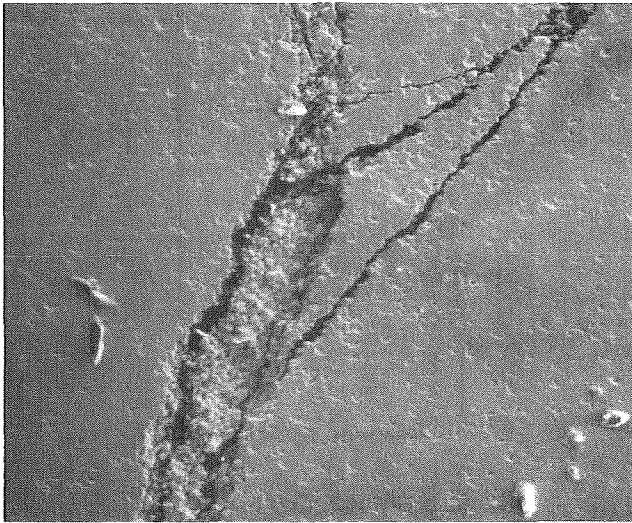


Abb.6.18: Relative Konzentrationsprofile einiger Elemente zwischen Zentralkanal und Hülle der Probe 18 aus Stab G16. Anhand des Sauerstoff-Konzentrationsprofils sind die Na-K-U-Pu-Oxid-Zone zwischen 0,85 und 1,0 des relativen Brennstoffradius und die Na-K-haltige oxidierte Hüllinnenschicht (R.) außerhalb des Brennstoffs erkennbar

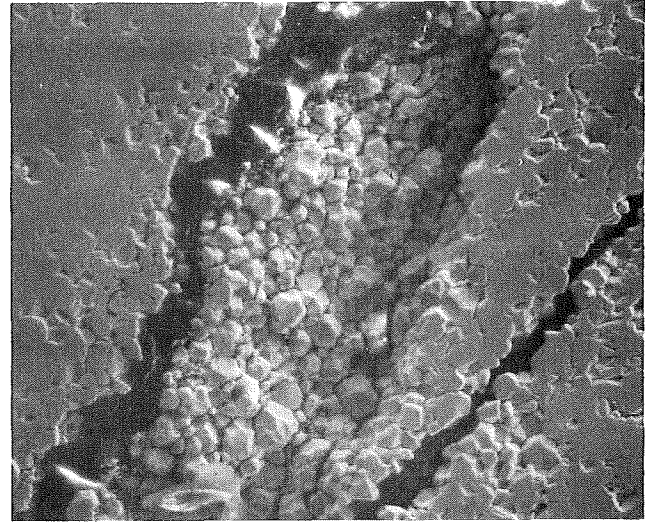


Gefüge

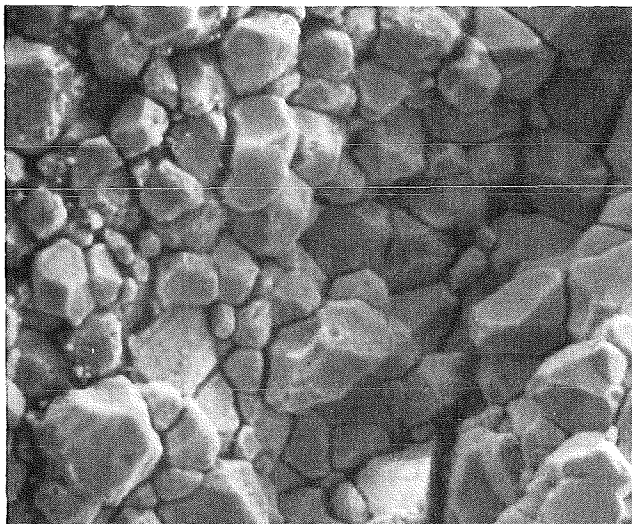
1mm



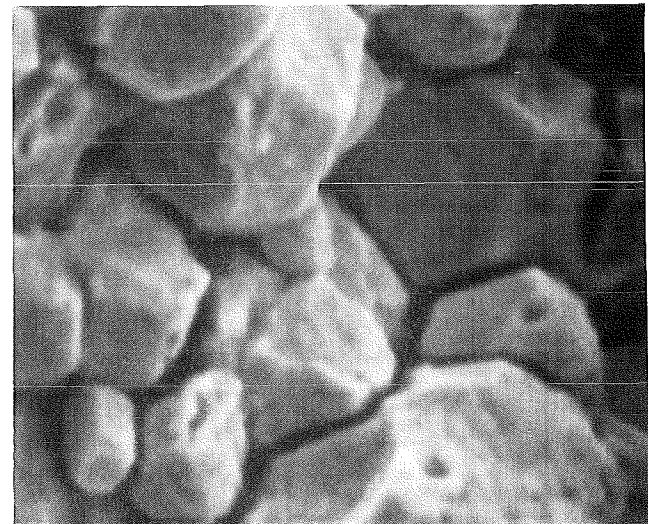
200  $\mu$ m



50  $\mu$ m

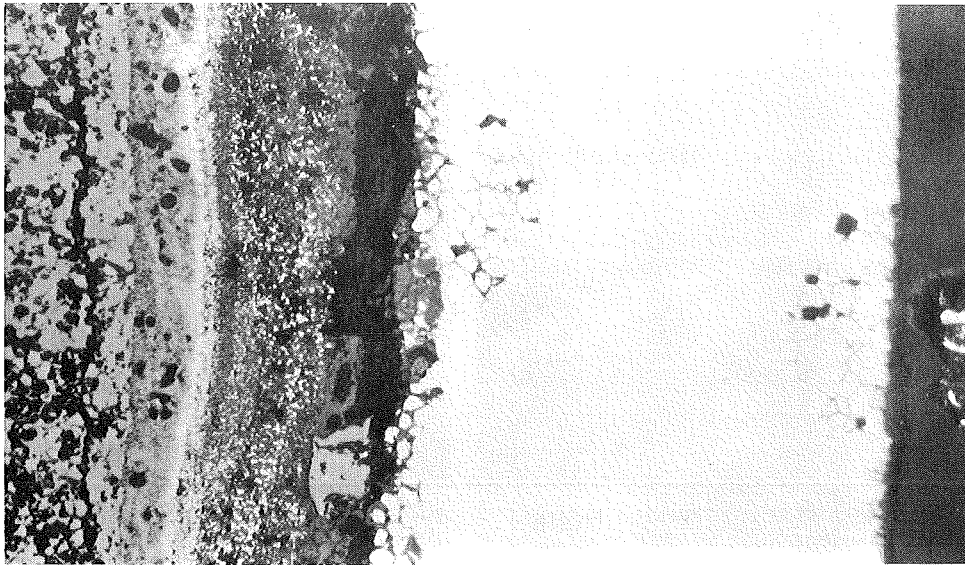


20  $\mu$ m



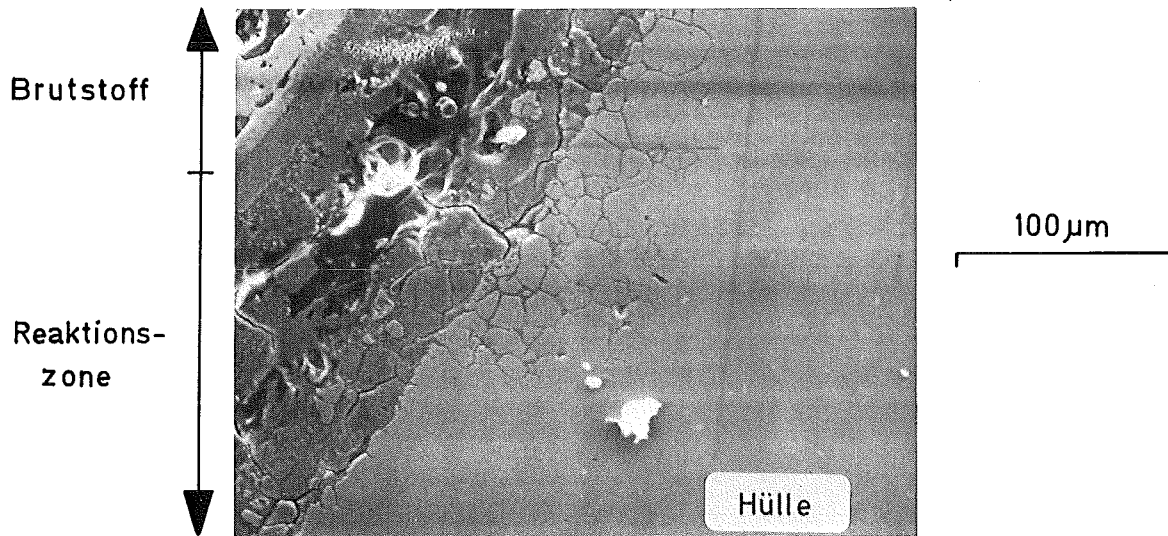
5  $\mu$ m

Abb.6.19: Gefüge der unteren Brutstofftablette, Stab G12, Probe 8b; raster-elektronenmikroskopische Aufnahmen eines Risses und eines Ausbruchs im  $UO_2$ -Gefüge bei verschiedenen Vergrößerungen (100-, 300-, 1000- und 3000-fach), Probe im geschliffenen Zustand



Gefüge

100µm



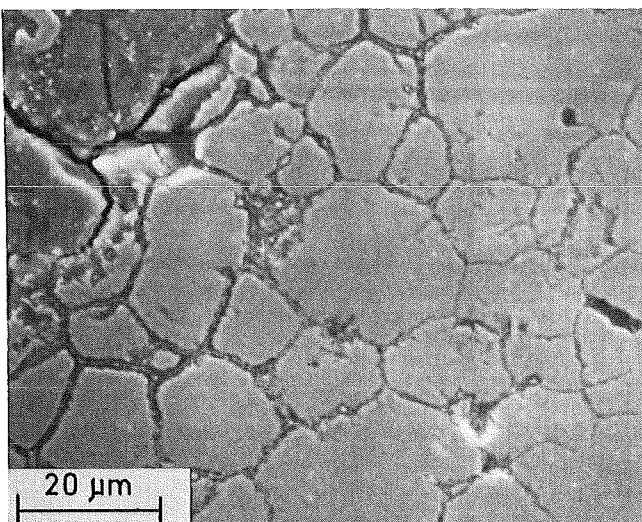
Brutstoff

Reaktions-  
zone

100µm

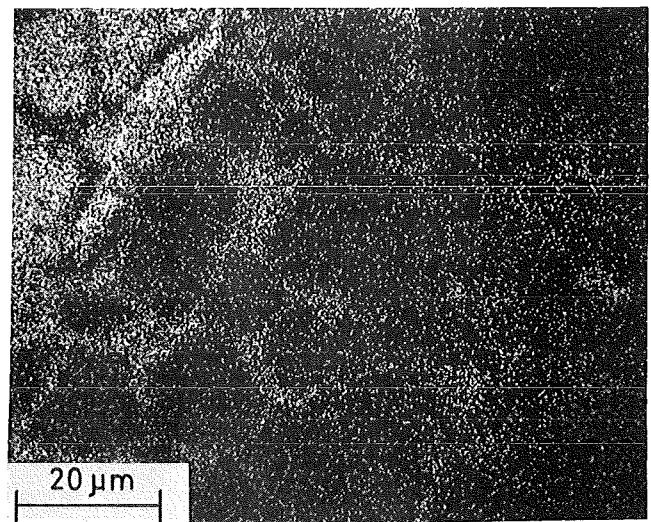
Hülle

Rasterelektronenmikroskopisches Bild



20 µm

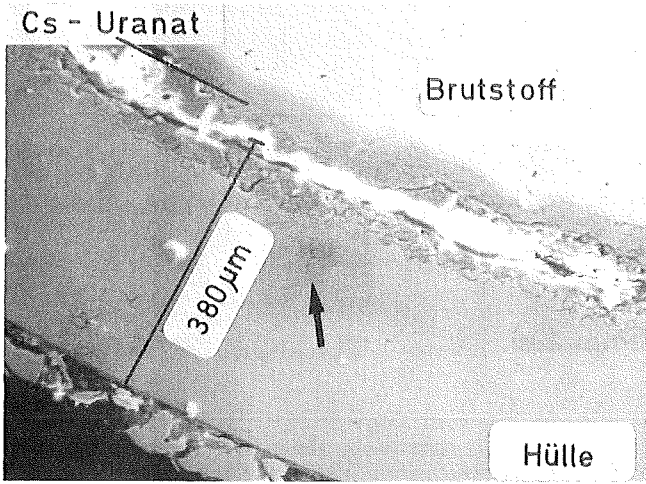
Rasterelektronenmikroskopisches Bild



20 µm

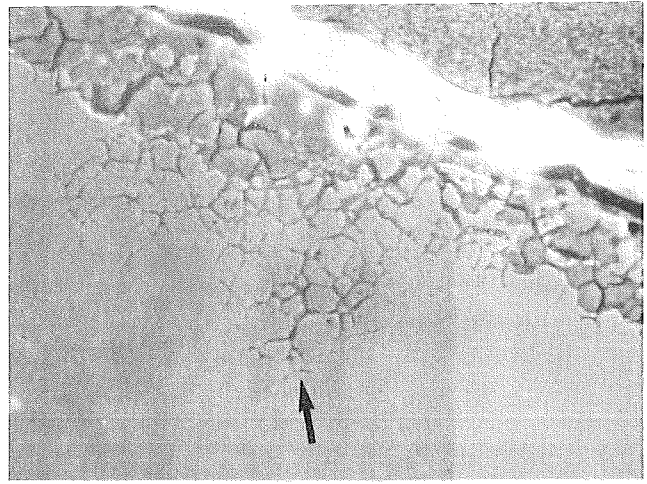
Sauerstoff - Verteilung

Abb.6.20: Gefüge sowie - an anderer Stelle - rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen (300- und 1000-fach) und Sauerstoff-Verteilungsbild (1000-fach) in einem Bereich mit starkem Korngrenzenangriff der Hülle; Stab G12, Probe 8b



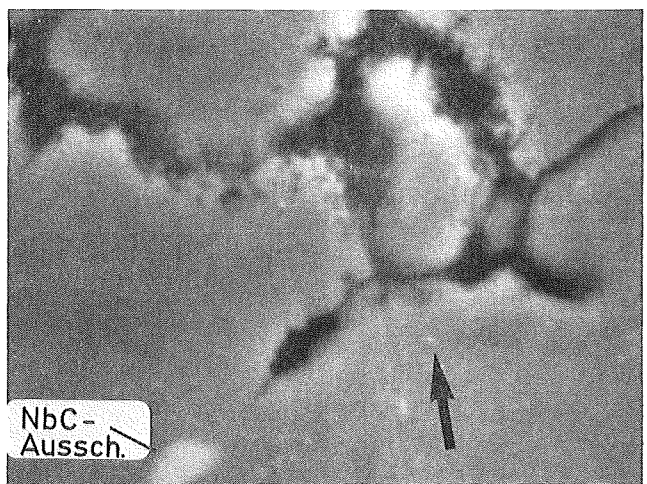
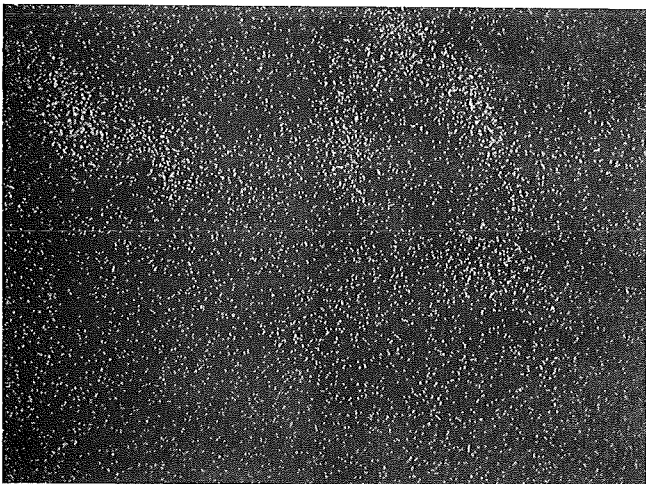
Rasterelektronenmikroskopisches Bild

200 µm



Rasterelektronenmikroskopisches Bild

100 µm



Rasterelektronenmikroskopisches Bild

10 µm

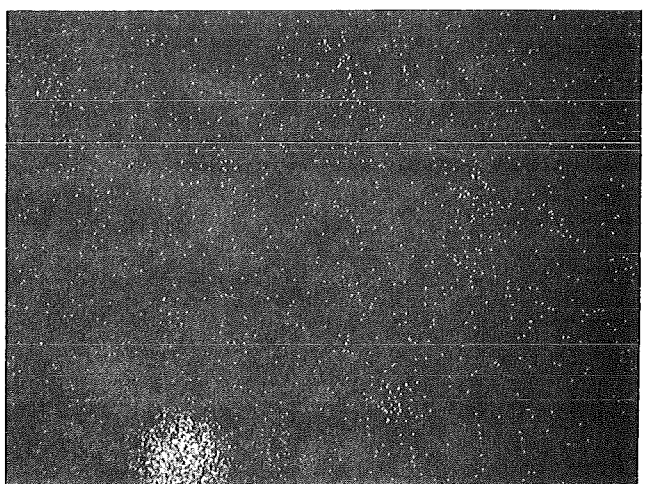
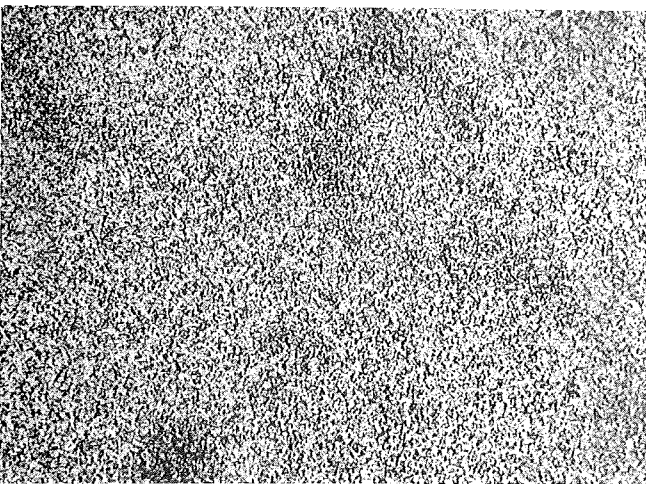


Abb.6.21: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen (100-, 300- und 3000-fach) in einem Bereich mit starkem Korngrenzenangriff der Hülle sowie Sauerstoff-, Eisen- und Niob-Verteilungsbilder (1000-fach) in den Korngrenzenspitzen mit einer 2 µm großen NbC-Ausscheidung; Stab G12, Probe 8b