

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

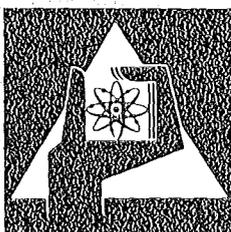
Juni 1976

KFK 2268

Institut für Material- und Festkörperforschung  
Projekt Schneller Brüter

**Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der UC  
und (U,Pu)C-Brennstäbe der Versuchsgruppen  
Mol-11/K1 und Mol-11/K2**

D. Freund, H. Elbel, H. Steiner



**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 2268

Institut für Material- und Festkörperforschung  
Projekt Schneller Brüter

Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der UC und (U,Pu)C-Brennstäbe  
der Versuchsgruppen Mo1-11/K1 und Mo1-11/K2

---

D. Freund, H. Elbel, H. Steiner

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe



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

Mit der Vorbereitung, Durchführung und Auswertung der beiden Bestrahlungsversuche waren Arbeitsgruppen der Firmen NUKEM und ALKEM, des C.E.N. Mol, des Instituts für Transurane und der GfK Karlsruhe betraut. Die Autoren danken allen Beteiligten für ihre tatkräftige Mitarbeit, im besonderen Herrn F. Bauer für die Zusammenstellung und Ausarbeitung des Bildmaterials und der Diagramme und Frau B. Hauth für die Reinschrift des Manuskriptes.

April 1976

D. Freund, H. Elbel, H. Steiner



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

Das Karbid-Bestrahlungsprogramm des Projektes Schneller Brüter umfaßt mehrere Bestrahlungsexperimente, mit denen verschiedene Brennstabkonzepte untersucht werden. Eines dieser Experimente ist Mol-11. Mit seiner Planung wurde im Jahre 1970 begonnen. Das Experiment ist in vier Versuchsgruppen K1 bis K4 eingeteilt. In der vorliegenden Dokumentation wird über Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der in den Versuchsgruppen K1 und K2 bestrahlten Brennstäben berichtet.

Mol-11/K1 bestand aus einem Stab mit UC-Brennstoff von 94 % th.D. und Helium-Bindung. Diese Versuchsgruppe diente zur "in-pile"-Erprobung der Hochleistungs-Bestrahlungskapsel. Mol-11/K2 besteht insgesamt aus drei Stäben, von denen ein Stab zur Zeit noch im Reaktor ist. In dieser Versuchsgruppe wird Mischkarbid-Brennstoff mit 83 % th.D. und 15 % Pu-Anteil unter Helium-Bindung eingesetzt. Der Stab K2-2 besaß eine Spaltgas-kapillare zur kontinuierlichen Messung des Spaltgasdruckaufbaus.

Als Hüllrohrmaterial war der Werkstoff Nr. 1.4988 gewählt worden. Die erreichten Abbrände liegen zwischen 35 und 70 MWd/kg M.

Die Nachuntersuchung der beiden Versuchsgruppen umfaßt eine modelltheoretische Analyse des Bestrahlungsablaufes.

## A B S T R A C T

Design, irradiation, and postirradiation examination of the UC and (U,Pu)C fuel rods of the test groups Mol-11/K1 and Mol-11/K2

---

The carbide irradiation programme of the Fast Breeder Project includes several irradiation experiments with the aim of analyzing different fuel rod concepts. One of these experiments is Mol-11. Its planning started in 1970. The experiment has been divided into four test groups K1 to K4. The documentation presented describes design, irradiation, and post-irradiation examination of the fuel rods irradiated in the test groups K1 and K2.

Mol-11/K1 consisted of one fuel rod with UC of 94 % T.D. and helium bonding. This test group was intended to prove the high power irradiation capsule in pile. Mol-11/K2 consists of three fuel rods in total. One of these is presently still in the reactor. In this test group mixed carbide fuel of 83 % T.D. and 15 % Pu content under helium bonding is irradiated. The fuel rod K2-2 was provided with a capillary tube for the continuous measurement of fission gas pressure built up. 1.4988 stainless steel was chosen as cladding material. The final burnup lies between 35 and 70 MWd/kg M. Post-irradiation examination of the two test groups covers a theoretical analysis of the irradiation behaviour.

I n h a l t	Seite
1. Einleitung	1
2. Aufgabe und Ziel des Experiments	2
3. Auslegung	4
3.1 Auslegungsdaten	4
3.2 Thermische Auslegung der Brennstäbe	6
3.3 Mechanische Auslegung der Brennstäbe	7
4. Spezifikationen	8
4.1 Brennstoff	8
4.2 Brutstoff	9
4.3 Hülle	10
4.4 Brennstab	11
5. Herstellung	11
5.1 Brennstoff	11
5.2 Brutstoff	14
5.3 Brennstab	14
6. Bestrahlungseinrichtung	16
7. Ablauf der Bestrahlung	17
7.1 Reaktorzyklen und Neutronenfluß	17
7.2 Temperatur und Stableistung	19
7.3 Spaltgasdruckaufbau	21
7.4 Thermische Abbrandberechnung	23
8. Zerstörungsfreie Nachuntersuchung	25
8.1 Äußere Vermessung	25
8.2 Durchleuchtung	25
8.3 Gamma-Profile und Gamma-Spektren	26
9. Zerstörende Nachuntersuchung	27
9.1 Spaltgasbestimmung	27
9.2 Keramografie	30
9.3 Radiochemische Abbrandbestimmung	31
10. Dokumentation der zerstörungsfreien und zerstörenden Nachuntersuchung	32
11. Modelltheoretische Untersuchungen	33
11.1 Thermische Analyse	34
11.2 Mechanische Analyse	35
12. Zusammenfassung und Schlußfolgerung	38
Literatur	
Abb. 1 bis 52	
Anhang I und II	



## 1. Einleitung

Die Bestrahlungsexperimente des Karbidbestrahlungsprogramms des Projektes Schneller Brüter dienen der Untersuchung des Verhaltens verschiedener Stabkonzepte /1/. In der Diskussion stehen Brennstäbe mit verschiedenen Brennstoffdichten und Bindungsarten, die unter verschiedenen Betriebsbedingungen getestet werden. Die Experimente gliedern sich auf in Loop-Bestrahlungen im FR 2 (Kurzzeitbestrahlungen), Kapselbestrahlungen im FR 2 und BR 2 (Abbrandversuche) sowie in Bündelexperimente im DFR (Bestrahlungen im schnellen Fluß).

Während in den Kurzzeitbestrahlungen das Anfahr- und Zyklierverhalten untersucht wird /2,3/, sollen die Kapsel- und Bündelbestrahlungen Aussagen über das Stabverhalten bei verschiedenen Abbrandstufen liefern (Literatur s. /1/).

In der Experimentserie Mol-11 im BR 2, welche in vier Untergruppen K1 - K4 gegliedert ist, werden drei mögliche Stabkonzepte mit Mischbrennstoff untersucht:

Mol-11/K2	Niederdichter Brennstoff (83 % th.D.) mit He-Bindung (3 Stäbe), 1 Stab noch im Reaktor
Mol-11/K3	Mitteldichter Brennstoff (90 % th.D.) mit Na-Bindung (4 Stäbe), unter Bestrahlung
Mol-11/K4	Hochdichter Brennstoff (96 % th.D.) mit He-Bindung (4 Stäbe), in Vorbereitung

Die Untergruppe Mol-11/K1 besteht aus einem Stab mit UC-Brennstoff von 94 % th.D. und dient als Prototyp der in-pile-Erprobung der Hochleistungsbestrahlungskapsel. Im vorliegenden Bericht werden die Einzelheiten der Auslegung, Spezifikation, Herstellung und Bestrahlung der Stäbe K1-1 (Mol-11/K1), K2-1 und K2-2 (Mol-11/K2) zusammengestellt. Weiterhin wird die zerstörungsfreie und die zerstörende Nachuntersuchung dokumentiert und modelltheoretische Untersuchungen mit dem Rechenprogramm SATURN zum thermischen und mechanischen Zustand der Stäbe durchgeführt.

Die Arbeit an diesen Experimenten verteilte sich auf die Jahre 1970 bis 1975. In der nachfolgenden Übersicht ist der Zeitablauf grob dargestellt, außerdem sind die für jeden Teilaspekt hauptverantwortlichen Stellen bzw. Personen angegeben.

Zeitraum	Teilarbeit	Institution/Hauptbeteiligte
1970	Versuchsauslegung	IMF / Kummerer, Pollanz
1969/70	Bestrahlungskapseln	Technologie des CEN / v.d. Hardt/van Looy
1970/71	Herstellung der Prüflinge	Fa. NUKEM (Stab K1-1), Fa. ALKEM Inst. für Transurane
1971/73	Organisation der Bestrahlung und Betreuung	AG-Mol/ Sebening, IMF / Freund
1971/73	Bestrahlung im BR 2	Abteilung Reaktorbetrieb BR 2
1973/74	Organisation der Nachunter- suchung und Betreuung	IMF / Weimar, Freund
1973	Zerstörungsfreie Nachunter- suchung	RBT/Z / Scheeder, Enderlein
1973/74	Zerstörende Nachuntersuchung	RBT/Z / Pejsa
1974/75	Auswertung, Zusammenfassung und Dokumentation der Ergeb- nisse	IMF / Freund, Elbel, Steiner

## 2. Aufgabe und Ziel des Experiments

In der Untergruppe Mol-11/K1 der Experimentreihe Mol-11 wird ein Brennstab mit angereichertem UC als Brennstoff und He-Bindung bestrahlt. Für die Bestrahlung ist eine für hohe Stabileistungen ausgelegte Kapselkonstruktion, eine modifizierte FAFNIR-Kapsel, vorgesehen. Der Bestrahlungsversuch hat die Aufgabe, eine Prototypkapsel dieser neuen Konstruktion unter realistischen Bedingungen zu erproben und Anhaltspunkte über das Verhalten eines Karbidbrennstabes in einem sehr hohen Leistungsbereich zu gewinnen /4/. Das Versuchsziel liegt im Nachweis der Funktionsfähigkeit der Bestrahlungs-

kapsel sowie in einer Beschreibung des Stabverhaltens unter besonderer Berücksichtigung der Brennstoffumstrukturierung, der Spaltstoff- und Spaltproduktumverteilung sowie der Spaltgasfreisetzung und des Brennstoffschwellens.

In der Untergruppe Mo1-11/K2 werden drei Stäbe mit Mischkarbidbrennstoff ( $U_{0,85}, Pu_{0,15}$ )C und He-Bindung in zwei Versionen der obigen Bestrahlungskapsel, nämlich einmal mit Hüllwandtemperaturmessung, zum anderen mit Hüllwandtemperatur- und Spaltgasdruckmessung eingesetzt /5/. Die Aufgaben können im einzelnen wie folgt formuliert werden:

- Bestrahlung von Mischkarbidbrennstäben bis zu verschiedenen Abbrandstufen (35 und 70 MWd/kg M) im epithermischen Fluß des BR 2.
- Untersuchung des Spaltgasdruckaufbaus und der Spaltgasfreisetzung.
- Untersuchung der mechanischen Belastungen der Hülle durch den Brennstoff (Schwellen).
- Untersuchung der Brennstoffumstrukturierung
- Untersuchung der Spaltstoff- und Spaltproduktverteilungen
- Untersuchung des Verträglichkeitsverhaltens des Verbandes Brennstoff-Hülle.

Die Untersuchungsziele liegen in der Beantwortung der folgenden Fragen:

- Welche geometrischen Veränderungen treten durch die Bestrahlung auf ? Bleiben die Stäbe intakt ?
- Wie hoch ist Spaltgasdruck bzw. Freisetzungsrates und sind Zeiteinflüsse erkennbar ?
- Wie groß ist die Brennstoffschwellrate und wie hoch sind die Kontakt-<sup>drücke</sup> zwischen Brennstoff und Hülle ?
- Welche Porositätsverteilung weist der Brennstoff nach der Bestrahlung auf ?
- Wie ändert sich die Plutoniumverteilung ?

- Welche Spaltproduktverteilungen treten durch die Bestrahlung auf ?
- Welche Hüllangriffe treten auf und welche Angriffstiefen werden beobachtet ?

### 3. Auslegung

#### 3.1 Auslegungsdaten

Die für die Auslegung und Spezifikation erforderlichen Grunddaten sind in Tabelle I zusammengestellt. Die Auslegungsdaten für die Stäbe K2-1 und K2-2 sind identisch. (Lediglich der dritte Stab der Serie K2, Stabbezeichnung K2-3, weist einen Tablettendurchmesser von 6,74 mm, welches zu einem Radialspalt von 180  $\mu$ m führt, auf. Dieser Stab wird in dieser Dokumentation nicht aufgeführt, da die Bestrahlung z.Zt. noch läuft.)

Tabelle I: Auslegungsdaten der Stäbe K1-1, K2-1 und K2-2 der Versuchsgruppen Mol-11/K1 und K2

Stab-Nr.	K1-1	K2-1/K2-2
<b>Brennstoff:</b>		
Material	UC	(U, Pu)C
<b>Anreicherung:</b>		
U-235 im U (%)	93	93
Pu (Gew.-%)	-	15
Theoretische Dichte (g/cm <sup>3</sup> )	13,63	13,63
Tablettendichte (% th.D.)	94	83
Tablettendurchmesser (mm)	7,0	6,96
Tablettenhöhe (mm)	8,50	8,50
<b>Brutstoff:</b>		
Material	U <sub>nat</sub> <sup>C</sup>	U <sub>nat</sub> <sup>C</sup>
Tablettendichte (% th.D.)	90	83
Tablettendurchmesser (mm)	7,0	6,96

Hülle:		
Material Werkstoff-Nr.	1.4988	1.4988
Außendurchmesser (mm)	8,0	8,0
Wandstärke (mm)	0,45	0,45
Brennstab:		
Bindung	He	He
Fülldruck (atm)	1	1 / 5
Schmierdichte (% th.D.)	90	80
Radialspalt ( $\mu$ m)	50	70
Stabteilung:		
Oberer Endstopfen (mm)	20	20
Spaltgasraum (mm)	251	251
Brutstoff (mm)	204	204
Spaltstoff (mm)	510	510
Isolierung (UC) (mm)	17	17
Unterer Endstopfen (mm)	20	20
Gesamtlänge (mm)	1022	1022
Betriebsbedingungen:		
Stableistung (max) (W/cm)	1500	1500
Hülloberflächentemperatur (max) ( $^{\circ}$ C)	580	575
Abbrand (MWd/kg M)	16/32	35, 70

Der Stab K2-2 besitzt eine Spaltgaskapillare ( $1,1^{\phi} \times 0,2$ ), die im oberen Endstopfen eingelötet ist. Für die Auslegungsrechnungen wurden folgende Stoffwerte zugrunde gelegt /4,5/:

- Thermische Auslegung

1.) Stab K1-1

Lineare thermische Ausdehnung  $\alpha$  für UC:

$$\alpha = 11,0 \times 10^{-6} / ^{\circ}\text{C} \quad 20^{\circ} \leq T \leq 1650^{\circ}\text{C}$$

2.) Stab K2-1, K2-2

Lineare thermische Ausdehnung  $\alpha$  für  $(U_{0,8}, Pu_{0,2})C$

$$\alpha = 12,42 \times 10^{-6}/^{\circ}C, \quad 20^{\circ} \leq T \leq 1600^{\circ}C$$

$$\alpha = 12,60 \times 10^{-6}/^{\circ}C, \quad 20^{\circ} \leq T \leq 1800^{\circ}C$$

$$\alpha = 12,80 \times 10^{-6}/^{\circ}C, \quad 20^{\circ} \leq T \leq 2000^{\circ}C$$

Die lineare thermische Audehnung  $\alpha$  für den Stahl 1.4988 beträgt

$$\alpha = 17,8 \times 10^{-6}/^{\circ}C, \quad 20 \leq T \leq 600^{\circ}C$$

$$\alpha = 18,0 \times 10^{-6}/^{\circ}C, \quad 20 \leq T \leq 700^{\circ}C$$

Die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  wurde nach /6/ für UC und  $(U,Pu)C$  mit  $\lambda_{\text{theor}} = 0,20 \text{ W/cm}^{\circ}C$  (UC) und  $0,172 \text{ W/cm}^{\circ}C \leq \lambda_{\text{theor}} \leq 0,192 \text{ W/cm}^{\circ}C$ ,  $1500^{\circ}C \leq T \leq 2000^{\circ}C$ ,  $(U,Pu)C$ , mit einer Porositätskorrektur  $(1 - P^{2/3})$  behaftet, für mittlere Brennstofftemperaturen als konstant über den Brennstoffquerschnitt angenommen.

Die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  für den Stahl 1.4988 beträgt

$$0,1930 \text{ W/cm}^{\circ}C \leq \lambda \leq 0,23 \text{ W/cm}^{\circ}C, \quad 400^{\circ}C \leq T \leq 700^{\circ}C.$$

Die Wärmedurchgangszahl  $h$  wurde nach /7/ bestimmt und liegt zwischen  $0,8$  und  $1,6 \text{ W/cm}^2 \text{ }^{\circ}C$ .

### 3.2 Thermische Auslegung der Brennstäbe

Zur Bestimmung der Brennstofftemperaturen für den Stab K1-1 wurden zwei Spaltweiten für den Heißzustand ( $11 \mu\text{m}$  und  $41 \mu\text{m}$ ) sowie einmal Helium, zum anderen He mit 25 % Spaltgasen für den Temperatursprung im Spalt berücksichtigt. Der Temperaturverlauf im Brennstoff wurde aus dem Wärmeleitintegral mit einer mittleren Wärmeleitfähigkeit bestimmt. Für Stableistungen von  $1300 - 1500 \text{ W/cm}$  und Hülloberflächentemperaturen von  $520 - 580^{\circ}C$  ergeben sich mittlere Zentraltemperaturen von  $2034 - 2215^{\circ}C$ .

Für die Auslegung der Stäbe der K2-Serie wurden zwei Fälle betrachtet:

- Es besteht ein maximaler Gasspalt bei Bestrahlungsbeginn, wobei sich die Wärmedurchgangszahl  $h$  durch wachsenden Spaltgasanteil im Helium allmählich verschlechtert.

- Nach einer gewissen Standzeit besteht Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle, die Wärmedurchgangszahl sei in diesem Fall  $1 \text{ W/cm}^2\text{ }^\circ\text{C}$ .

Für den ersten Fall ergeben sich bei Stableistungen von  $1300 - 1500 \text{ W/cm}$  und Hülltemperaturen von  $515 - 575 \text{ }^\circ\text{C}$  Brennstoffzentraltemperaturen von  $2067 - 2325 \text{ }^\circ\text{C}$ . Bei gleichen Betriebsbedingungen liegen diese Werte im zweiten Fall zwischen  $1948$  und  $2186 \text{ }^\circ\text{C}$ .

### 3.3 Mechanische Auslegung der Brennstäbe

Die Brennstabhüllen werden bei Betrieb durch Gas- und Festkörperdrücke mechanisch beansprucht.

Die Spaltgasproduktion wurde nach /8/ bestimmt, wonach je Gramm U-235 und % Abbrand  $37 \text{ mm}^3$  Krypton und  $220 \text{ mm}^3$  Xenon gebildet werden. Diese Spaltgasproduktion wird auch für den (U,Pu)C-Mischbrennstoff angenommen. Bei einem Spaltgasraum von ca.  $8 \text{ cm}^3$  und einer Plenumtemperatur von  $100^\circ\text{C}$  ergeben sich bei Abbränden von 16, 32 und  $70 \text{ MWd/kg M}$  Spaltgasvolumina von 92, 184 und  $406 \text{ cm}^3$ , welche bei 50-%-iger Freisetzung auf Gasdrücke von 7, 14 bzw. 32 atm bei Bestrahlungsende führen. Diese Drücke führen zu keiner wesentlichen Hüllbelastung.

Die Bestimmung der mechanischen Belastung der Hülle durch Festkörperdruck infolge Brennstoffschwellens ist wesentlich schwieriger, da zum einen die Brennstoffschwellraten, zum anderen die Verfügbarkeit der Poren für das Brennstoffschwellen nur sehr ungenau bekannt sind. Bei der Auslegung wurde von Schwellraten von 2 - 3 %/% Abbrand sowie von einer (nach heutiger Kenntnis zu hohen) Porositätsverfügbarkeit von 100 % im Temperaturbereich oberhalb  $1600 \text{ }^\circ\text{C}$  ausgegangen. Für die obigen Brennstofftemperaturen bedeutet dies eine Verfügbarkeit der Porosität von ca. 75 %. Für den UC-Stab steht damit ein Schwellvolumen von 6 %, für die (U,Pu)C-Stäbe ein Schwellvolumen von 14,5 % (incl. Gasspalt) zur Verfügung. Mit obigen Schwellraten sind damit (bei 3 %/% Abbrand) für den Stab K1-1 2 % Abbrand, für die Stäbe K2-1 und K2-2 ca. 5 % Abbrand zulässig, bevor der Kontakt Brennstoff-Hülle zu erwarten ist. Bei Schwellraten von 2 %/% Abbrand vergrößert sich der zulässige Abbrand entsprechend. Daher werden verschiedene Abbrandstufen vorgeschlagen:



- O- und N-Gehalt:  $\leq$  3000 ppm (K1-1)  
 $\leq$  5000 ppm (K2-1, K2-2)
- U-, Pu-Metall: unterhalb der Nachweisgrenze
- $M_2C_3$ -Gehalt:  $<$  15 % (K2-1, K2-2)
- $MC_2$ -Gehalt: unterhalb der Nachweisgrenze (K2-1, K2-2)
- Freier Kohlenstoff: unterhalb der Nachweisgrenze (K2-1, K2-2)
- Metallische Verunreinigungen:  $<$ 3000 ppm gesamt (außer Fe+Ni für K2-1, K2-2), (Fe, Cr, Ni: je  $<$  200 ppm für K1-1)

max. zul. Konz. in ppm		max. zul. Konz. in ppm	
Al	500	Ag	20
Ca	100	Sn	10
Cd	0,5	W	200
Cr	300	V	100
Co	200	Zn	100
Cu	100	Zr	100
Pb	200		
Mg	50	Eu	1
Mn	200	Gd	1
Mo	200		
Be	10	Na	100
Si	800	B	2

- Cl-, F-Gehalt:  $<$  20 ppm (K1-1)  
 $<$  30 ppm (K2-1, K2-2)
- Boräquivalent:  $<$  5 ppm
- Gasgehalt:  $<$  0,15 Norm-cm<sup>3</sup>/g Brennstoff,  
Freisetzungstemperatur 1600 °C

#### 4.2 Brutstoff

- Material:  $U_{nat}C$
- Form: Tabletten ohne Fase, geschliffen
- Tablettendurchmesser: 7,00  $\pm$  0,02 mm (K1-1)  
6,96  $\pm$  0,02 mm (K2-1, K2-2)

- Tablettenlänge: 8,5  $\pm$  1 mm
- Tablettendichte: 90,0  $\pm$  2 % th.D.  
83,3  $\pm$  2 % th.D.

Alle anderen Punkte sind entsprechend der Spezifikation für den Brennstoff einzuhalten.

#### 4.3 Hülle

- Werkstoff: Hüllrohr und Stopfen bestehen aus austenitischem Edelstahl X8CrNiMoVNB 1613, Werkstoff-Nr. 1.4988

- Chemische Zusammensetzung in Gew.-%:

Kohlenstoff	max. 0,1
Nickel	12,5 - 14,5
Chrom	12,5 - 17,5
Eisen	Rest
Molybdän	1,1 - 1,5
Niob	max. 10 x C + 0,4 %
Vanadin	0,60 - 0,85
Mangan	1,0 - 1,5
Schwefel	max. 0,02
Silizium	0,3 - 0,6
Bor	max. 20 ppm
Stickstoff	0,1

- Abmessungen der Hüllrohre:

- Die Nenngröße ist 8,0 x 0,45 mm
- Außendurchmesser 8,0  $\pm$  0,03 mm
- Innendurchmesser 7,10  $\pm$  0,01 mm
- Wanddicke 0,45  $\pm$  0,03 mm
- Wanddicken-Exzentrizität innerhalb der Wanddickentoleranz
- Ovalität des Innendurchm. innerhalb der Innendurchmesser-toleranz
- Ovalität des Außendurchm. innerhalb der Außendurchmesser-toleranz
- Geradheit 1 : 1500
- Alle Meßgrößen außer der Geradheit sind mit Hilfe kontinuierlicher Meßverfahren über die gesamte Länge zu messen und zu protokollieren.

#### 4.4 Brennstab

- Konstruktion: gemäß Abb. 1
- Stabbezeichnung: K1-1, K2-1, K2-2 auf den Schlüsselflächen am unteren Endstopfen
- Brenn- und Brutstoffsäulen:
  - Untere Brutstoffsäule  $17 \pm 4$  mm
  - Brennstoffsäule  $510 \pm 4$  mm
  - Obere Brutstoffsäule  $204 \pm 4$  mm
  - Gesamtlänge  $731 \pm 3$  mm
- Helium-Füllung: He-Gehalt > 90 %
- Schweißnähte
  - lokale Durchmesserüberschreitung  $\leq d_a + 0,2$  mm
- Spaltgaskapillare:
  - Material 1.4401
  - Außendurchmesser 1,1 mm
  - Wandstärke 0,2 mm
  - Gesamtlänge 3000 mm
- Lecktest:  $< 10^{-9}$  Torr-liter/sec He
- Stabdurchbiegung:  $< 1$  mm
- Kontamination: Feste Kontamination  $< 30$   $\alpha$ -Zerfälle/cm<sup>2</sup>min  
(Mittelwert über Staboberfläche)  
Wischbare Kontamination nicht zulässig.

#### 5. Herstellung

##### 5.1 Brennstoff

Die Brennstoffe für die verschiedenen Stäbe wurden bei der Fa. NUKEM (UC, Stab K1-1) /9/ sowie bei der Fa. ALKEM ( (U,Pu)C, Stäbe K2-1, K2-2) /10/ hergestellt. Die Analysen an den fertigen Tabletten ergaben folgende Ergebnisse:

- Isotopenzusammensetzung (am Ausgangsmaterial gemessen, in Gew.-%)

	U-234	U-235	U-236	U-238
Stab K1-1	0,73	89,70	0,26	9,31
Stäbe K2-1, K2-2	0,74	92,40	0,27	6,59

	Pu-238	Pu-239	Pu-240	Pu-241	Pu-242
Stäbe K2-1, K2-2	0,020	90,525	8,495	0,907	0,053

- Chemische Zusammensetzung:

Die Tabletten wurden in zwei Sinterchargen mit folgenden Zusammensetzungen hergestellt:

Stäbe K2-1, K2-2	Charge 29	Charge 30
U-Gehalt	79,69 %	79,83 %
Pu-Gehalt	15,07 %	14,80 %
N <sub>2</sub>	0,141 %	0,163 %
C <sub>ges</sub>	4,56 %	4,63 %
C <sub>frei</sub>	0,11 %	0,05 %
O <sub>2</sub>	0,39 %	0,31 %
ECC (Äquivalentkohlenstoff)	4,97 %	5,00 %
ECC (Stab K1-1)	4,77 - 4,81 %	
O <sub>2</sub> - und N <sub>2</sub> -Gehalt (Stab K1-1)	1000 - 1500 ppm (O <sub>2</sub> +N <sub>2</sub> )	

- M<sub>2</sub>C<sub>3</sub>-Gehalt (K2-1, K2-2): 6 - 8 % in beiden Chargen  
(Schätzung aufgrund des ECC-Wertes)
- MC<sub>2</sub>: nicht nachweisbar (nach Keramografie)
- U-,Pu-Metall: nicht nachweisbar (nach Keramografie)

- Metallische Verunreinigungen:

Für den UC-Brennstoff (Stab K1-1) wurden die spezifizierten Werte deutlich unterschritten (z.B. Fe: 60 ppm, Cr: 18 ppm, Ni: <2 ppm). Die Gesamtverunreinigungen liegen unter 1000 ppm, das (rechnerische) Boräquivalent beträgt 0,297 ppm.

Der Mischbrennstoff (Chage 29 und 30) zeigt folgende Verunreinigungen (in ppm):

B	0,1	Mo	<5
Si	200	Ca	50
Fe	100	V	<5
Mg	10	Cd	1
Mn	5	Cu	<2
Pb	10	Ag	5
Cr	40	Na	10
Sn	<5	Zn	<5
Ni	20	W	<100
Co	<5	Eu	<1
Al	40	Gd	1

- Cl-, F-Gehalt:

Stab K1-1: Cl <3 ppm  
F 4 ppm

Stäbe K2-1, K2-2 nicht bestimmt

- Gasgehalt:

Stab K1-1: nicht bestimmt

Stäbe K2-1, K2-2: 0,1 Ncm<sup>3</sup>/g Brennstoff.  
(CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>, Bestimmung bei 2300 °C)

- Tablettendichte:

Stab K1-1: 12,74 ± 0,1 g/cm<sup>3</sup>  $\hat{=}$  93,5 ± 0,8 % th.D.  
Stab K2-1: 11,34 ± 0,34 g/cm<sup>3</sup>  $\hat{=}$  83,2 ± 2,5 % th.D.  
Stab K2-2: 11,33 ± 0,12 g/cm<sup>3</sup>  $\hat{=}$  83,2 ± 1 % th.D.

Die Ist-Werte der einzelnen Tablettendichten sind in den Darstellungen der Brennstab-Istzustände in Kap. 8.1 aufgeführt.

- Schmierdichte:

	K1-1	K2-1	K2-2
(% th.D.)	90,62	79,95	79,95

- Tablettendurchmesser:

Stab K1-1: 6,99 ± 0,01 mm  
Stab K2-1: 6,96 ± 0,01 mm  
Stab K2-2: 6,96 ± 0,01 mm

Die Ist-Werte sind in den Darstellungen der Brennstab-Istzustände in Kapitel 8.1 aufgeführt.

## 5.2 Brutstoff

Die Brutstoff- bzw. Isoliertabletten wurden aus UC mit Uran natürlicher Isotopenzusammensetzung von der Fa. NUKEM gefertigt /9,10/. Im folgenden werden die wichtigsten Herstellungs- und Analysendaten zusammengestellt.

- Tablettendurchmesser (s. Darstellung in Kap. 8.1):

Stab K1-1	6,99 $\pm$ 0,02 mm
K2-1	6,94 mm
K2-2	6,94 mm

- Tablettendichte (s. Darstellung in Kap. 8.1):

Stab K1-1	12,05 $\pm$ 0,06 g/cm <sup>3</sup> $\hat{=}$ 88,51 $\pm$ 0,45 % th.D.
K2-1	11,40 $\pm$ 0,11 " $\hat{=}$ 83,50 $\pm$ 0,8 % th.D.
K2-2	11,37 $\pm$ 0,14 " $\hat{=}$ 83,40 $\pm$ 1,0 % th.D.

- Äquivalentkohlenstoff: 4,80 - 4,84 Gew.-% C + O + N

- O- und N-Gehalt: 200 - 600 ppm

C<sub>ges</sub>: 4,78 Gew.-%

- C<sub>frei</sub>: 90 ppm

- Metallische Verunreinigungen:

Die spezifizierten Werte werden in allen Fällen deutlich unterschritten, das (rechnerische) Boräquivalent beträgt jedoch 5,173 ppm aufgrund eines Gd-Gehaltes von 1 ppm ( $\hat{=}$  4,195 ppm B)

- Cl-, F-Gehalt: Cl < 3 ppm  
F < 3 ppm

## 5.3 Brennstab

Die Stabfertigung erfolgte bei den Firmen NUKEM (Stab K1-1) /9/ sowie im Institut für Transurane, Euratom, Karlsruhe (Stäbe K2-1 und K2-2) /10,11 /.

- Brenn- und Brutstoffsäulen:

Längen (mm)	K1-1	K2-1	K2-2
Untere Brutstoffsäule	16,88	16,92	16,91
Brennstoffsäule	510,21	504,79	505,65
Obere Brutstoffsäule	203,68	203,31	203,16
Gesamtlänge	730,77	725,02	725,72 (rechnerisch)
Gesamtlänge	733,5	726,35	726,92 (gemessen)
=====			
Gewichte (g)	K1-1	K2-1	K2-2
Brennstoff	249,73	216,54	217,30
Brutstoff (ges.)	94,12	94,77	94,59

- Stabdurchmesser: s. Darstellung in Kap. 8.1
- Tablettenzuordnung: Der Stab K2-1 enthält (U,Pu)C-Tabletten der Charge 29. Die Tabletten Nr. 3 bis 25 sind aus Charge 30, Tabletten Nr. 26 bis 63 entstammen Charge 29.
- Hüllmaterial: Die Hüllrohre wurden von Fa. Mannesmann aus der Schmelze Nr. 25116 mit folgender Zusammensetzung hergestellt:

Element	Gew.-%	Element	Gew.-%	Element	Gew.-%
C	0,049	Cr	16,23	Nb	0,62
Si	0,63	Ni	13,69	N <sub>2</sub>	0,0859
Mn	1,35	Mo	1,44	V	0,75
P	0,020	Co	0,068	W	0,17
S	0,005	Ta	0,044	B	< 0,0005

Die Hüllrohre sind lösungsgeglüht ( $\approx 1050$  °C/ 5 min)

- Heliumfüllung:
  - Stab K1-1 > 90 %
  - Stäbe K2-1, K2-2 keine Angaben  
(Füllvorgang: Vorvakuum  $5 \times 10^{-5}$  Torr, Reinsthelium; dreimaliges Evakuieren auf  $5 \times 10^{-2}$  Torr, He-Überdruck 3,5 atü, 1 min, anschl. Verschweißen)
- Lecktest <  $10^{-9}$  Torrliter/sec He

## 6. Bestrahlungseinrichtung

Die Bestrahlung der Prüflinge wird in Hochleistungskapseln des Typs FASOLD Mk IIIc durchgeführt /12/. Diese Kapseln zeigen folgenden Aufbau (Abb. 2): Der Prüfling befindet sich innerhalb einer geschlossenen Niob-Kapsel, welche aus Wärmeübertragungsgründen eine profilierte Oberfläche besitzt. Diese Nb-Kapsel ist mit der eutektischen Na-78 K-Legierung gefüllt, wobei die Füllung so ausgelegt ist, daß unter Betriebsbedingungen der Prüfling bis in Höhe des Plenums mit NaK bedeckt ist. Das eingefüllte NaK besitzt folgende chemische Zusammensetzung:

<u>Element</u>	<u>ppm</u>	<u>Element</u>	<u>ppm</u>	<u>Element</u>	<u>ppm</u>
Fe	10	Cr	< 5	Sr	-
B	< 5	Si	< 10	Ba	-
Co	< 5	Ti	< 5	Ca	8
Mn	1	Ni	< 5	Li	< 1
Al	< 5	Mo	< 2	Na	22,3 %
Mg	2	V	< 5	K	77,7 %
Sn	< 5	Be	< 1	Rb	< 10
Cu	< 2	Ag	< 1	Cs	-
Pb	< 2	Zr	< 10	O <sub>2</sub>	17
Zn	< 50	Cd	< 1	C	31
Bi	< 5	Y	< 5		

Die Nb-Kapsel wird vom Primärkreiswasser gekühlt, welches in einem 1,5 mm breiten Spalt, gebildet von dem beidseitig von Stahlrohren umschlossenen, auswechselbaren Cd-Schirm von 3 mm Dicke, zirkuliert. Die Cd-Abschirmung reicht über die Brennstoffsäule bis 161 mm in die obere Brutstoffsäule hinein. Abb. 3 zeigt einen Längsschnitt der Kapsel.

Die Brennstabprüflinge sind mit 12 Chromel-Alumel-Thermoelementen zur Messung der Hülloberflächentemperatur versehen. Die Anordnung der Thermoelemente ist in Abb. 4 wiedergegeben, wo die Lage der Thermoelemente in mm vom unteren Brennstoffsäulenende angegeben ist. Die Bestimmung der Stableistung aus den Temperaturmeßwerten erfolgt über die Kapsel-spezifische Temperatur-Stableistungscharakteristik (Abb. 5). In Abb. 6 ist der radiale Temperaturverlauf in der Kapsel für zwei Stableistungen dargestellt.

Die FASOLD-Kapsel, welche den Stab Mol-11/K2-2 enthält, ist modifiziert für die Spaltgasdruckmessung: Die Spaltgaskapillare wird aus der geschlossenen inneren Nb-Kapsel parallel zu den Thermoelementen zu den im oberen Kapselteil befindlichen Drucktransmittern geführt. Die Drucktransmitter haben einen Meßbereich von 0 - 70 kp/cm<sup>2</sup>.

## 7. Ablauf der Bestrahlung

### 7.1 Reaktorzyklen und Neutronenfluß

Die Bestrahlung der drei Prüflinge begann mit Stab K1-1 (Kapselbezeichnung 11 A-1) am 8.7.1971 in Zyklus 7/71 und endete mit dem Ausbau des Stabes K2-2 (Kapselbezeichnung 11 B-2) am 29.9.1973 nach Zyklus 8/73. Die Positionierung der Stäbe in den einzelnen Zyklen ist in Tabelle II neben den Zyklusdauern, Fluß- und Dosisangaben aufgeführt. Abb. 7 zeigt die Positionskarte des BR 2-Cores. In Abb. 8 ist der Bestrahlungsablauf der Prüflinge mit mittleren Reaktorleistungen, Abschaltungen und Stableistungen als Funktion der Zeit charakterisiert (s. Kap. 7.2).

Durch eine angepaßte axiale Positionierung der Stäbe wird erreicht, daß das Flußmaximum, welches etwas unterhalb der Coremitte liegt, etwa auf die Mitte der Brennstoffsäule fällt. Aufgrund des Beladezustandes (Abbrand der umliegenden Brennelemente) liegt das Maximum des ungestörten schnellen Flusses zwischen 3,00 und 4,12 x 10<sup>14</sup> n/cm<sup>2</sup> sec. Eine typische axiale (thermische) Flußverteilung, die den einzelnen Kanälen zugeordnet werden kann, ist in Abb. 9 dargestellt. Je nach Zustand der Bestrahlungsposition (Abbrand der umliegenden Brennelemente, Stellung der Regelstäbe, Einfluß benachbarter, mit Experimenten besetzter Positionen) verschiebt sich das Flußmaximum.

In Abb. 10 ist das mittlere Flußspektrum im Brennstab gemäß /13/ dargestellt. Für dieses Neutronenflußspektrum folgt die in Abb. 11 dargestellte radiale Leistungsdichteverteilung. Diese Angaben gelten für eine Kapsel vom Typ FAFNIR, d.h. ohne die innere Nb-Kapsel. Angaben für den FASOLD-Typ liegen nicht vor.

Tabelle II: Bestrahlungsablauf für die Prüflinge K1-1, K2-1, K2-2 der Versuchsgruppe Mol-11

Zyklus Nr.	Zeitraum	Dauer (d <sub>Vollast</sub> ) (>80 % N <sub>nom</sub> )	Maximaler ungestörter Fluß $\phi \times 10^{14}$ (n/cm <sup>2</sup> sec) und Dosis D $\times 10^{20}$ (>0,1 MeV) (n/cm <sup>2</sup> )																		
			Stab K1-1				Stab K2-1				Stab K2-2										
			Pos.	$\phi_{th}$	$\phi_S$ (>0,1 MeV)	D	Pos.	$\phi_{th}$	$\phi_S$	D	Pos.	$\phi_{th}$	$\phi_S$	D							
7/71	08.07.-31.07.71	11,95	C 281	2,58	3,92	3,87															
8/71	31.07.-27.08.	11,44	"	2,74	3,95	5,81															
9/71	02.11.-19.11.	16,80	"	2,53	4,11	6,17															
10/71	19.11.-14.12.	16,35	"	2,77	4,05	5,97															
11/71	14.12.-11.01.72	21,50	"	2,99	3,77	7,20															
1/72	11.01.-22.02.	21,60	"	2,98	3,73	6,96															
2/72	22.02.-19.03.	16,20	"	2,92	3,73	5,50	F 106	1,82	3,57	5,27											
3/72	19.03.-14.04.	19,91	"	2,77	3,83	6,94	"	1,61	3,54	6,41											
4/72	14.04.-20.05.	21,83					F 254	1,75	3,49	7,06											
5/72	20.05.-29.06.	29,25					"	2,33	3,00	7,95											
6/72	29.06.-03.08.	23,12					"	1,86	3,34	7,07	E 30	2,01	4,12	8,72							
7/72	03.08.-05.09.	22,98					"	1,81	3,33	7,15	"	2,23	3,69	7,93							
8/72	05.09.-06.10.	20,56					"	1,81	3,33	3,30	F 194	1,67	3,35	6,34							
9/72	06.10.-13.11.	25,53									F 254	1,98	3,08	7,41							
10/72	13.11.-11.12	20,02									F 46	2,24	2,97	5,86							
11/72	11.12.-01.01.73	7,88									"	2,24	2,96	2,19							
1/73	01.01.-13.02.	17,86									"	2,35	2,96	5,11							
2/73	13.02.-12.03.	20,80									ausgebaut										
3/73	12.03.-21.04.	27,91									F 106	2,24	3,07	8,29							
4/73	21.04.-17.05.	20,05									"	1,85	3,42	6,84							
5/73	17.05.-23.06.	19,22									F 254	1,66	3,69	6,72							
6/73	23.06.-23.07.	20,61									F 346	2,20	3,08	6,15							
7/73	23.07.-23.08.	15,57									"	2,19	3,30	5,28							
8/73	23.08.-29.09.	29,40									"	2,26	2,99	8,80							

## 7.2 Temperatur und Stabileistung

Die Instrumentierung der Brennstabprüflinge mit Thermoelementen ist ein wichtiges Hilfsmittel zur Beurteilung des Stabverhaltens während der Bestrahlung. Trotz der bekannten Unsicherheiten der Meßwerte, hervorgerufen durch Lageänderungen des Thermoelementmeßpunktes, der Änderung der EMK während der Bestrahlung usw., können zusätzlich zu den eigentlichen Aussagen wie Hülltemperatur und Stabileistung Angaben über Ereignisse wie Stabbewegungen und Defekte gemacht werden.

Im Gegensatz zu den Oxidbestrahlungen treten bei den Karbidprüflingen aufgrund der großen Stabileistungs- und Temperaturgradienten Kräfte auf, welche den Stab verbiegen. Die hierdurch hervorgerufene Kühlkanaländerung führt zu Temperaturschwankungen, welche sich bei Rückbiegen des Stabes umkehren. In Abb. 12 sind diese Schwankungen schematisch dargestellt. Sie sind reversibel und ihre Periode liegt zwischen  $\sim 10$  und  $\sim 10^2$  Stunden. Die Häufigkeit der Temperaturänderungen war bei dem mit höherer Stabileistung bzw. mit höheren Hülltemperaturen betriebenen Experiment Mol-11/K1-1 größer als bei Mol-11/K2-1 und K2-2 /14/. In Abb. 13 sind diese Temperaturänderungen zu verschiedenen Zeitpunkten azimuthal dargestellt, woraus sich ein Schwingen des Stabes gut herleiten läßt. Aus den neutrografischen Aufnahmen der Kapsel nach Bestrahlungsende ist schließlich eine starke Durchbiegung der Stäbe zu erkennen.

In den Tabellen III - V sind die minimalen und maximalen Hülloberflächentemperaturen entsprechend den Anzeigen sämtlicher Thermoelemente bei Reaktorvollast je Zyklus für die drei Prüflinge zusammengestellt.

Aufgrund begleitender Rechnungen zum Brennstabverhalten mit dem Rechenprogramm SATURN-1 bestand der Verdacht, daß der Prüfling K1-1 bereits nach ca. 1600 h durch hohe Kontaktdrücke zwischen Brennstoff und Hülle einen Hülschaden erlitten haben mußte /15/. Dieser Verdacht führte zu einer intensiven Prüfung der Temperaturschriebe, wobei in der Tat irreversible Temperatursprünge von max.  $150^{\circ}\text{C}$  einiger Thermoelemente nach etwa 1500 h gefunden wurden (Abb. 12).

Die Überprüfung der Thermoelementanzeigen von Oxidbrennstäben mit kontinuierlicher Spaltgasdruckmessung, bei welchen Defekte durch nachfolgenden Druckabfall zeitlich genau erkannt werden konnten, ergab gleiche Temperatursprünge.

Minimale und maximale Hülloberflächentemperaturen (Vollast) +)

Tabelle III: Mol-11/K1-1

Zyklus Nr.	TE-Nr. T <sub>Ha</sub> (°C)	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
7/71	min.	292	362	402	422	437	447	423	424	378	306
	max.	344	395	427	457	493	487	448	455	420	365
8/71	min.	300	347	366	418	417	438	413	423	375	333
	max.	324	370	422	460	480	473	444	453	426	388
9/71	min.	308	352	410	441	435	450	420	417	365	295
	max.	368	406	446	482	492	495	473	471	400	360
10/71	min.	288	340	381	388	396	411	390	385	320	248
	max.	340	370	393	440	454	441	440	448	377	313
11/71	min.	272	332	379	402	392	423	398	390	333	283
	max.	321	371	401	439	417	482	427	423	381	358
1/72	min.	218	253	297	341	325	343	325	335	309	259
	max.	347	392	419	453	430	460	441	441	370	334
2/72	min.	293	343	382	380	422	434	412	401	363	317
	max.	367	420	430	470	440	465	456	453	402	350
3/72	min.	295	357	402	432	443	458	421	428	388	296
	max.	360	422	447	489	498	495	452	470	450	330

Tabelle IV: Mol-11/K2-1

Zyklus Nr.	TE-Nr. T <sub>Ha</sub> (°C)	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
2/72	min.	220	288	285	362	344	344	370	363	320	247
	max.	265	320	335	398	418	393	402	418	418	287
3/72	min.	217	260	249	330	310	278	330	315	277	200
	max.	257	310	290	394	378	348	395	383	338	260
4/72	min.	226	286	301	346	368	322	342	325	311	230
	max.	261	318	350	422	420	400	450	426	405	300
5/72	min.	197	235	245	310	327	297	315	302	292	240
	max.	281	329	362	419	431	415	418	412	397	288
6/72	min.	225	275	262	305	310	278	292	270	246	205
	max.	260	315	308	373	386	350	372	354	335	272
7/72	min.	241	280	270	324	340	307	332	320	290	211
	max.	259	314	342	385	408	367	390	384	372	278
8/72	min.	245	284	312	382	391	370	375	358	330	251
	max.	269	327	358	419	428	386	423	401	382	280

Tabelle V: Mol-11/K2-2

Zyklus Nr.	TE-Nr. T <sub>Ha</sub> (°C)	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
6/72	min.	-	225	277	340	350	357	398	376	-	302
	max.	-	279	316	393	397	408	429	401	-	362
7/72	min.	-	202	251	294	296	298	297	273	-	246
	max.	-	275	345	372	398	425	413	388	-	349
8/72	min.	-	190	208	267	262	256	302	278	-	230
	max.	-	246	284	331	329	327	365	341	-	268
9/72	min.	-	210	259	303	304	306	335	331	-	284
	max.	-	283	395	363	385	412	392	372	-	357
10/72	min.	204	242	298	352	348	344	369	346	-	282
	max.	264	287	350	390	390	391	426	400	-	352
11/72	min.	-	200	237	292	287	281	321	305	290	275
	max.	-	256	315	368	367	367	395	376	357	340
1/73	min.	190	205	253	306	300	295	334	315	-	271
	max.	231	263	319	360	367	374	378	360	-	330
2/73	min.										
	max.			a u s g e b a u t							
3/73	min.	200	230	280	304	308	311	311	290	-	234
	max.	269	278	352	377	397	414	408	381	-	349
4/73	min.	211	246	300	337	341	341	341	326	-	291
	max.	256	287	350	408	407	408	424	402	-	358
5/73	min.	200	203	255	305	295	285	325	304	-	249
	max.	253	270	335	387	380	381	406	386	-	344
6/73	min.	200	216	269	321	310	301	333	318	277	230
	max.	250	283	335	392	384	376	407	393	375	348
7/73	min.	172	205	258	322	308	295	344	329	316	295
	max.	236	276	327	405	385	367	430	401	373	353
8/73	min.	200	205	277	348	332	325	384	364	-	319
	max.	272	311	357	413	400	385	435	414	-	377

+ ) aus AG-Berichte

Aufgrund dieser experimentellen Befunde kann der Stabschaden von Mol-11/K1-1 nach ca. 1500 h einem Abbrand von etwa 15 MWd/kg Me (s. Kap. 7.4) zugeordnet werden.

Die Bestimmung der Stableistung  $\chi$  aus den Temperaturmeßwerten T erfolgt nach der T- $\chi$ -Kapselcharakteristik gemäß Abb. 5. Wie oben bereits dargestellt, können aus Temperaturschwankungen, die bei ungestörtem Reaktorbetrieb auftreten, keine Stableistungsänderungen hergeleitet werden. Daher werden sämtliche Temperaturwerte zur Bestimmung einer - repräsentativen - mittleren Stableistung je Zyklus herangezogen. Diese mittleren Stableistungen, aus den Meßwerten der Thermoelemente 6 - 10, sind in den Tabellen VI - VIII für jeden Zyklus aufgeführt.

Wie die Nachuntersuchungsergebnisse aus Kurzzeitbestrahlungen /2/ zeigen, laufen einige Vorgänge, besonders Spaltproduktentmischungen, im Brennstoff in kurzen Zeiten, d.h. in Stunden bis Tagen, je nach Temperaturgradient und -niveau ab. Für die Untersuchung dieser Vorgänge ist daher die Kenntnis des Betriebszustandes gegen Ende der Bestrahlung von Bedeutung. In den Abb. 14 bis 16 sind die axialen Temperatur- und Stableistungsverläufe für die drei Prüflinge dargestellt, welche bei Vollastbetrieb am Ende des jeweils letzten Bestrahlungszyklus geherrscht haben. Bei Stab K1-1 liegen diese Werte (Abb. 14) unter den in Tabelle VI angegebenen Mittelwerten. Dies resultiert aus einer Rücknahme der Reaktorleistung etwa drei Tage vor Bestrahlungsende.

### 7.3 Spaltgasdruckaufbau

Um den Spaltgasdruckaufbau zu bestimmen, war der Stab K2-2 über eine Spaltgaskapillare von 0,7 mm Innendurchmesser mit einer Druckmeßvorrichtung versehen, welche eine kontinuierliche Druckmessung während der Bestrahlung gestattete.

Die Entwicklung des Spaltgasdruckaufbaus über dem maximalen Abbrand geht aus Abb. 17 hervor /16/. Ausgehend von einem Vordruck bei Vollast von  $5 \text{ kp/cm}^2$ , entsprechend einer Plenumtemperatur von etwa  $100^\circ\text{C}$ , findet im 1. Reaktorzyklus kein Druckaufbau trotz relativ hoher Brennstofftemperaturen statt: Bei der Auswertung der Druckmeßwerte sind bei der tatsächlich erfolgten Druckerhöhung die Anteile, die durch Ausgasen von Brennstoff, Hülle

Tabelle VI: Mol-11/K1-1

Tabelle VII: Mol-11/K2-1

Mittlere Stableistungen  $\chi$  (W/cm)<sup>+</sup> (Mittelwert über Zyklusdauer)

Zyklus Nr	TE 6,7,8	TE 9	TE 10
7/71	1350	1270	1300
8/71	1340	1240	1300
9/71	1364	1300	1275
10/71	1235	1186	1191
11/71	1249	1181	1169
1/72	1141	1126	1133
2/72	1318	1273	1258
3/72	1359	1271	1302

Zyklus Nr.	TE 6,7,8	TE 9	TE 10
2/72	1075	1117	1142
3/72	984	1063	1018
4/72	1095	1156	1091
5/72	1081	1163	1105
6/72	954	954	897
7/72	1026	1039	999
8/72	1133	1157	1100

Tabelle VIII: Mol-11/K2-2

Mittlere Stableistungen  $\chi$  (W/cm)<sup>+</sup>  
(Mittelwert über Zyklusdauer)

Zyklus Nr.	TE 6,7,8	TE 9	TE 10
6/72	1057	1209	1128
7/72	922	972	891
8/72	804	913	831
9/72	931	996	968
10/72	1068	1193	1105
11/72	893	992	918
1/73	943	991	934
2/73	a u s g e b a u t		
3/73	1019	1055	966
4/73	1104	1156	1087
5/73	947	1037	966
6/73	1025	1126	1088
7/73	1021	1187	1092
8/73	1068	1230	1156

+) Zyklusbericht AG-Mol.

und Strukturmaterialien sowie durch die Druckerhöhung (ohne Spaltgas!) infolge Temperaturerhöhung in Höhe von insgesamt  $3,2 \text{ kp/cm}^2$  berücksichtigt worden. Die Druckerhöhung im 2. Zyklus kann als Fehlmessung angesehen werden, da in den Folgezyklen 8/72 und 9/72 wieder der Ausgangsdruck erreicht wird. Erst ab Zyklus 10/72, entsprechend einem Abbrand von ca. 20 MWd/kg M ist für die Folgezyklen ein zunehmender Druckaufbau festzustellen.

Die Meßergebnisse führen zu der Annahme, daß der vorliegende karbidische Mischbrennstoff bis zu ca. 2 % Abbrand ein nahezu 100 %-iges Rückhaltevermögen für Spaltgase besitzt. Erst ab einer gewissen Gassättigung des Brennstoffs beginnt die Gasfreisetzung. Die Gesamtfreisetzung (d.h. Freigesetztes Spaltgas  
Produziertes Spaltgas) beträgt 21 % (s. Kap. 11.1).

#### 7.4 Thermische Abbrandberechnung

Die Bestimmung des thermischen Abbrandes der Prüflinge erfolgt über die aus den Thermoelement-Meßwerten nach der Umrechnungsvorschrift (s. Abb. 5) gewonnenen Stableistungen gemäß:

$$A = \ell/m \Sigma \bar{\chi}_i \cdot t_i \cdot 10^{-3} \quad (\text{MWd/kg M})$$

mit  $\ell$  = Brennstofflänge (cm)  
 $m$  = Brennstoffgewicht (g)  
 $\bar{\chi}_i$  = mittlere Stableistung (W/cm) im Zyklus  $i$   
 $t_i$  = Bestrahlungszeit (Volllastäquivalent) (d) im Zyklus  $i$

In den Tabellen IX - XI sind die aus den Meßwerten der Thermoelemente 6 bis 10 berechneten Abbrände zusammengestellt. Für die Thermoelemente 6, 7 und 8, die um je  $120^\circ$  versetzt in der gleichen Brennstabebene angebracht sind (s. Abb. 4), wurde aus jeweils drei Meßwertreihen je Zyklus ein Abbrandwert errechnet, da die azimutalen Temperaturunterschiede im wesentlichen auf die asymmetrische Lage des Brennstabs in der Nb-Kapsel und nicht auf azimutale Flußgradienten zurückgeführt werden.

Tabelle IX: Mol-11/K1-1

Tabelle X: Mol-11/K2-1

Mittlerer Abbrand A (MWd/kg M) (Mittelwert über Zyklusdauer)

Zyklus Nr.	TE 6,7,8	TE 9	TE 10	t <sub>v</sub> (d)	Zyklus Nr.	TE 6,7,8	TE 9	TE 10	t <sub>v</sub> (d)
7/71	3,48	3,28	3,35	11,95	2/72	4,26	4,42	4,52	16,20
8/71	3,31	3,06	3,21	11,44	3/72	4,80	5,18	4,96	19,91
9/71	4,95	4,71	4,63	16,80	4/72	5,85	6,17	5,83	21,83
10/71	4,36	4,19	4,20	16,35	5/72	7,74	8,32	7,91	29,25
11/71	5,80	5,48	5,42	21,50	6/72	5,39	5,39	5,07	23,12
1/72	5,32	5,24	5,28	21,60	7/72	5,77	5,84	5,62	22,98
2/72	4,61	4,45	4,40	16,20	8/72	5,70	5,82	5,53	20,56
3/72	5,81	5,46	5,60	19,91					
Gesamt	37,66	35,87	36,09	135,75	Gesamt	39,50	41,15	39,44	153,85

Tabelle XI:

Mol-11/K2-2

Mittlerer Abbrand A (MWd/kg M)

(Mittelwert über Zyklusdauer)

Zyklus Nr.	TE 6,7,8	TE 9	TE 10	t <sub>v</sub> (d)
6/72	5,98	6,84	6,38	23,12
7/72	5,18	5,46	5,01	22,98
8/72	4,07	4,60	4,17	20,56
9/72	5,82	6,22	6,05	25,53
10/72	5,23	5,84	5,41	20,02
11/72	1,72	1,91	1,77	7,88
1/73	4,12	4,33	4,08	17,86
2/73	-	-	-	(20,80)
3/73	6,96	7,20	6,60	27,91
4/73	5,41	5,67	5,33	20,05
5/73	4,45	4,88	4,55	19,22
6/73	5,17	5,68	5,48	20,61
7/73	3,89	4,52	4,16	15,57
8/73	7,68	8,85	8,31	29,40
Gesamt	65,68	71,99	67,32	270,71

## 8. Zerstörungsfreie Nachuntersuchung

### 8.1 Äußere Vermessung

An den Brennstäben wurde vor und nach der Bestrahlung eine Außendurchmesserbestimmung vorgenommen.

Die Durchmesserbestimmungen erfolgten auf einer Meßbank mit Hilfe eines induktiven Wegaufnehmers in Form von sogenannten Wendelschrieben. Hierbei wird ein Tastkopf mit einer Vorschubgeschwindigkeit von 20 mm/min (5 mm/U, 4 U/min) an dem rotierenden Prüfling vorbeigeführt. Der Meßkopf hat die Form eines Keiles mit abgerundeten Schneiden ( $r = 0,6$  mm). Die Auflösung der Wendelschriebe beträgt  $1 \mu\text{m}$ .

In den Abb. 18 bis 20 sind neben der axialen Zuordnung der Tablettendichten, -durchmesser und der Radialspalte die Ergebnisse der Durchmesserbestimmung (Min-, Max- Werte) dargestellt: Während im Bereich der oberen Brutstoffsäule keine wesentlichen Durchmesseränderungen zu verzeichnen sind (Stab K1-1:  $\leq 20 \mu\text{m}$ ), steigen sie im Bereich der Brennstoffsäule auf 100 (Stab K2-2) bis 120  $\mu\text{m}$  (Stab K1-1) an. Bei den Stäben K2-1 und K2-2 fallen bei der Betrachtung der Außendurchmesser zwei Dinge auf:

- eine Ovalitätszunahme bis maximal 50  $\mu\text{m}$  sowie
- eine offensichtlich geringere Durchmesseränderung im Bereich der heißen Brennstoffzone gegenüber den (oben und unten) anschließenden kälteren Bereichen.

Diese Änderungen können nicht auf die Schwankungen in Tablettendichte und -durchmesser bzw. Radialspalt zurückgeführt werden.

### 8.2 Durchleuchtung

Nach Abschluß der Bestrahlung wurden von den Bestrahlungskapseln Neutrografien im BR 2 angefertigt. Auf diesen Aufnahmen lassen sich Änderungen des Brennstabzustandes nur sehr schwer erkennen. Deutlich sichtbar jedoch war der Hüllrohrschaden bei Stab K1-1 sowie die Durchbiegung der einzelnen Stäbe. Aufgrund der Unschärfe der Aufnahmen ist jedoch eine quantitative Bestimmung der Durchbiegung nicht möglich.

Die Durchleuchtung der Stäbe nach dem Ausbau aus den Kapseln lieferte keine weitere, wesentliche Information mehr.

### 8.3 Gamma-Profile und Gamma-Spektren

Zur Charakterisierung der Brennstoffsäulen hinsichtlich der Rißstruktur, des axialen Leistungsverlaufes, der Brennstoffverlagerung und der Spaltproduktwanderung wurden die Prüflinge Gamma-spektrometrisch untersucht. In dieser Untersuchung wurden zum einen die Gamma-Aktivität entlang der Stabachse als Gamma-Profil erstellt, zum anderen Gamma-Spektren von bestimmten Bereichen des Prüflings aufgenommen.

Als Detektor diente hierzu ein Halbleiterkristall (GeLi) mit nachgeschaltetem Multikanal-Analysator. Profile und Spektren wurden mit einem schlitzförmigen Kollimator mit den Maßen 0,5 mm x 20 mm x 700 mm durch die Abschirmwand der Heißen Zellen aufgenommen. Während der Messung rotierten die Prüflinge um ihre Längsachse. Hierdurch wurde erreicht, daß Aktivitätsansammlungen im Bereich der Brennstoffaußenzonen nicht durch eine zufällige ungünstige Orientierung des Prüflings zum Detektor unbeachtet blieben.

Die Standard-Untersuchung wurde mit den Aufnahmen eines typischen Gamma-Spektrums begonnen. Dazu wurde ein Brennstoffsäulenbereich ausgewählt, der eine möglichst geringe Konzentrationsänderung an Spaltprodukten erwarten ließ. Gewöhnlich war dies etwa die Mitte der Brennstoffsäule. An Hand des Gamma-Spektrums wurden dann die besonderen Energiebereiche für bestimmte Gamma-Profile ausgewählt. Unabhängig von Gamma-Spektren wurde von jedem Prüfling ein integrales Profil aufgenommen, das die Gamma-Linien im weiten Bereich zwischen 400 keV und 1700 keV umfaßte.

Zu den Profilen, die an allen Prüflingen gemessen wurden, zählte auch das Zr/Nb-95-Profil. Bei kurzen Bestrahlungszeiten ist dem Profil der axiale Stableistungsverlauf zu entnehmen.

Je nach Abklingdauer wurden weitere Nuklid-Profile zur Bestimmung der Spaltproduktwanderung vermessen. Es waren dies insbesondere Profile für Cs/Ba-137 und Ba/La-140 für die kürzeren Abklingzeiten.

Zur Vervollständigung der Nuklidprofile in Bezug auf die Spaltproduktwanderung wurden, verteilt über die gesamte Prüflingslänge, zusätzliche Spektren aufgenommen, wo immer die Profile einen Hinweis auf anomale Spaltproduktverteilungen brachten. Für jeden Prüfling sind zwei der wichtigsten Gamma-Profile wiedergegeben (Abb. 21, 22, 23).

## 9. Zerstörende Nachuntersuchung

### 9.1 Spaltgasbestimmung

Bei den experimentellen Spaltgasuntersuchungen an bestrahlten Prüflingen werden in den Heißen Zellen des KFZ Karlsruhe i.a. folgende Messungen durchgeführt zur Bestimmung

- der freien Spaltgasmenge  $V_F$ ,
- des freien Volumens  $V'$  innerhalb der Hülle,
- der Spaltgasmenge in geschlossenen Poren  $V_P$ ,
- der im Brennstoff gelösten Spaltgasmenge  $V_G$ .

Die Bestimmung der freien Spaltgasmenge sowie des freien Volumens konnte nur am Prüfling K2-1 durchgeführt werden:

Freies Spaltgas	
Krypton	3460 mm <sup>3</sup>
Xenon	23440 mm <sup>3</sup>
Xe/Kr-Verhältnis	6,78
Freies Volumen	
	9477 mm <sup>3</sup>

Die Ergebnisse der Bestimmung von gebundenen Spaltgasen, d.h. Poren- und Gitterspaltgas, sind in Tabelle XII zusammengestellt.

Die theoretisch erzeugte Spaltgasmenge wird aus folgender Gleichung berechnet:

$$V_{\text{spez}} = \frac{0,275 \cdot 10^{-2} \eta_M V_{\text{Mol gas}}}{U \bar{M}_B} A \quad (\text{cm}^3/\text{g})$$

mit

$$\begin{aligned} \eta_M &= 0,952 \quad (\text{Umrechnungsfaktor Metall/Mischkarbid}) \\ V_{\text{Mol gas}} &= 22414 \text{ cm}^3 \\ U &= 9,55 \quad (\text{Energieumrechnungsfaktor \% Abbrand} \rightarrow \text{MWd/kg M}) \\ \bar{M}_B &= 235 \text{ g/Mol} \quad (\text{Brennstoffmolgewicht}) \end{aligned}$$

Je Gramm Brennstoff und 1 MWd/kg M werden somit 0,02613 cm<sup>3</sup> Spaltgas erzeugt.

Tabelle XII: Gebundenes Spaltgas

Prüfling Nr.	Probe Nr. +)	A (Mwd/kg M)	Einwaage (g)	Porensplattgas (mm <sup>3</sup> /g)		Einwaage (g)	Gittersplattgas (mm <sup>3</sup> /g)		Xe/Kr-Verhältnis	
				Krypton	Xenon		Krypton	Xenon	Poren	Gitter
K1-1	14 (423)	35,87	3,99	62,41	342,86	3,52	43,75	229,83	5,49	5,25
	19 (160)	36,09	4,49	60,80	337,42	4,05	43,95	250,86	5,55	5,71
K2-1	18 (290)	39,50	4,23	45,63	288,65	3,68	40,76	274,73	6,33	6,74
	22 (170)	39,44	3,24	(17,59)	(95,68)	(2,98)	(18,12)	(119,13)	5,44	6,57
K2-2	17 (290)	65,68	4,27	109,37	705,62	3,83	34,20	229,77	6,45	6,72
	21 (150)	67,32	4,74	103,16	651,48	4,35	38,85	268,97	6,32	6,92

+) Die Angaben in Klammern geben die Lage der Probe in mm vom unteren Brennstoffsäulenende an

Tabelle XIII: Spaltgasproduktion und -freisetzung

Prüfling	Probe	Spaltgasproduktion (mm <sup>3</sup> /g) (theoretisch)	Gebundenes Gas (mm <sup>3</sup> /g)	Freisetzung
K1-1	14	937,28	678,85	0,276
	19	943,03	693,03	0,265
K2-1	18	1032,14	649,77	0,371
	22	1030,57	(250,52)	(0,757)
K2-2	17	1716,22	1078,96	0,371
	21	1759,07	1062,46	0,396

Eine Spaltgasbilanz ist praktisch nur am Stab K2-1 möglich, da hier die freien Spaltgase bestimmt wurden. Unter Vernachlässigung der Meßergebnisse aus der Probe 22, welche offensichtlich zu niedrige Meßwerte liefert, erhält man ein Gesamtspaltgasvolumen von  $167,6 \text{ cm}^3$ , wenn die Ergebnisse aus Probe 18 auf den gesamten Brennstoff übertragen werden, zweifellos eine grobe Näherung. Nimmt man weiterhin den mittleren Abbrand des gesamten Brennstoffs zu 80 % der Probe 18, d.h.  $0,8 \times 39,5 = 31,6 \text{ MWd/kg M}$  an, so erhält man ein (theoretisches) Spaltgasvolumen von  $178,0 \text{ cm}^3$ , welches um 6 % über dem obigen Wert liegt.

Die Meßergebnisse in Tabelle XII deuten innerhalb gewisser Schwankungen darauf hin, daß die Gitterspaltgase offenbar einen Sättigungswert im Bereich der Mol-11-spezifischen Betriebsbedingungen erreichen. So liegt der mittlere Xenon-Anteil im Gitter bei ca.  $250 \text{ mm}^3/\text{g}$ , unabhängig von Brennstoffdichte und Abbrand, für den Krypton-Anteil ergibt sich ein mittlerer Wert von ca.  $40 \text{ mm}^3/\text{g}$ . Der Anteil der Porensplattgase ist deutlich abbrandabhängig, weiterhin scheint auch die Brennstoffdichte eine Rolle zu spielen: So enthält der hochdichte UC-Brennstoff ca.  $61 \text{ mm}^3 \text{ Kr}$  und  $340 \text{ mm}^3 \text{ Xe}$  bei etwa  $36 \text{ MWd/kg M}$ , der niederdichte (U,Pu)C-Brennstoff  $45 \text{ mm}^3 \text{ Kr}$ ,  $289 \text{ mm}^3 \text{ Xe}$  bei  $39 \text{ MWd/kg M}$ ,  $106 \text{ mm}^3 \text{ Kr}$  und ca.  $675 \text{ mm}^3 \text{ Xe}$  bei  $66 \text{ MWd/kg M}$ .

Bezugnehmend auf obige theoretische Spaltgasproduktion können für die verschiedenen Proben die in Tabelle XIII aufgeführten Freisetzungen errechnet werden.

Die Spaltgasfreisetzung von 0,371 der Probe 18 des Stabes K2-1 kann verglichen werden mit der Freisetzung, bezogen auf den gesamten Brennstoff: Bei einem berechneten Gesamt-Spaltgasvolumen von  $167,6 \text{ cm}^3$  mit einem freien Spaltgasvolumenanteil von  $26,9 \text{ cm}^3$  beträgt diese Freisetzungsrate 0,161. Die Spaltgasfreisetzung im heißen Teil der Brennstoffsäule liegt um den Faktor 2,3 über der mittleren Freisetzung.

Die Xe/Kr-Verhältnisse liegen bei dem UC-Brennstoff zwischen 5,25 und 5,71, bei dem Mischkarbid zwischen 6,32 und 6,92. Eine Abbrandabhängigkeit dieses Verhältnisses ist bei dem Mischkarbid nicht erkennbar.

## 9.2 Keramografie

Zur Bestimmung von Strukturänderungen im Brennstoff sowie des Zustandes der Innenoberfläche der Hülle werden die Prüflinge keramografisch untersucht. Bei der Festlegung der zu untersuchenden Bereiche, im wesentlichen Schnitte durch die Brennstoffsäule, werden folgende Gesichtspunkte bei der Auswahl berücksichtigt:

- Brennstabdaten  
Stabaufbau, Brennstoffspezifikationen, Lage der Thermoelemente
- Bestrahlungsdaten  
Stableistungs- und Hülltemperaturverlauf entlang der Stabachse
- Ergebnisse der zerstörungsfreien Nachuntersuchung  
Durchmesserermessung, Gamma-Spektrometrie

Wegen der begrenzten Anzahl von Schnitten wurden von jedem Stab vier Querschnitte in der Nähe der Hüllthermoelemente für die keramografische Untersuchung angefertigt. Für den Stab K1-1 wurden zusätzlich zwei Querschnitte im Bereich der Hüllschäden gelegt.

Für die Dokumentation (Anhang II) einer Schliffebene wurde folgendes Schema angewandt:

Aufnahmetyp	Vergrößerung	Verarbeitung der Fläche
1. Totalaufnahme	15 x	poliert
2. $\alpha^-$ , $\beta^-$ , $\gamma^-$ -Autoradiografie	15 x	"
3. Panoramaaufnahme über Stabradius	100 x	"
4. Detailaufnahme	100 x 200 x 500 x	poliert geätzt

Die Präparation der Schlitze erfolgt wasserfrei mit Diamantpulver und organischen Lösungen.

Wie eine vorläufige Untersuchung an unbestrahlten Proben /17/ zeigte, kann diese Präparationsmethode die Porenverteilung und -struktur verändern (Verschmieren des Karbides, Ausbrechen von Körnern), so daß die Bestimmung des Absolutwertes der Restporosität schwierig wird. In den Abb.24 bis 26 ist für die Radialschliffe der drei Prüflinge die radiale Porositätsverteilung über den keramografischen Aufnahmen dargestellt /17/: In allen Fällen wechseln sich Zonen mit unterschiedlichen Porositätsanteilen ab, deren Breite und Dichte mit der axialen Lage und damit den unterschiedlichen Temperatur- und Stableistungszuständen zusammenhängen. Für die Bildung von Bereichen höherer Dichten sind vermutlich Effekte wie Kriechen (in die Poren), Nachsintern und Heißpressen verantwortlich, deren unterschiedlicher Einfluß von den verschiedenen radialen Temperaturbereichen abhängt.

Mittels der  $\alpha$ - und  $\beta$ - $\gamma$ -Autoradiografien können Plutonium- und Spaltproduktverteilungen sichtbar gemacht werden. Aus den  $\alpha$ -Radiografien der Stäbe mit Mischkarbid lassen sich zwei Mechanismen erkennen, welche zu stärkeren Pu-Ansammlungen führen.

- Bei Rissen und Restspalten sind in allen Fällen Pu-Anreicherungen erkennbar, welche auf Verdampfung-Kondensation zurückzuführen sind (Abb. 27).
- Ringförmige Anreicherung von Plutonium über die Bildung von Komplexkarbiden mit temperatureselektivem Verhalten (Temperaturschranke), (Abb. 27), /18/.

Während die Pu-Anreicherungen in Rissen etc. bereits nach relativ kurzen Bestrahlungszeiten auftreten können /2/, wurden die ringförmigen Anreicherungen erst nach höheren Abbränden festgestellt.

Die  $\beta$ - $\gamma$ -Autoradiografien zeigen in fast allen Brennstoffebenen deutliche Spaltproduktverteilungen: Mit zunehmender Brennstofftemperatur wandern die Spaltprodukte in die kälteren Außenzonen des Brennstoffs, ein Effekt, der ebenfalls in Kurzzeitbestrahlungen nachgewiesen werden konnte /2/ (s. Abb. 28 und 29).

### 9.3 Radiochemische Abbrandbestimmung

Neben der Abbrandbestimmung über die aus den Thermoelementanzeigen gewonnenen Stableistungen wurden zusätzlich die Abbrände durch radiochemische Isolierung und quantitative Analyse bestimmter Spaltprodukte ermittelt.

Hierzu wurden die Brennstoffabschnitte herangezogen, mittels derer die Bestimmung der gebundenen Spaltgase durchgeführt wurde. Als Abbrandindikatoren wurden die Spaltprodukte Cs-137, Ce-144 und Nd-148 benutzt. Die über diese Isotope ermittelten Abbrände sind in Tabelle XIV zusammengestellt.

Tabelle XIV: Radiochemische Abbrandwerte

Stab-Nr.	Probe Nr.	Abbrand (% Fima)			Abbrand <sup>+) (thermisch) (% Fima)</sup>
		Cs-137	Ce-144	Nd-148	
K1-1	14	3,28	3,42	3,48	≈ 3,66
	19	3,56	3,76	3,80	3,78
K2-1	18	3,18	3,91	3,92	4,31
	22	2,97	3,47	3,41	4,13
K2-2	17	6,29	6,49	6,43	6,88
	21	5,81	6,47	6,33	7,05

<sup>+) Umrechnungsfaktor 1 % ≈ 9,55 MWd/kg M</sup>

Zum Vergleich sind in der letzten Spalte die in % umgerechneten thermischen Abbrandwerte (s. Kap. 7.4) der entsprechenden Höhenpositionen aufgeführt.

#### 10. Dokumentation der zerstörungsfreien und zerstörenden Nachuntersuchung

In Anhang II und den Abb. 21 bis 23 wird der wesentliche Teil der Dokumentation der zerstörungsfreien und zerstörenden Nachuntersuchung dargestellt, welche eine Auswahl der wichtigsten Ereignisse für jeden der 3 Prüflinge enthält. Dargestellt sind:

- Gamma-Profile der bestrahlten Prüflinge (Abb. 21 - 23)
  - a) integrales Gamma-Profil (Energiebereich 400 - 1700 keV),
  - b) differentielles Gamma-Profil für Teilenergiebereiche (isotopspezifisch Cs/Ba-137 640 bis 684 keV).
- Keramografische Übersicht (Anhang II):
  - a) schematische Zeichnung des Prüflings mit Markierung der Schnittebenen und TE-Lage,

- b) keramografische Übersichtsaufnahmen entsprechend der Schnittzahl,
  - c)  $\alpha$ -Autoradiografie zur Darstellung der Pu-Verteilung nach Ablauf der Bestrahlung,
  - d)  $\beta$ - $\gamma$ -Autoradiografien zur Charakterisierung der Spaltproduktverteilung.
- Kurze Zusammenfassung der Material- und Bestrahlungsdaten des Brennstabprüflings (Faltblatt).

Auf weiteren Einzelblättern werden weiterhin signifikante Details wie beispielsweise Strukturänderungen des Brennstoffs in höheren Vergrößerungen gezeigt.

Abschließend sei an dieser Stelle vermerkt, daß es sich bei den angeführten Beispielen um eine nicht detailspezifische Auswahl aus einer großen Anzahl von keramografischen Aufnahmen handelt.

## 11. Modelltheoretische Untersuchungen

Die modelltheoretische Analyse des Bestrahlungsverhaltens der Prüflinge K1-1, K2-1 und K2-2 wurde mit Hilfe der Version 1k des Rechenprogrammsystems SATURN-1 /19/ für jeweils einen repräsentativen Querschnitt durchgeführt. Dieser wurde bei K1-1 auf der Höhe der Thermoelemente TE 6, 7 und 8, bei K2-1 ebenfalls auf der Höhe dieser Thermoelemente und bei K2-2 auf der Höhe des Thermoelements TE 9 gewählt. Die Betriebsbedingungen, die der Simulation des Bestrahlungsablaufs an diesen Stellen zugrundegelegt wurden, sind in den Abb. 31 bis 36 dargestellt.

Abb. 37 gibt zur Orientierung den Zusammenhang zwischen Bestrahlungszeit und Abbrand für eine lineare Stableistung von rund 1000 W/cm an.

Das Verhalten der Prüflinge unter Bestrahlung wird in seinen wesentlichen Merkmalen durch folgende Materialeigenschaften bestimmt:

- Wärmedurchgang durch den Spalt bzw. die Kontaktzone zwischen Brennstoff und Hülle,
- Festigkeitseigenschaften des Brennstoffes, d.h. Rißverhalten und Kriecheigenschaften,

- Schwellverhalten des Brennstoffes und
- Festigkeitseigenschaften der Hülle.

Spaltgasfreisetzung spielte bei K1-1 in dem Bestrahlungszeitraum bis zum Auftreten des Hüllschadens keine Rolle.

Die den Rechnungen zugrundegelegten Materialbeziehungen und -daten sind im Anhang I zusammengestellt.

### 11.1 Thermische Analyse

Zwei allgemeine Ergebnisse der thermischen Analyse sind:

- Der Temperaturgradient im Brennstoff ist gemessen an der hohen Stableistung aufgrund der guten Wärmeleitfähigkeit des Karbids niedrig. Der Temperaturgradient im Hüllrohr ist demgegenüber aber erheblich größer als bei einem Brennstab mit oxidischem Brennstoff unter den dafür vorgesehenen Betriebsbedingungen.
- Der Einfluß der Qualität des Wärmedurchgangs auf die thermische Belastung des Brennstoffes wird in einem Beispiel an dem untersuchten Querschnitt des Prüflings K1-1 verdeutlicht. Abb. 38 zeigt den Verlauf des radialen Temperaturprofils in dem betrachteten Querschnitt nach Schließen des Spalts, aber noch ohne Vorliegen eines Kontaktdruckes. Infolge der hohen linearen Stableistung ist der Temperatursprung in der Kontaktzone zwischen Brennstoff und Hülle erheblich größer als bei einem Brennstab mit oxidischem Brennstoff, der mit sehr viel geringerer Leistung betrieben wird. Für die Berechnung dieses Temperatursprungs wurde vergleichsweise reines Helium als Füllgas und eine Füllgaszusammensetzung aus 90 % Helium und 10 % Argon als Äquivalent für verunreinigende Gase angenommen. Diese Zusammensetzung wurde allen Rechnungen zugrundegelegt.

Ihnen zufolge blieb die Zentraltemperatur in den Prüflingen K2-1 und K2-2 während der gesamten Bestrahlung unter 1800 °C und bei K1-1 unter 1700 °C.

In Abb. 39 ist als Beispiel der zeitliche Verlauf der Zentraltemperatur in Höhe des Thermoelements TE 9 des Prüflings K2-2 dargestellt.

Das thermische Verhalten der Prüflinge wird maßgeblich durch die Wärmeleitungseigenschaften des Spalts bzw. der Kontaktzone zwischen Brennstofftablette und Hüllrohr bestimmt. Der Vergleich der in den Abb.40 und 41 wiedergegebenen Temperaturprofile veranschaulicht diesen Einfluß.

Am Ende der Bestrahlung ist der Temperatursprung in der Kontaktzone zwischen Brennstofftablette und Hüllrohr bei dem Prüfling K2-2 um rund die Hälfte kleiner als bei dem Prüfling K2-1, obwohl aufgrund der längeren Standzeit des Prüflings K2-2 mehr die Wärmeleitfähigkeit verschlechtern-des Spaltgas freigesetzt wurde. Da das effektive Plenumvolumen bei diesem Prüfling aber durch das zur Spaltgasdruckmessung notwendige Meßvolumen um mehr als einen Faktor 100 größer war als bei dem Prüfling K2-1, ist der relative Anteil des Spaltgases am ursprünglichen Füllgas erheblich niedriger und somit sein Einfluß sehr viel geringer.

Ein weiterer Unterschied zwischen den beiden Prüflingen bestand in der Druckbeaufschlagung durch das Füllgas. Der bei K2-2 um etwa einen Faktor 4 höhere Einfülldruck schlägt sich bereits zu Beginn der Bestrahlung in einer deutlich bemerkbaren Verbesserung des Wärmedurchgangs durch den Restspalt nieder.

## 11.2 Mechanische Analyse

Der Volumenbedarf einer Brennstofftablette ist von ihrem Rißzustand abhängig. Eine gerissene Tablette beansprucht ein größeres Volumen als eine nicht gerissene Tablette. Der daraus resultierende Einfluß auf die Spaltbreite ist in der Abb. 42 dargestellt, die die Verhältnisse bei vollständig gerissener und bei nicht gerissener Tablette am Beispiel des Prüflings K1-1 vergleicht.

Die Wahrscheinlichkeit, daß die Brennstofftablette bereits während des ersten Anfahrens aufreißt, ist sehr groß, wie aus dem Spannungsdiagramm in Abb. 43 hervorgeht. Denn die Reißspannung z.B. für UC liegt bei einer Temperatur von rund  $1000^{\circ}\text{C}$ , der Temperatur der Randzone des Brennstoffs, unterhalb  $20 \text{ kp/mm}^2$  /24/ und damit weit unterhalb der für volle thermische Belastung rechnerisch ermittelten Spannungswerte in der Randzone.

Es kann also mit einiger Wahrscheinlichkeit angenommen werden, daß bei K1-1 bereits nach einer Bestrahlungszeit von rund 100 h der Fertigungsspalt aufgrund der thermischen Ausdehnung und des Schwellens des Brennstoffs geschlossen

war (s. Abb. 42). Durch das weitere Schwellen des Brennstoffs wurden in dem System Brennstoff-Hülle Spannungen aufgebaut, die wegen der geringen Kriechfähigkeit des Hüllmaterials und wegen der eingeschränkten Kriechmöglichkeit des Brennstoffs hohe Werte erreichen (s. Abb. 44).

Die geringe Kriechfähigkeit des Hüllmaterials ist auf die niedrige Hüllrohrtemperatur zurückzuführen. Die Kriechmöglichkeit des Brennstoffes ist bei K1-1 dadurch eingeschränkt, daß der Brennstoff als hochdichtes Vollpellet vorliegt und seine Temperatur ebenfalls relativ niedrig ist.

Es muß angenommen werden, daß spätestens im dritten Betriebszyklus die Streckgrenze des Hüllmaterials erreicht und überschritten wurde. Im vierten Betriebszyklus hat dann die fortdauernde plastische Verformung des Hüllrohres zu dessen Bruch geführt (vgl. Abschn. 7.2).

In der Abb. 45 werden zwei die Belastung des Hüllrohres charakterisierende Spannungsgrößen, Tangentialspannung und Äquivalenzspannung (eindimensionale Vergleichsspannung), in Abhängigkeit vom Radius angegeben. Dabei entspricht das eine Kurvenpaar einer allein durch Kühlmitteldruck, Füllgasdruck und Temperaturgradient hervorgerufenen Belastung, während das zweite Kurvenpaar den zusätzlichen Einfluß eines durch den Brennstoff verursachten Festkörperdruckes in Höhe von rund  $200 \text{ kp/cm}^2$  miterfaßt. Die Streckgrenze  $\sigma_{0,2}$  des verwendeten Hüllrohrmaterials vom Typ 1.4988 liegt in dem in Frage kommenden Temperaturbereich von 480 bis  $600 \text{ }^\circ\text{C}$  für unbestrahltes Material in der Gegend von  $15 \text{ bis } 20 \text{ kp/mm}^2$  /20/. Diese Grenze wird in Teilbereichen des Hüllrohrquerschnittes bereits ohne Festkörperbelastung überschritten.

Trägt man die Durchmesserzunahme, die an verschiedenen axialen Positionen (Thermoelement-Positionen) der beiden Prüflinge K2-1 und K2-2 bestimmt wurden (s. Abschn. 8.1) gegen den jeweiligen Endabbrand auf und extrapoliert in einer ersten Näherung zu dem Wert null der Durchmesserzunahme, so entspricht diesem Wert im Mittel ein Abbrand von ungefähr 3,2 % Fima oder  $27 \text{ MWd/kg M}$  (vgl. Abb. 46). Das heißt, unter den herrschenden Betriebsbedingungen war im Mittel bis zu diesem Abbrand sowohl der Fertigungsspalt geschlossen als auch die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle so stark geworden, daß eine bleibende Verformung des Hüllrohres einsetzen konnte. Diese Verformung dürfte ebenso wie bei dem Prüfling K1-1 auf eine Beanspruchung bis in den plastischen Bereich hinein zurückzuführen sein.

Denn auch bei der Versuchsgruppe K2 ist aufgrund der niedrigen Hüllrohrtemperaturen ein Beitrag durch thermisch induziertes sekundäres Kriechen nicht zu erwarten. So konnten sich wie bei dem Prüfling K1-1 hohe Spannungswerte bis in den Bereich der Streckgrenze des Hüllmaterials aufbauen.

Parameterstudien haben gezeigt, daß bei Brennstäben mit karbidischem Brennstoff auch unter stationären Bedingungen die Zeitspanne zwischen dem Schließen des Spalts und dem Auftreten einer massiven mechanischen Wechselwirkung sehr kurz ist.

Bei den Prüflingen K2-1 und -2 sollte der Spalt durch thermische Ausdehnung und Schwellen nach einem Abbrand von ungefähr 1,6 % Fima (14 MWd/kg M) geschlossen sein. Eine Aufweitung des Hüllrohrs ist aber dem experimentellen Befund zufolge mit großer Wahrscheinlichkeit erst nach einem Abbrand von etwa 3,0 % Fima aufgetreten. Dieser Befund deutet darauf hin, daß entweder in der ersten Bestrahlungsphase durch Nachsintern der Schwelleffekt des Brennstoffs vermindert wurde, so daß der Brennstoff entsprechend später die Hülle erreicht hat, oder daß nach dem Eintreten des Kontakts zwischen Brennstoff und Hüllrohr durch Heißpressen, d.h. durch Kriechen des Brennstoffs in seine Poren, die mechanische Wechselwirkung für einige Zeit auf einem relativ niedrigen Niveau gehalten wurde. Mit großer Wahrscheinlichkeit sind beide Effekte nacheinander aufgetreten.

Die in den Abb. 19 und 20 sichtbaren Minima der Hüllaufweitungen in Stabmitte fallen mit der Lage des Stableistungsmaximums zusammen. Das deutet darauf hin, daß möglicherweise die Verfügbarkeit von Porenvolumen über Heißpressen bei höheren Stableistungen größer wird.

Aufgrund der in den jeweiligen ersten Betriebszyklen etwas unterschiedlichen Stableistungen, vor allem aber aufgrund des unterschiedlichen Einfülldrucks ist der Spalt zwischen Brennstoff und Hüllrohr bei dem Prüfling K2-1 früher durch das Brennstoffschwellen aufgebraucht als bei dem Prüfling K2-2 (siehe Abb. 47 und 48). (Dabei wurde angenommen, daß bedingt durch Nachsintern eine effektive Volumenvergrößerung mit den im Anhang I angegebenen Schwellraten erst ab einem Abbrand von rund 1 % Fima auftritt.) Dementsprechend setzt die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hüllrohr früher ein. Sie führt aufgrund der eingeschränkten Kriechmöglichkeiten des Karbidbrennstoffs zu einer sehr starken mechanischen Belastung der Hülle. Nimmt man an, daß die Hülle rein elastisch gedehnt wird, so sagen die modelltheoretischen Rechnungen die als Beispiel in Abb. 49 wiedergegebenen Kontaktdrücke voraus.

Unter dieser Belastung wird die Hülle bis in den Fließbereich hinein beansprucht. Ein zusätzlicher Abbau der Spannungen durch Kriechen ist aufgrund der niedrigen Hüllrohrtemperaturen unwahrscheinlich.

Mit einem einfachen Modell zur Beschreibung des elastisch-plastischen Verhaltens des Hüllrohrmaterials wurden die im Fließbereich zu erwartenden Verformungen ohne und zum Teil mit Berücksichtigung einer Dehnungsverfestigung abgeschätzt (vgl. Abb.50).

Der Vergleich mit den gemessenen Aufweitungen (s. Abb. 46) zeigt eine deutliche Überschätzung des Grades der Verformung. Dafür kann es verschiedene Ursachen geben, z.B.:

- Der Grad der tatsächlichen Verfestigung des Hüllmaterials wurde unterschätzt.
- Die effektive Volumenvergrößerung des Brennstoffs aufgrund des Schwellens wurde zu groß gewählt.
- Der Effekt des Heißpressens, d.h. des Kriechens in die Poren, wurde in dem verwendeten pauschalen Modell als zu gering angesetzt.

Der gegenwärtige Kenntnisstand der Eigenschaften und des Verhaltens von Karbid-Brennstoff und die mangelnde Kenntnis des tatsächlichen Anlieferungszustandes des Hüllmaterials erlauben zum gegenwärtigen Zeitpunkt keine Beurteilung dieser möglichen Ursachen.

Einen Eindruck von den Spannungsverhältnissen im Hüllrohr vermitteln die Abb. 51 und 52. Sie zeigen anhand der eindimensionalen Vergleichsspannung die zunehmende Plastifizierung des Hüllrohrs. Der Streckgrenze, die zu rund  $21 \text{ kp/mm}^2$  angenommen wurde, entspricht dabei ein Gleichgewichtskontaktldruck von rund  $320 \text{ kp/cm}^2$ .

## 12. Zusammenfassung und Schlußfolgerung

Ein Brennstab-Konzept, das hochdichten karbidischen Brennstoff und eine kleine Spaltbreite wie im Falle der Versuchsgruppe K1 vorsieht, stellt dem Brennstoff kein ausreichendes Volumen zur Aufnahme des Schwellens zur Verfügung. Das im schnellen Neutronenfluß zu erwartende Schwellen des Hüllmaterials und die damit verbundene Vergrößerung des Hüllrohrdurchmessers

kann nur lokal, d.h. in den betroffenen axialen Zonen des Brennstabes eine Verringerung der Belastung des Hüllrohrs herbeiführen. Eine generelle Verbesserung des Bestrahlungsverhaltens ist dadurch nicht zu erwarten.

Als Ergebnis der Versuchsgruppe K2 kann festhalten werden, daß in den mit niederdichtem Mischkarbid-Brennstoff versehenen Prüflingen ein Teil des Porenvolumens zur Aufnahme der durch Schwellen hervorgerufenen Volumenvergrößerung des Brennstoffs zur Verfügung stand. Ein Vorgang, der mit Sicherheit zu diesem Verdichtungsprozeß beigetragen hat, ist Heißpressen, d.h. Kriechen in die Poren. Dieser Vorgang ist allerdings unter einer hohen Druckbelastung des Hüllrohrs abgelaufen, die zu dessen permanenter plastischer Verformung geführt hat. Nachsintern hat mit großer Wahrscheinlichkeit ebenfalls zur Verdichtung des Brennstoffs beigetragen und damit zu einer Verminderung des Schwelleffektes in der ersten Phase der Bestrahlung geführt.

Die Interpretation der Bestrahlungsergebnisse war durch mehrere Faktoren erschwert:

- Die Kenntnis der Materialeigenschaften und des Materialverhaltens von Mischkarbid-Brennstoff ist noch mit zu großen Unsicherheiten behaftet.
- Der Zustand des für die Prüflinge verwendeten Hüllmaterials konnte nicht genau festgestellt werden. So konnten dessen Eigenschaften und Verhalten nur näherungsweise beschrieben werden.
- Das vorliegende experimentelle Material war für eine genaue Analyse der Versuchsgruppe unvollständig. Es wären dazu z.B. noch notwendig gewesen:
  - eine Leervolumenanalyse (Porengrößen, Porenverteilung) der Brennstoff-Tabletten vor der Bestrahlung und
  - eine Vermessung der axialen Länge der Tablettensäule und des Hüllrohrs nach Beendigung der Bestrahlung.

Die Bestrahlung der beiden Prüflinge K2-1 und K2-2 hat ebenso wie die des Prüflings K1-1 gezeigt, daß bei einem Karbid-Brennstabkonzept mit kleinem Spalt Hüllrohrverformungen schon bei niedrigem Abbrand auftreten werden. Sie sind bei den Versuchen die Folge einer bis in den Fließbereich des Hüllmaterials reichenden Druckbelastung des Hüllrohrs gewesen, die durch das Schwellen des Brennstoffs verursacht wurde. Die Belastung durch Spaltgasdruckaufbau spielte keine Rolle.

Eine der Schlußfolgerungen aus dem Bestrahlungsversuch Mol-11/K2 sowie dem Bestrahlungsversuch Mol-11/K1 lautet, daß in Brennstäben mit karbidischem Brennstoff zur Aufnahme des Brennstoffschwellens ein ausreichendes Spaltvolumen vorgesehen werden muß.

Literatur:

- /1/ D. Freund:  
Die wesentlichen Brennstab- und Bündelexperimente,  
Beitrag XVI in KFK 1999, Sept. 1974
- /2/ P. Weimar, H. Fiedler:  
Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung des Mischkarbid-Kurzzeit-  
Bestrahlungsexperimentes Loop-Versuchsgruppe 4a,  
KFK 1919, Juli 1974
- /3/ L. Steinbock, D. Freund:  
Karbid-Bestrahlungsversuch Loop-Versuchsgruppe 5k im FR 2,  
KFK 1275/2, Okt. 1975
- /4/ H. Pollanz, K. Kummerer:  
Auslegung und Spezifikation des UC-Bestrahlungsversuches K1-1  
in der Prototypkapsel Mol-11/A-1 im BR 2,  
(unveröffentlicht)
- /5/ H. Pollanz:  
Auslegung und Spezifikation der UC/PuC-Bestrahlungsversuche im BR 2  
im Rahmen der Versuchsgruppe K2,  
(unveröffentlicht)
- /6/ H. Beißwenger et al.:  
Die Entwicklung von Brennelementen schneller Brutreaktoren,  
KFK 700, Dezember 1967
- /7/ H. Kämpf, G. Karsten:  
The SATURN Code, A Theoretical Analysis of Fuel Pin Behavior and  
Fuel Void Dynamics,  
KFK 1088, November 1969
- /8/ J. W. Weber:  
Report HW-73394

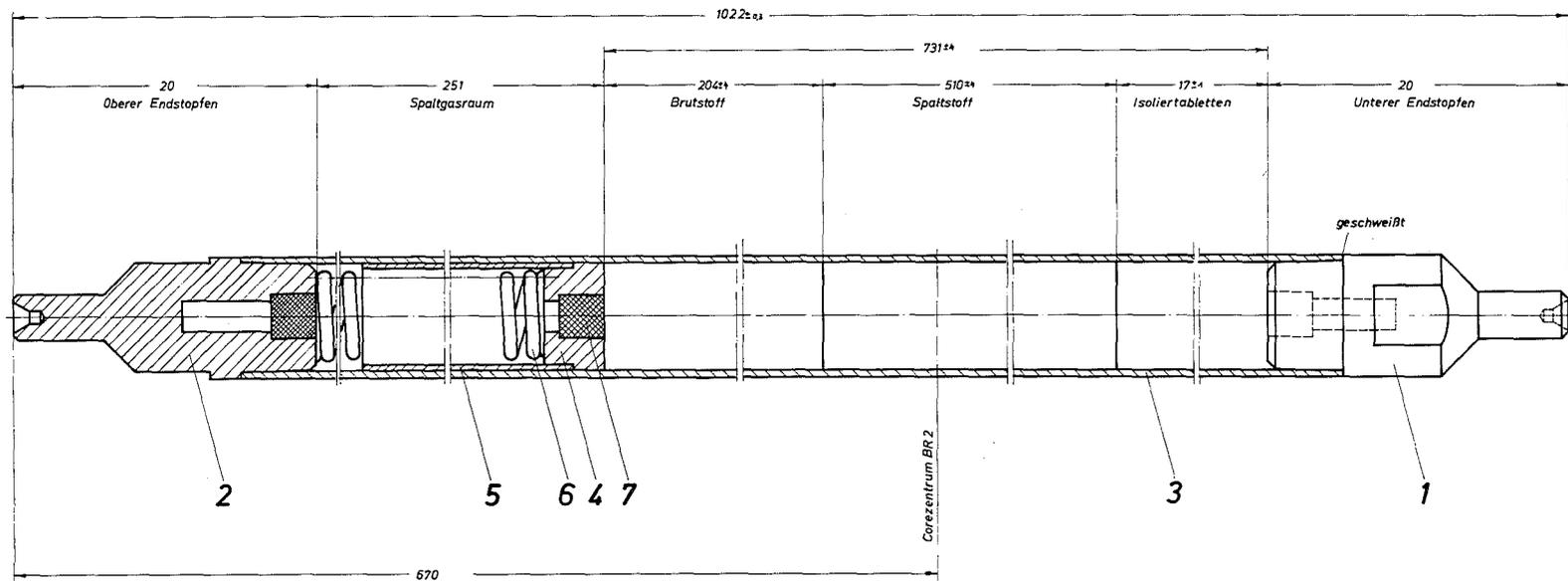
- /9/ A. Krauth, H.-J. Feiwes:  
Herstellung eines UC-Stabes für den Bestrahlungsversuch K1-1 in der Prototyp-Kapsel Mol-11/A-1 im BR 2, (unveröffentlicht)
- /10/ Fertigungsbericht über die Herstellung von 3 (U,Pu)C-Brennstäben für das Bestrahlungsexperiment BR 2-Mol-11/A/B der GfK,  
(unveröffentlicht)
- /11/ J.F. Gueugnon, K. Richter:  
Fertigstellung von 3 Stäben mit Mischkarbidbrennstoff ( $U_{0,85}Pu_{0,15}$ )C für Bestrahlungsversuche im BR 2,  
(unveröffentlicht)
- /12/ P. von der Hardt:  
Some BR 2 Irradiation Devices for Fast Reactor Fuel and Fuel Elements, EUR 4632 e, Oktober 1970
- /13/ Theoretical Calculations Pertinent to the High Power Fafnir Capsule, BR 2, Reactor Studies, (unveröffentlicht)
- /14/ H. Sebening:  
interne Mitteilung
- /15/ D. Freund, H. Fiedler:  
Erste experimentelle und modelltheoretische Ergebnisse des Karbidbestrahlungsexperiments Mol-11, Reaktortagung Berlin, 2. - 5.4.1974
- /16/ E. Vogel:  
Abschlußbericht Bestrahlung Mol-11/B2,  
(unveröffentlicht)
- /17/ B. Schulz:  
interne Mitteilung
- /18/ H. Kleykamp:  
Mikrosondenuntersuchungen an bestrahlten Karbid-Brennstäben. Das Bestrahlungsexperiment Mol-11, Reaktortagung Düsseldorf, April 1976
- /19/ H. Kämpf, H. Elbel, F. Depisch:  
Das Rechenprogramm SATURN-1a für Brennstäbe, KFK 1575, 1972
- /20/ K.D. Closs:  
Physikalische und mechanische Eigenschaften von Hüllmaterialien,  
(unveröffentlicht)
- /21/ K.D. Closs:  
Kriechverhalten von Hüllmaterialien für schnelle Na-gekühlte Reaktoren,  
Beitrag in KFK 1400, S. 263 (Oktober 1971)
- /22/ A.B.G. Washington:  
Preferred values for the thermal conductivity of sintered ceramic fuel for fast reactor use,  
TRG-Report 2236 (D) (Sept. 1973)

- /23/ R. Mendez-Penalosa:  
Thermal Expansion of Uranium Monocarbide,  
NAA-SR-8538 (1963)
- /24/ J.R. Matthews:  
Mechanical Properties and Diffusion Data for Carbide and Oxide Fuels,  
AERE-M 2643 (1974)
- /25/ M. Tokar:  
Compressive Creep and Hot Hardness of U-Pu-Carbide,  
J. Am. Cer. Soc. 56 (1973) 173
- /26/ D.J. Clough:  
Observations on the Low Temperature Creep Properties of Uranium  
Carbide under Irradiation,  
AERE-R 7772 (1974)
- /27/ H. Mikailoff:  
L'élément combustible carbure à joint hélium pour la filière à  
neutrons rapides: problèmes posés par le gonflement du combustible,  
Bull. d' Inf. Scient. et Techn. 196 (1974) 49
- /28/ R.A. Wullaert et al.:  
An Evaluation of UC-PuC for Sodium-Cooled Fast Reactors,  
BMI-1799 (1967)
- /29/ B.A. Hayes, M.A. De Crescente:  
Thermal Conductivity and Electrical Resistivity of Uranium Monocarbide,  
PWAC-480 (1965)
- /30/ A.E. Ogard et al.:  
The Thermal Expansion of PuC and UC Solid Solution,  
J. Nucl. Mat. 15 (1965) 43
- /31/ H. Zimmermann:  
Spaltgasverhalten und Schwellung in den Karbidbrennstäben K1-1, K2-1,  
K2-2 (unveröffentlicht)
- /32/ H. Steiner:  
Das Materialverhalten der karbidischen Brennstoffe,  
(unveröffentlicht)
- /33/ R. Godesar:  
Untersuchungen des Einflusses der Wärmeübergangskoeffizienten im  
Spalt zwischen Brennstoff und Hülle auf die sicherheitstechnische  
Auslegung von stabförmigen Brennstäben für Schnelle Brutreaktoren,  
Dissertation TH-Aachen (1972)

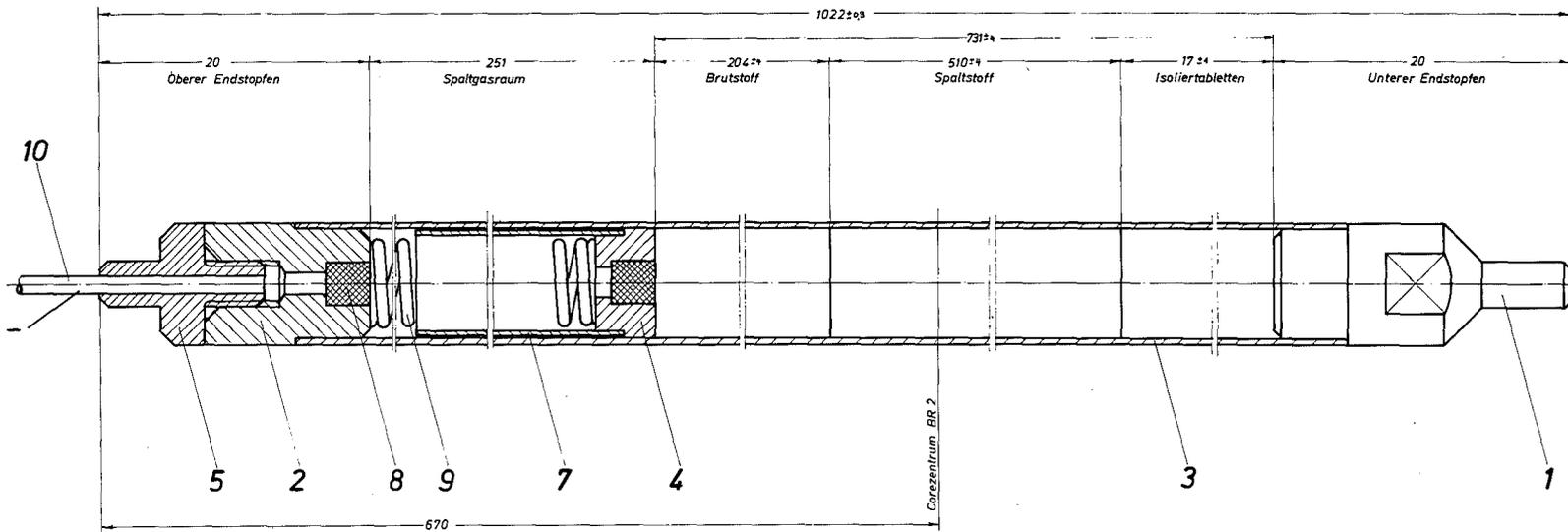
## Liste der Abbildungen

- Abb. 1: Stabaufbau
- 2: Kapseltyp FASOLD, Querschnitt
  - 3: " " , Längsschnitt
  - 4: Thermoelementanordnung
  - 5: Temperatur- Stabileleistungscharakteristik der Kapsel FASOLD MK IIIc
  - 6: Kapseltyp FASOLD, radiale Temperaturverteilung
  - 7: Positionskarte BR 2-Core
  - 8: Bestrahlungsablauf der Prüflinge K1-1, K2-1 und K2-2
  - 9: Axiale Flußverteilung im BR 2
  - 10: Mittleres Flußspektrum
  - 11: Radiale Leistungsdichteverteilung
  - 12: K1-1, Hülloberflächentemp. (TE 8 und 10) als Funktion der Zeit
  - 13: K1-1 Temperaturänderungen
  - 14: Stab K1-1, Axialer Verlauf von Hülloberflächentemperatur und Stableistung
  - 15: Stab K2-1, Axialer Verlauf von Hülloberflächentemperatur und Stableistung
  - 16: Stab K2-2, Axialer Verlauf von Hülloberflächentemperatur und Stableistung
  - 17: Stab K2-2, Spaltgasdruckaufbau als Funktion des Abbrandes
  - 18: Prüfling K1-1: UC, 93 % U-235, 1.4988
  - 19: Prüfling K2-1: ( $U_{0,85}, Pu_{0,15}$ )C, 93 % U-235
  - 20: Prüfling K2-2: ( $U_{0,85}, Pu_{0,15}$ )C, 93 % U-235
  - 21: Gamma-Profile, Stab K1-1
  - 22: Gamma-Profile, Stab K2-1
  - 23: Gamma-Profile, Stab K2-2
  - 24: Porositätsverteilung Stab K1-1
  - 25: " " K1-2
  - 26: " " K2-2
  - 27: Lokale Pu-Umverteilungen
  - 28: K2-2, Axiale Verteilung von  $\chi$  und  $T_{Ha}$ , Spaltproduktverteilungen
  - 29: Brennstofftemperatur und Struktur
  - 30: Wärmedurchgangszahl h als Funktion der Spaltbreite bzw. des Kontaktdruckes
  - 31: Stableistung als Funktion der Zeit an der Position -30 des Prüflings K1-1
  - 32: Hülloberflächentemperatur als Funktion der Zeit an der Position -30 des Prüflings K1-1

- Abb. 33: Lineare Stabileistung in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-1, TE 6,7,8
- 34: Hülloberflächentemperatur in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-1, TE 6,7,8
- 35: Lineare Stabileistung in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-2, TE 9
- 36: Hülloberflächentemperatur in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-2, TE 9
- 37: Abbrand als Funktion der Bestrahlungszeit bei einer linearen Stabileistung von rund 1000 W/cm
- 38: Radiales Temperaturprofil im Prüfling Mol-11/K1-1, Stabl. 1330 W/cm
- 39: Zentraltemperatur in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-2, TE 9
- 40: Radiales Temperaturprofil im Brennstab bei Mol-11/K2-1, TE 6,7,8,
- 41: Radiales Temperaturprofil im Brennstab bei Mol-11/K2-1, TE 9,
- 42: Radiale Spaltbreite in Abhängigkeit von der Zeit an der Position -30 des Prüflings Mol-11/K1-1
- 43: Tangential- und Äquivalenzspannung  $\sigma_t$  bzw.  $\sigma_e$  im Brennstoff des Prüflings Mol-11/K1-1
- 44: Kontaktdruck  $p_c$  in Abhängigkeit von der Zeit  $t$  an der Position -30 des Prüflings Mol-11/K1-1
- 45: Tangential- und Äquivalenzspannung  $\sigma_t$  bzw.  $\sigma_e$  im Hüllrohr des Prüflings Mol-11/K1-1
- 46: Durchmesserzunahme in Abhängigkeit vom Abbrand bei Mol-11/K2, an verschiedenen Thermoelementpositionen
- 47: Radiale Spaltbreite in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-1, TE 6,7,8
- 48: Radiale Spaltbreite in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-2, TE 9
- 49: Kontaktdruck in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-2, TE 9
- 50: Änderung des Hüllrohräußenradius in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-1, TE 6,7,8, mit Dehnungsverfestigung
- 51: Tangential- und Äquivalenzspannung im Hüllrohr bei Mol-11/K2-2, TE 9, zu Beginn des ersten Betriebszyklus, Spalt offen
- 52: Äquivalenzspannung im Hüllrohr bei Mol-11/K2-2, TE 9, nach einer Bestrahlungszeit von 2742 h und 3422 h, Spalt geschlossen



K1-1  
K2-1

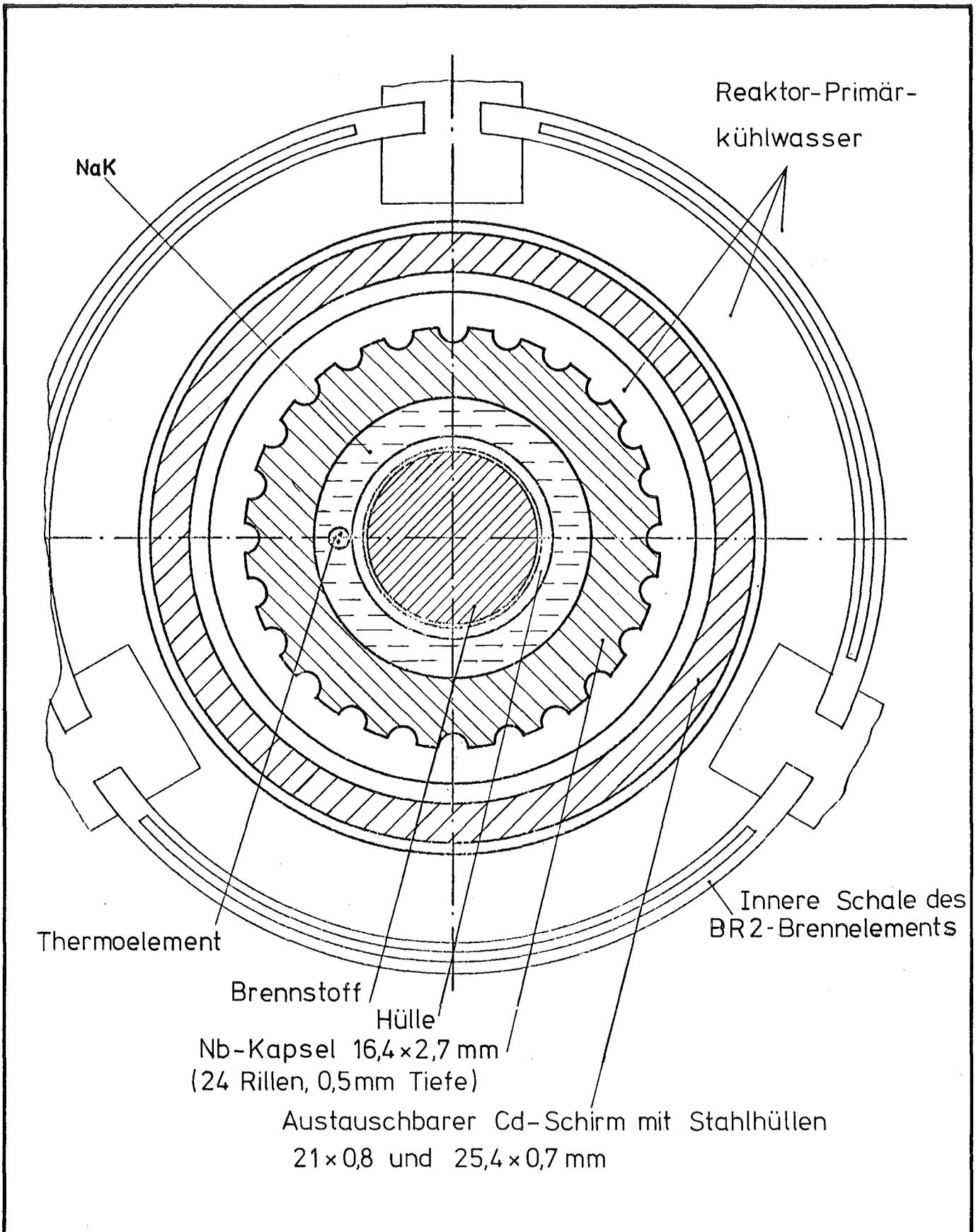


K2-2

GfK Karlsruhe  
IMF / III

MOL 11: Stabaufbau

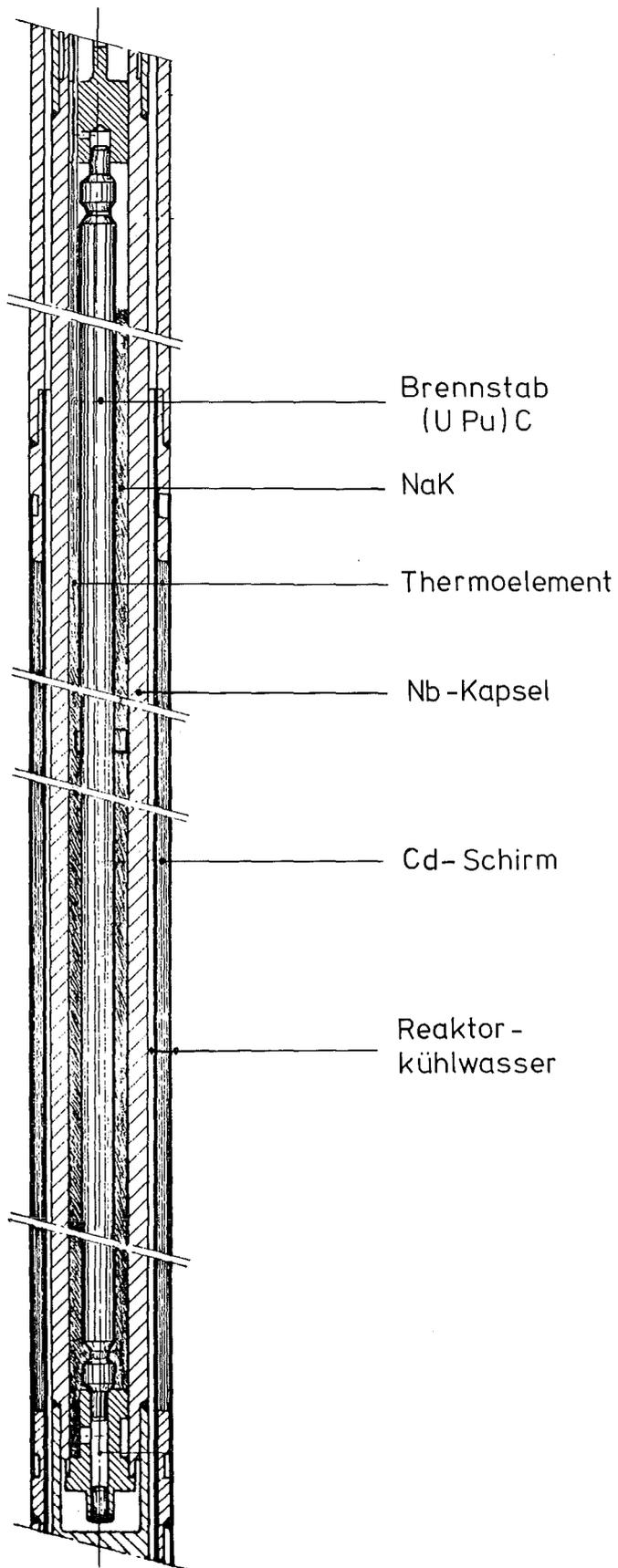
Abb. 1



GfK Karlsruhe  
IMF/III

MOL 11: Kapseltyp FASOLD  
Querschnitt

Abb. 2

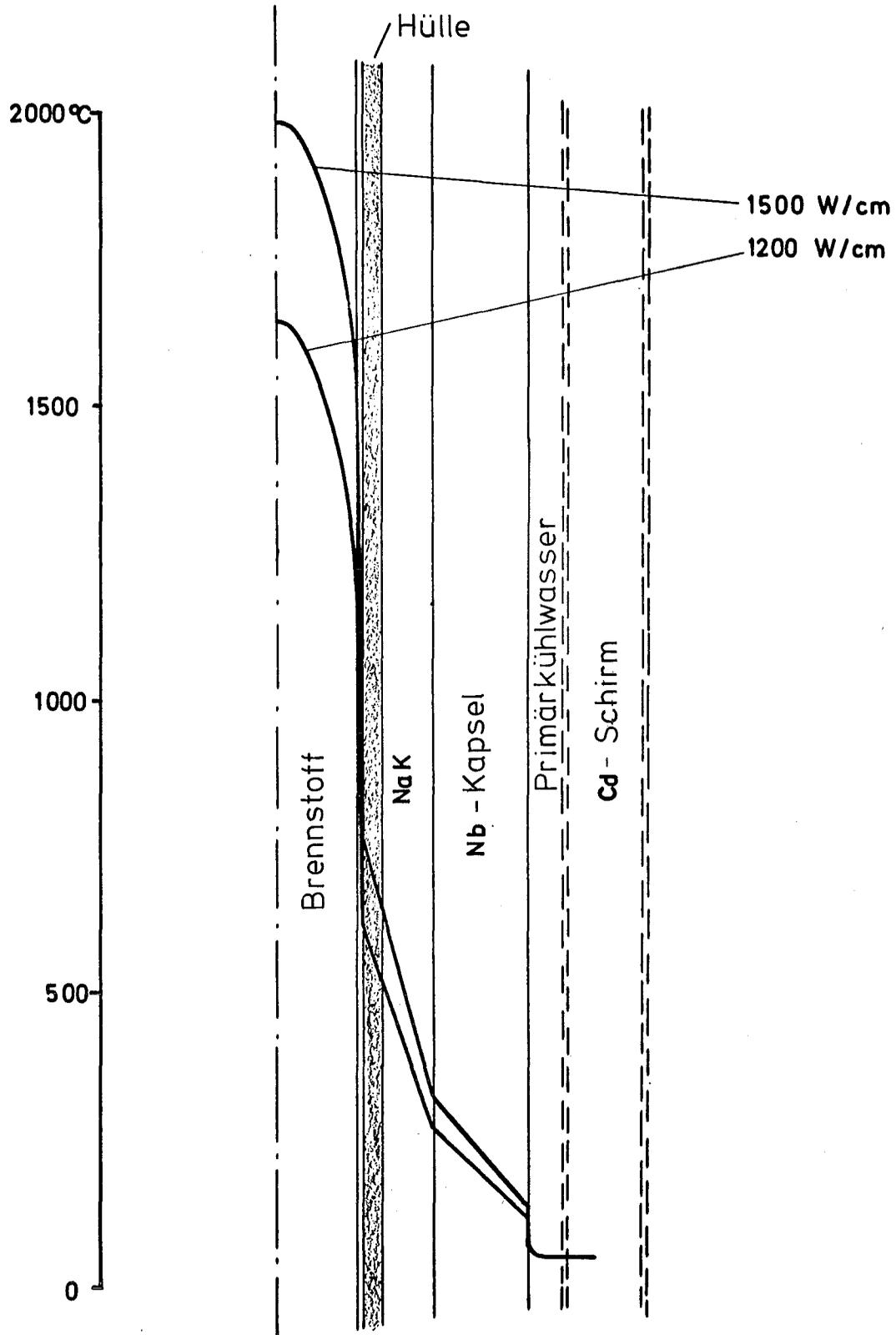


GfK Karlsruhe  
IMF / III

MOL 11: Kapseltyp FASOLD  
Längsschnitt

Abb. 3



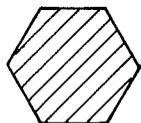
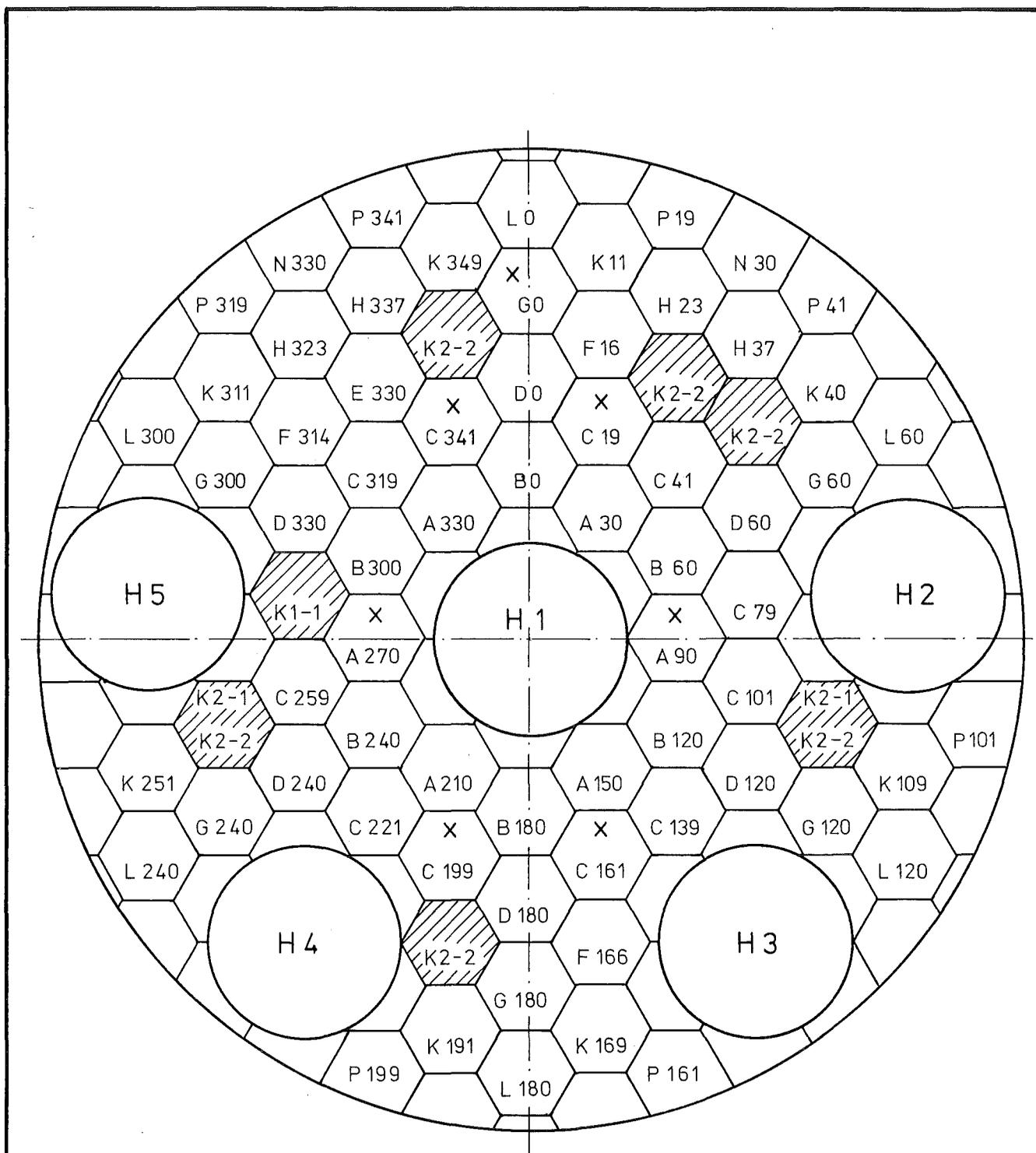


GfK Karlsruhe

IMF/III

MOL 11: Kapseltyp FASOLD  
 Radiale Temperaturverteilung

Abb. 6

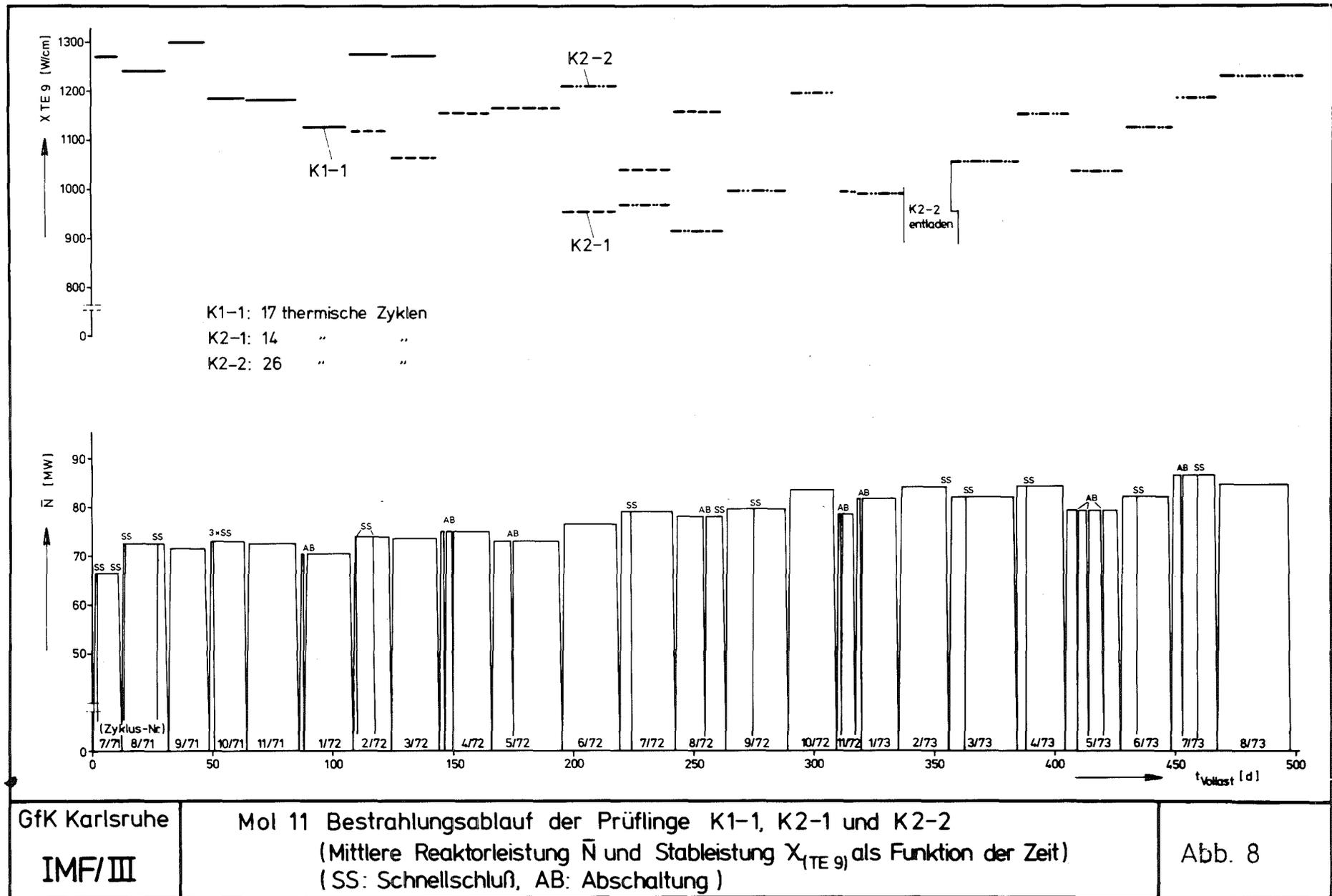


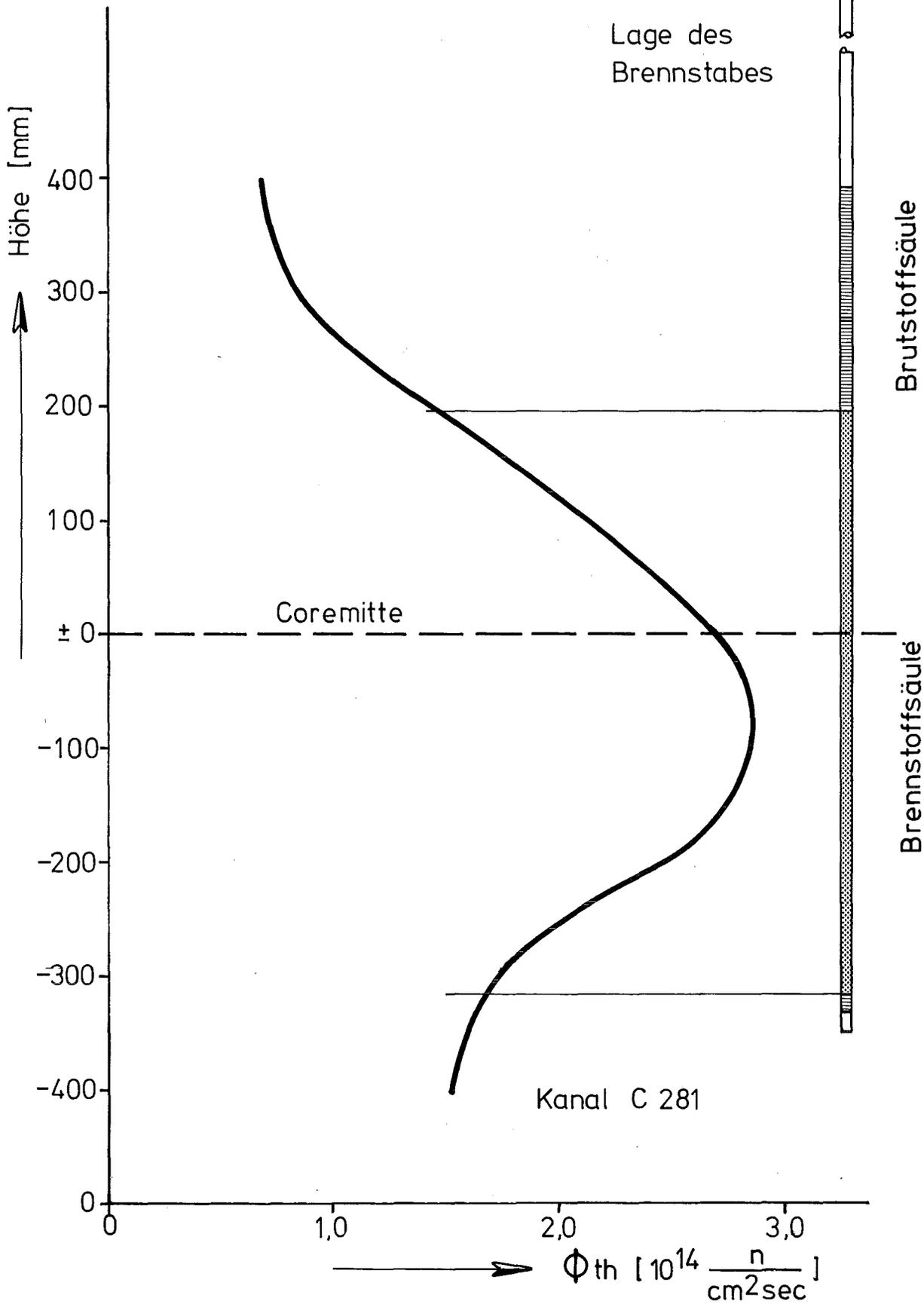
Bestrahlungskanal

x Regelstab

Mol 11 Positionskarte BR 2-Core

Abb. 7





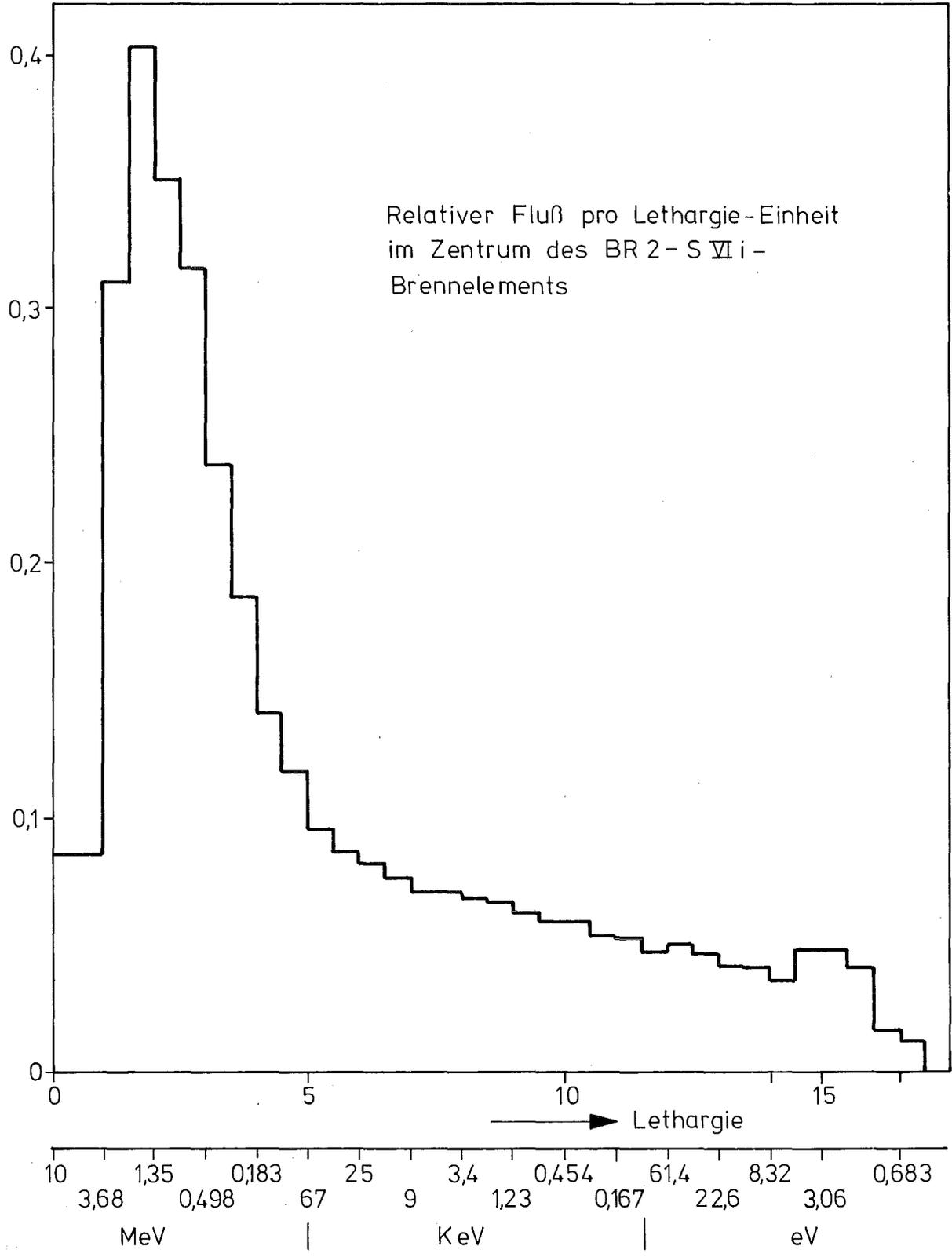
GfK Karlsruhe

Mol 11

IMF/III

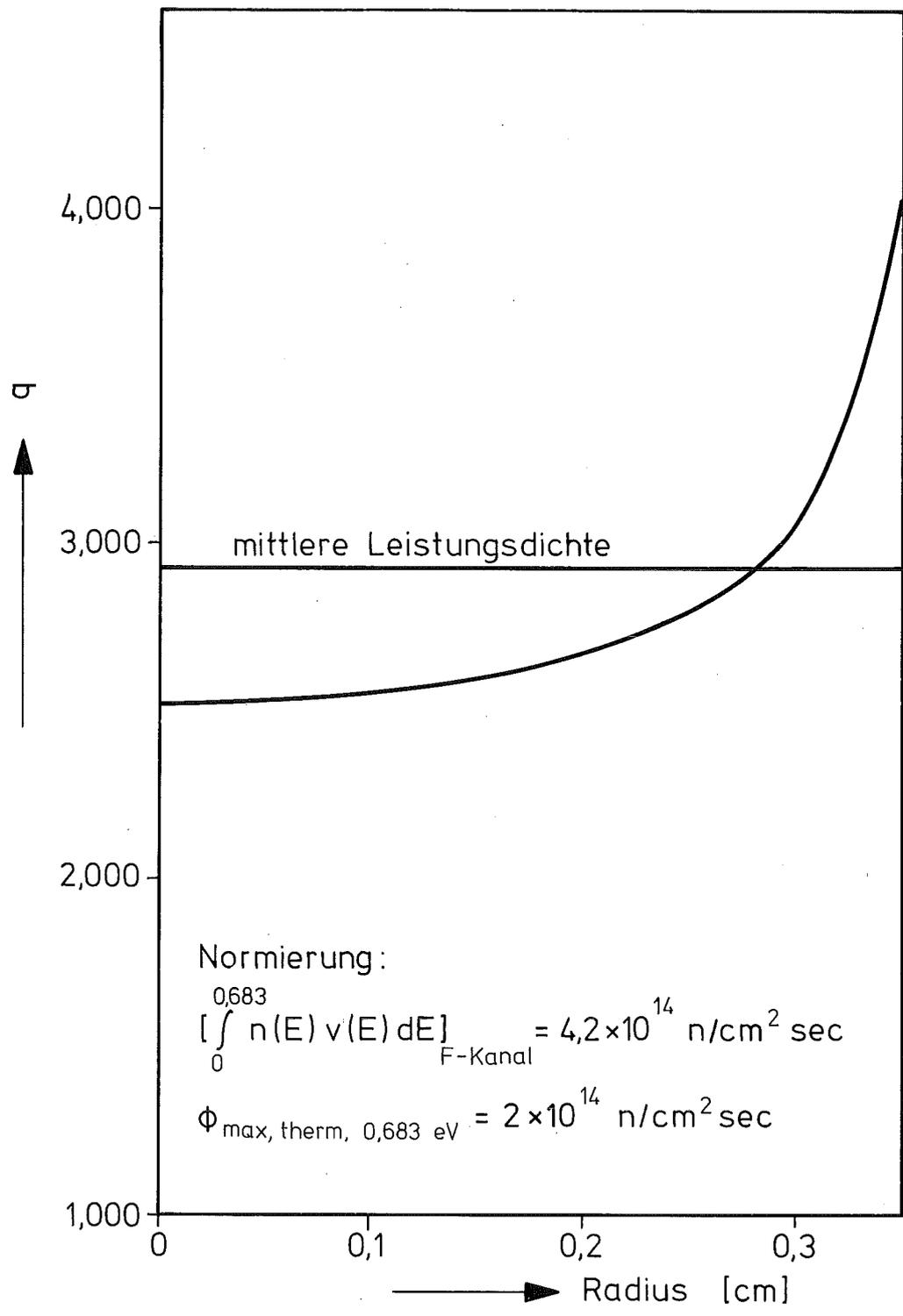
Axiale Flußverteilung im BR 2

Abb. 9

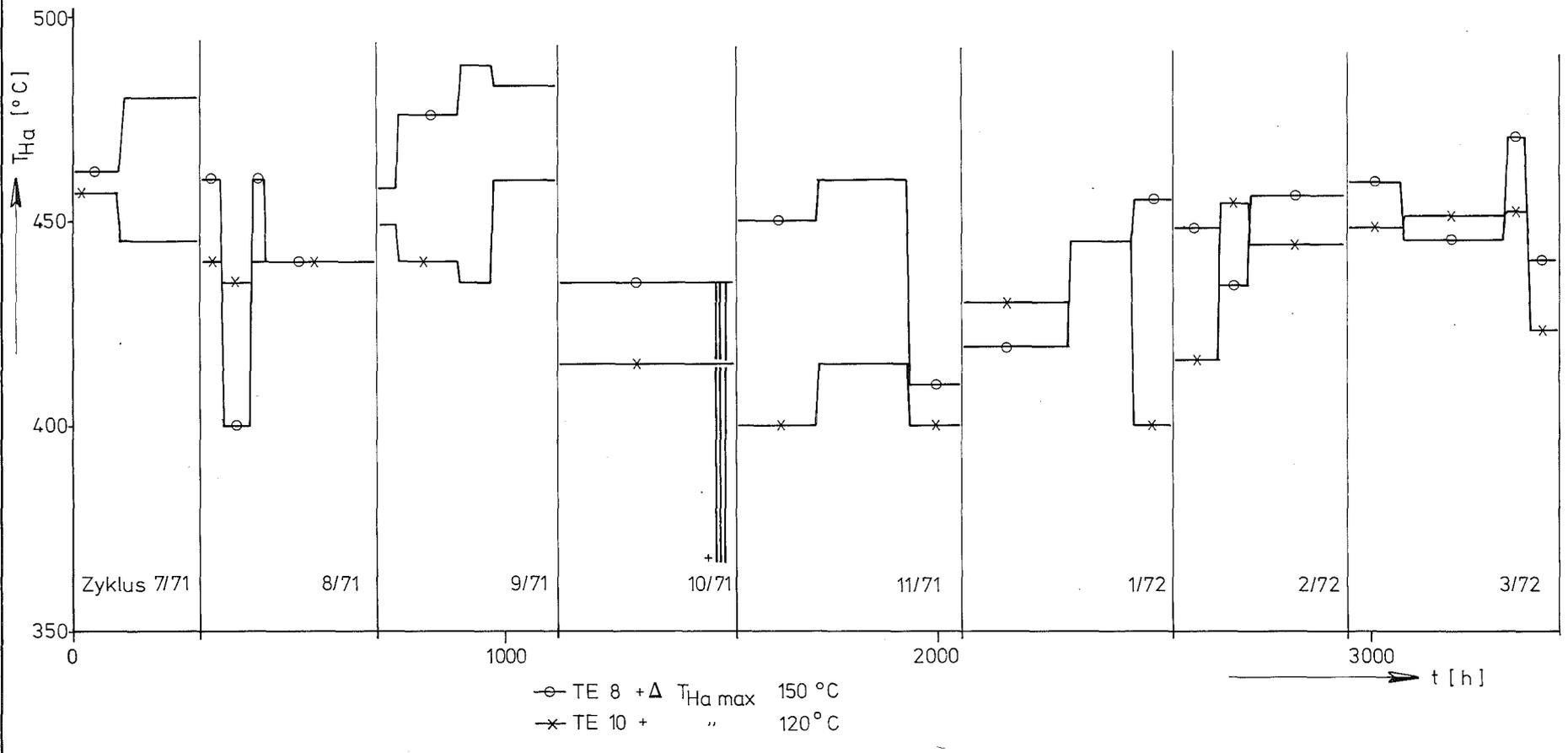


Mol 11: Mittleres Flußspektrum

Abb. 10



Schadensstelle



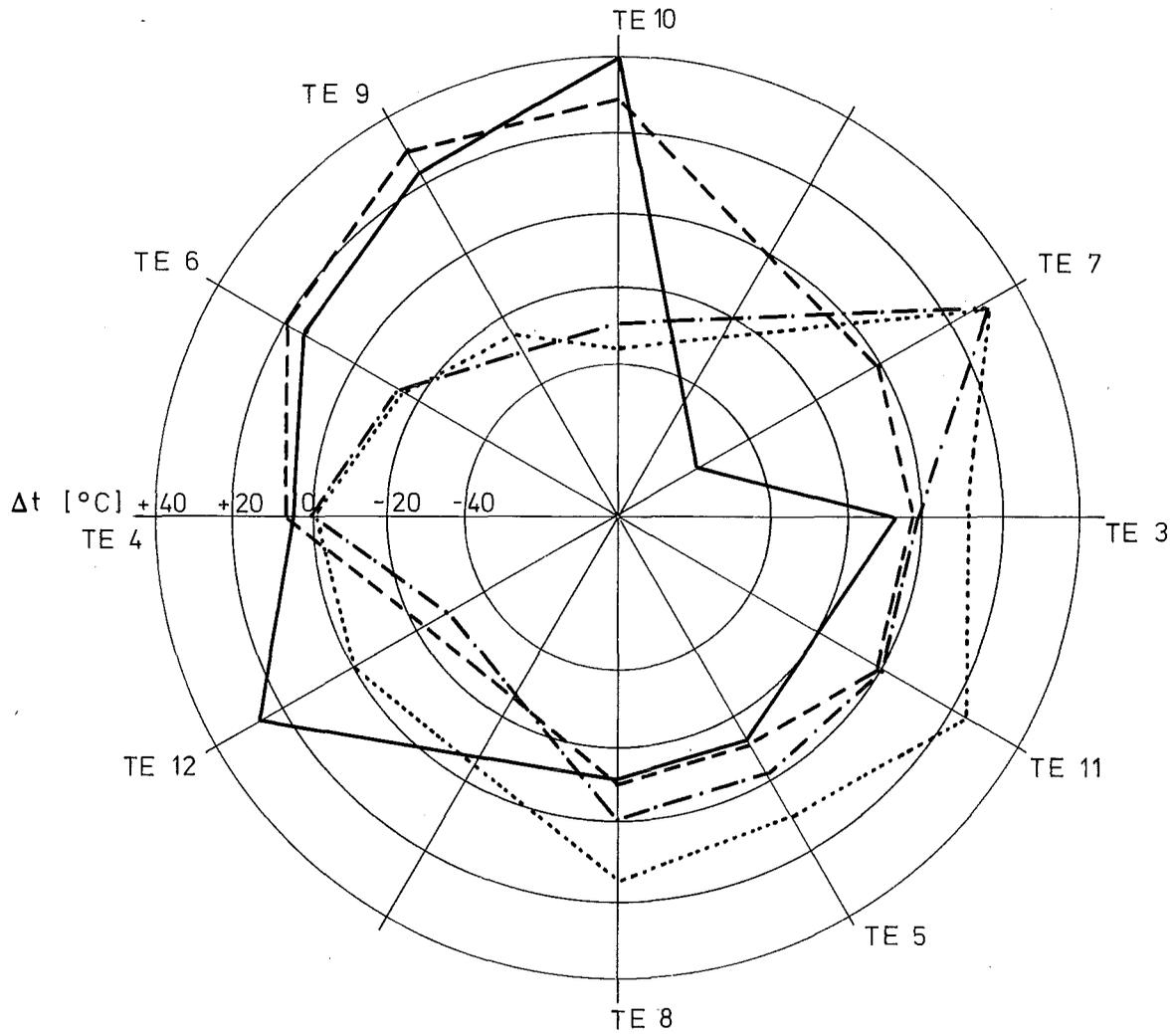
GfK Karlsruhe

Mol 11 K1-1

IMF/III

Hülloberflächentemperaturen (TE 8 und 10) als Funktion der Zeit (Vollast)

Abb. 12

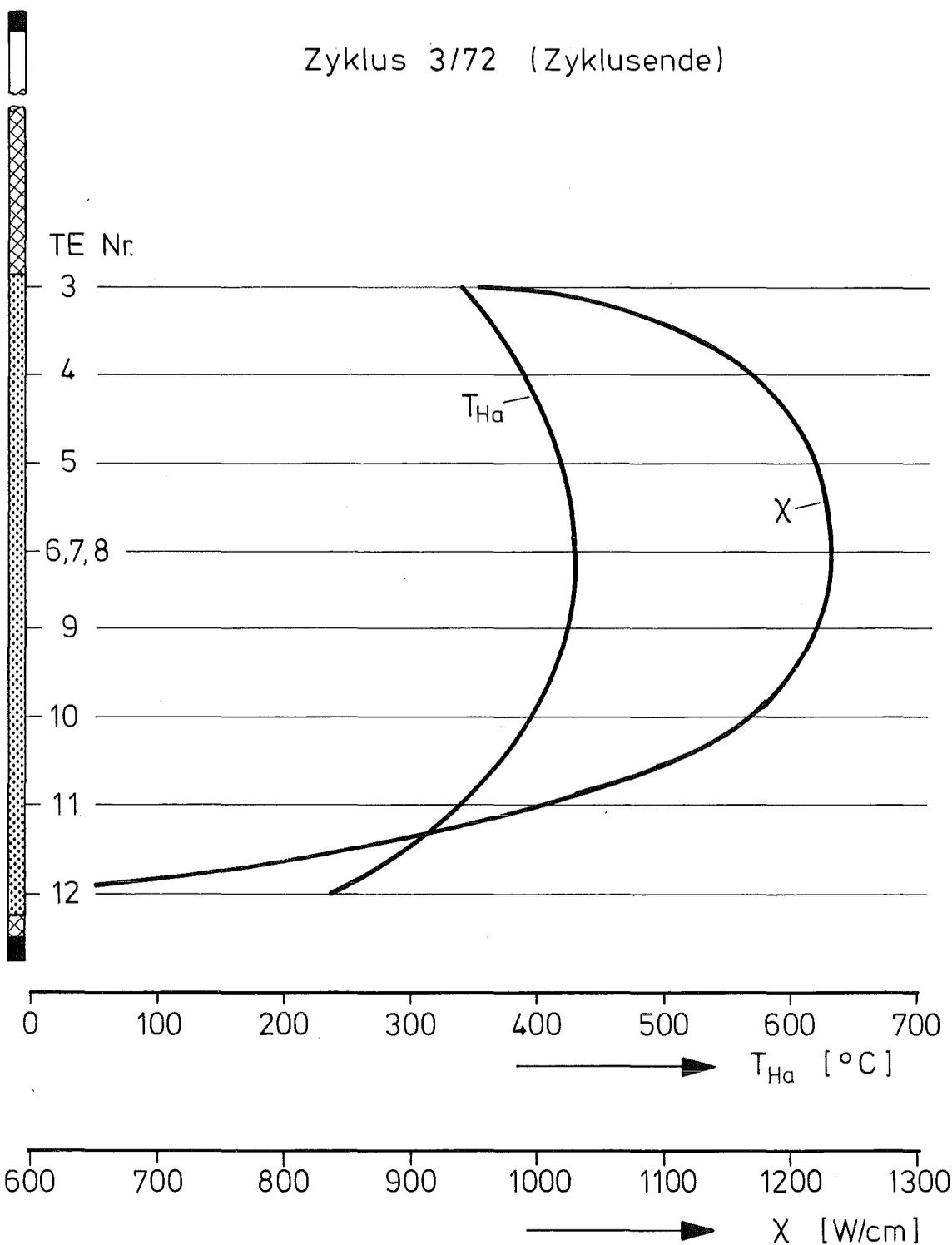


- 14. 11.
- ..... 16. 11.
- 17. 11.
- · - · 18. 11.

Mol 11: K1-1 Temperaturänderungen

Abb. 13

Zyklus 3/72 (Zyklusende)



GfK Karlsruhe

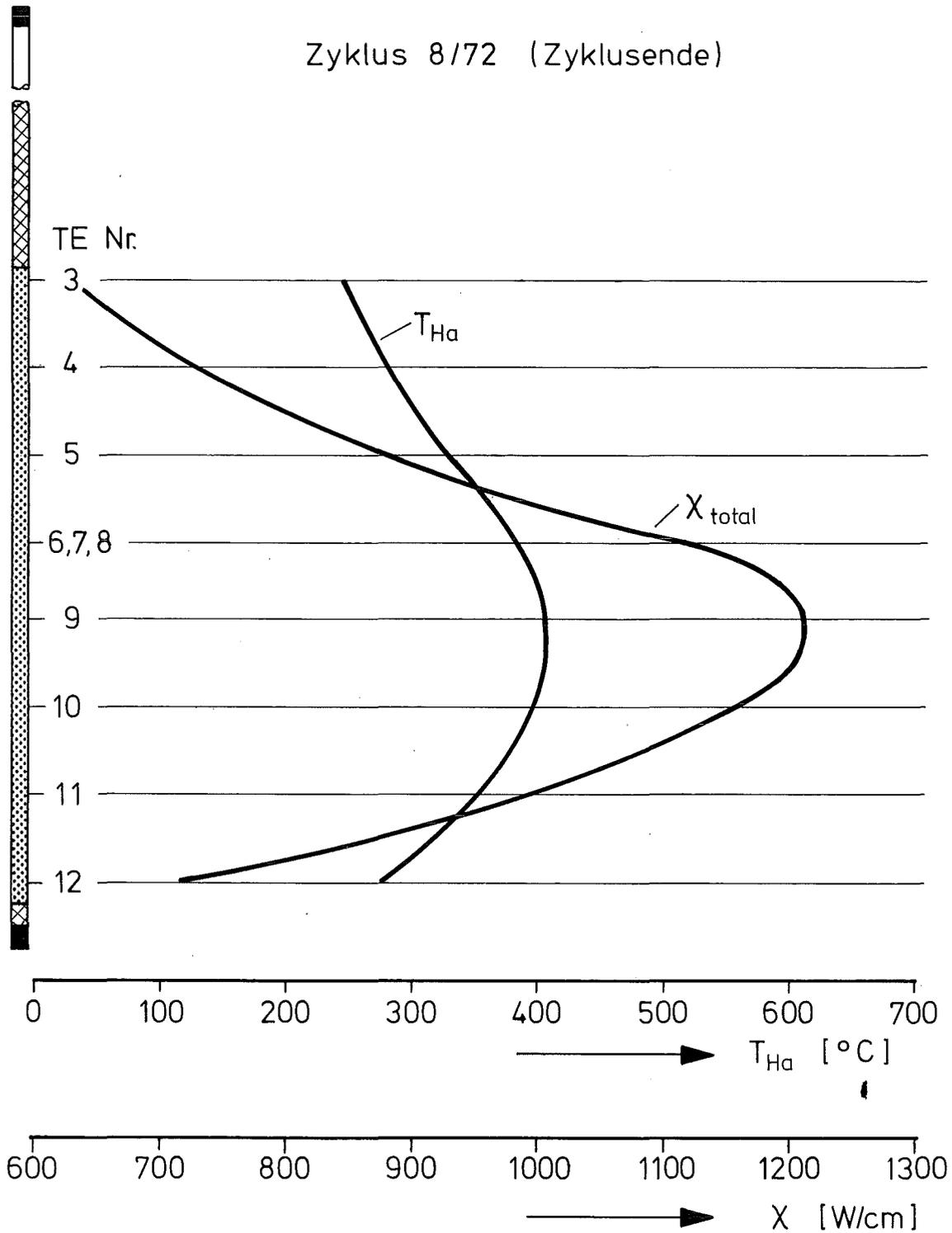
IMF/III

Mol 11 Stab K1-1

Axialer Verlauf von Hülloberflächen-  
temperatur  $T_{Ha}$  und Stabileistung  $X$

Abb. 14

Zyklus 8/72 (Zyklusende)



GfK Karlsruhe

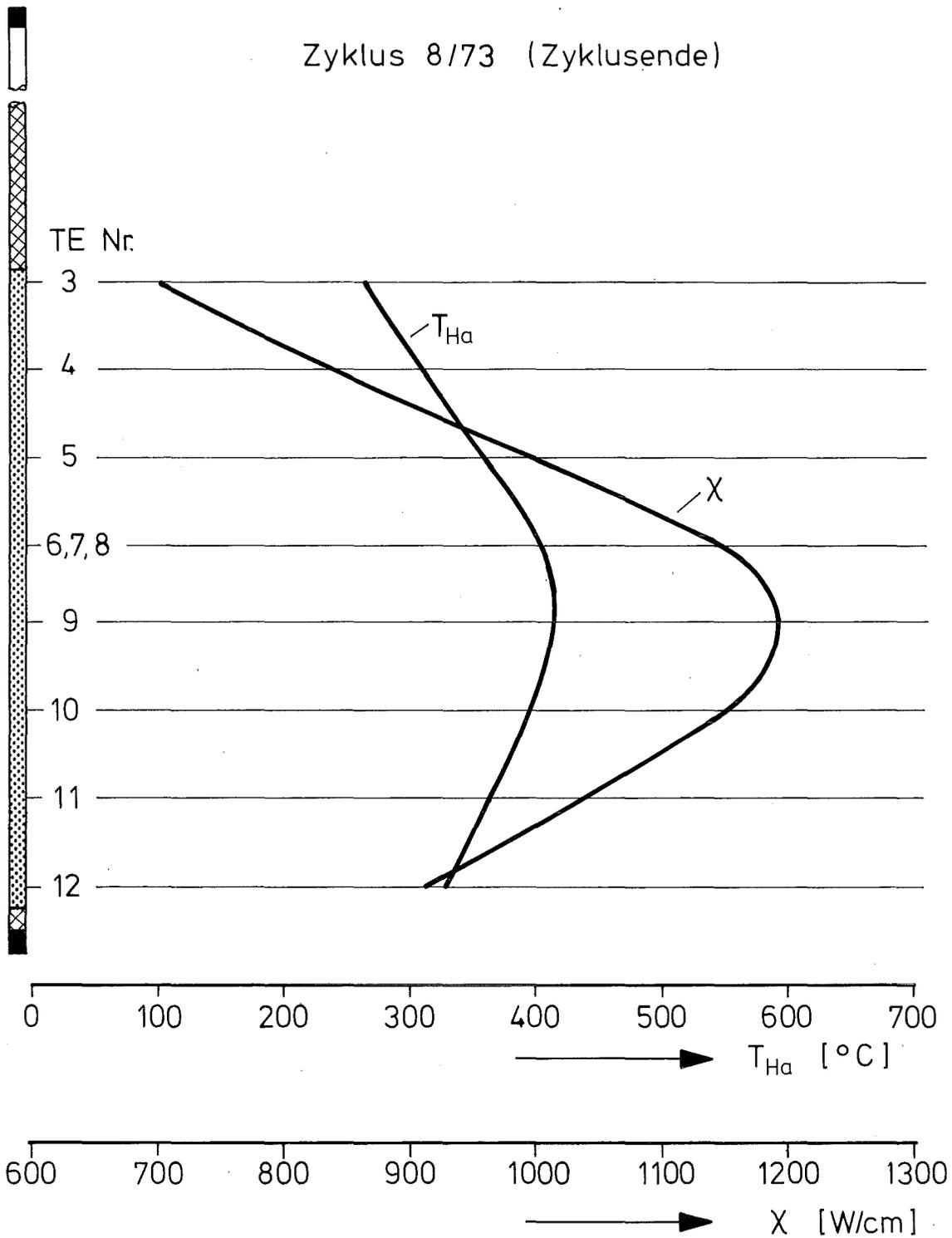
IMF/III

Mol 11 Stab K2-1

Axialer Verlauf von Hülloberflächen-  
temperatur  $T_{Ha}$  und Stableistung  $X$

Abb. 15

Zyklus 8/73 (Zyklusende)



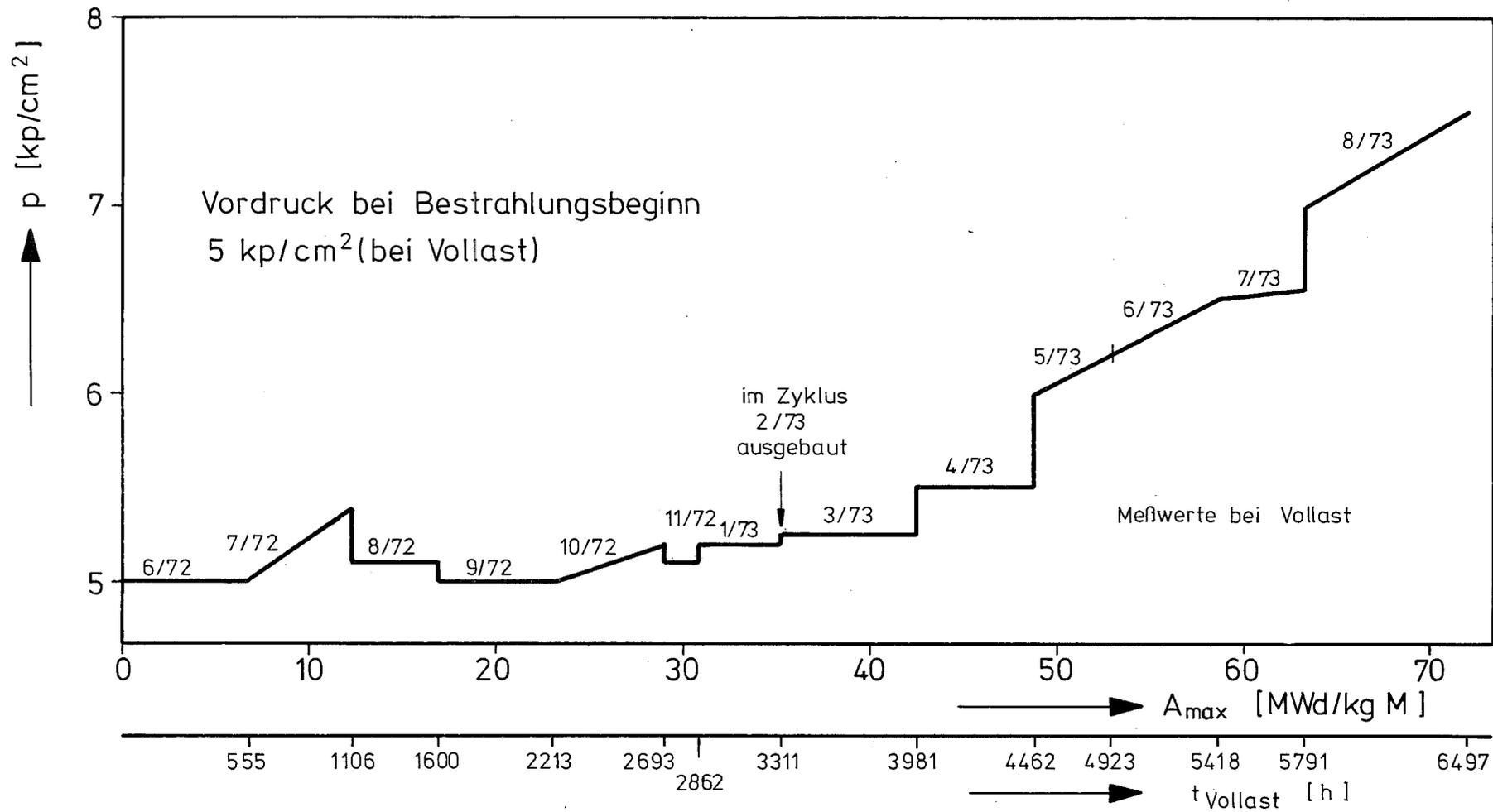
GfK Karlsruhe

IMF/III

Mol 11 Stab K2-2

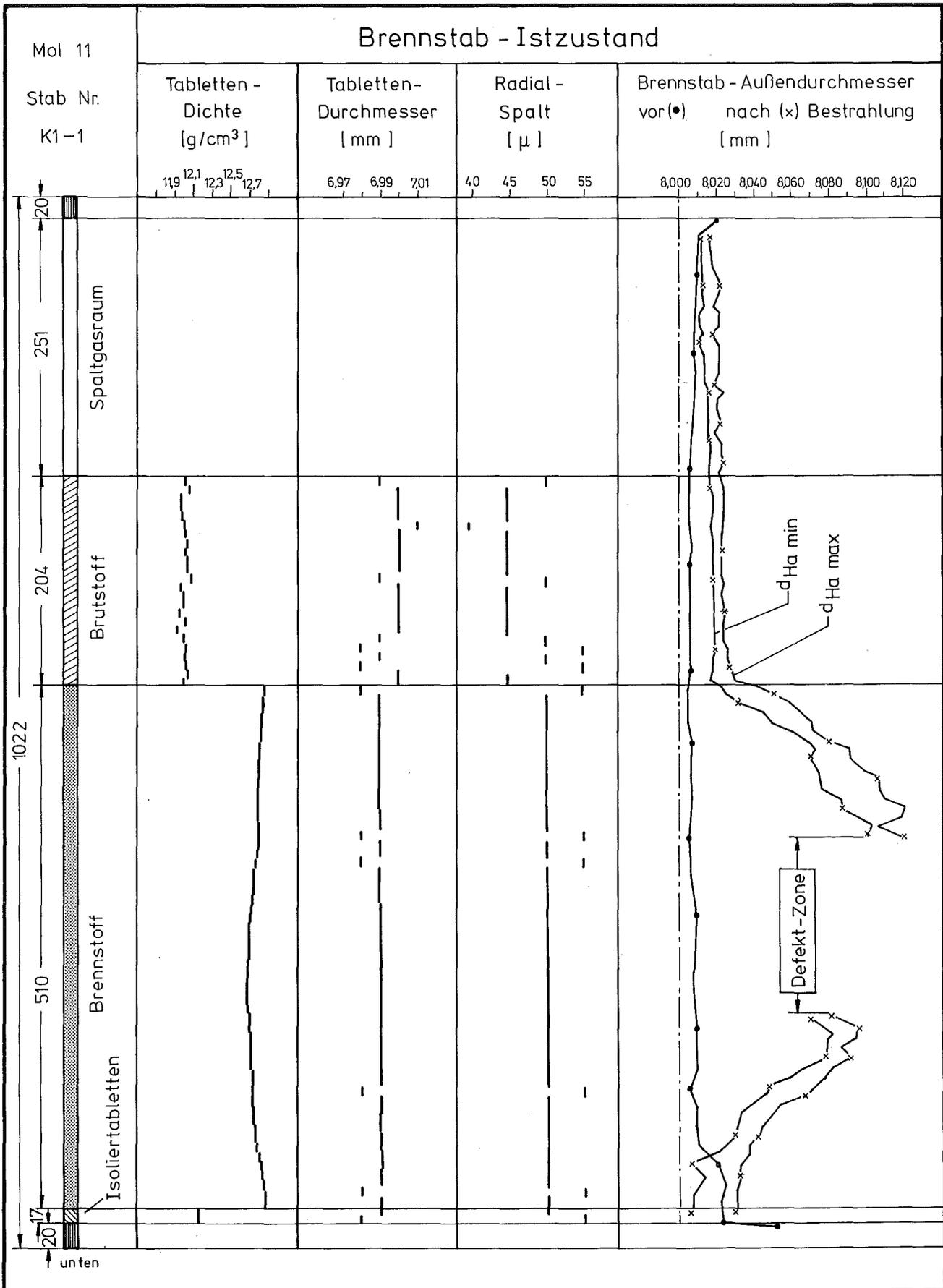
Axialer Verlauf von Hülloberflächen-  
temperatur  $T_{Ha}$  und Stableistung  $X$

Abb. 16



Mol 11: Stab K2-2 Spaltgasdruckaufbau als Funktion des Abbrandes

Abb. 17



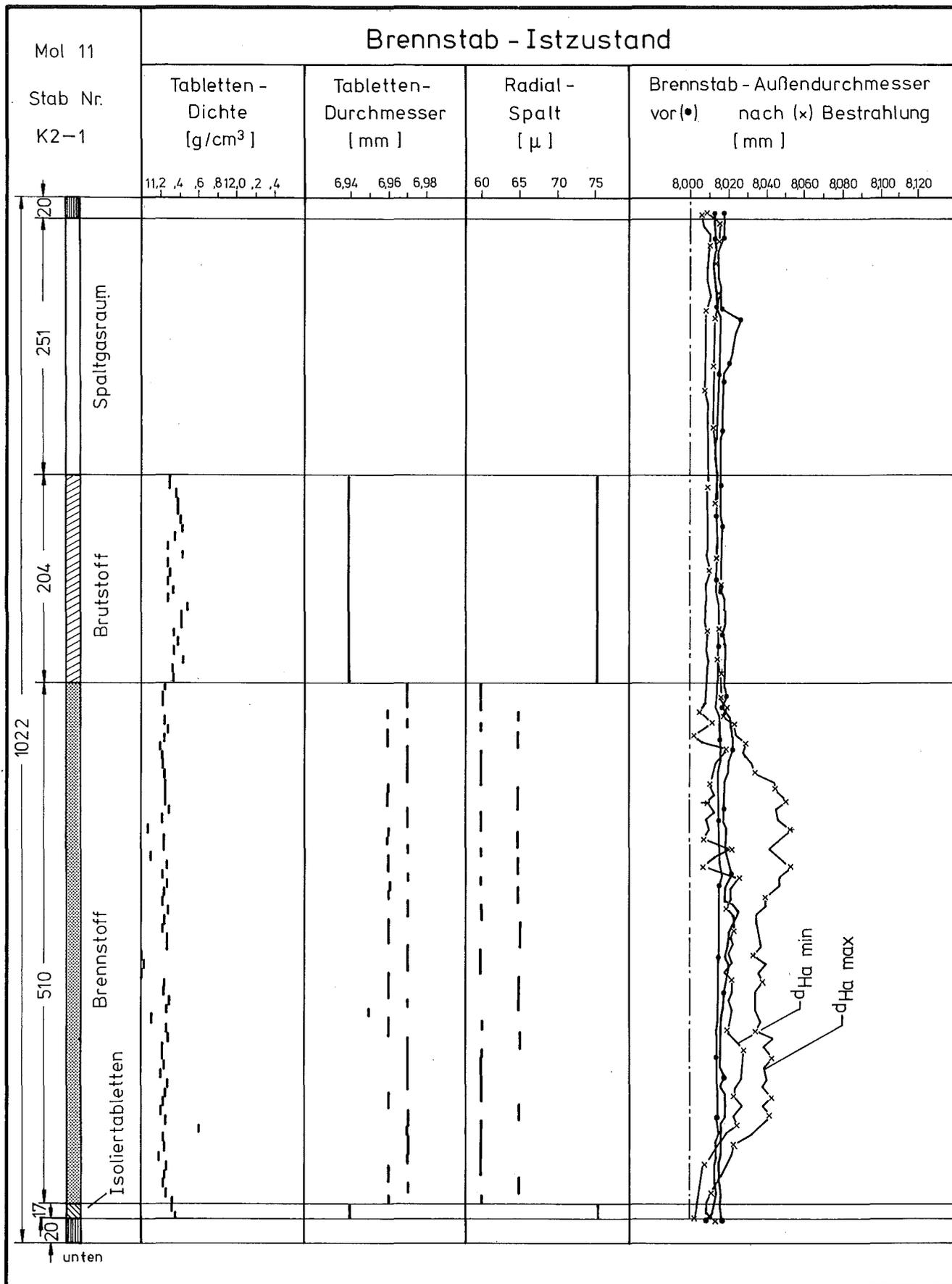
GfK Karlsruhe

Karbidbestrahlungsexperiment Mol 11 im BR 2

Abb. 18

IMF/III

Prüfling K1-1: UC, 93% U-235, 1.4988



GfK Karlsruhe

Karbidbestrahlungsexperiment Mol 11 im BR 2

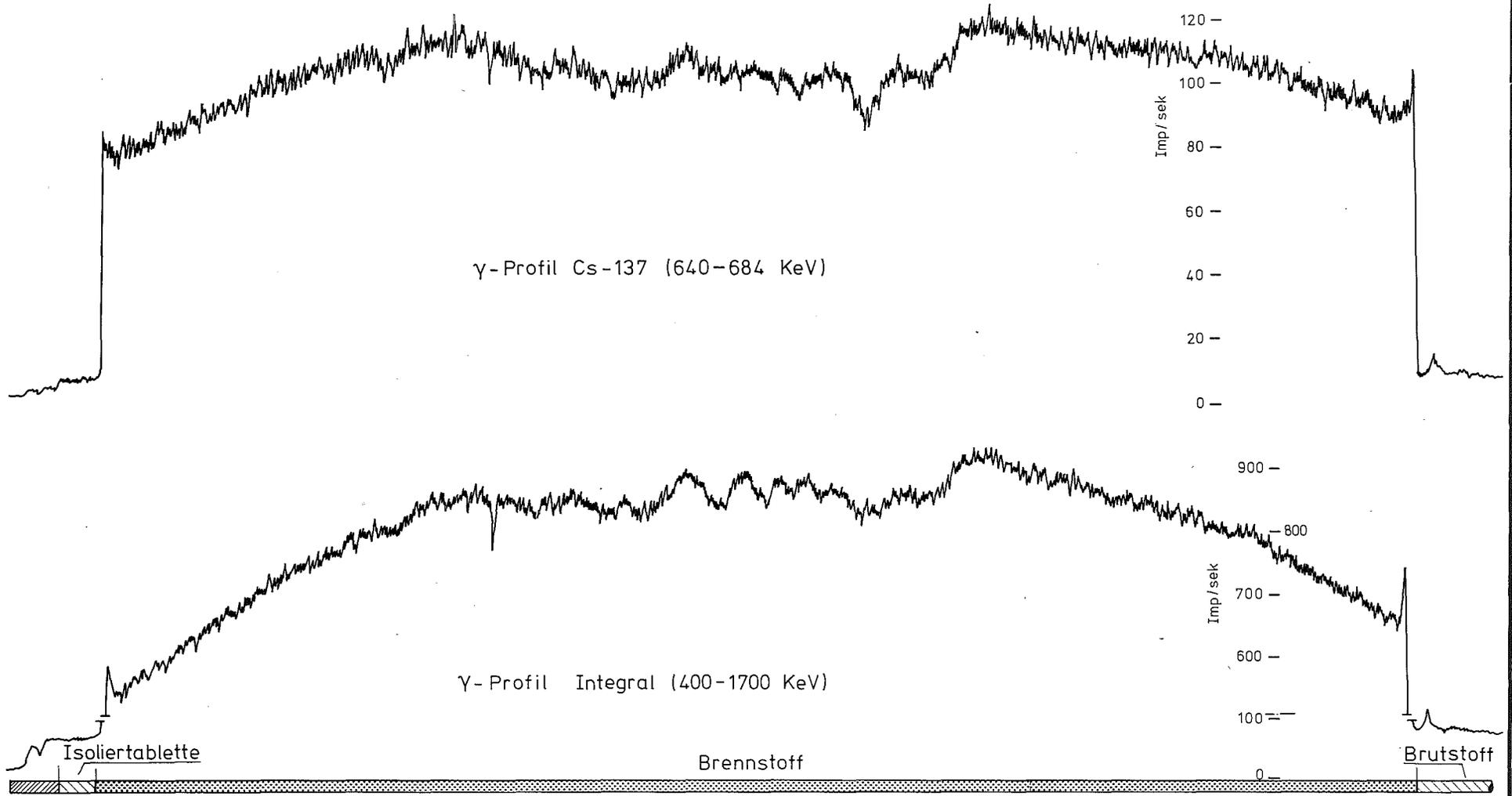
Abb. 19

IMF/III

Prüfling K2-1: (U<sub>0,85</sub>, Pu<sub>0,15</sub>)C, 93% U-235



Abklingzeit 592 d



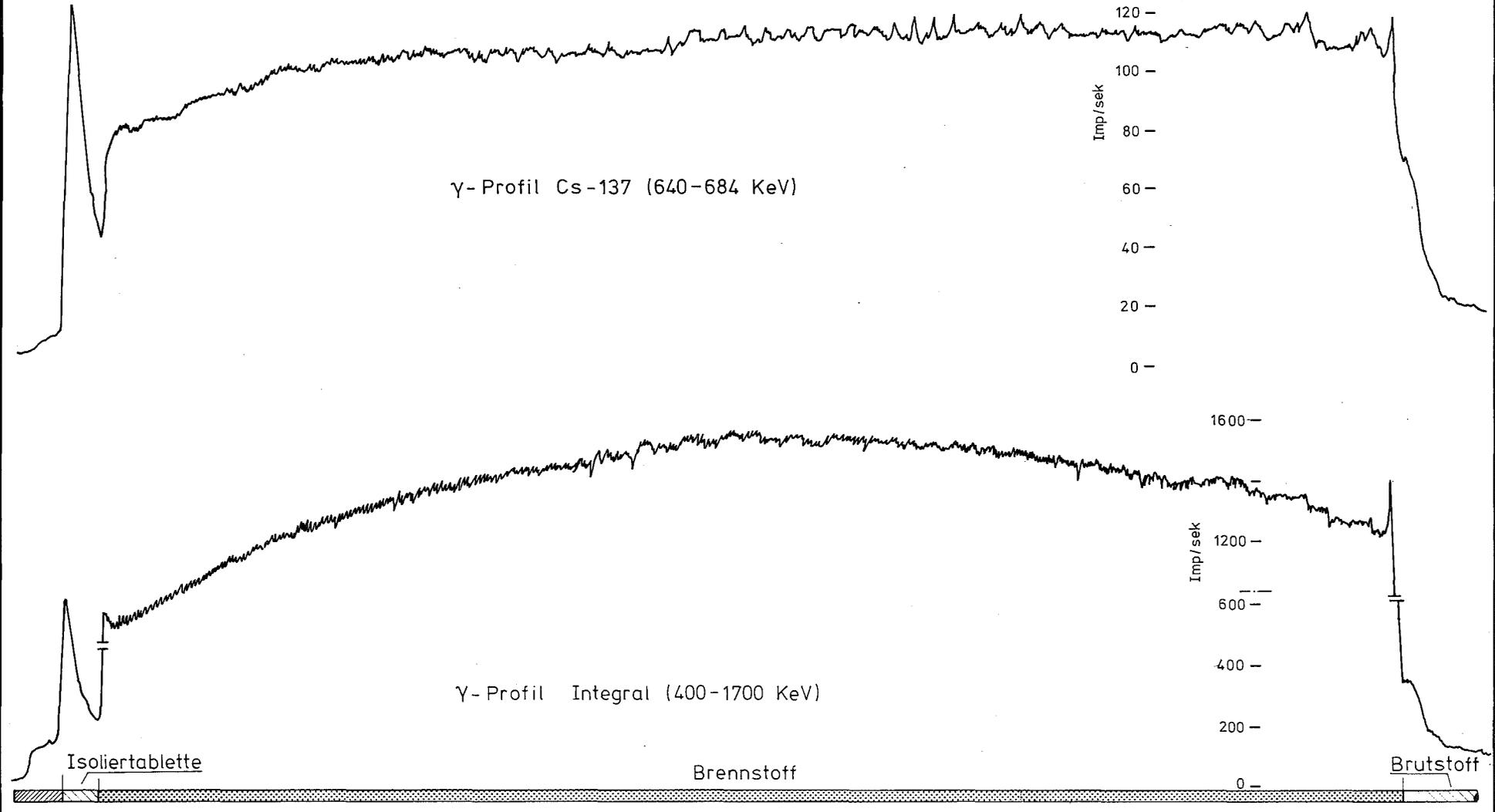
GfK Karlsruhe

IMF/III

γ-Profile  
Mol 8C Stab-K1-1

Abb. 21

Abklingzeit 455 d

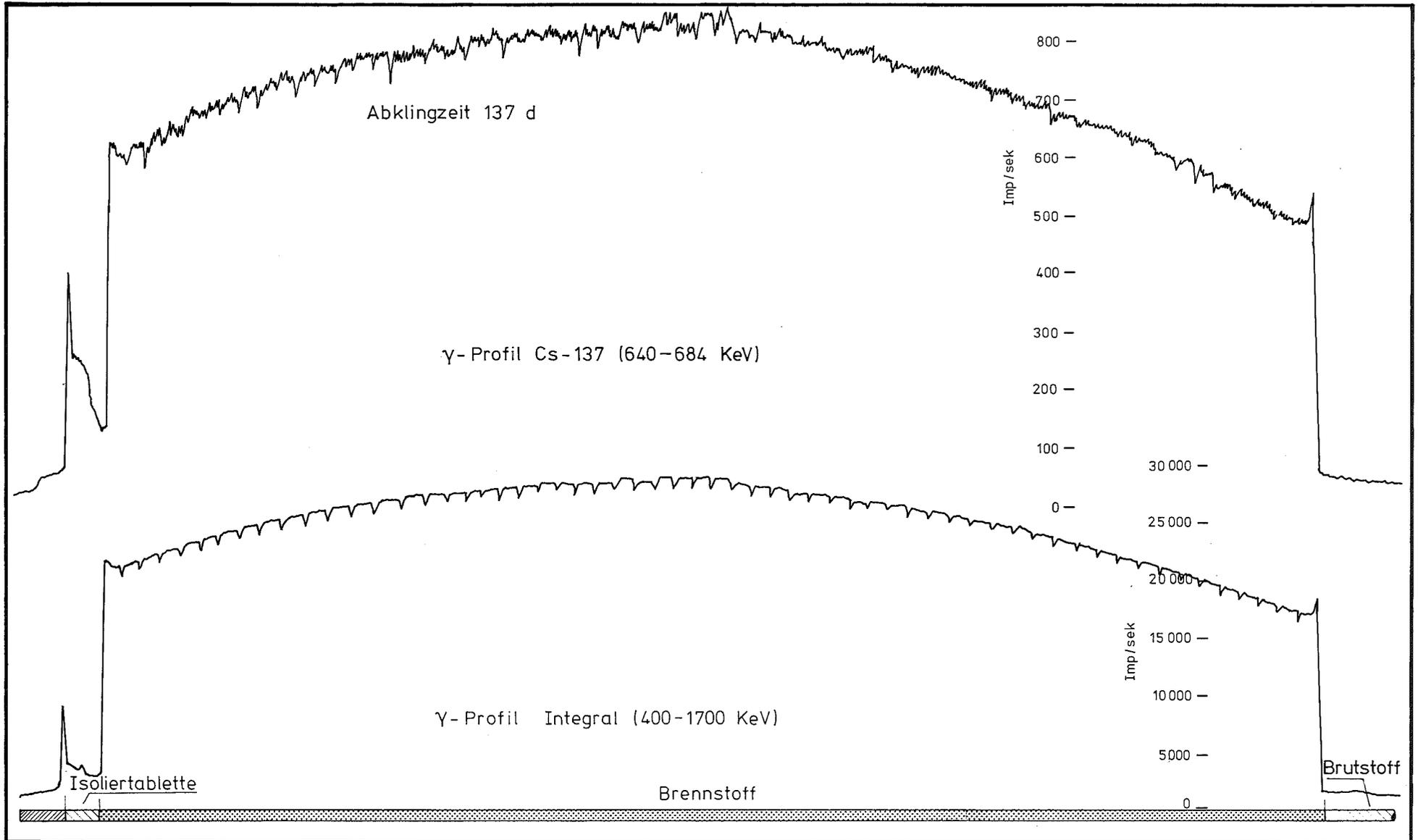


GfK Karlsruhe

γ-Profile  
Mol 11 Stab-K 2-1

Abb. 22

IMF/III



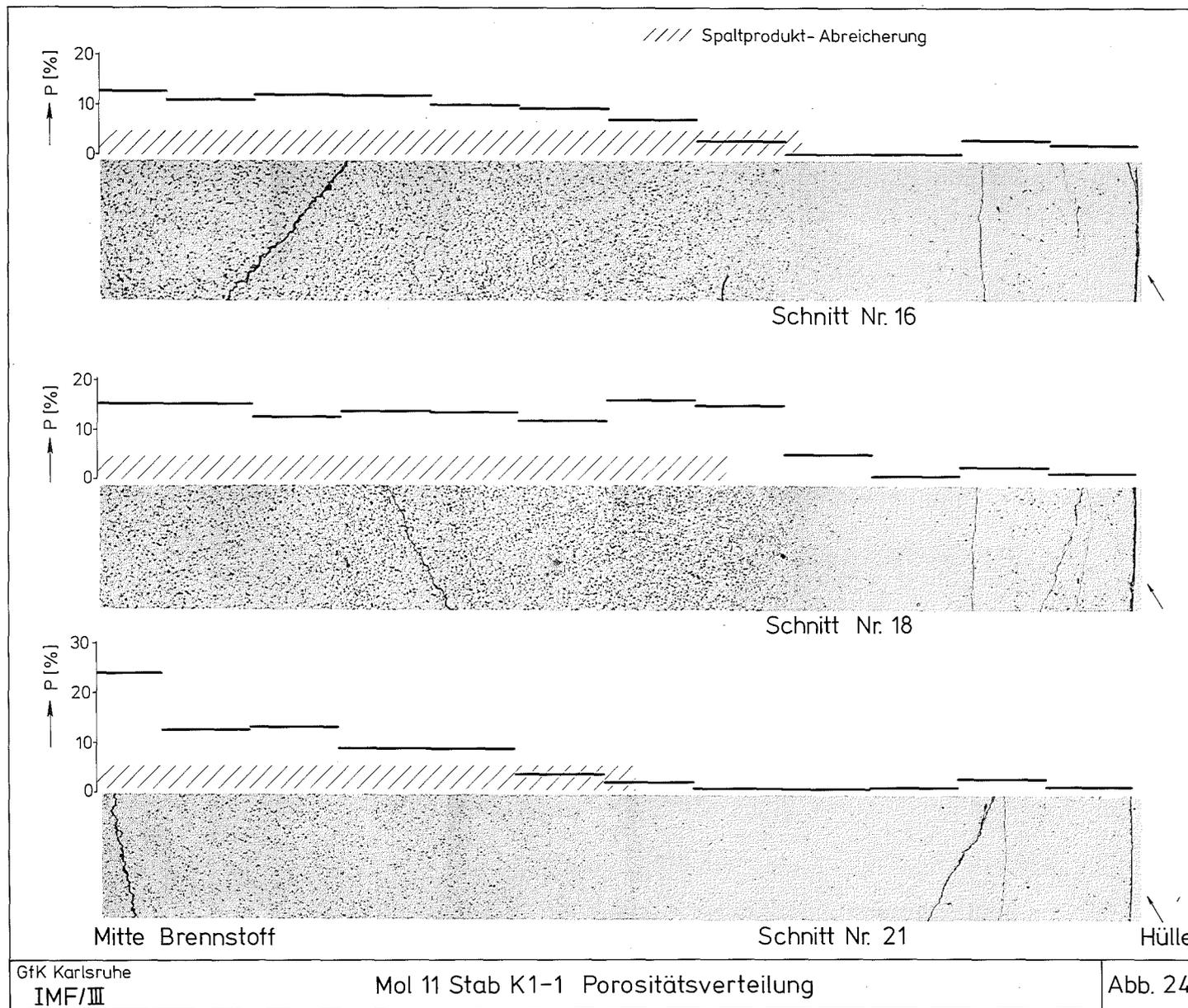
GfK Karlsruhe

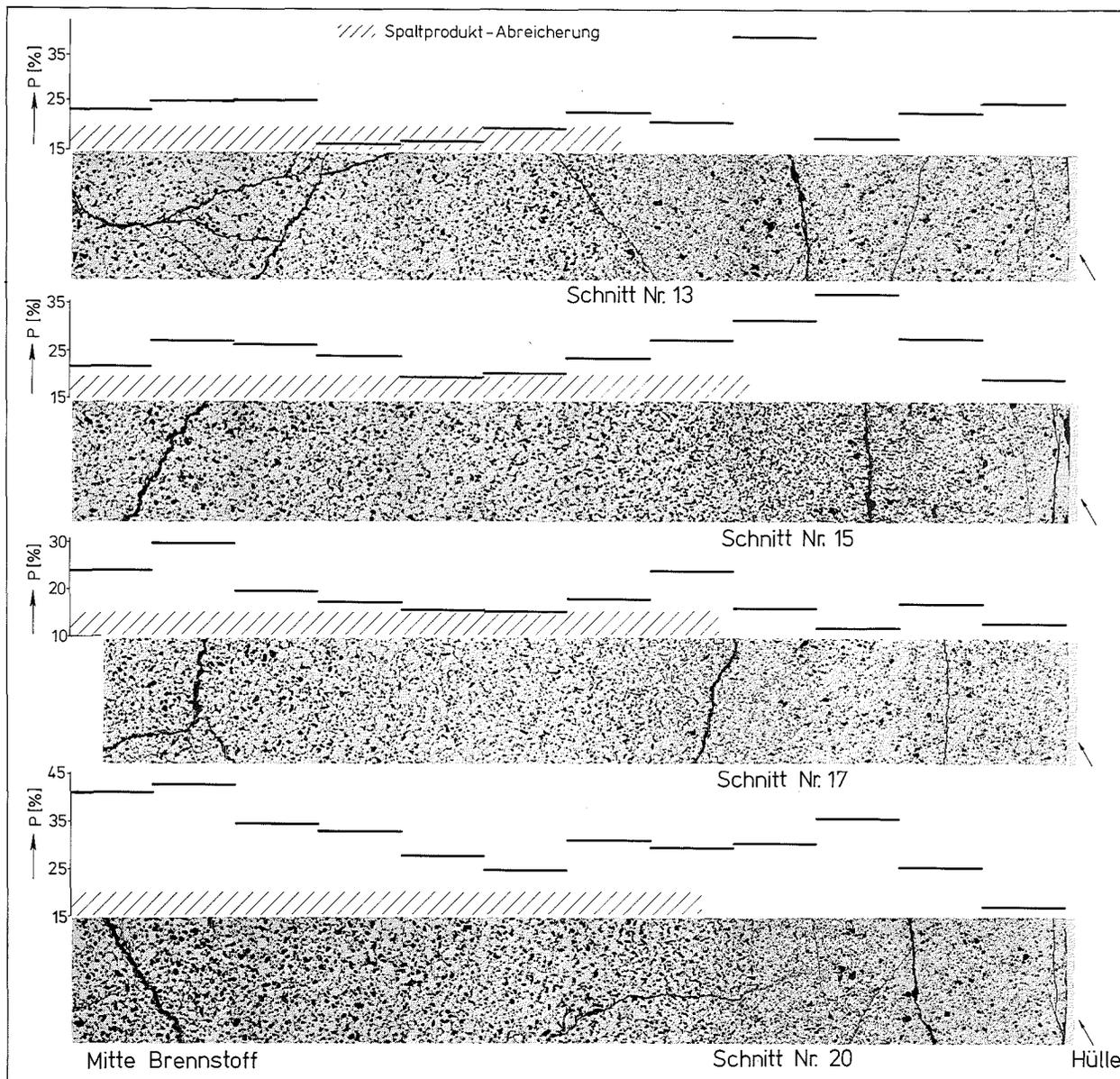
$\gamma$ -Profile

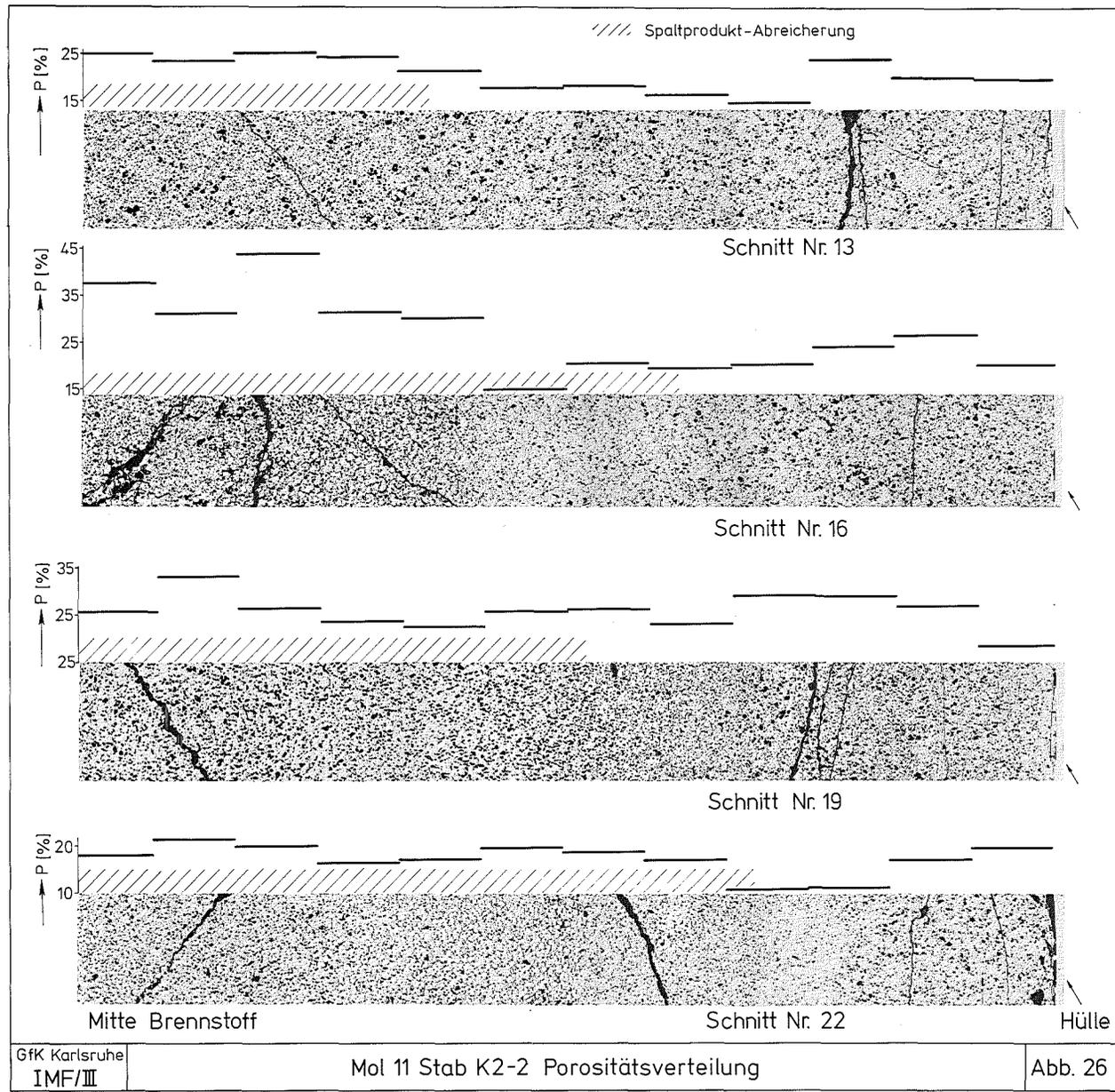
Abb. 23

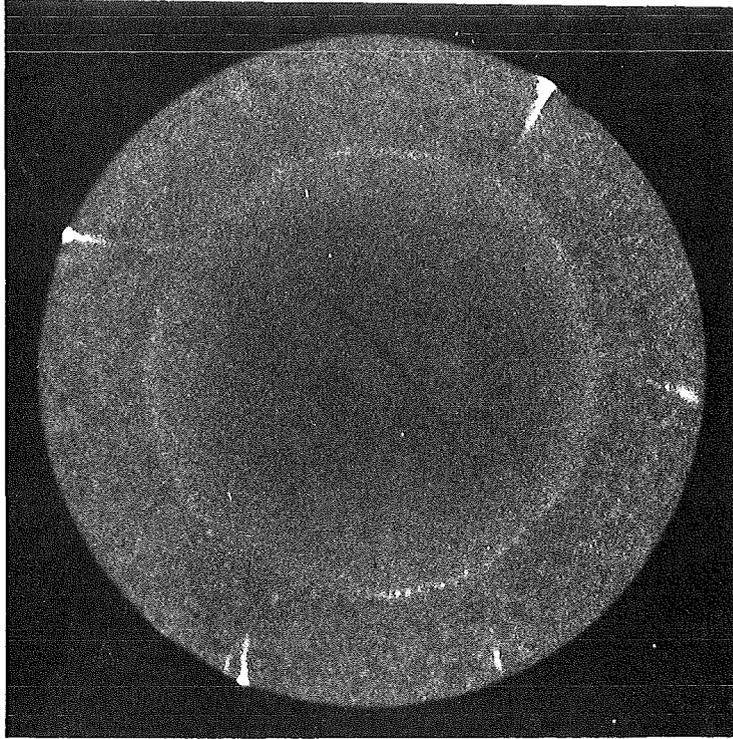
IMF/III

Mol 11 Stab-K2-2



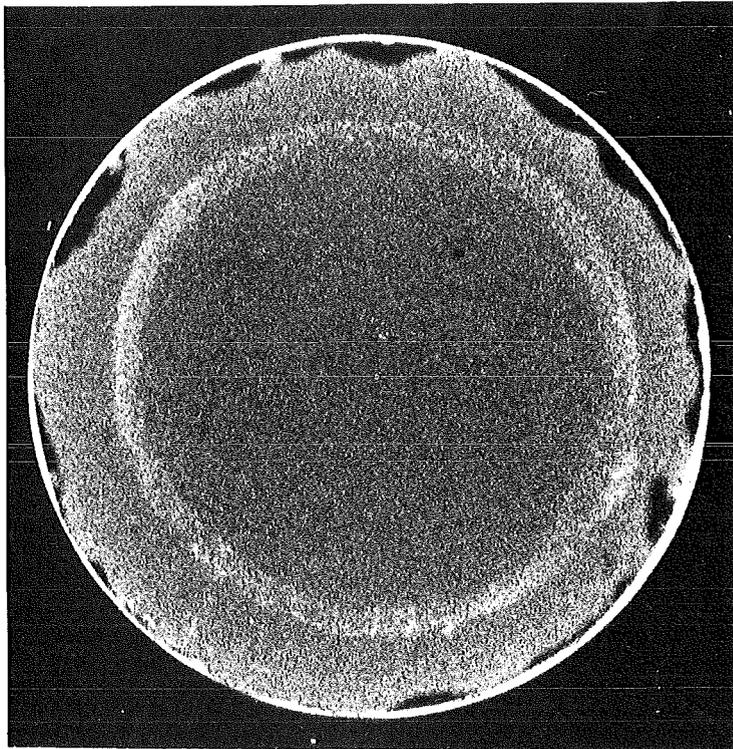






Stab K2-1 Schnitt 20

$\alpha$



Stab K2-2, Schnitt 22

$\alpha$

1mm

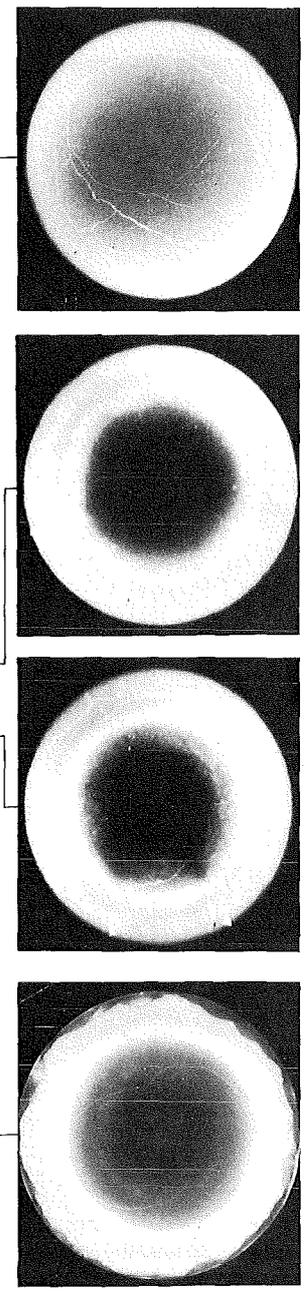
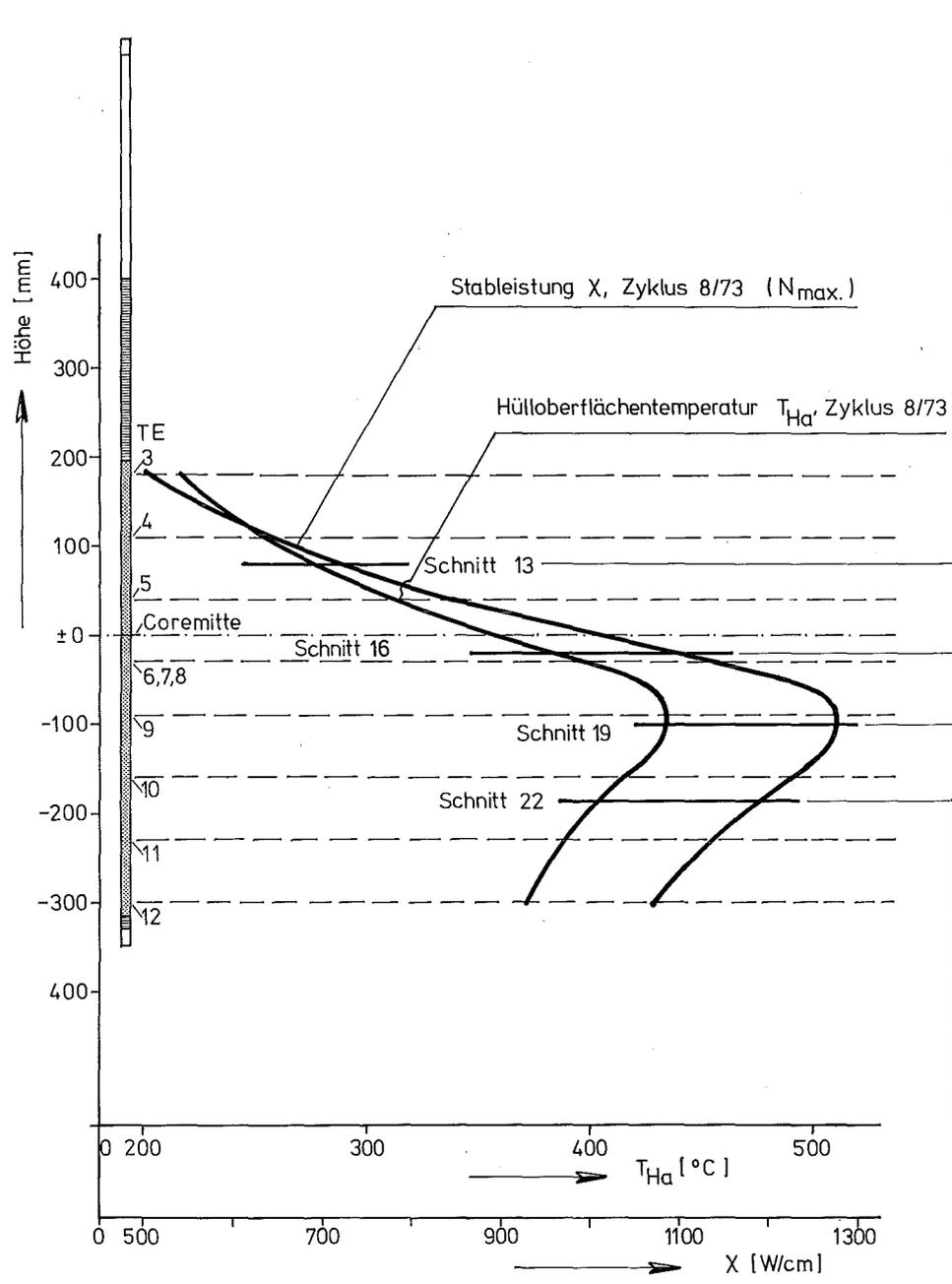
GfK Karlsruhe

Mol-11

IMF/III

Lokale Pu-Umverteilungen

Abb. 27



( $\beta$ - $\gamma$ -Rad.)  
1mm

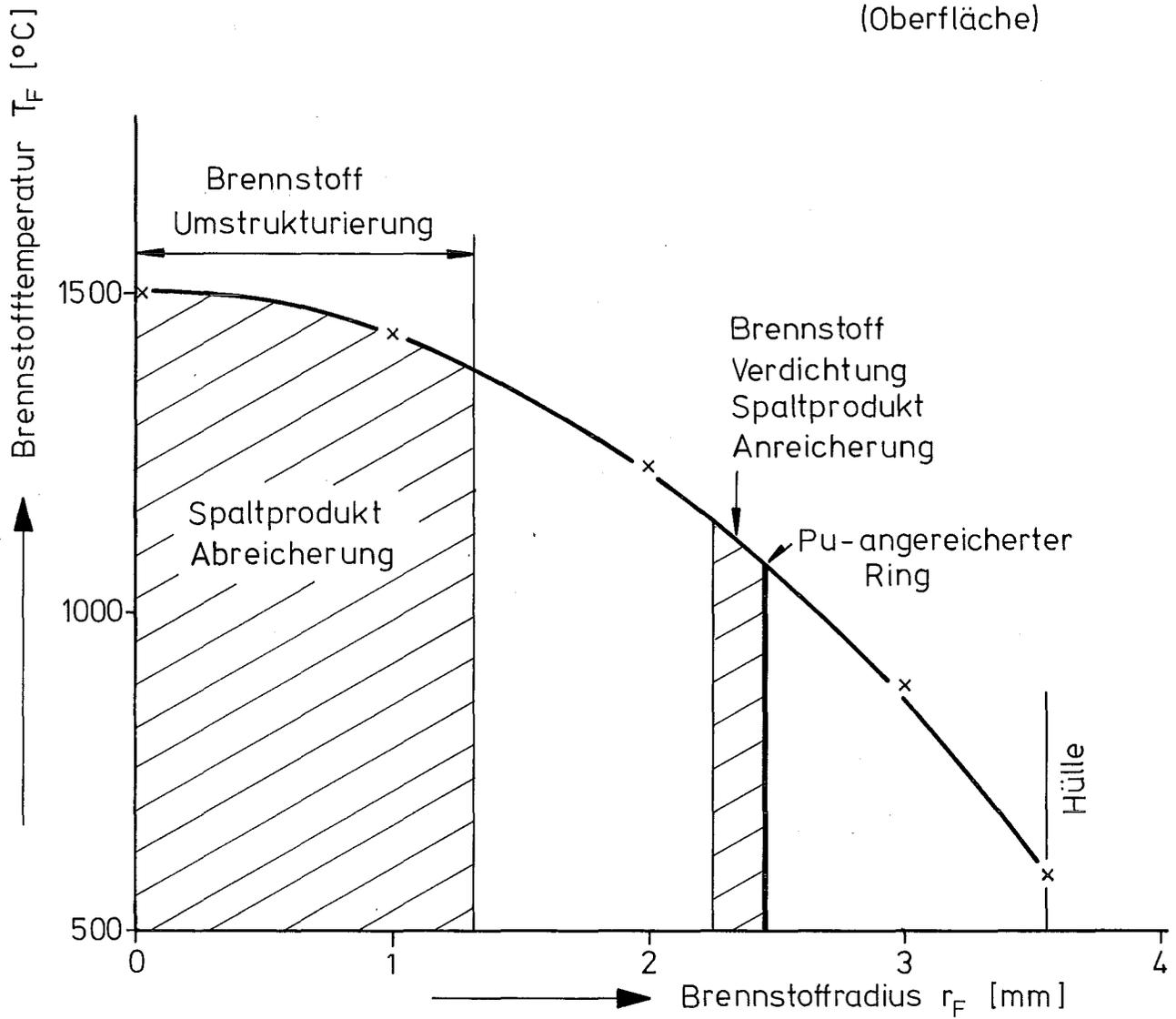
GfK Karlsruhe	Mol 11: K2-2	Abb. 28
IMF/III	Axiale Verteilung von X und $T_{Ha}$ , Spaltproduktverteilungen	

Stab Mol 11/K 2-2

Schnitt 19

Stableistung 1230 W/cm

Hülltemperatur 420 °C  
(Oberfläche)



GfK Karlsruhe

Mol 11

Abb. 29

IMF/III

Brennstofftemperatur und Struktur

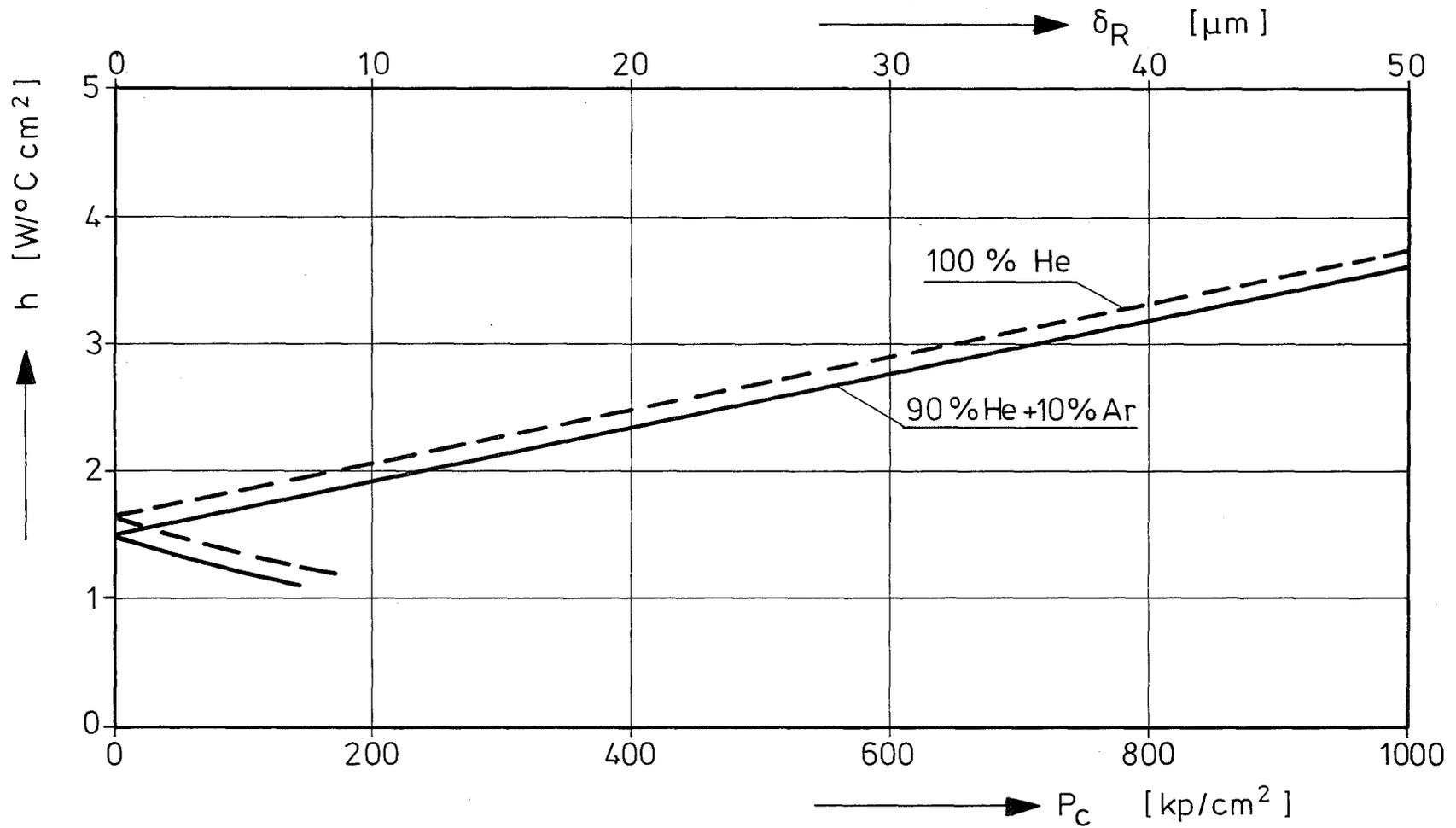


Abb. 30 : Wärmedurchgangszahl  $h$  als Funktion der Spaltbreite  $\delta_R$  bzw. des Kontaktdruckes  $P_c$ ,  
 Stabileistung 1240 - 1370 W/cm, Hülloberflächentemperatur 405 - 490°C, Gasdruck 1,3 kp/cm<sup>2</sup>

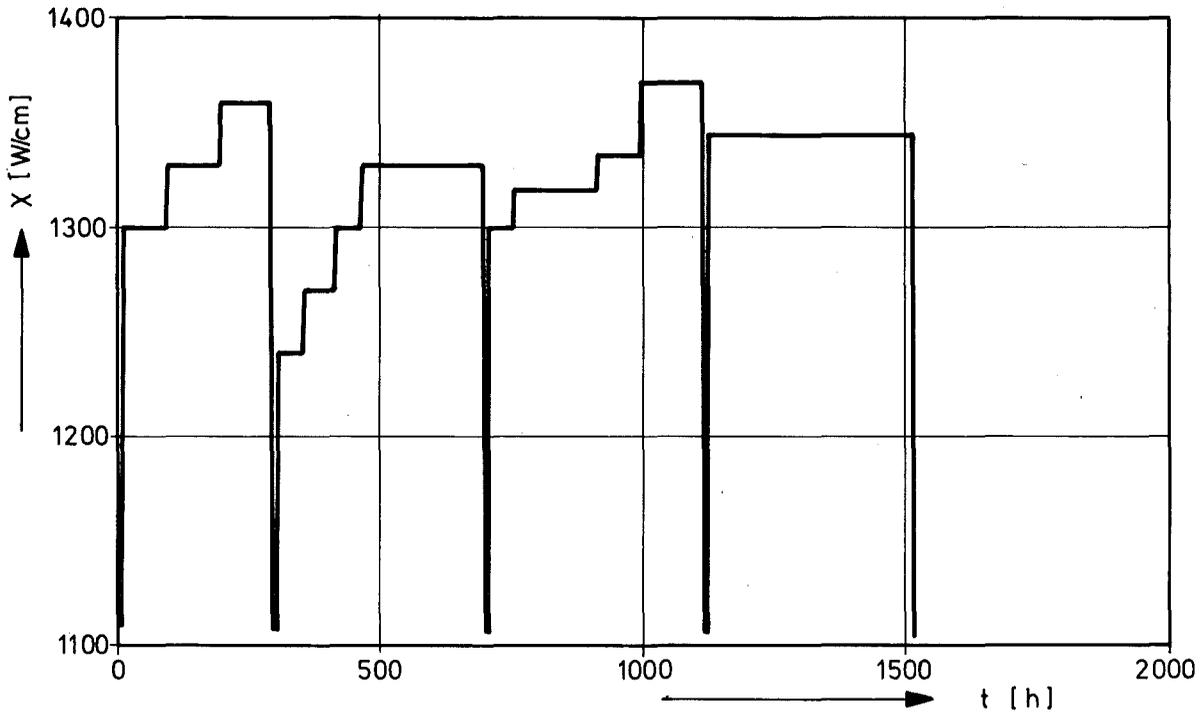


Abb. 31: Stableistung als Funktion der Zeit an der Position -30 (TE 6,7,8) des Prüflings Mol-11/K1-1

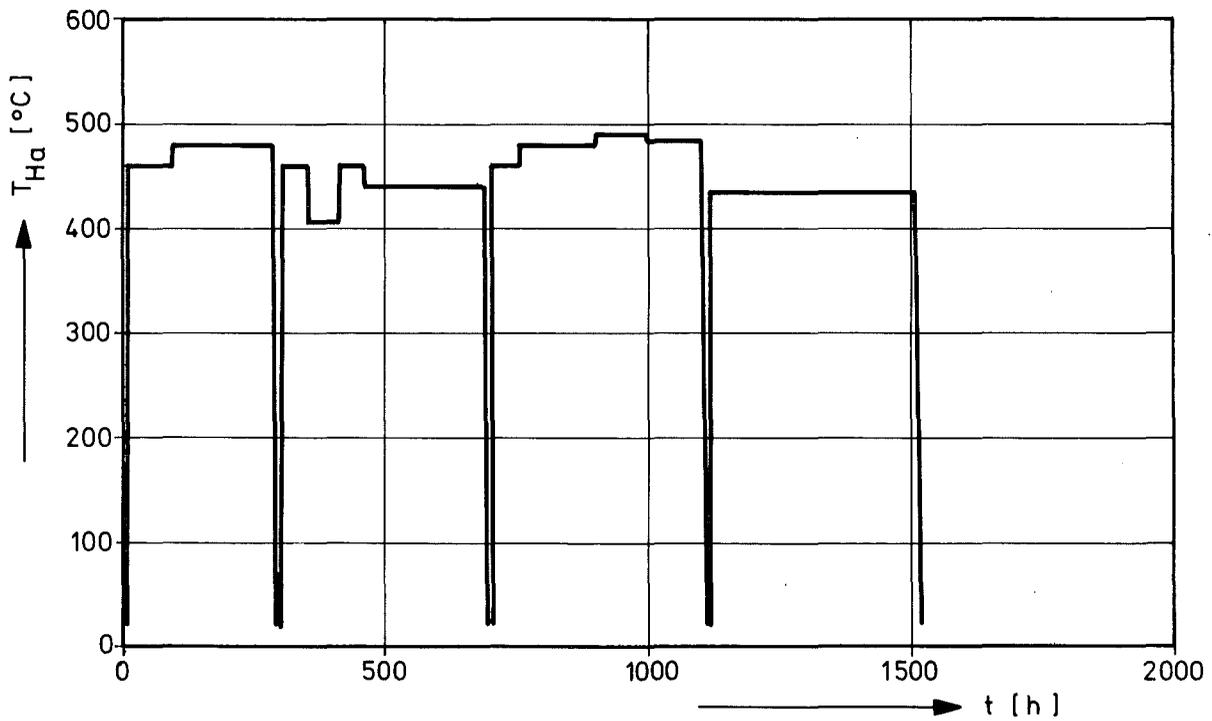


Abb. 32: Hülloberflächentemperatur als Funktion der Zeit an der Position -30 (TE 6,7,8) des Prüflings Mol-11/K1-1

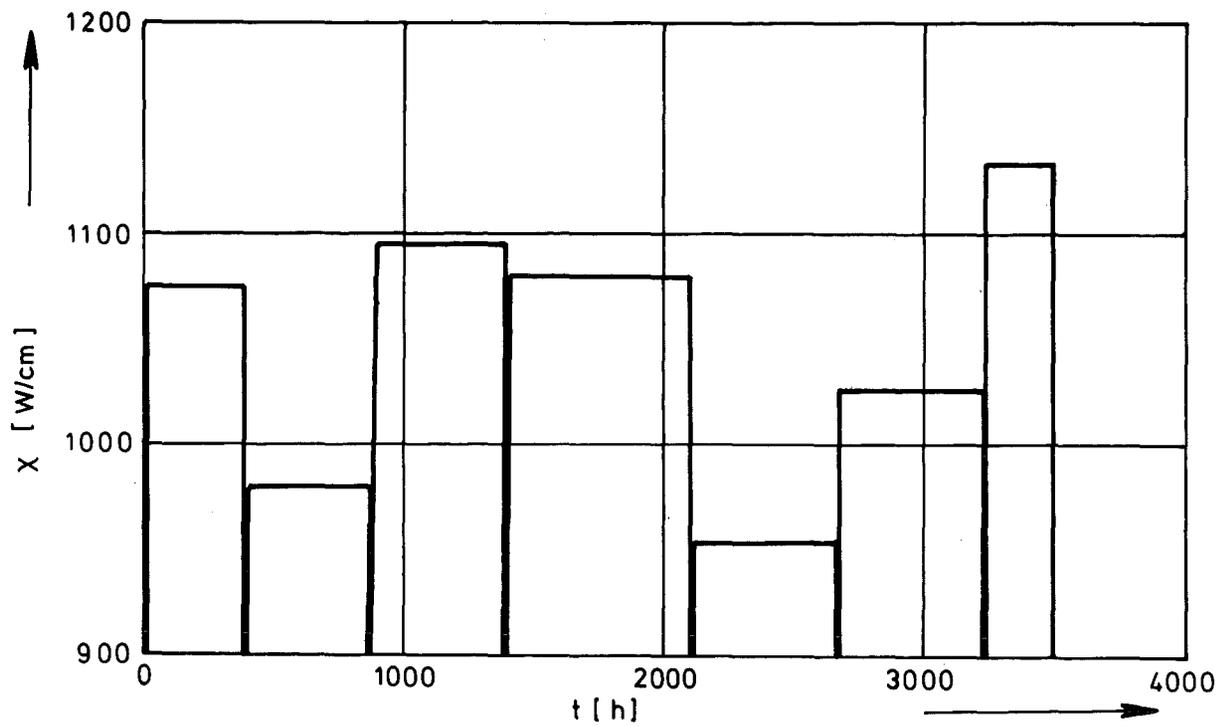


Abb. 33: Lineare Stableistung in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-1, TE 6,7,8

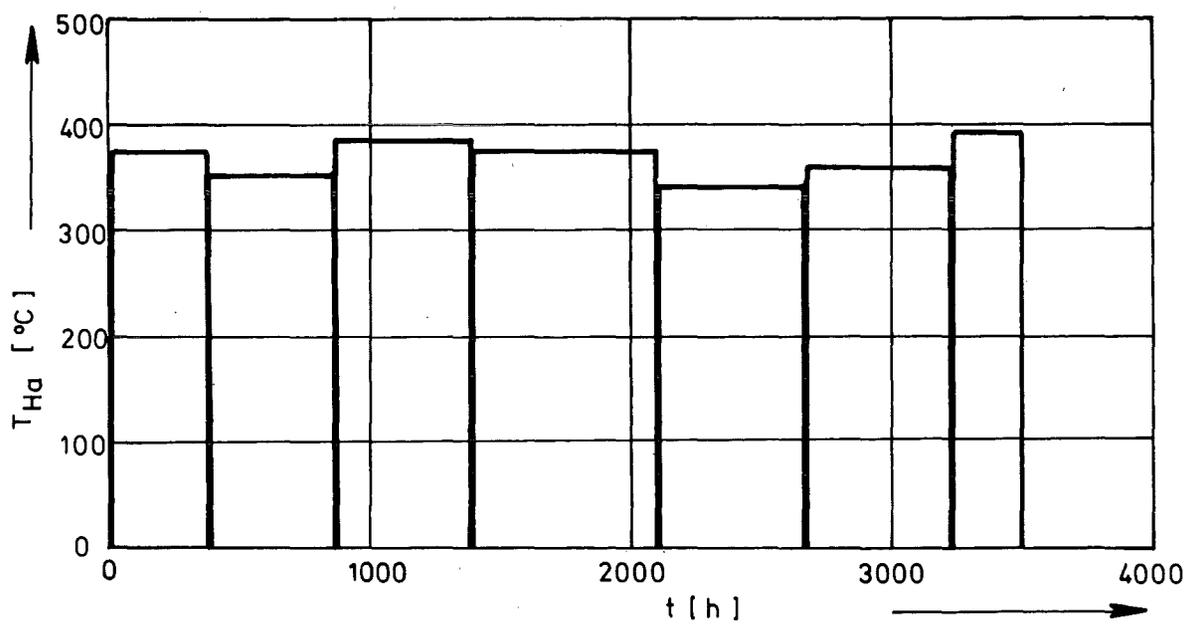


Abb. 34: Hülloberflächentemperatur in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-1, TE 6,7,8

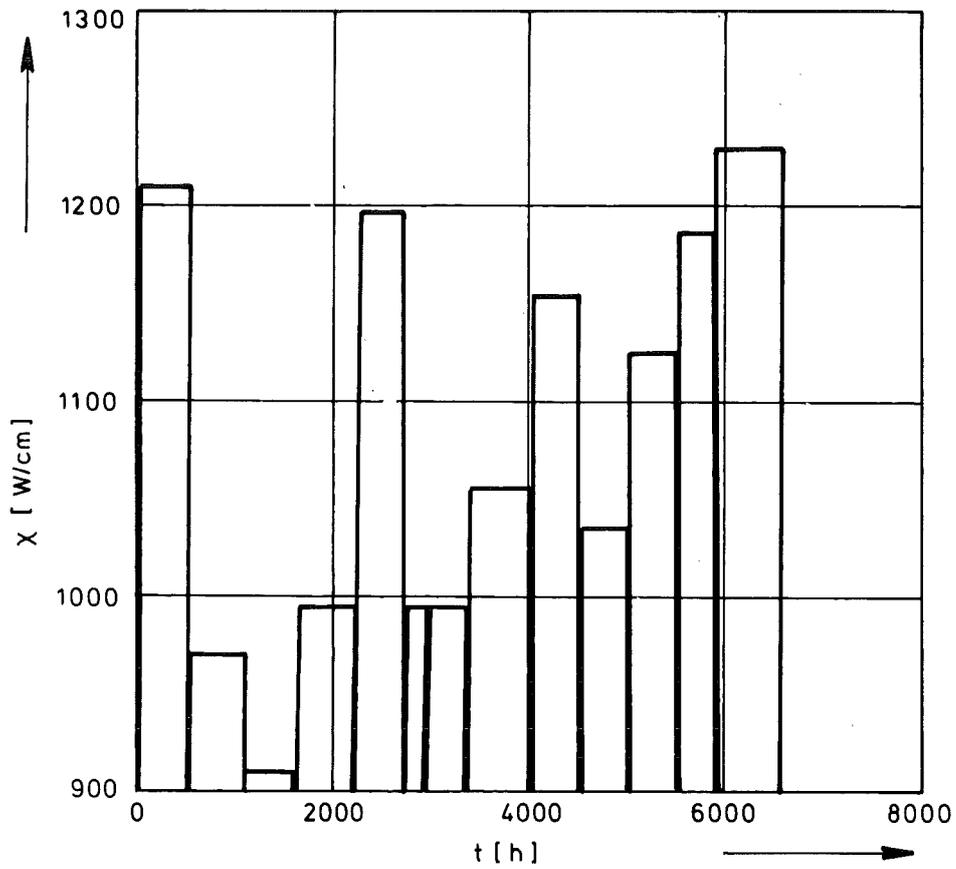


Abb. 35: Lineare Stableistung in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-2, TE 9

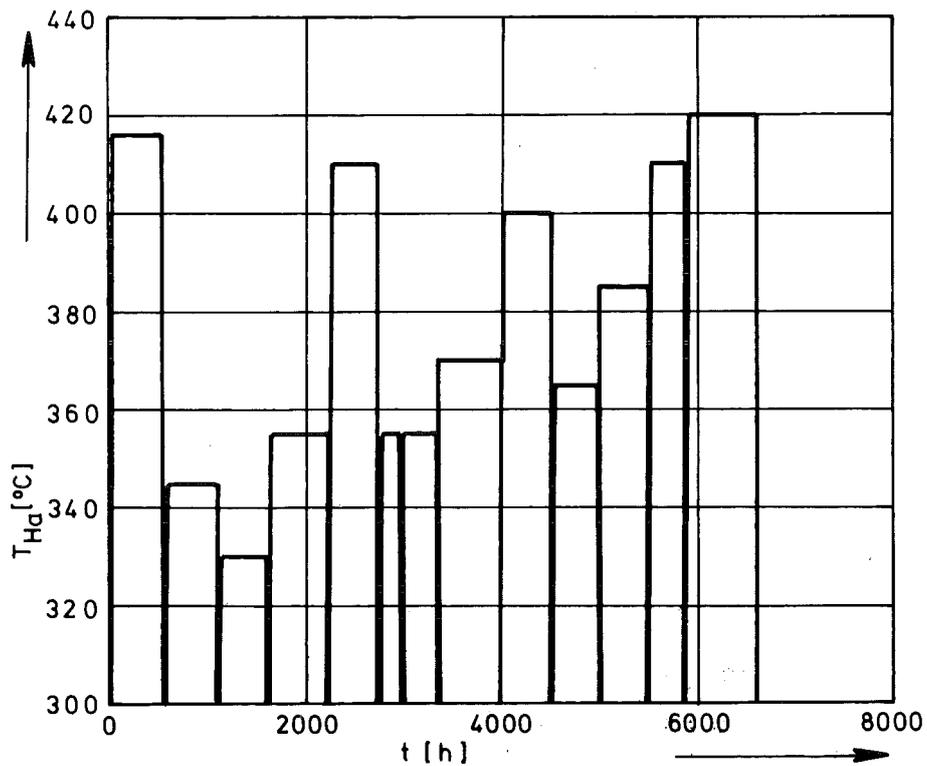


Abb. 36: Hülloberflächentemperatur in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-2, TE 9

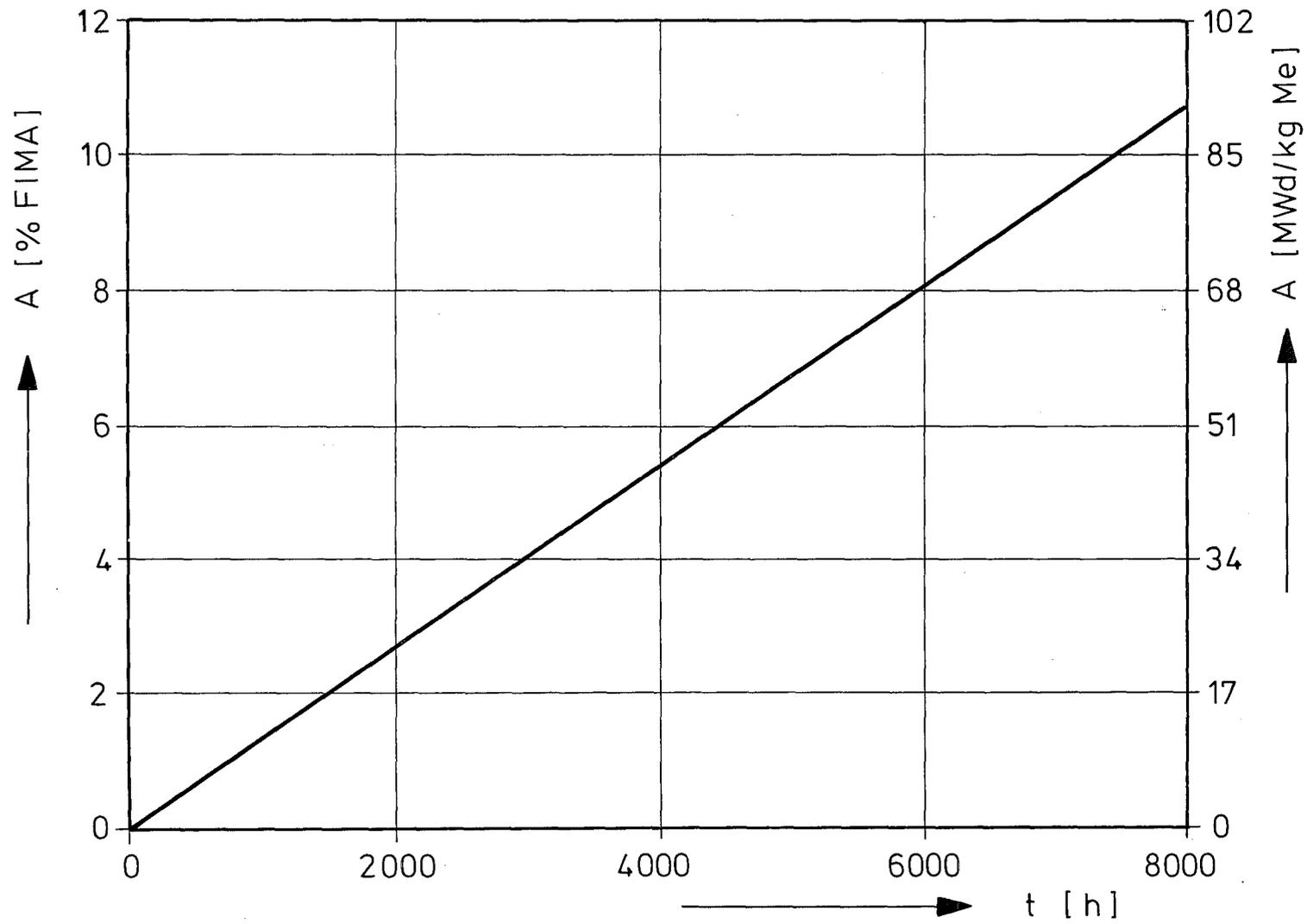


Abb. 37: Abbrand als Funktion der Bestrahlungszeit bei einer linearen Stableistung von rund 1000 W/cm

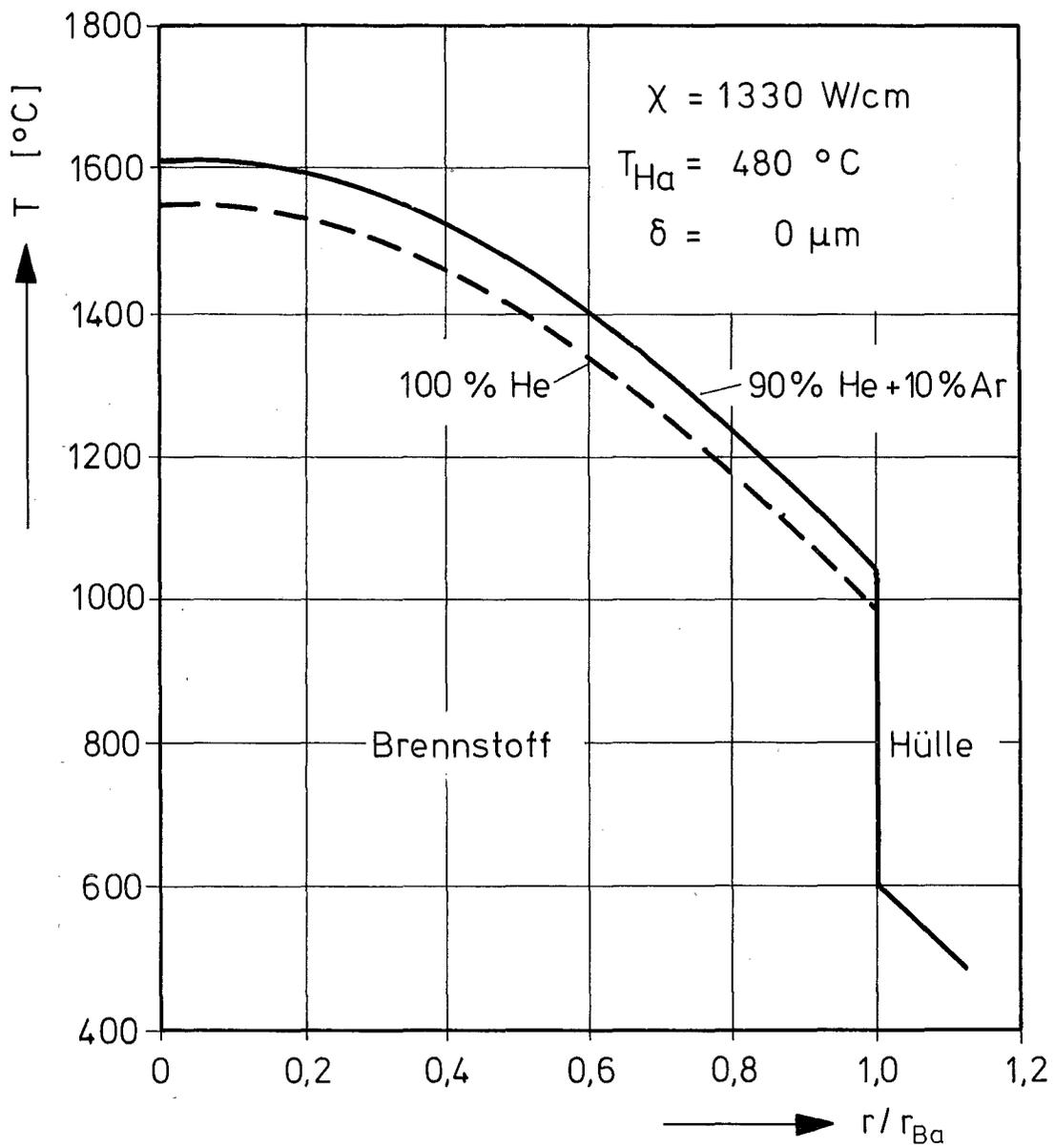


Abb. 38: Radiales Temperaturprofil im Prüfling Mol-11/K1-1,  
 Stabileistung 1330 W/cm  
 Hülloberflächentemperatur 480 °C  
 Spaltbreite 0  $\mu\text{m}$   
 Kontaktdruck 0  $\text{kp/cm}^2$

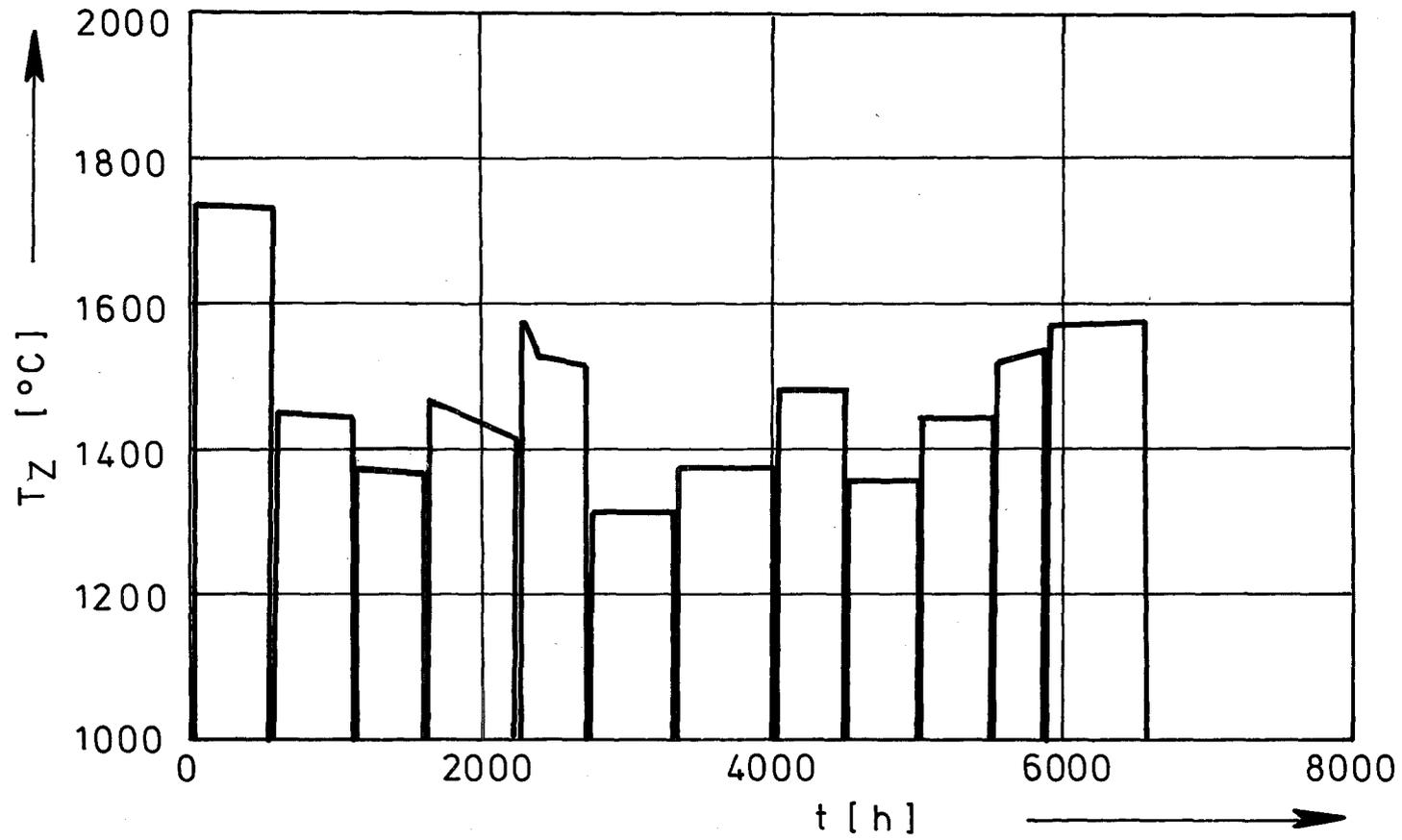


Abb. 39 Zentraltemperatur in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-2, TE 9

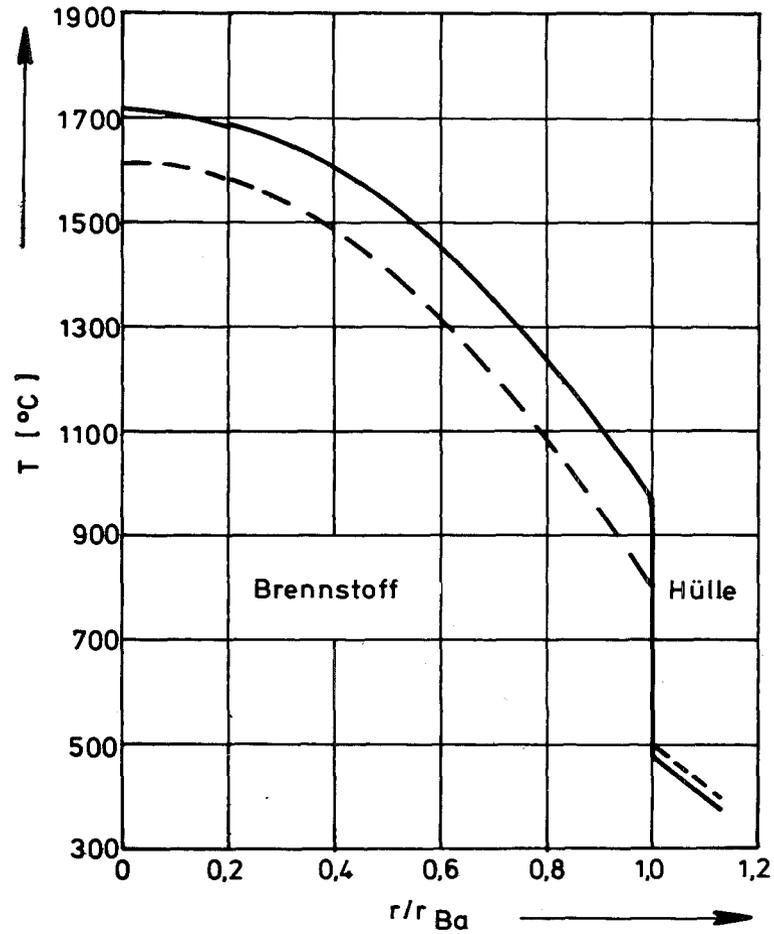


Abb. 40: Radiales Temperaturprofil im Brennstab bei Mol-11/K2-1, TE 6,7,8, zu Beginn des ersten Betriebszyklus (ausgezogene Kurve) und am Ende des letzten Betriebszyklus (gestrichelte Kurve)

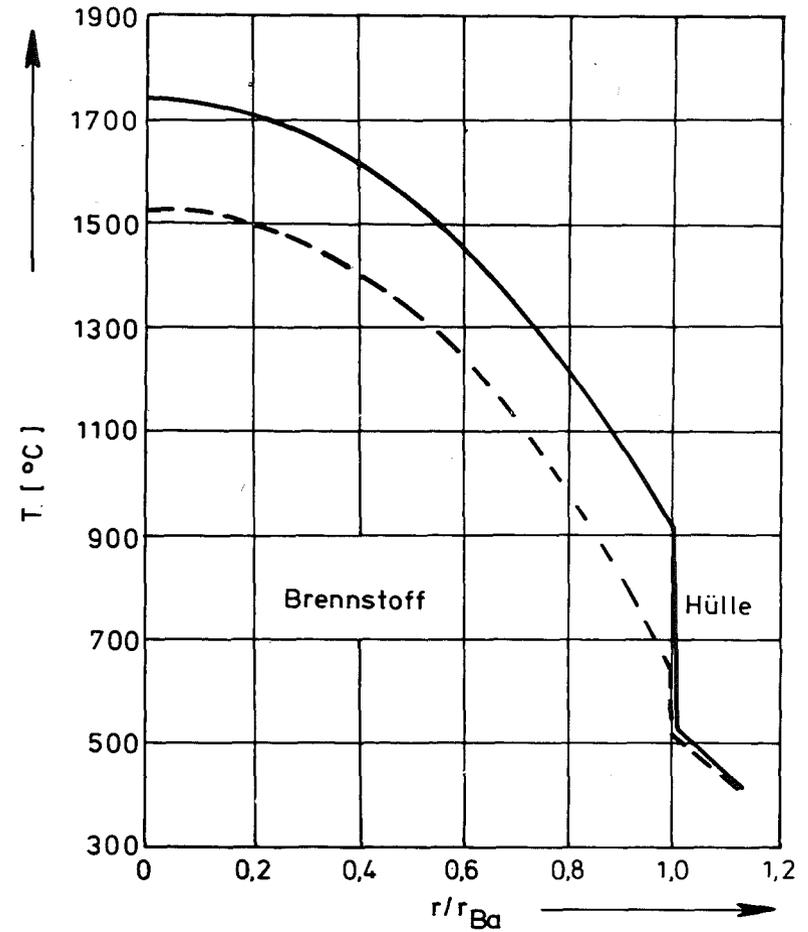


Abb. 41: Radiales Temperaturprofil im Brennstab bei Mol-11/K2-2, TE 9, zu Beginn des ersten Betriebszyklus (ausgezogene Kurve) und am Ende des letzten Betriebszyklus (gestrichelte Kurve)

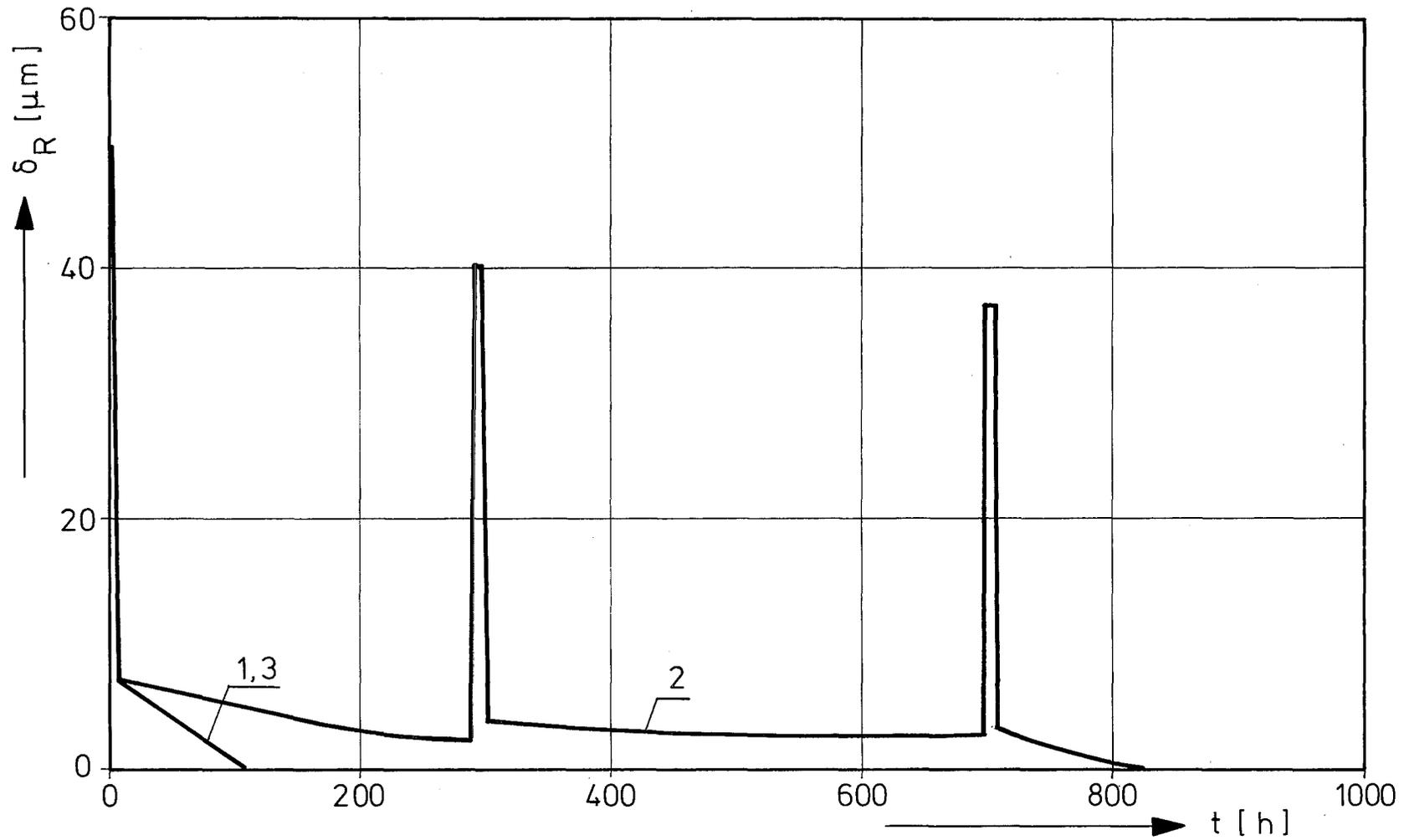


Abb. 42: Radiale Spaltbreite  $\delta_R$  in Abhängigkeit von der Zeit  $t$  an der Position -30 (TE 6,7,8) des Prüflings Mol-11/K1-1,

- 1: Brennstoff gerissen, Füllgas 90 % He + 10 % Ar
- 2: " ungerissen, Füllgas 90 % He + 10 % Ar
- 3: " gerissen, Füllgas 100 % He

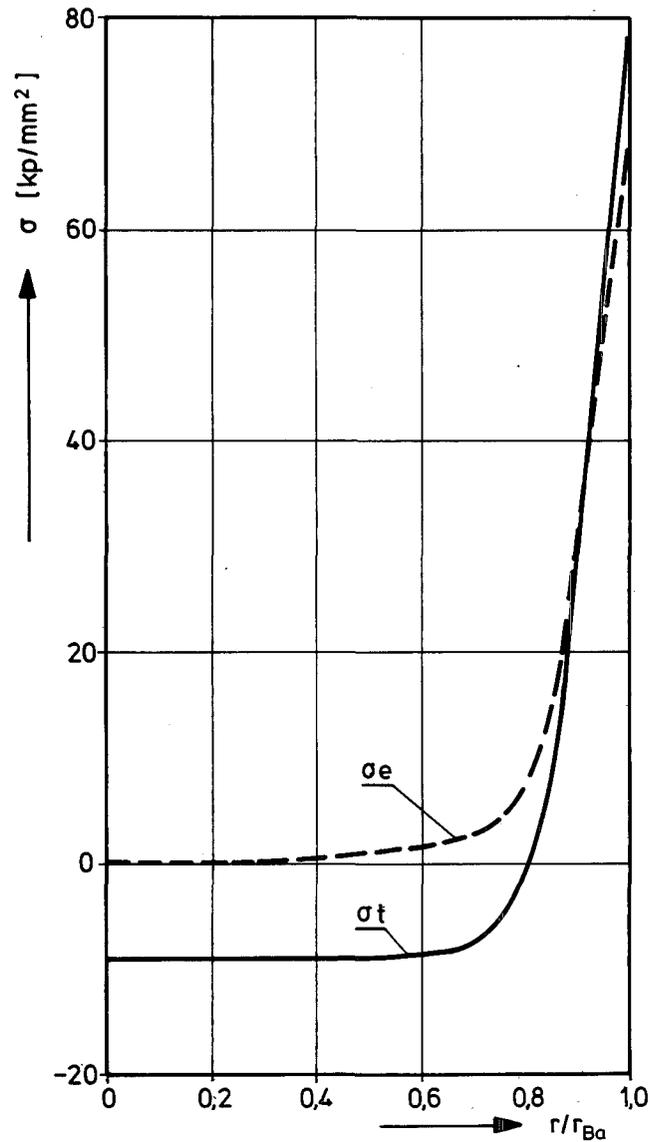


Abb. 43: Tangential- und Äquivalenzspannung  $\sigma_t$  bzw.  $\sigma_e$  im Brennstoff des Prüflings Mol-11/K1-1<sup>t</sup>  
 Stabileistung 1300 W/cm, Hülloberflächentemp. 462°C,  
 Gasdruck 1,27 kp/cm<sup>2</sup>, Kühlmitteldruck 1,0 kp/cm<sup>2</sup>

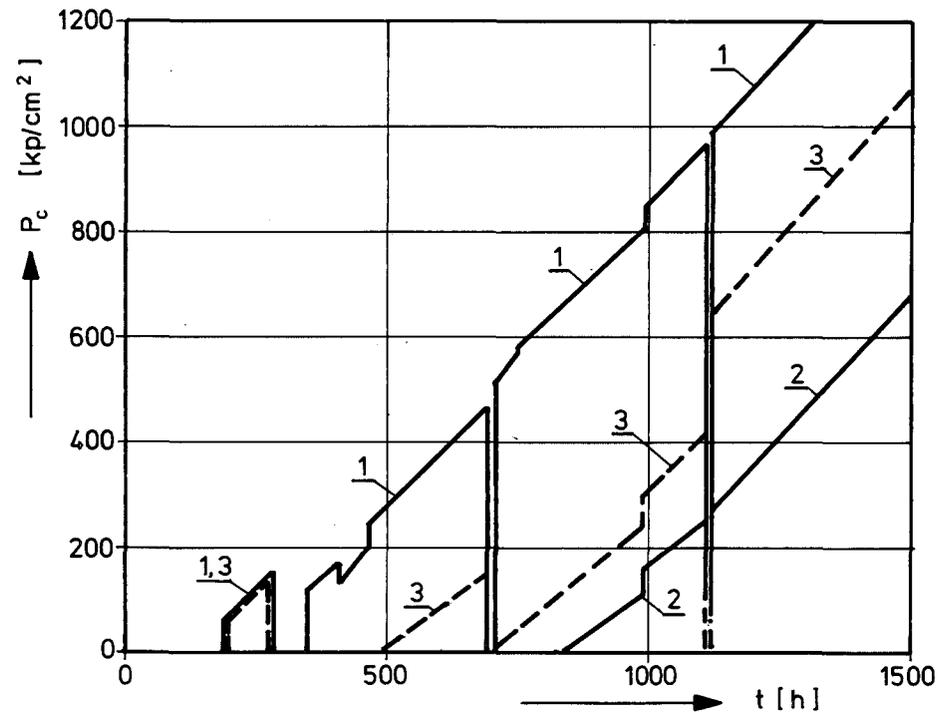


Abb. 44: Kontaktdruck  $p_c$  in Abhängigkeit von der Zeit  $t$  an der Position -30 (TE 6,7,8) des Prüflings Mol-11/K1-1 (Symbole wie bei Abb. 33)  
 Verformung des Hüllrohrs rein elastisch

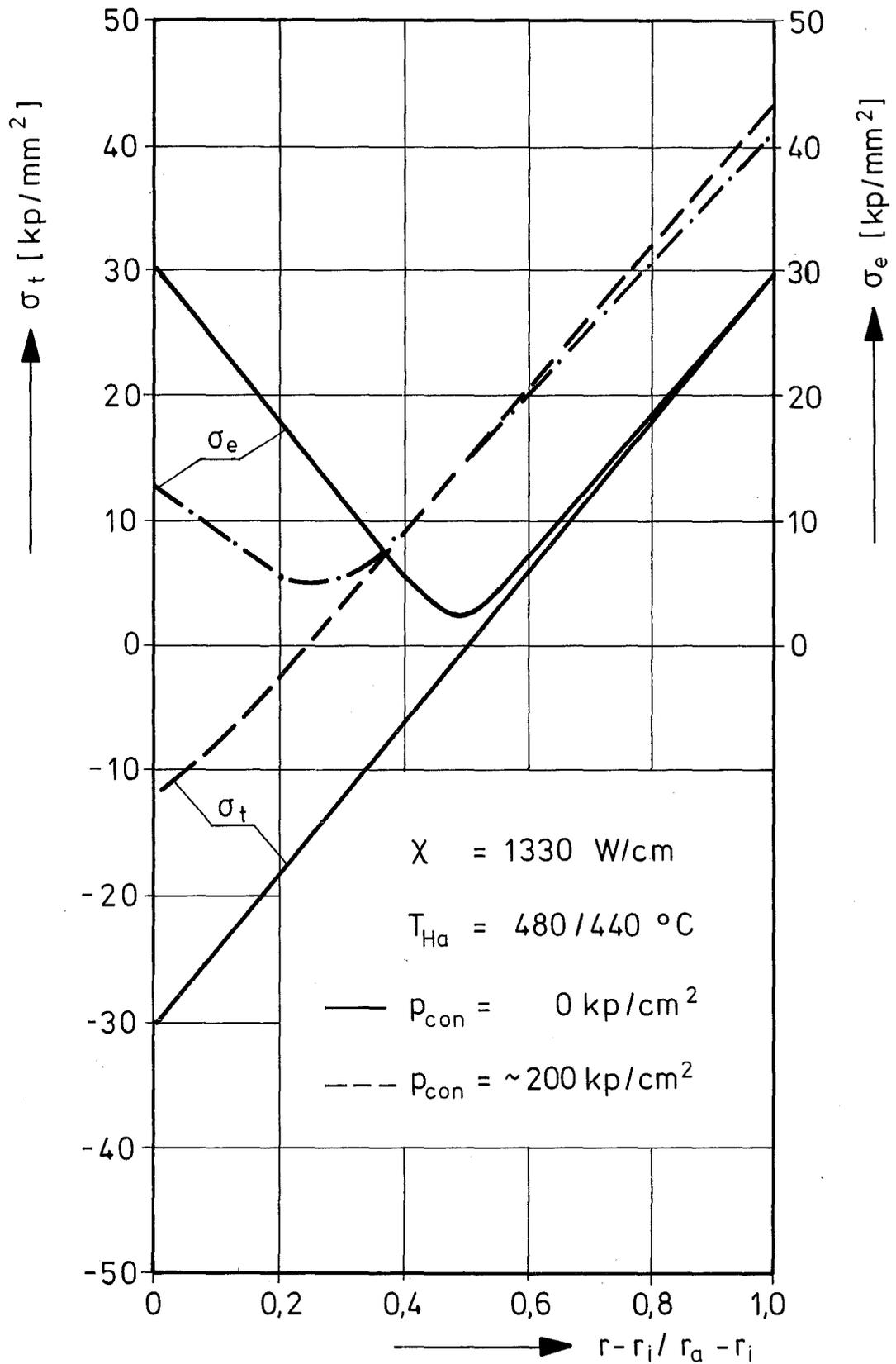


Abb. 45: Tangential- und Äquivalenzspannung  $\sigma_t$  bzw.  $\sigma_e$  im Hüllrohr des Prüflings Mol-11/K1-1  
 Stabileistung 1330 W/cm, Hülloberflächentemperatur 480 bzw. 440  $^\circ\text{C}$ , Verformung des Hüllrohrs rein elastisch

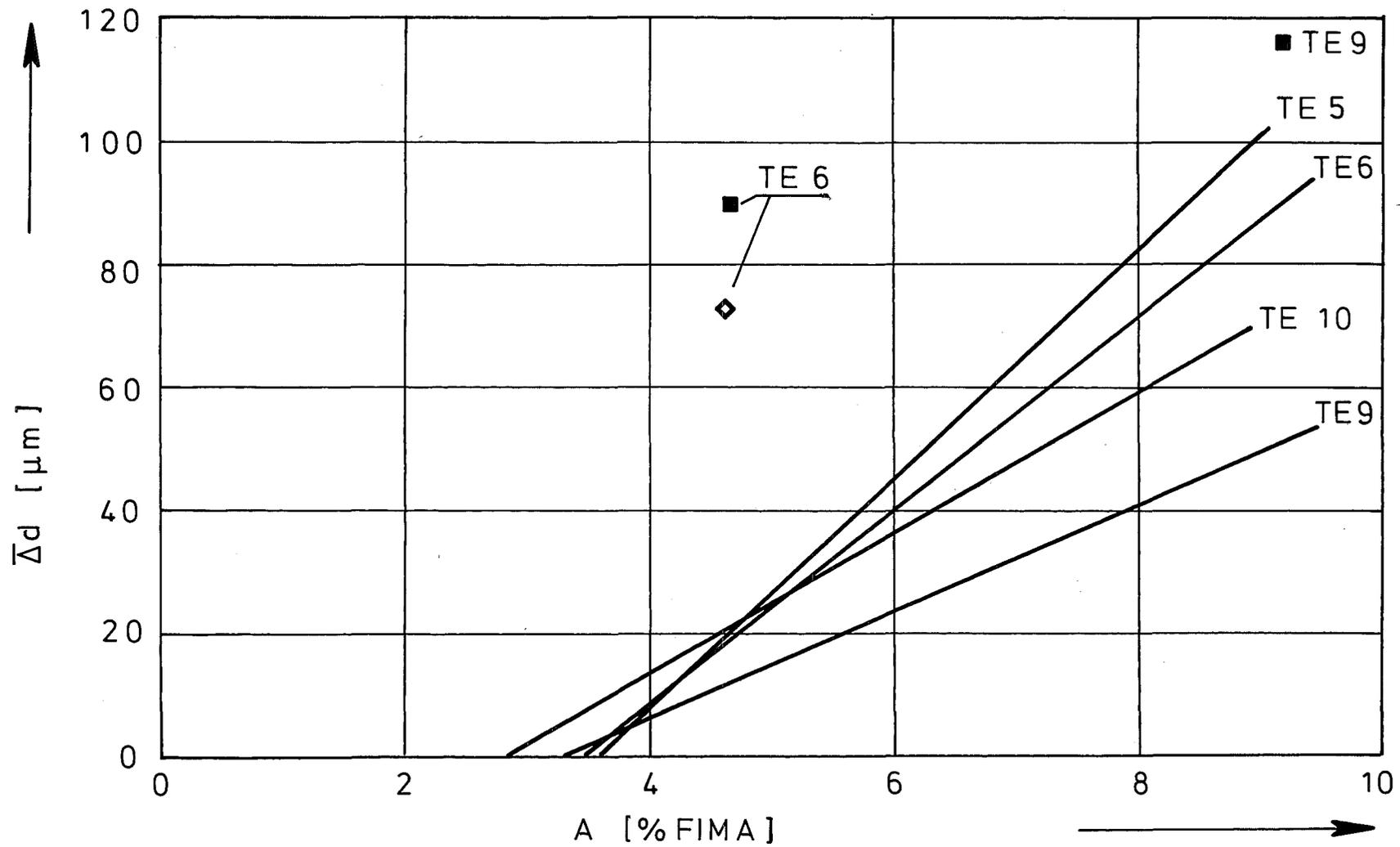


Abb. 46 Durchmesserzunahme in Abhängigkeit vom Abbrand bei Mol-11/K2, an verschiedenen Thermoelementpositionen

■ ohne Verfestigung  
 ◇ mit Verfestigung } berechnet

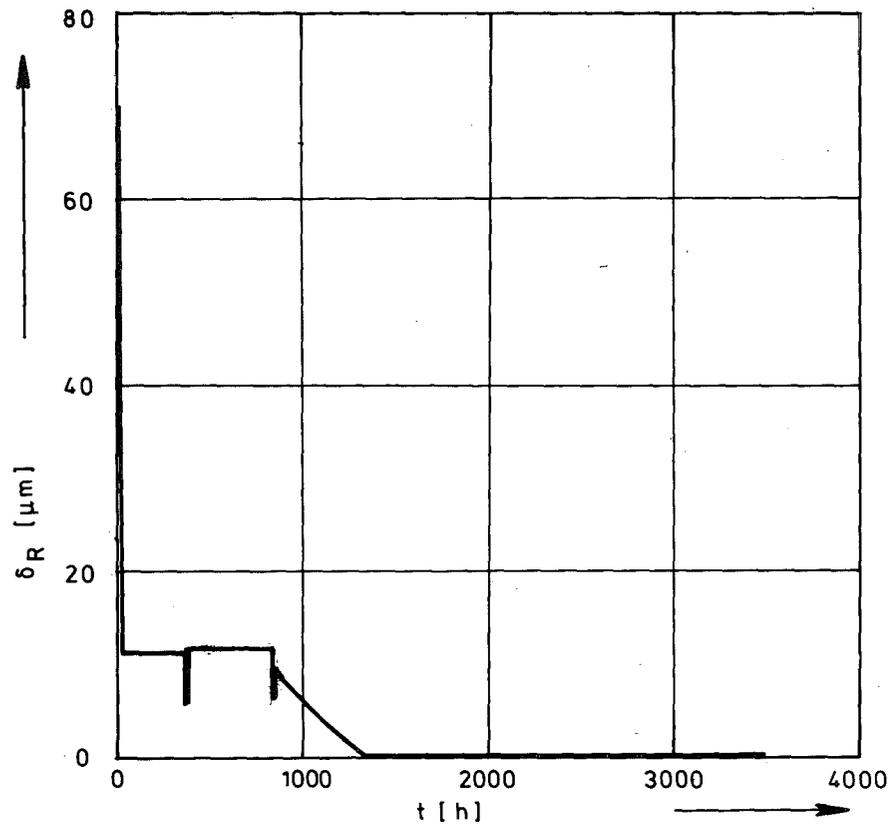


Abb. 47: Radiale Spaltbreite in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-1, TE 6,7,8

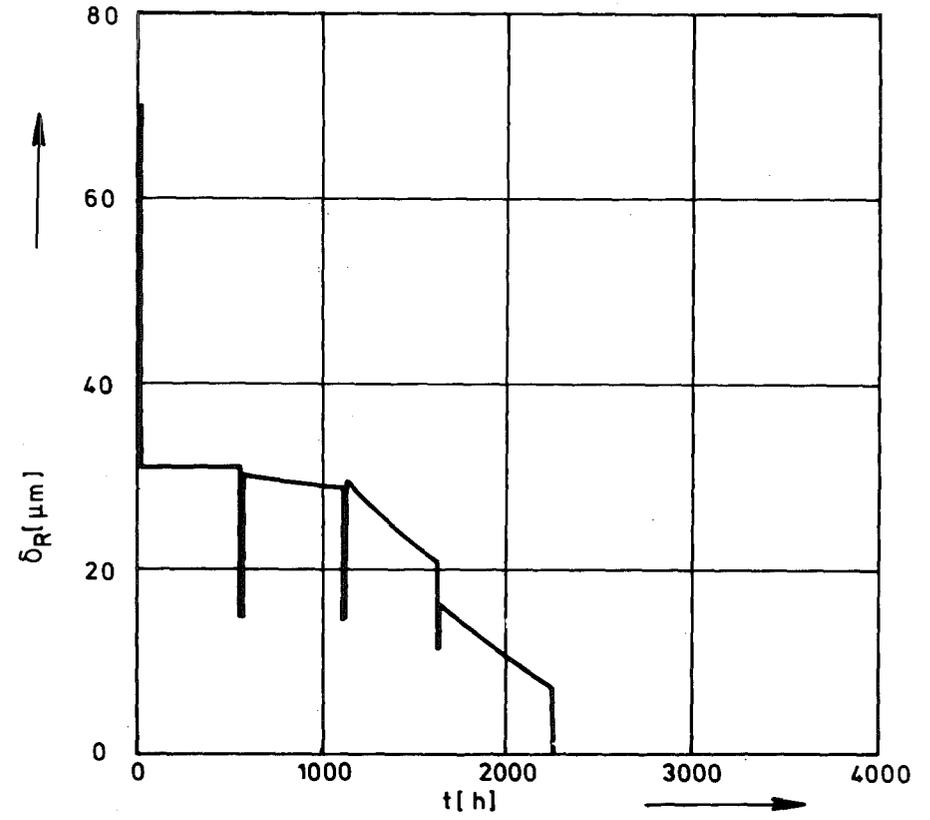


Abb. 48: Radiale Spaltbreite in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-2, TE 9

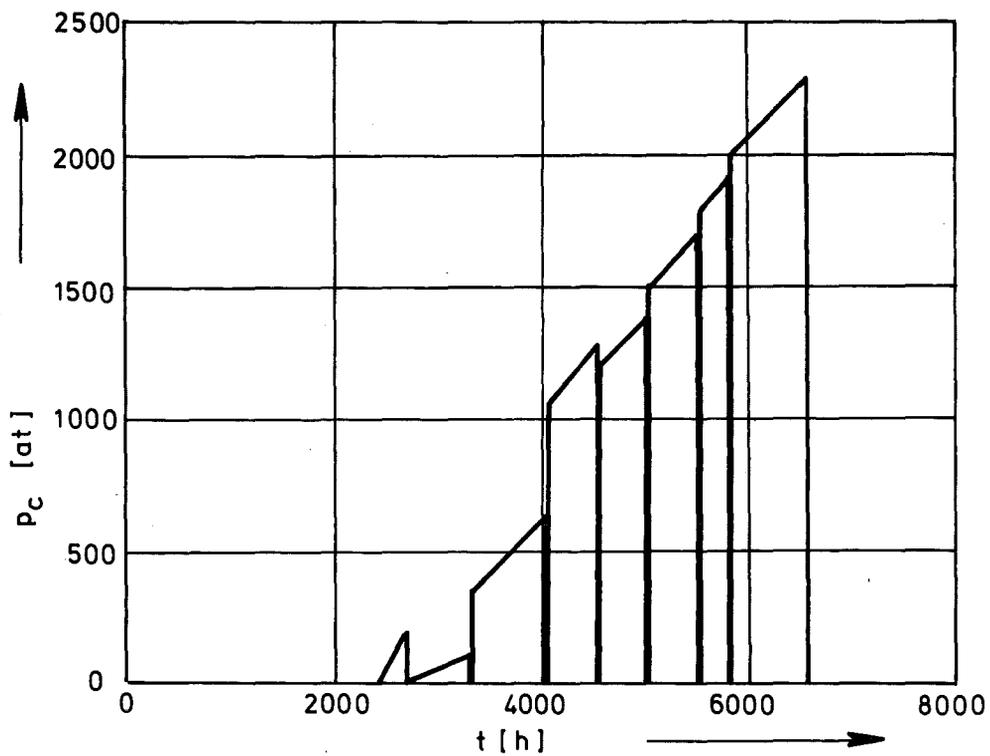


Abb. 49: Kontaktdruck in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-2, TE 9  
Verformung des Hüllrohrs rein elastisch

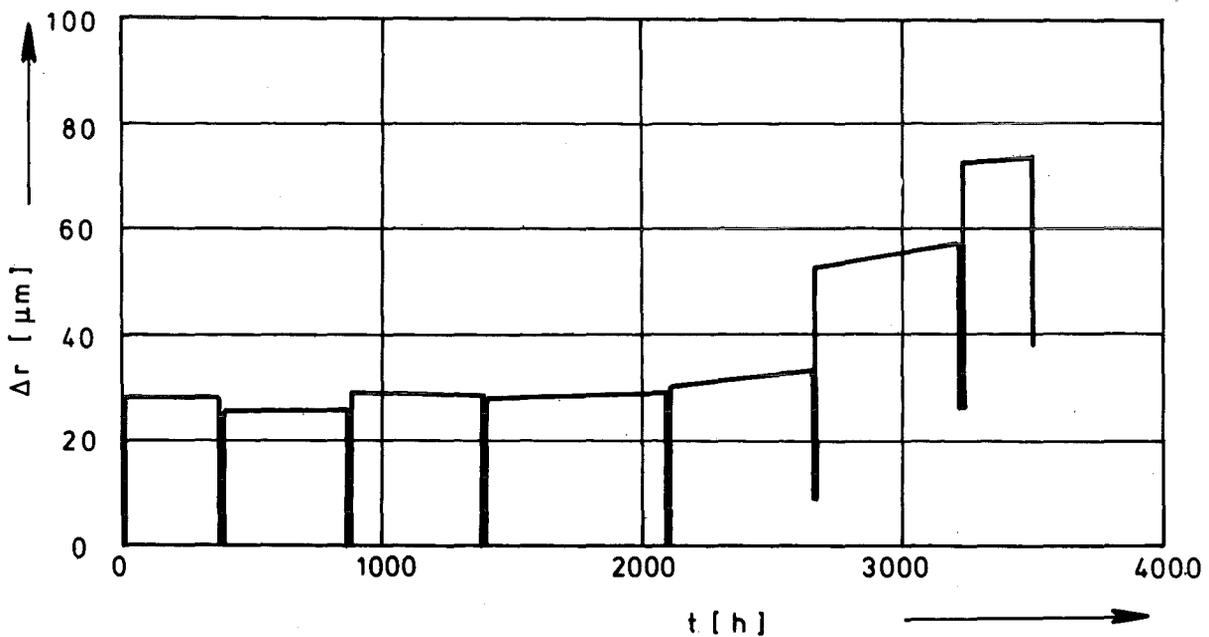


Abb. 50: Änderung des Hüllrohräußenradius in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit bei Mol-11/K2-1, TE 6,7,8, mit Dehnungsverfestigung

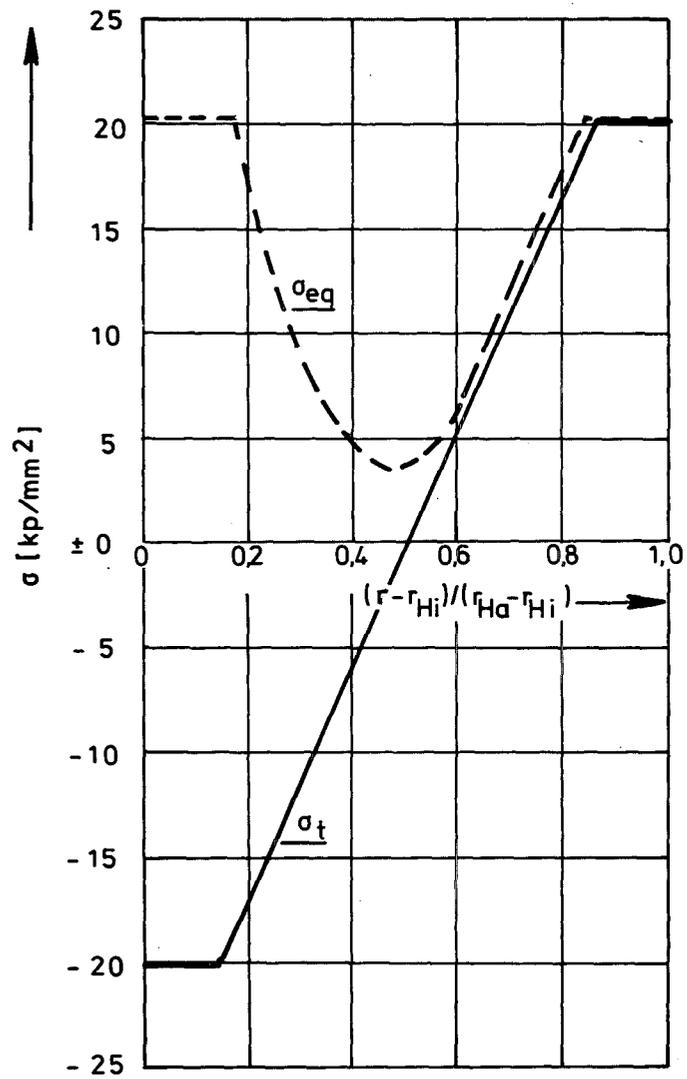


Abb. 51: Tangential- und Äquivalenzspannung im Hüllrohr bei Mol-11/K2-2, TE 9, zu Beginn des ersten Betriebszyklus, Spalt offen

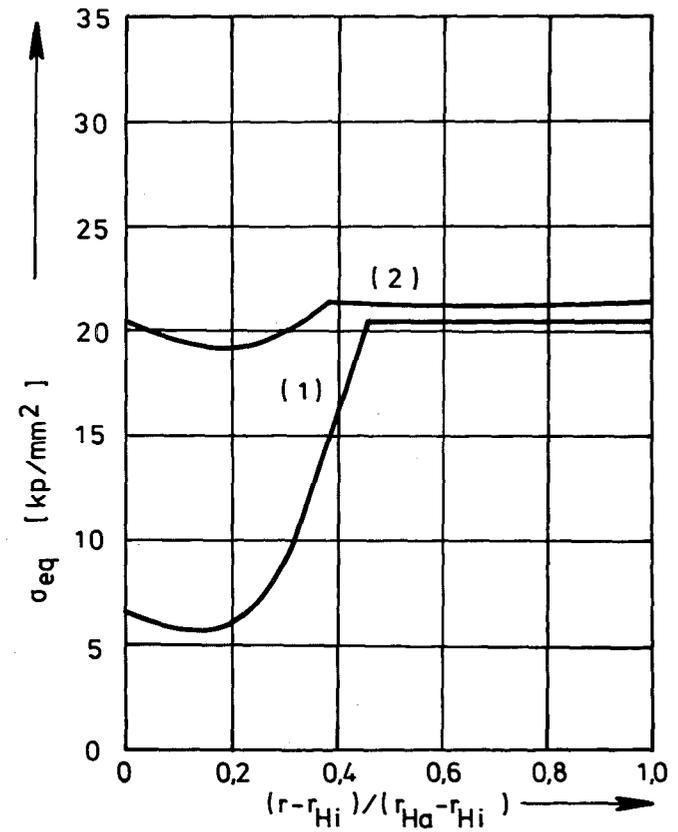


Abb. 52: Äquivalenzspannung im Hüllrohr bei Mol-11/K2-2, TE 9, nach einer Bestrahlungszeit von (1) 2742 h, (2) 3422 h, Spalt geschlossen



# A N H A N G I

## Materialbeziehungen und Materialdaten

### 1. Materialeigenschaften des Hüllrohrs aus dem Werkstoff Nr. 1.4988, lösungsgeglüht

#### 1.1 Wärmeleitfähigkeit /20/

<u>T/°C</u>	<u>λ/W/cm°C</u>	<u>T/°C</u>	<u>λ/W/cm°C</u>
20	0,151	400	0,193
100	0,159	500	0,201
200	0,172	600	0,218
300	0,180	700	0,250

#### 1.2 Thermische Ausdehnung /20/

<u>T/°C</u>	<u>α/10<sup>-4</sup>·1/°C</u>	<u>T/°C</u>	<u>α/10<sup>-4</sup>·1/°C</u>
20	0,0	500	0,176
100	0,157	600	0,178
200	0,167	700	0,180
300	0,171	800	0,187
400	0,174		

Es gilt:  $\lambda(T) = \lambda(T = 20^{\circ}\text{C}) \cdot (1 + \alpha \cdot (T - 20^{\circ}\text{C}))$

#### 1.3 Elastische Eigenschaften /20/

Poisson-Zahl:  $\nu = 0,3$



Elastizitätsmodul:

$T/^{\circ}\text{C}$	$E/10^4 \text{ kp/mm}^2$	$T/^{\circ}\text{C}$	$E/10^4 \text{ kp/mm}^2$
20	2,00	500	1,70
200	1,90	600	1,60
300	1,85	700	1,50
400	1,80	800	1,40

#### 1.4 Kriechverhalten

Das Kriechverhalten des Hüllrohrmaterials wurde durch die Norton'sche Beziehung

$$\dot{\epsilon} = K \cdot \sigma^n$$

beschrieben, mit der das sekundäre Kriechen erfaßt wird. Die Temperaturabhängigkeit der Parameter K und n ist für lösungsgeglühtes und ausgelagertes Material durch folgende Tabelle gegeben /21/:

$T/^{\circ}\text{C}$	K	n
20	$1 \cdot 10^{-45}$	15
400	$1 \cdot 10^{-45}$	15
550	$1 \cdot 10^{-45}$	15
600	$3 \cdot 10^{-28}$	15
650	$9 \cdot 10^{-15}$	8
700	$5 \cdot 10^{-13}$	7
750	$3 \cdot 10^{-8}$	4

#### 1.5 Plastisches Verhalten

Zur Beschreibung der plastischen Eigenschaften wurden folgende Daten verwendet:

Streckgrenze  $21 \text{ kp/mm}^2$  bei  $450^{\circ}\text{C}$   
 Plastizitätsmodul  $90 \text{ kp/mm}^2$  "  $450^{\circ}\text{C}$

## 2. Materialeigenschaften des Brennstoffs aus Urankarbid

### 2.1 Wärmeleitfähigkeit

- 100 % dichter Brennstoff /22/:

$$\begin{aligned}\lambda_{100} &= \lambda_0 && \text{für } T \leq 500^\circ\text{C} \\ \lambda_{100} &= \lambda_0 + \lambda_1 \cdot (T - 500^\circ\text{C}) && \text{für } T > 500^\circ\text{C}\end{aligned}$$

mit

$$\begin{aligned}\lambda_0 &= 0,2 \text{ W/cm}^\circ\text{C} \\ \lambda_1 &= 1,3 \cdot 10^{-5} \text{ W/cm } (^\circ\text{C})^2 \\ T &\text{ in } ^\circ\text{C}\end{aligned}$$

- poröser Brennstoff /22/:

$$\lambda_P = \frac{1 - P}{1 + P} \cdot \lambda_{100}, \quad \text{mit } 0,8 < P < 1,0$$

### 2.2 Thermische Ausdehnung /23/:

$$\alpha = (1,007 \cdot 10^{-5} + 1,17 \cdot 10^{-9} \cdot T/^\circ\text{C}) \cdot 1/^\circ\text{C}$$

$$\text{Es gilt: } \ell(T) = \ell(T = 20^\circ\text{C}) \cdot (1 + \alpha \cdot (T - 20^\circ\text{C}))$$

### 2.3 Elastische Eigenschaften /24/:

$$\begin{aligned}\text{Poisson-Zahl:} & \quad \nu = 0,11 \\ \text{Elastizitätsmodul:} & \quad E = 17\,300 \text{ kp/mm}^2\end{aligned}$$

### 2.4 Kriechverhalten:

Das Kriechverhalten des Brennstoffmaterials wurde durch folgende Beziehung für das sekundäre Kriechen beschrieben /25,26/:

$$\dot{\epsilon} = 14,5 \cdot 10^9 \cdot \sigma^{2,44} \cdot \exp \left\{ - \frac{63000 \text{ K}}{T} \right\} + 3,47 \cdot 10^{-12} \frac{\chi}{r_a^2 - r_i^2} \cdot \sigma$$

mit  $\sigma$  in MPa,  $T$  in K,  $\chi$  in W/cm,  $r$  in mm

2.5 Schwellverhalten /27,28/:

<u>T/°C</u>	<u>S/cm<sup>3</sup>/Wh</u>	<u>T/°C</u>	<u>S/cm<sup>3</sup>/Wh</u>
20	0,45 · 10 <sup>-8</sup>	1200	0,79 · 10 <sup>-8</sup>
900	0,45 · 10 <sup>-8</sup>	1300	1,06 · 10 <sup>-8</sup>
1000	0,49 · 10 <sup>-8</sup>	2000	1,06 · 10 <sup>-8</sup>
1100	0,58 · 10 <sup>-8</sup>		

Es entsprechen 0,45 · 10<sup>-8</sup> cm<sup>3</sup>/Wh  
1,4 Vol.-%/10 MWd/kg M

3. Materialeigenschaften des Brennstoffs aus Mischkarbid mit einem Anteil von 15 % Plutonium

3.1 Wärmeleitfähigkeit:

- 100 % dichter Brennstoff:

$$\begin{aligned} \lambda_{100} &= \lambda_0 && \text{für } T \leq 500^\circ\text{C} \\ \lambda_{100} &= \lambda_0 + \lambda_1 \cdot (T - 500^\circ\text{C}) && \text{für } T > 500^\circ\text{C} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{mit } \lambda_0 &= 12,6 \text{ W/cm}^\circ\text{C} \\ \lambda_1 &= 4,1 \cdot 10^{-5} \text{ W/cm}(\text{}^\circ\text{C})^2 \\ T &\text{ in } ^\circ\text{C} \end{aligned}$$

- poröser Brennstoff

$$\lambda_P = \frac{1 - P}{1 + P} \cdot \lambda_{100}, \quad \text{mit } 0,8 < P < 1,0$$

Die verwendeten Werte für die Wärmeleitfähigkeit wurden gegenüber den in /22/ empfohlenen Werten um ca. 20 % kleiner angesetzt in Übereinstimmung mit experimentellen Werten (s.z.B. /29/). Zudem dürften Verunreinigungen des Brennstoffs, wie sie im Laufe der Bestrahlung zwangsläufig auftreten, zu einer Verschlechterung der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs führen.

### 3.2 Thermische Ausdehnung /30/:

$$\alpha = \frac{\Delta l}{l_0 (T = 25^\circ\text{C})} = (8,775 \cdot 10^{-6} + 3,0 \cdot 10^{-9} T/^\circ\text{C}) \cdot 1/^\circ\text{C}$$

Dabei ist T in  $^\circ\text{C}$  einzusetzen.

### 3.3 Elastische Eigenschaften:

Für den Elastizitätsmodul E und die Poissonzahl  $\nu$  wurden nach /24/ folgende Daten gewählt:

$$E = 15900 \text{ kp/mm}^2 \quad \text{und} \\ \nu = 0,23$$

### 3.4 Kriechverhalten

wie unter Pkt. 2.4.

### 3.5 Schwellverhalten:

Das Schwellverhalten wurde entsprechend den in /28, 31, 32/ berichteten Ergebnissen folgendermaßen beschrieben:

- freier Brennstoff:

$T/^\circ\text{C}$	$s/\text{cm}^3/\text{Wh}$	$T/^\circ\text{C}$	$s/\text{cm}^3/\text{Wh}$
20	$0,45 \cdot 10^{-8}$	1200	$0,79 \cdot 10^{-8}$
900	$0,45 \cdot 10^{-8}$	1300	$1,06 \cdot 10^{-8}$
1000	$0,49 \cdot 10^{-8}$	2000	$1,06 \cdot 10^{-8}$
1100	$0,58 \cdot 10^{-8}$		

Dabei entsprechen  $0,45 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{Wh}$  einem Wert von 1,4 Vol.-% pro 10 MWd/kg M .

- Brennstoff im Kontakt mit der Hülle:

$$s = 0,15 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{Wh}$$

unabhängig von der Temperatur.

Bei der Festlegung dieses Wertes wurde angenommen, daß ein Teil des Schwellens über Heißpressen vom Porenvolumen des Brennstoffs aufgenommen werden kann.

### 3.6 Spaltgasfreisetzung:

Die Bestimmung des Spaltgasdruckaufbaus lehnt sich eng an die in /31/ dokumentierte Auswertung der Messungen an K2-2 an. Es wurden folgende einfachen Annahmen getroffen:

<u>Abbrand / % Fima</u>	<u>Freisetzungsrate</u>
0 - 2,3	0
2,3 - 4,0	0,1
ab 4,0	0,5

### 4. Wärmeableitung vom Brennstoff zur Hülle

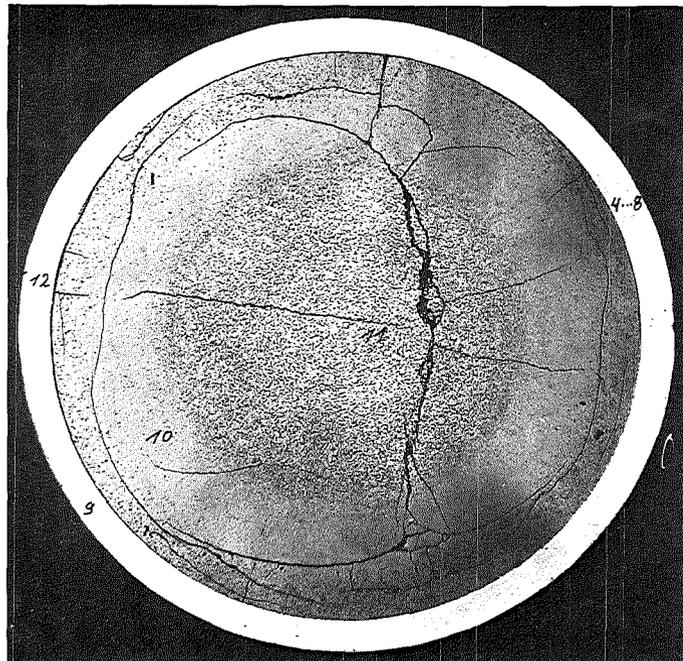
Der Wärmetransport durch den Spalt bzw. die Kontaktzone zwischen Brennstoff und Hülle wurde mit Modellen beschrieben, die in /33/ angegeben werden. Die Werte der Wärmedurchgangskoeffizienten, die für eine Füllgaszusammensetzung aus Helium mit einem Anteil von 90 % und verunreinigenden Gasen mit einem Anteil von 10 % Argon-Äquivalent bzw. für ein Füllgas aus 100 % Helium mit diesen Modellen berechnet wurden, werden in der Abb. 30 als Funktion der Spaltbreite bzw. des Kontaktdruckes angegeben.



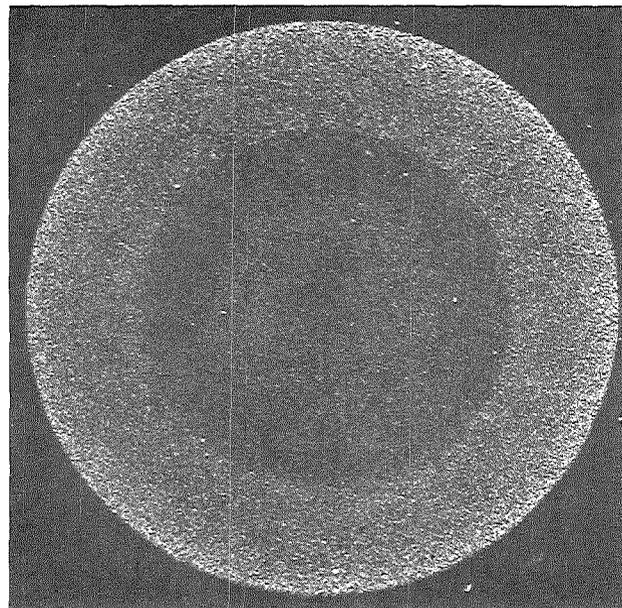
Anhang II

Dokumentation der Nachuntersuchung

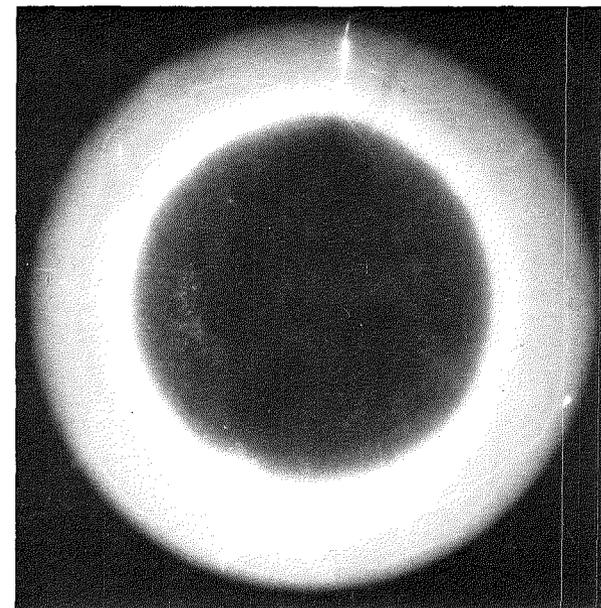




Schnitt 16



$\alpha$  (150 sec)



$\beta$ - $\gamma$  (50 sec)

Autoradiografie

15x

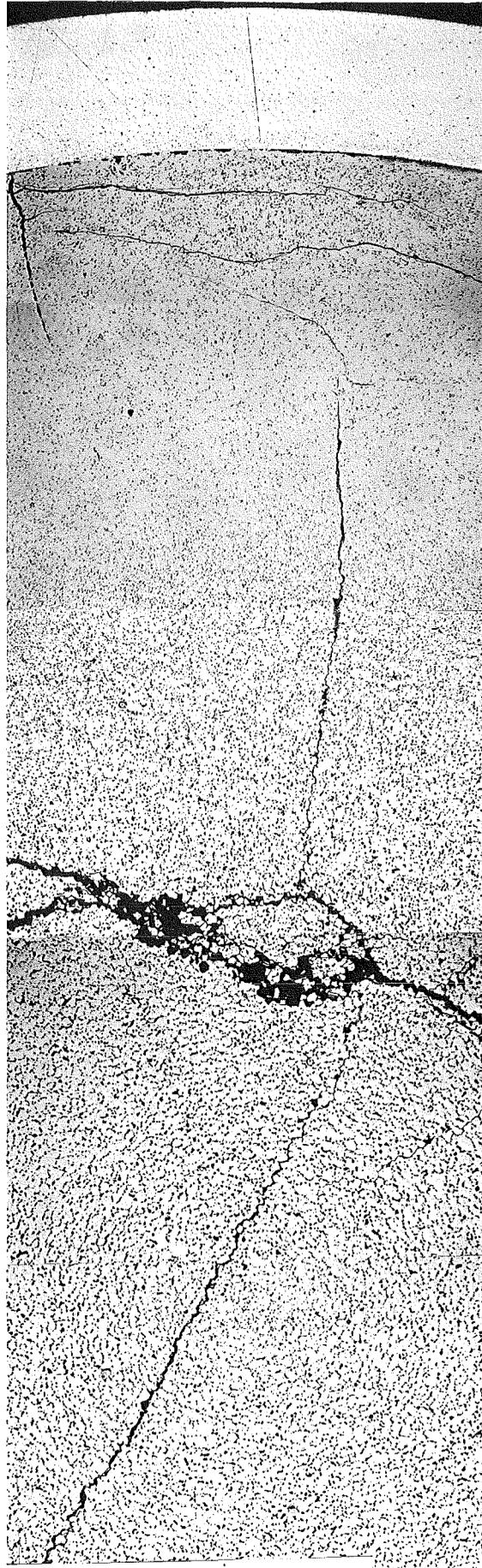
1mm  
|-----|

GfK Karlsruhe

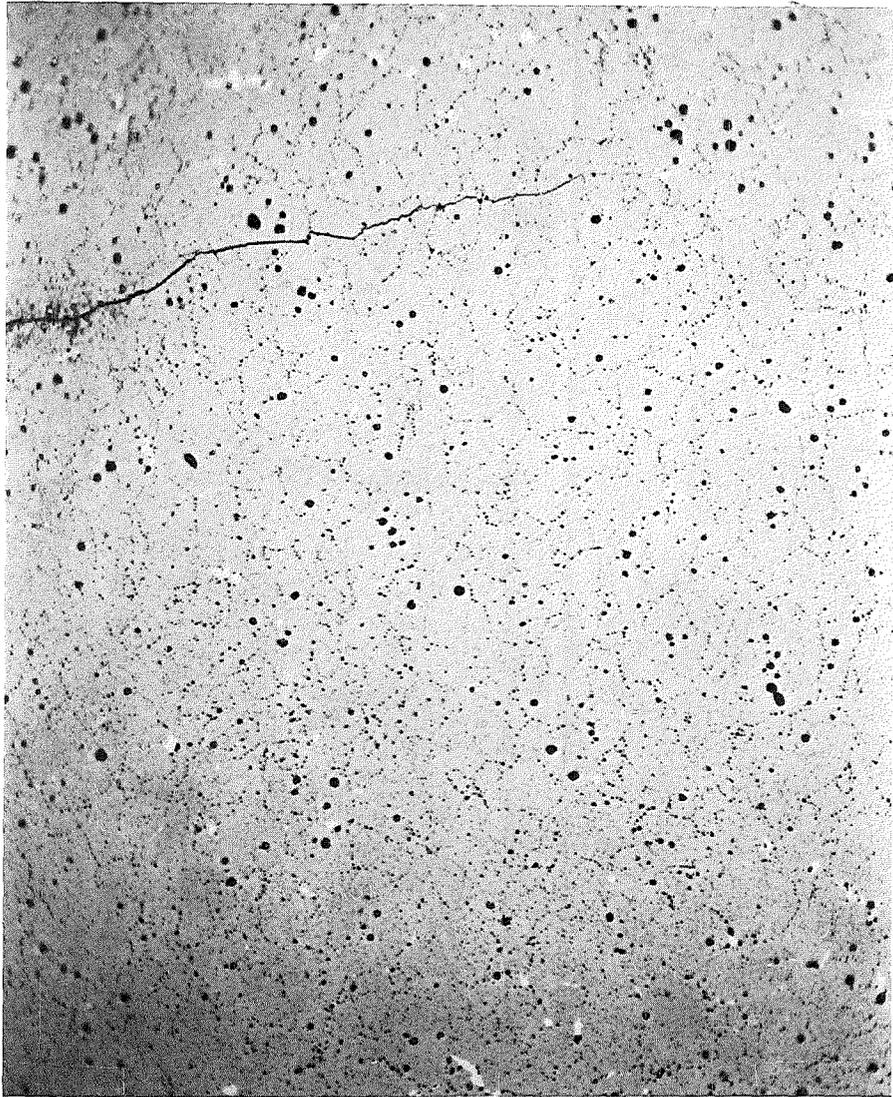
IMF/III

Mol 11: Stab K1-1, UC

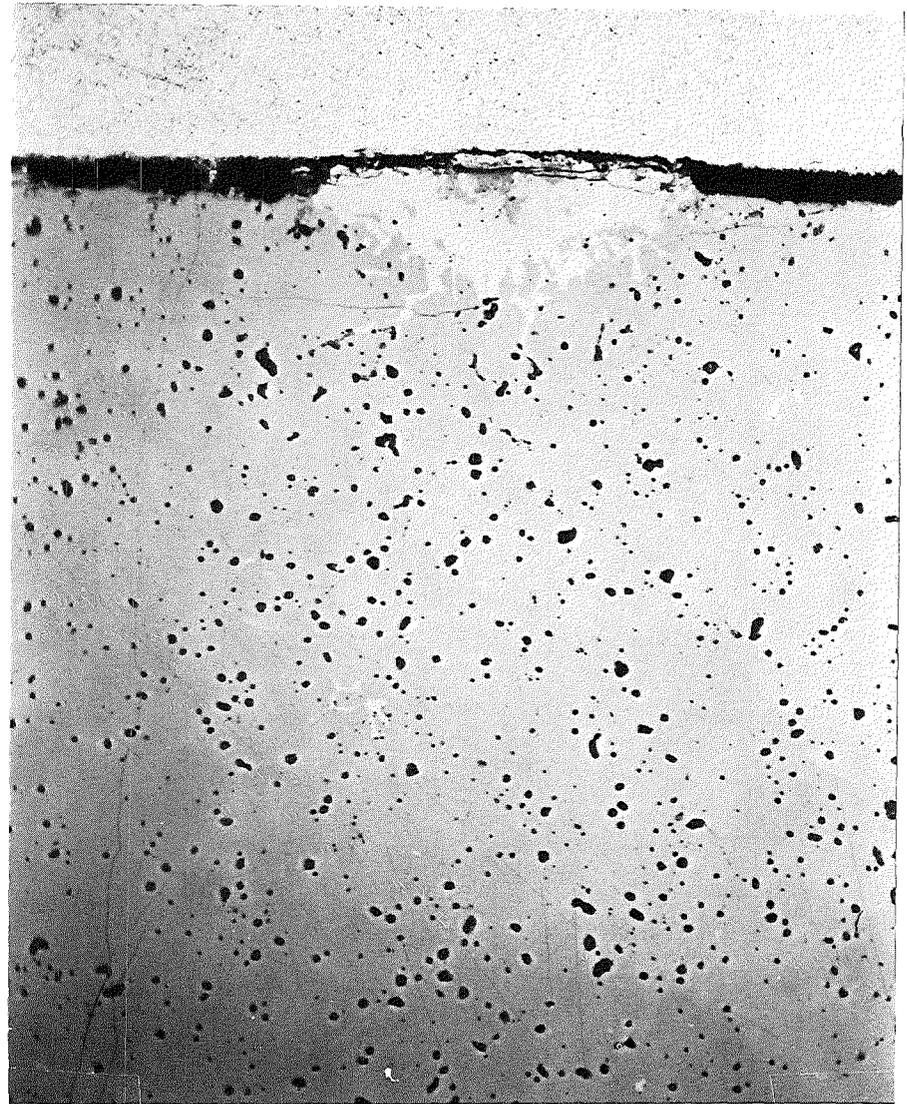
-II/4-  
K1-1 Schnitt 16



HZ-17c-Mo111A.1-K1/1-16/8 100x 200  $\mu\text{m}$

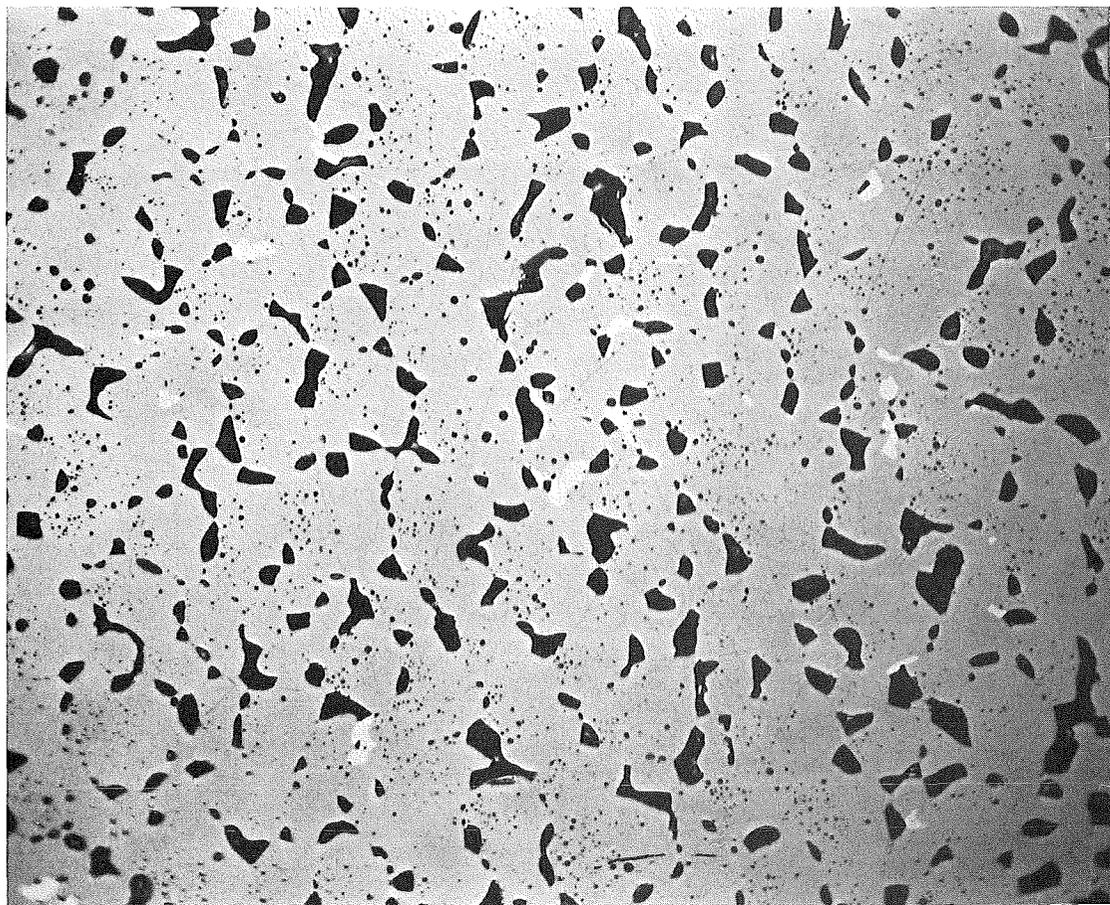


HZ-17c-Mol11A.1-K1/1-16/10 500 x | 40 μm

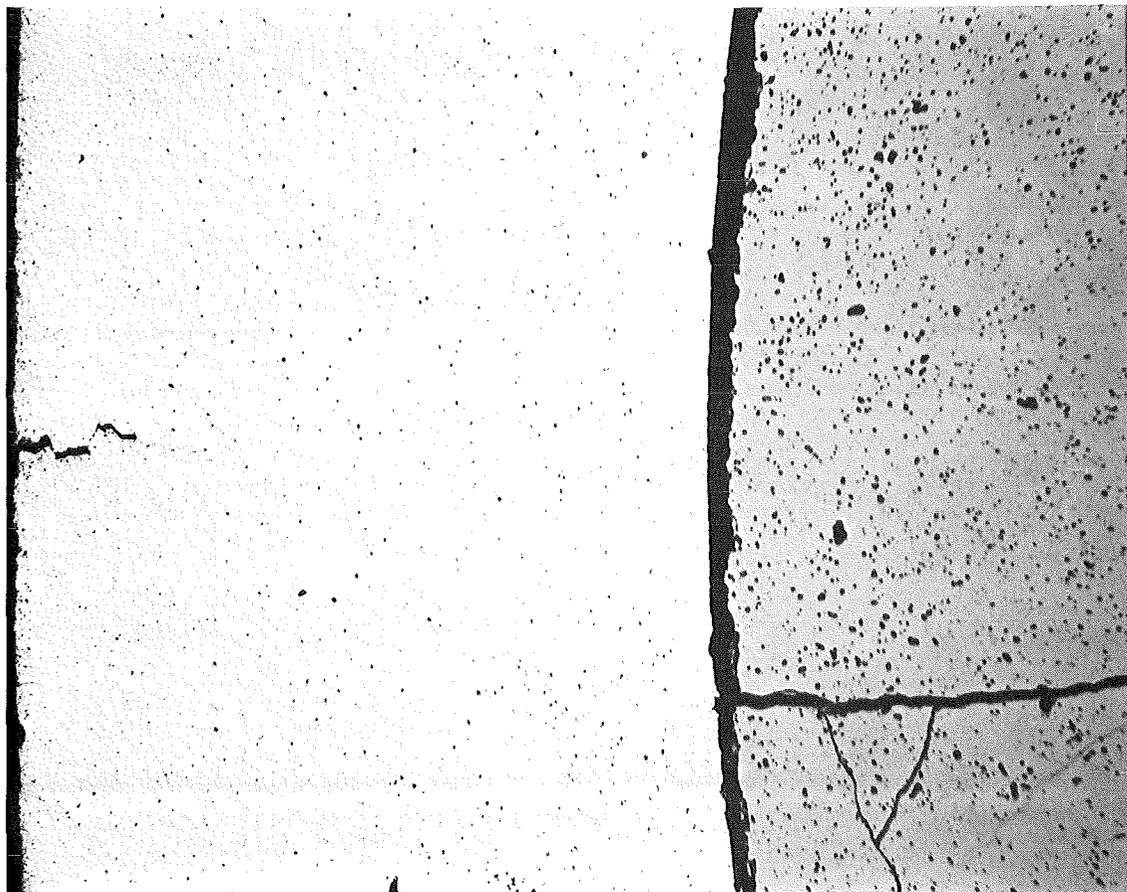


HZ-17c-Mol11A.1-K1/1-16/9 500 x | 40 μm

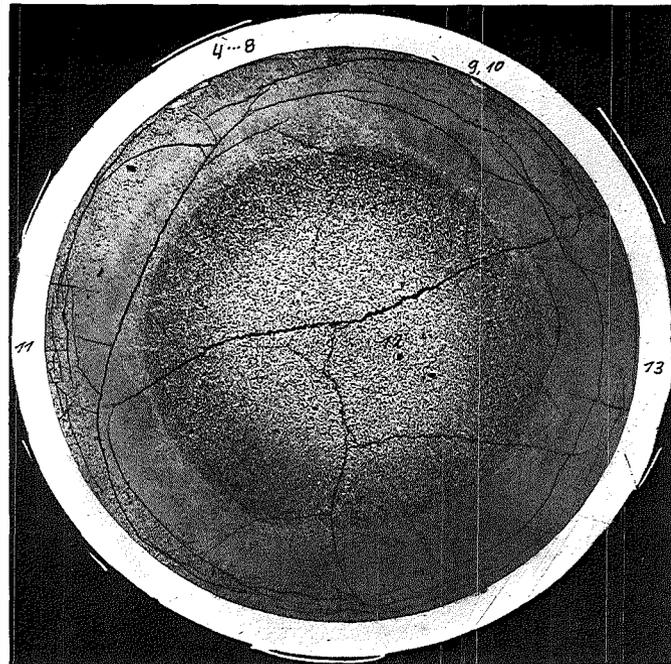
-II/5-  
K1-1 Schnitt 16



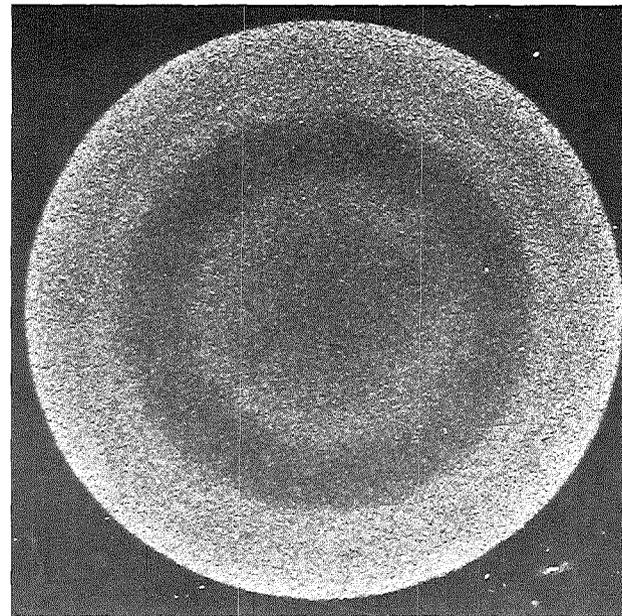
HZ-17c-Mo111A.1-K1/1-16/11 500 x 40 µm



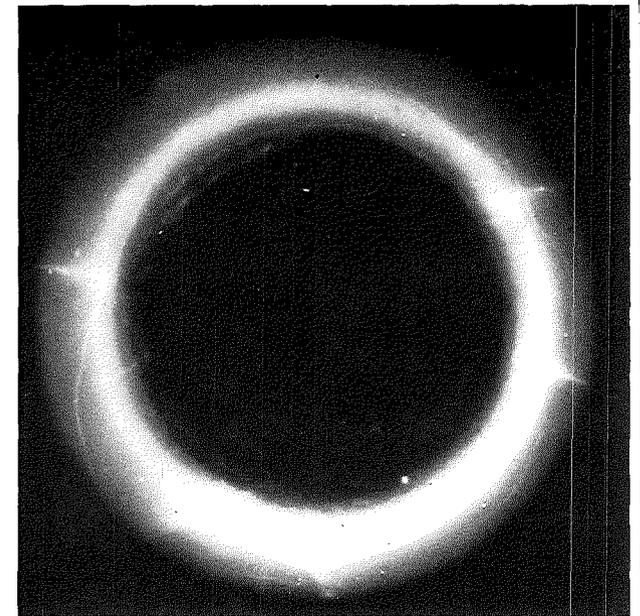
HZ-17c-Mo111A.1-K1/1-16/12 200x 100 µm



Schnitt 17



$\alpha$  (150 sec.)



$\beta$ - $\gamma$  (50 sec.)

Autoradiografie

15x

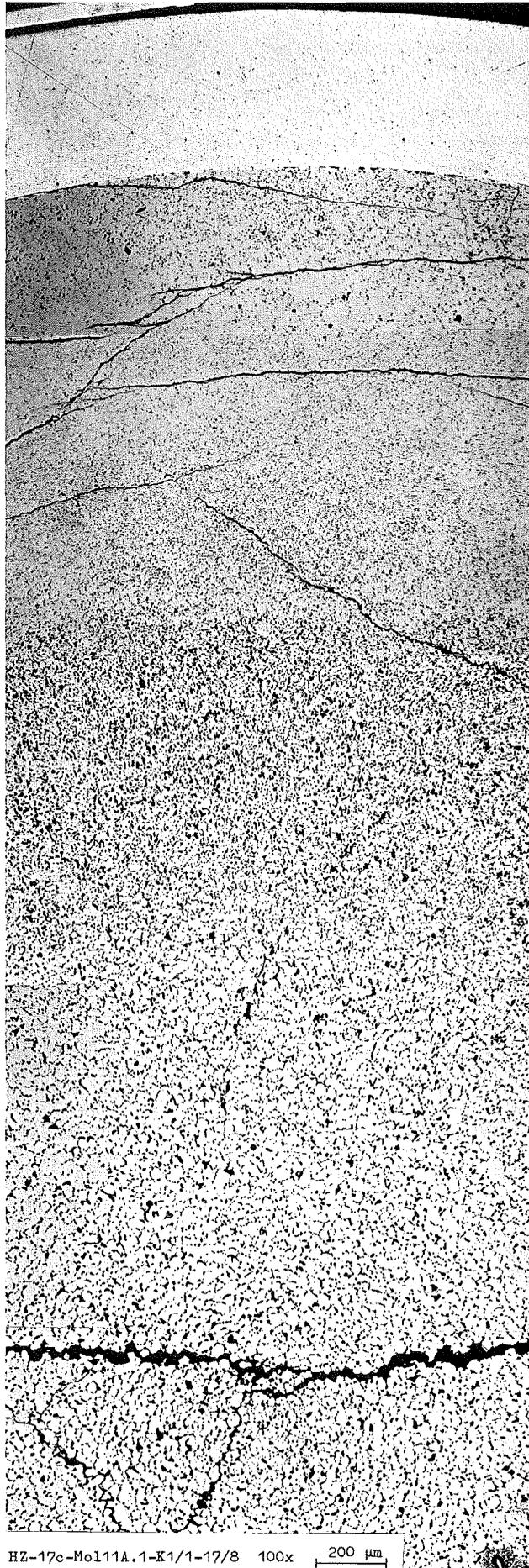
1mm  
|-----|

GfK Karlsruhe

IMF/III

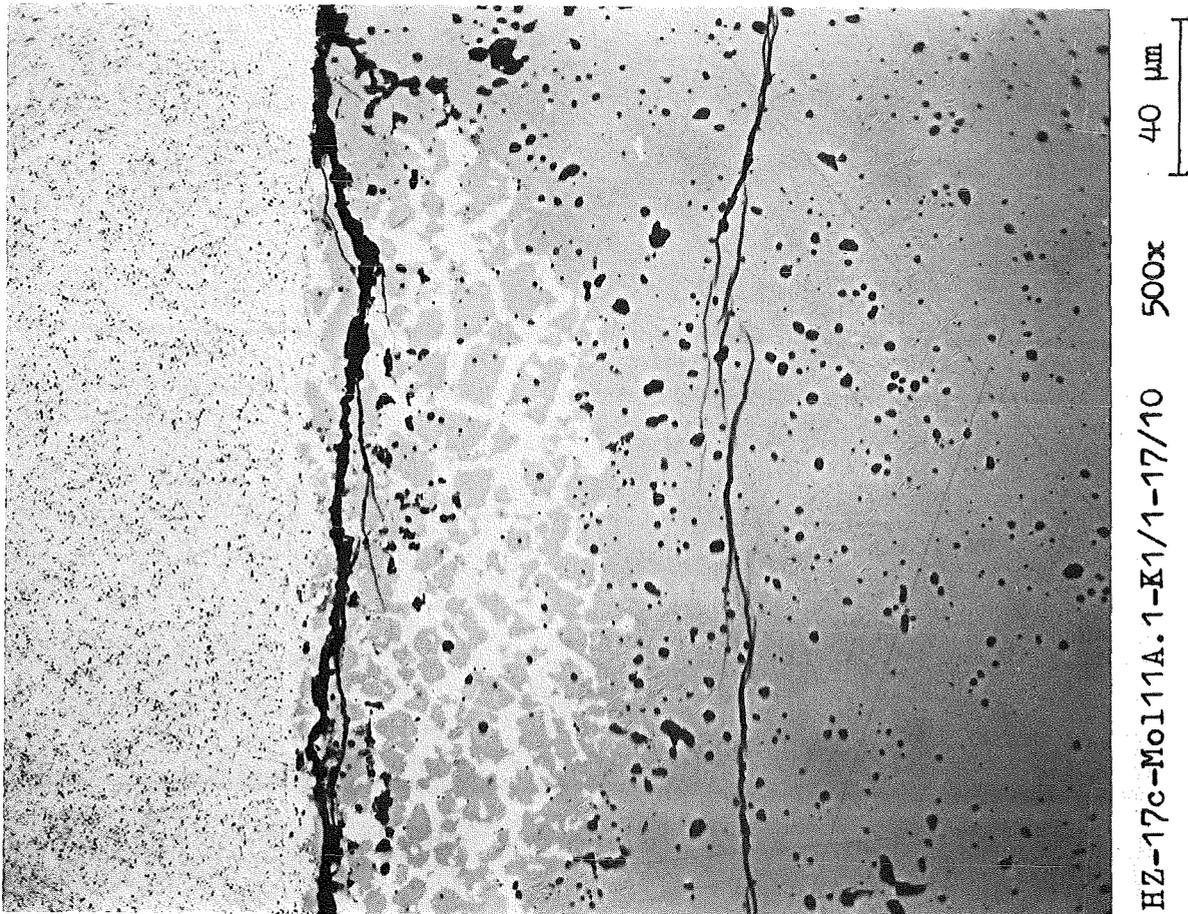
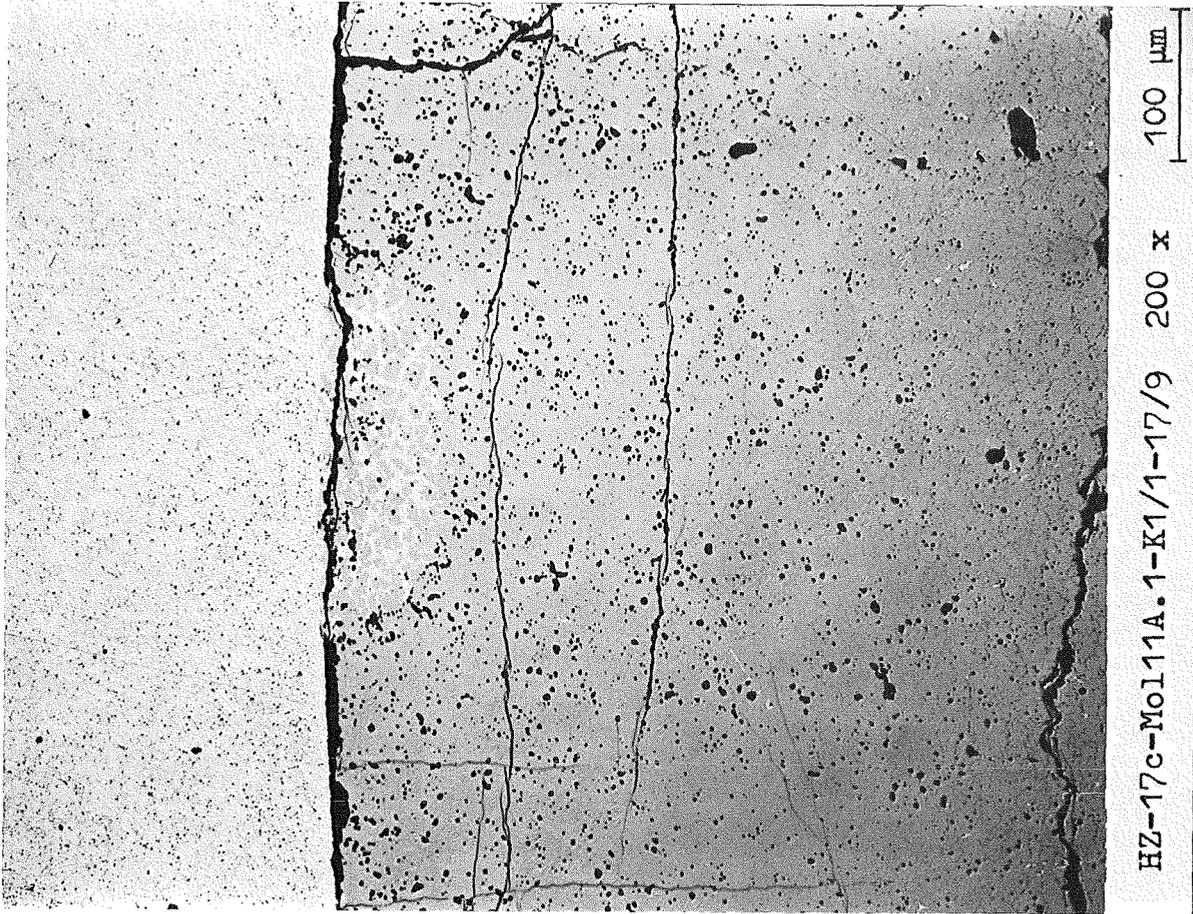
Mol 11 Stab K1-1, UC

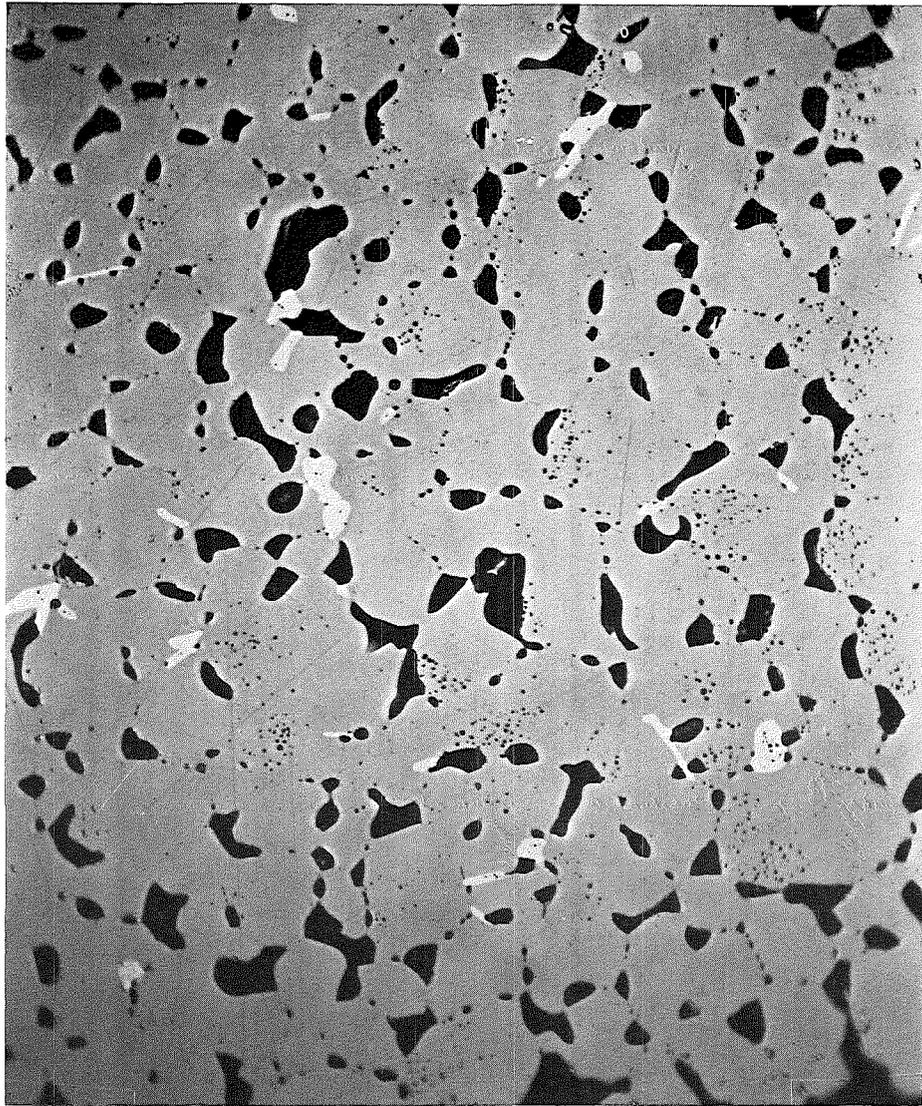
-II/8-  
K1-1 Schnitt 17



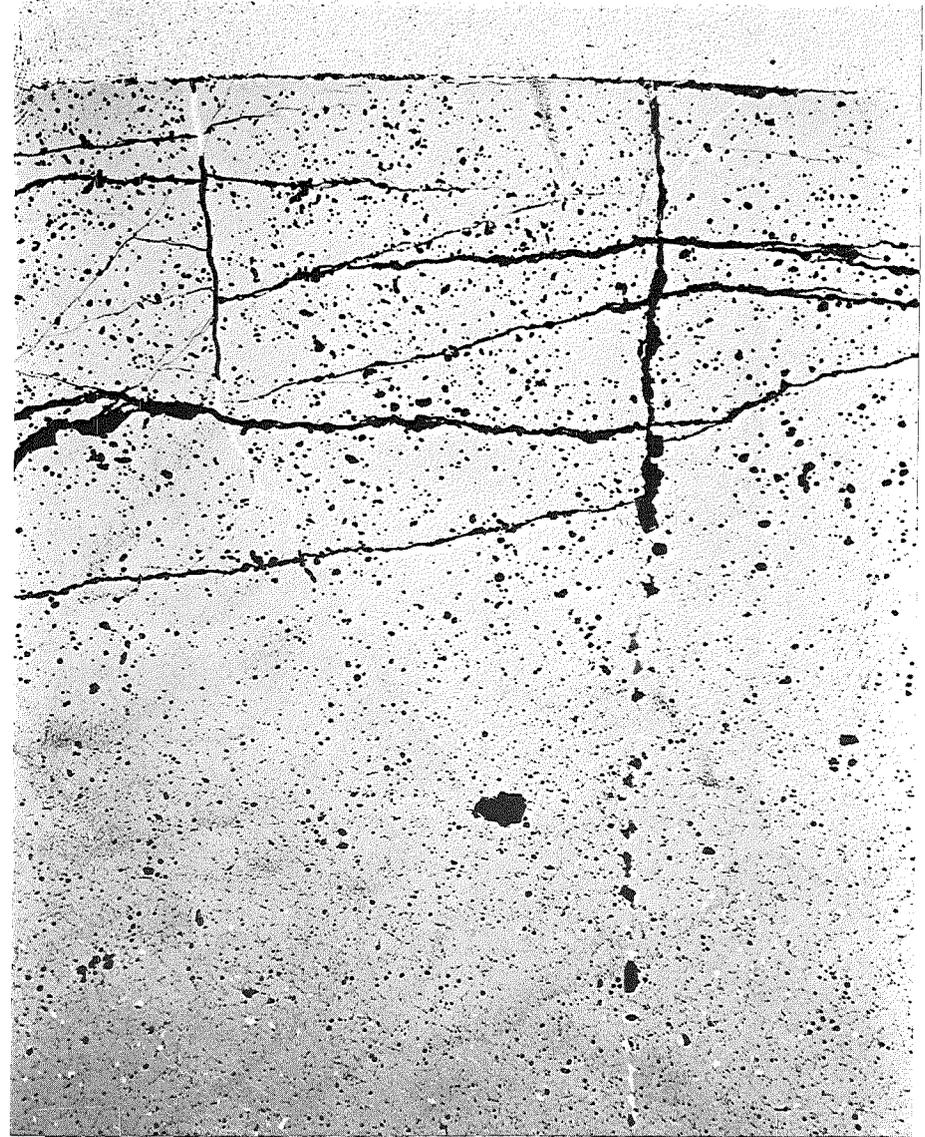
HZ-17c-Mo111A.1-K1/1-17/8 100x 200  $\mu\text{m}$

-II/9-  
K1-1 Schnitt 17



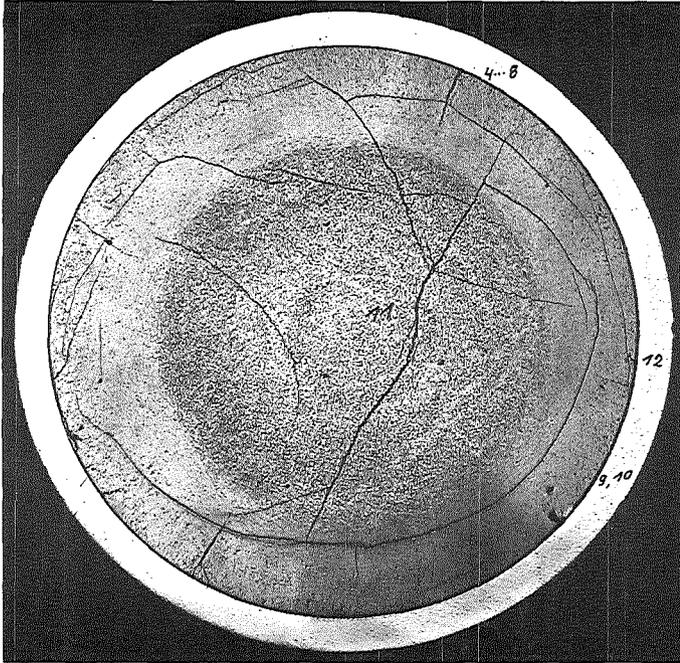


HZ-17c-Mol11A.1-K1/1-17/12 500 x 40  $\mu$ m

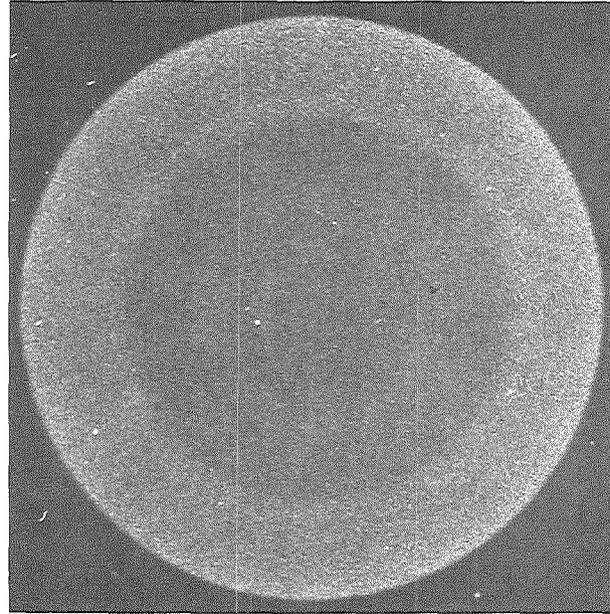


HZ-17c-Mol11A.1-K1/1-17/11 200 x 100  $\mu$ m

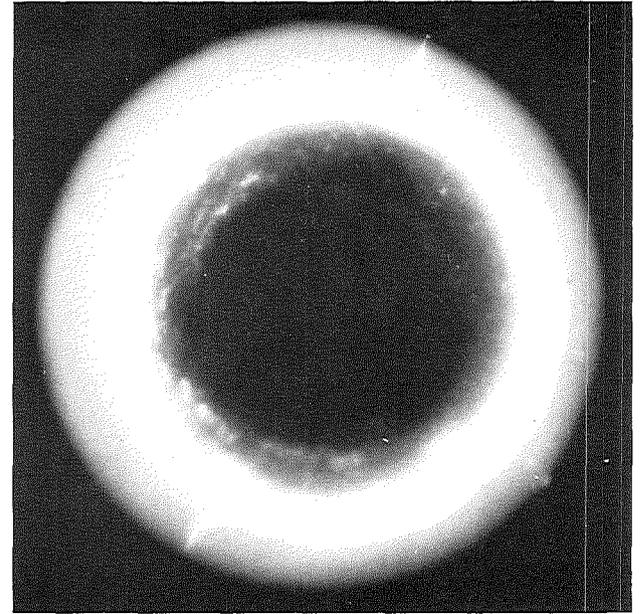
-II/10-  
K1-1 Schnitt 17



Schnitt 18



$\alpha$  (210 sec)



$\beta$ - $\gamma$  (50 sec)

Autoradiografie

15x

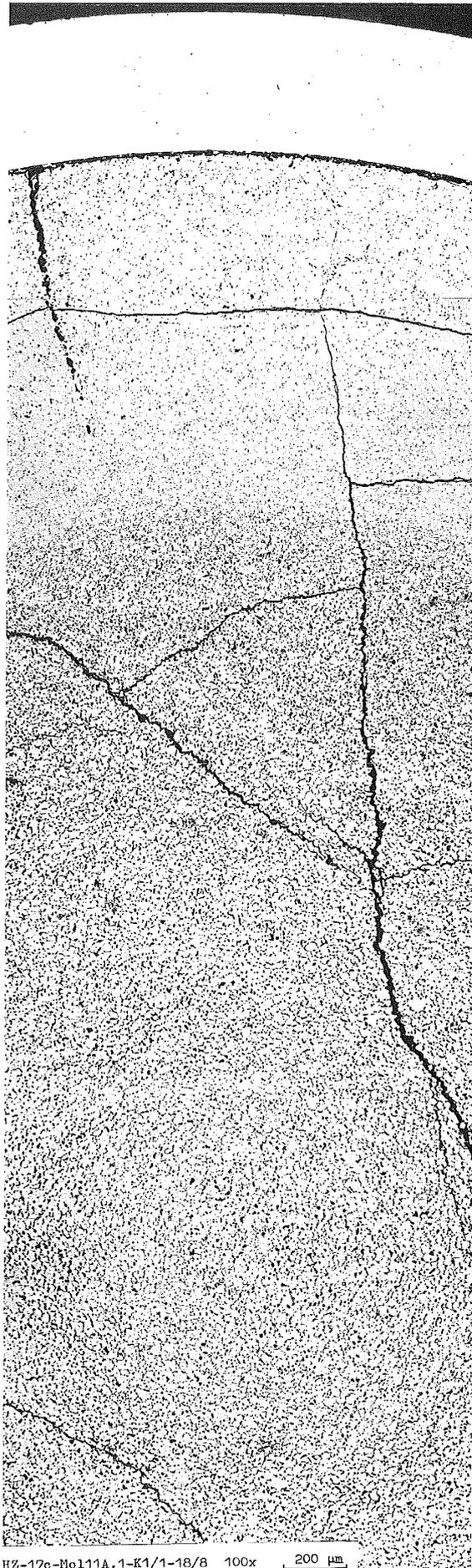
1mm  
—|—

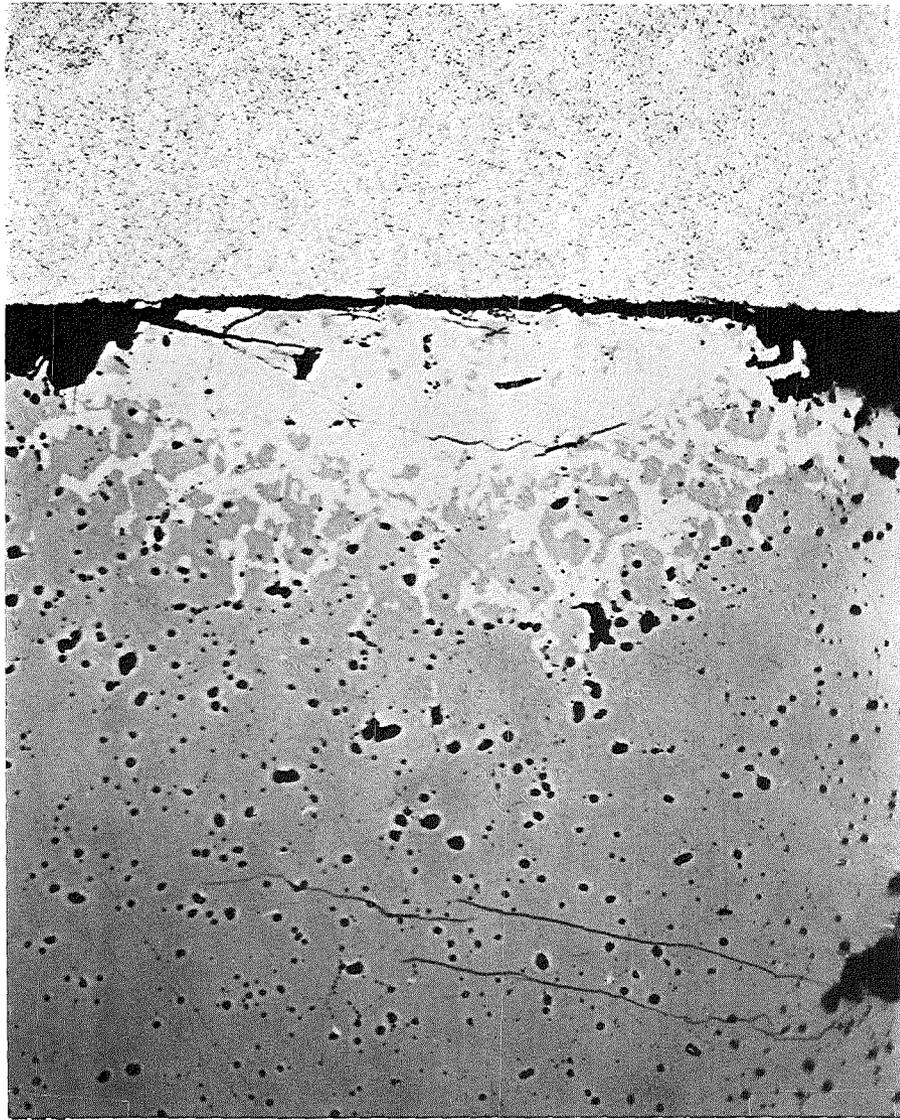
GfK Karlsruhe

IMF/III

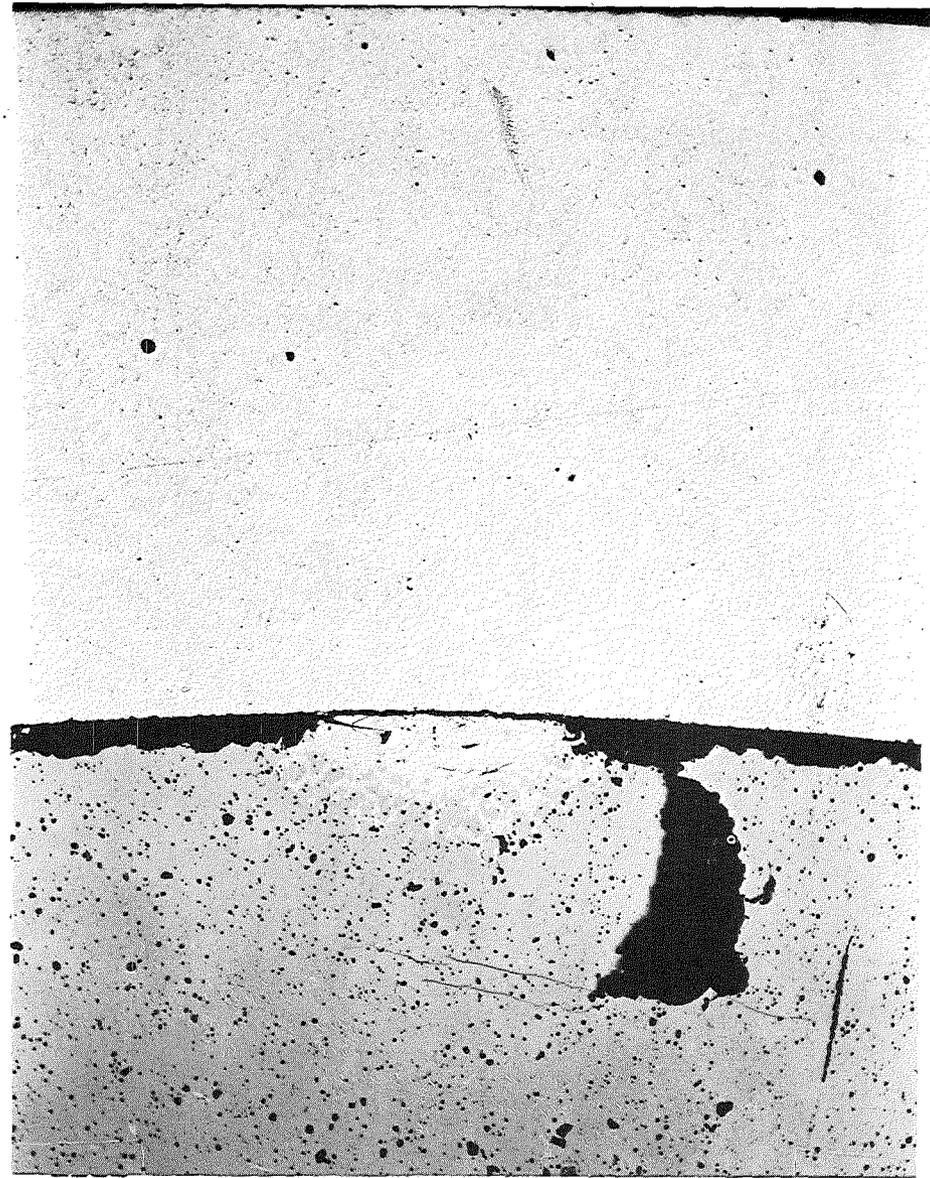
Mol 11: Stab K1-1, UC

-II/12-  
K1-1 Schnitt 18



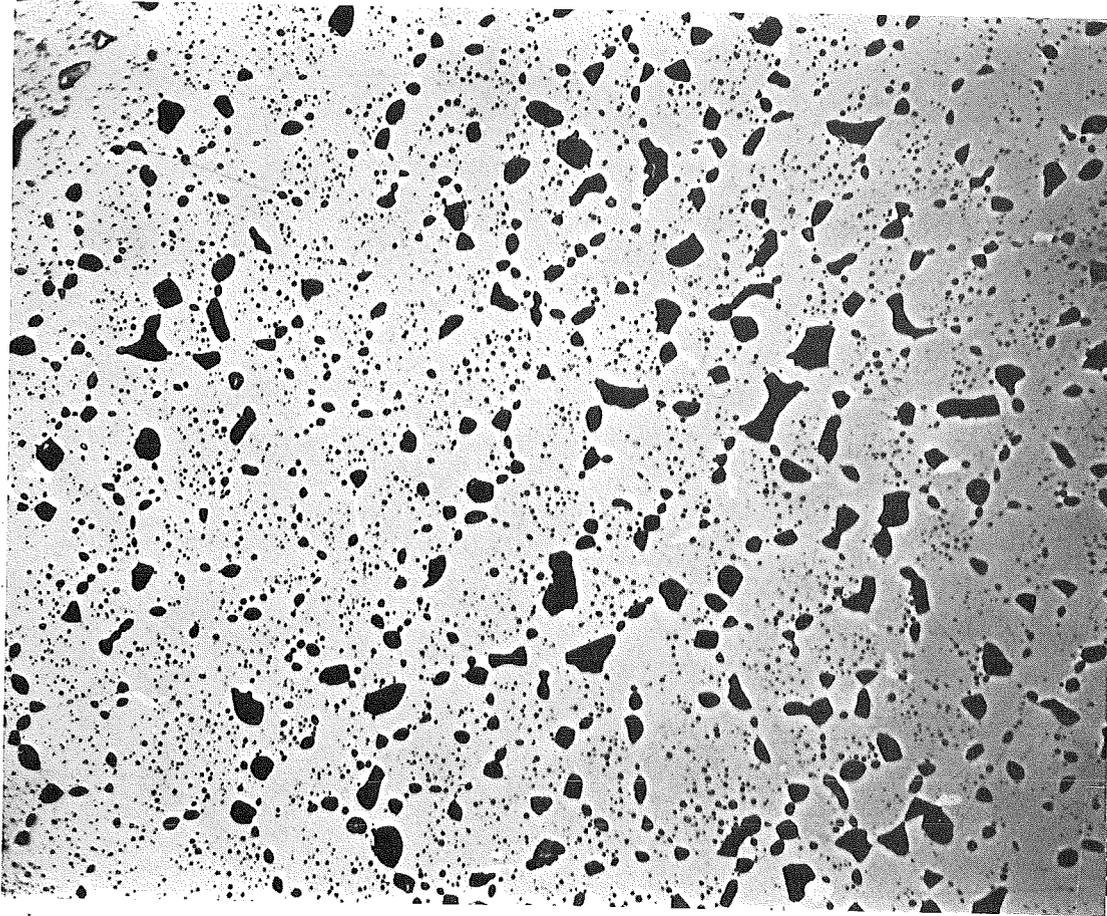


HZ-17c-Mo111A.1-K1/1-18/10 500 x 40  $\mu\text{m}$

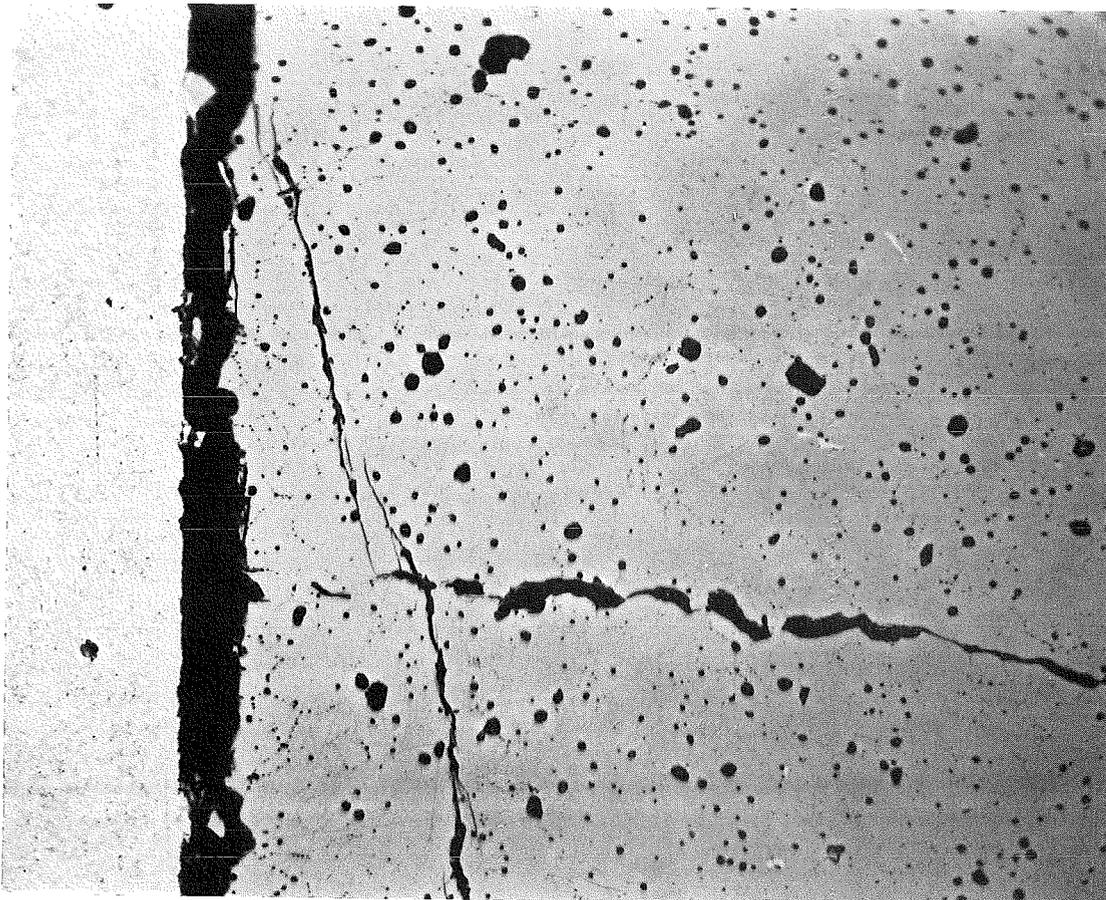


HZ-17c-Mo111A.1-K1/1-18/9 200 x 100  $\mu\text{m}$

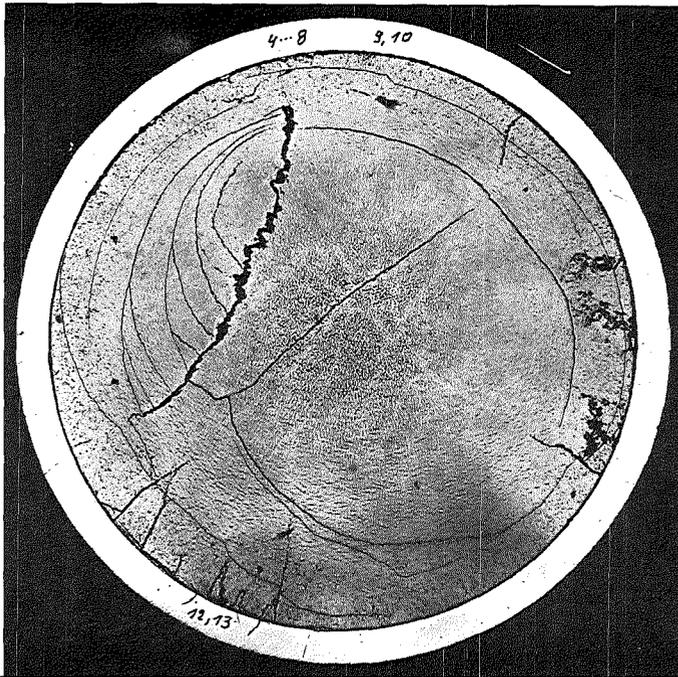
-II/13-  
K1-1 Schnitt 18



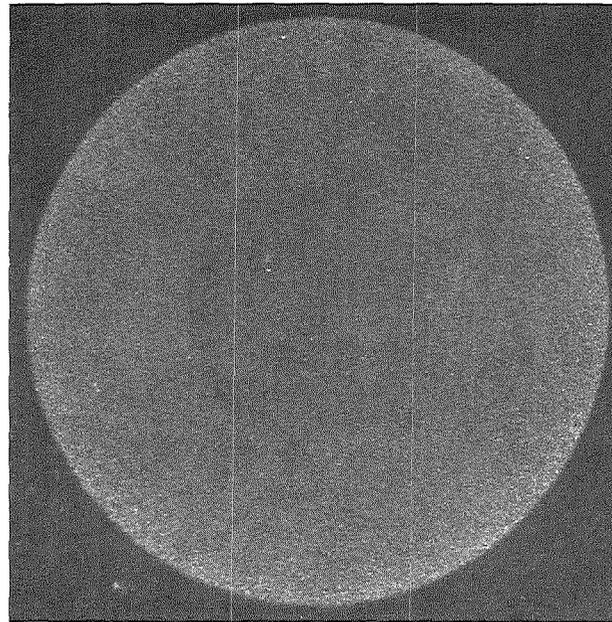
HZ-17c-Mo111A.1-K1/1-18/11 500 x 40 µm



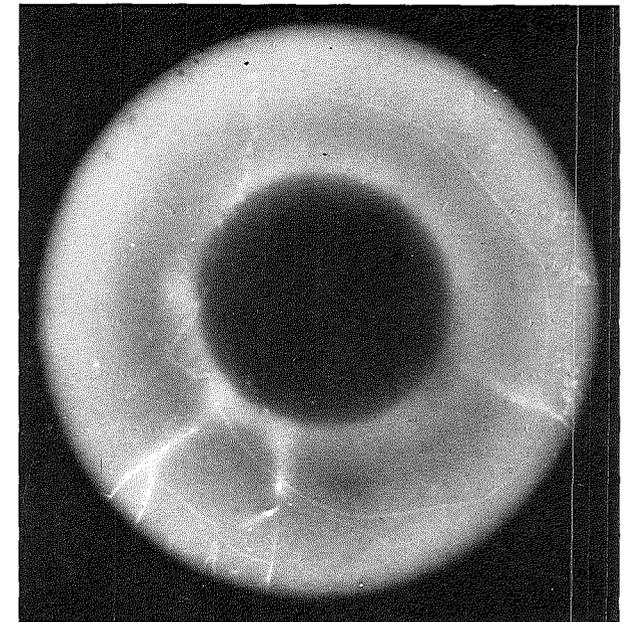
HZ-17c-Mo111A.1-K1/1-18/12 500 x 40 µm



Schnitt 21



$\alpha$ (240sec)



$\beta$ - $\gamma$ (50sec)

Autoradiografie

15x

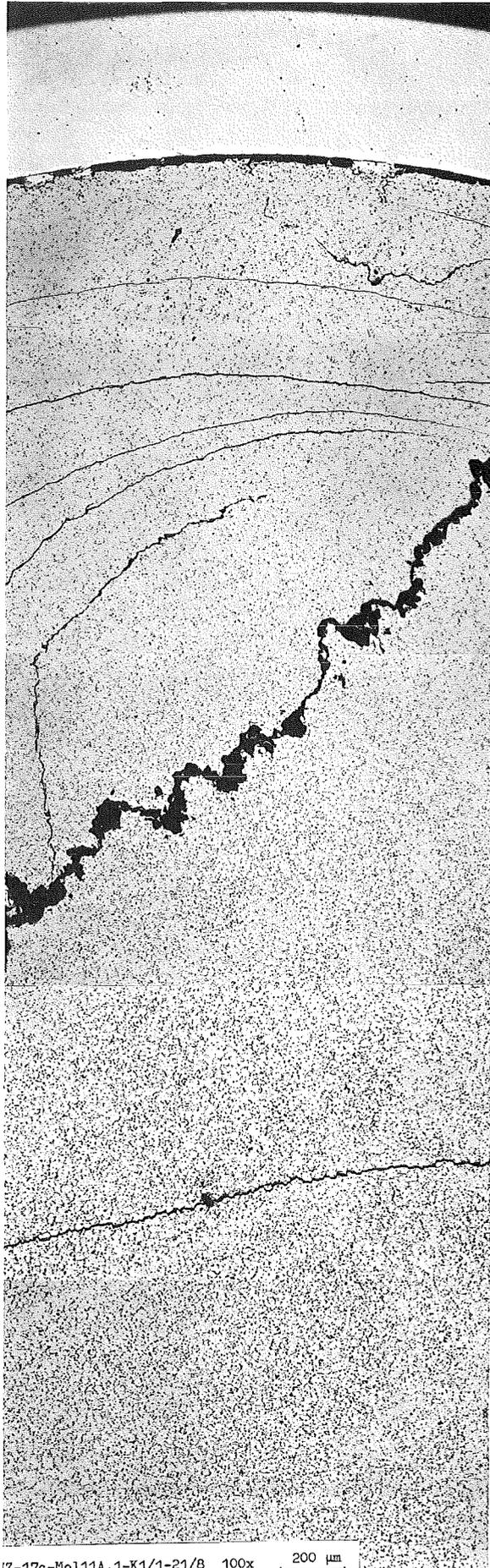
1mm  
|-----|

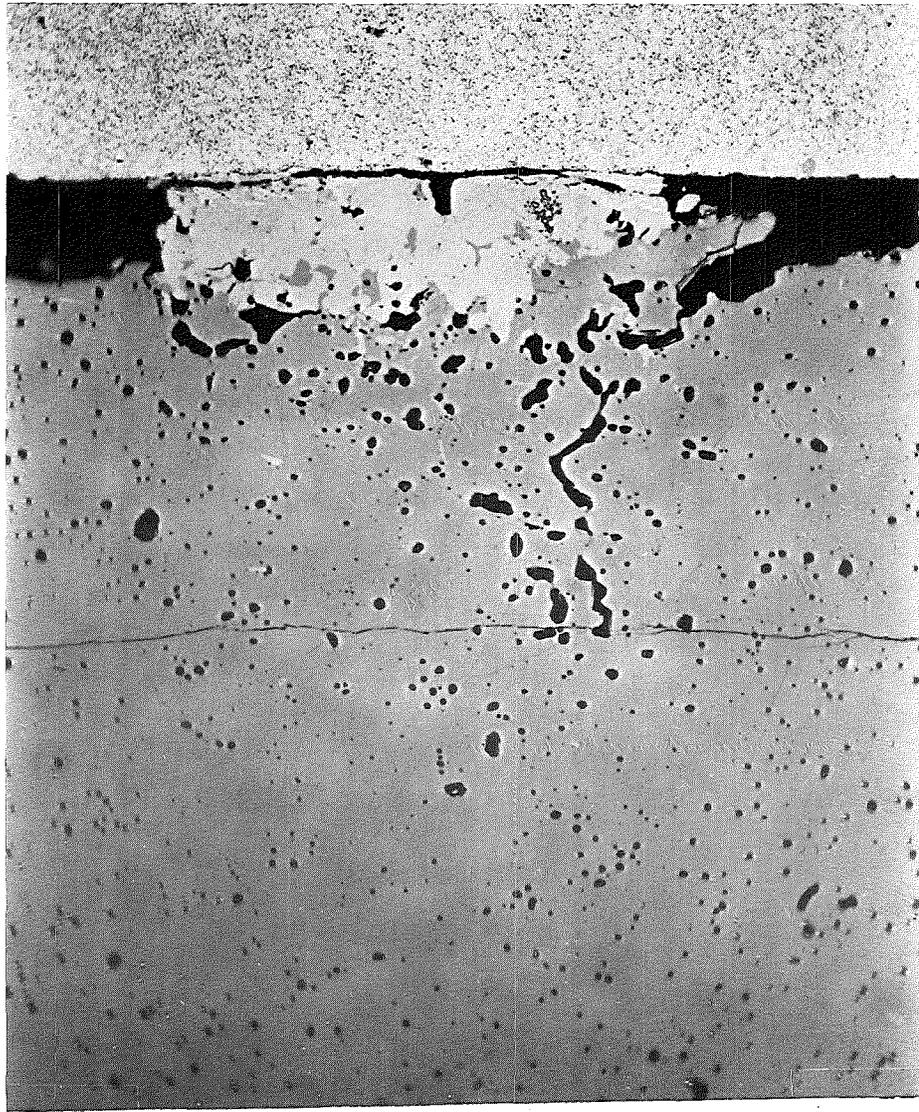
GfK Karlsruhe

IMF/III

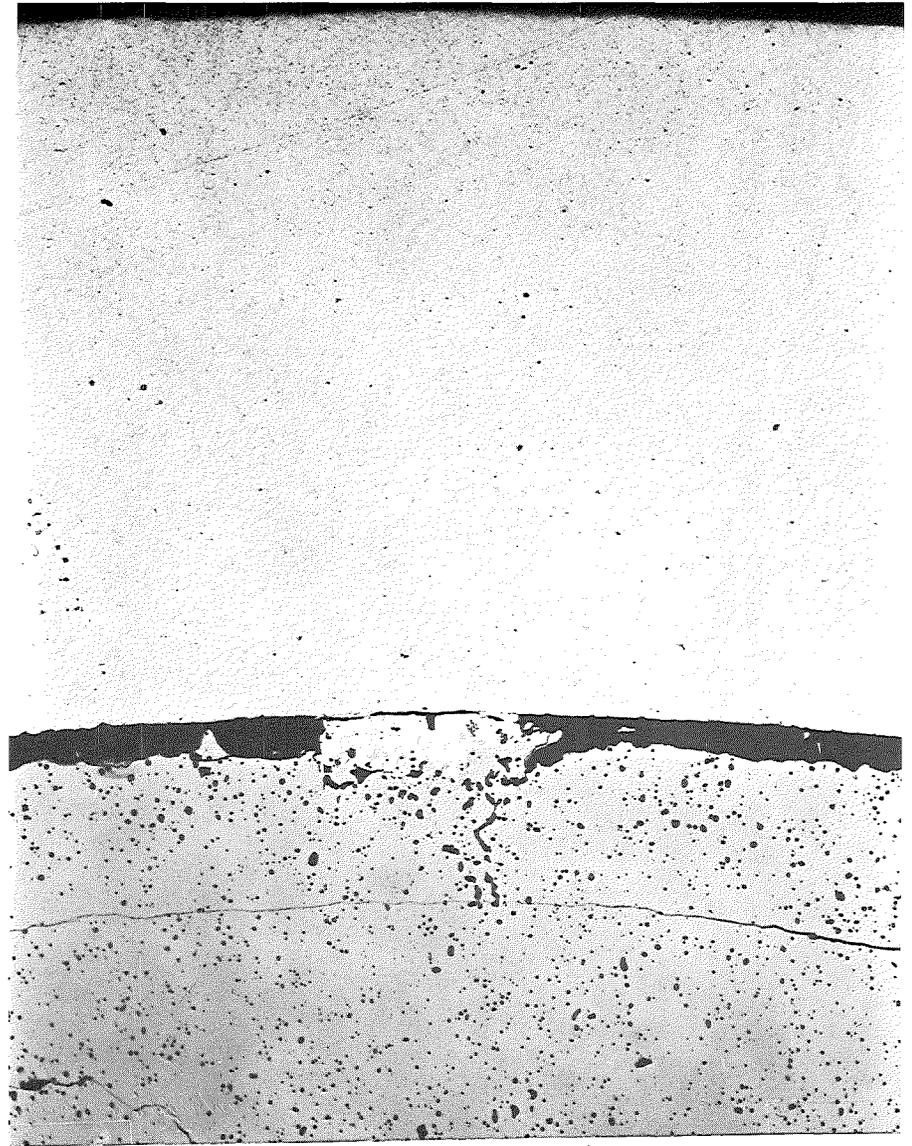
Mol 11: Stab K1-1, UC

-II/16-  
K1-1 Schnitt 21

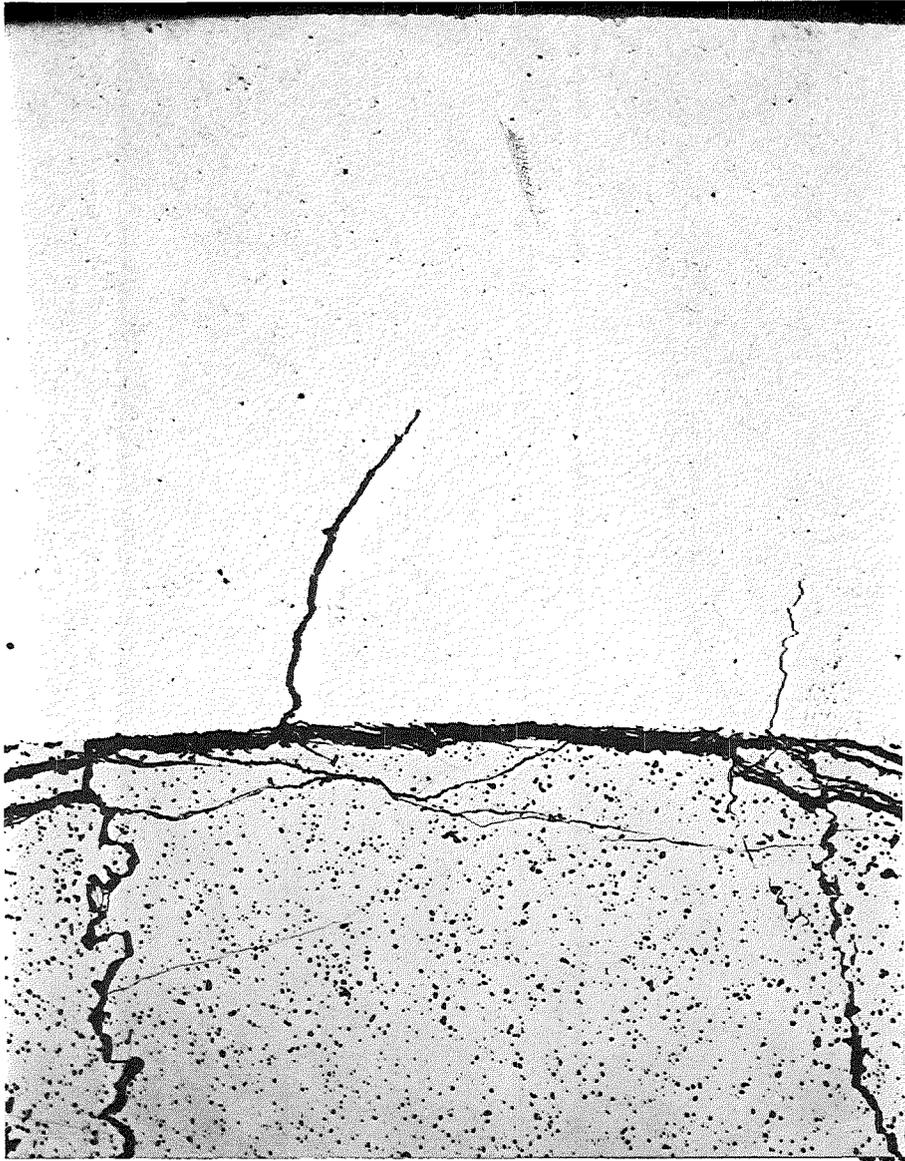




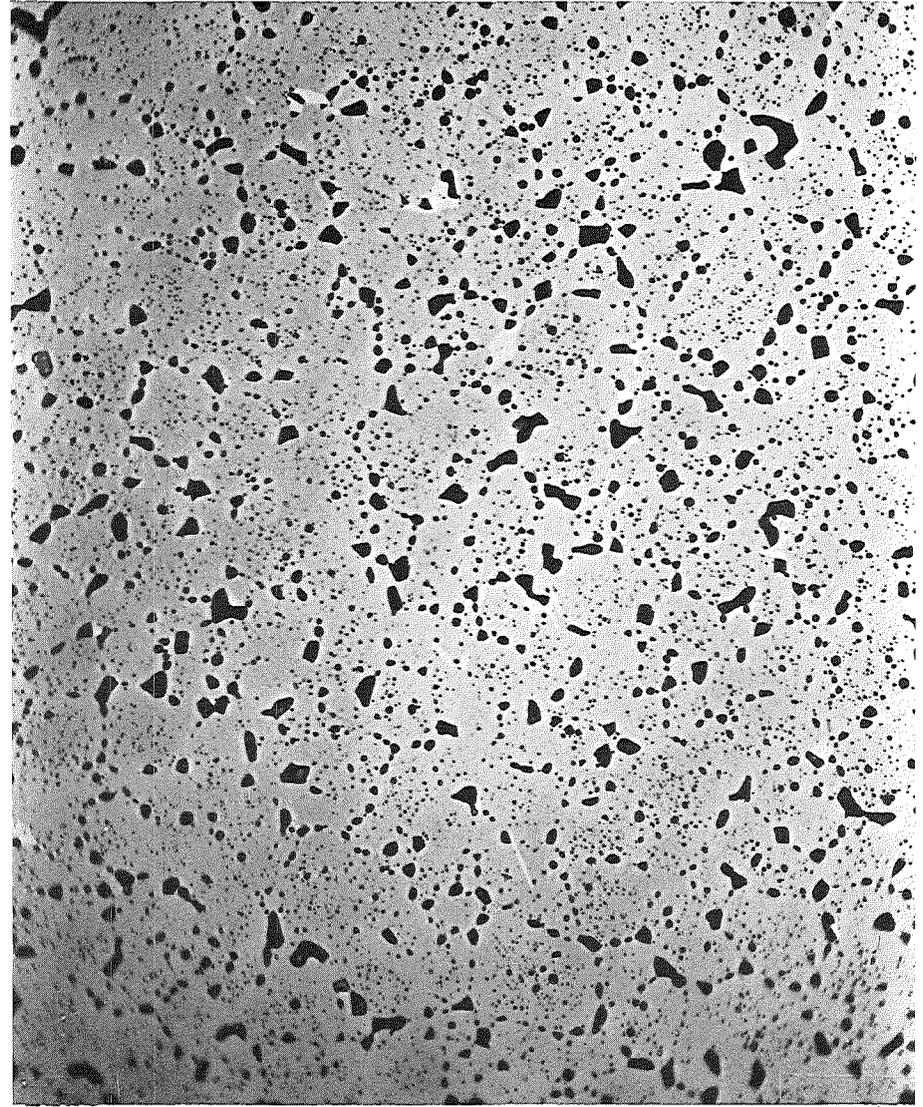
HZ-17c-Mol11A.1-K1/1-21/10 500 x  $\overline{40 \mu\text{m}}$



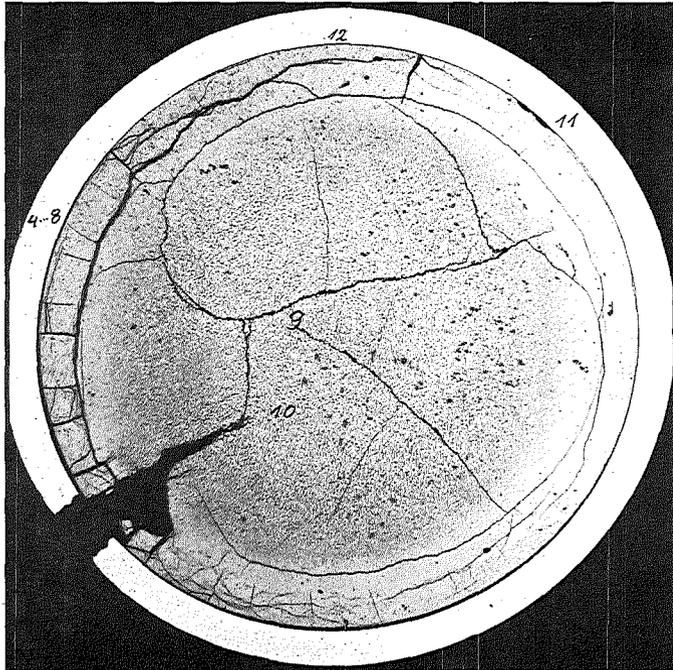
HZ-17c-Mol11A.1-K1/1-21/9 200 x  $\overline{100 \mu\text{m}}$



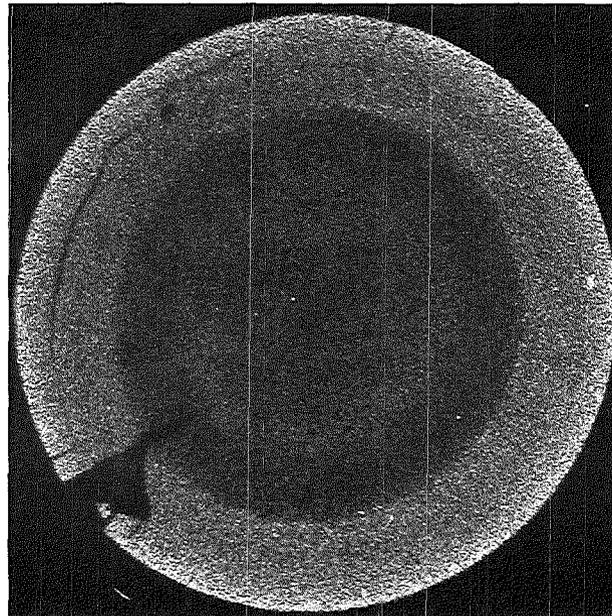
HZ-17c-Mol11A.1-K1/1-21/12 200x 100  $\mu\text{m}$



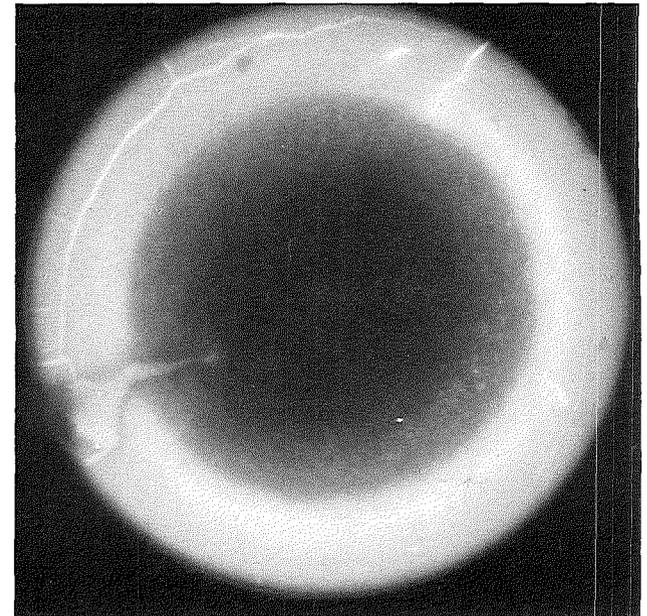
HZ-17c-Mol11A.1-K1/1-21/11 500 x 40  $\mu\text{m}$



Schnitt 24



$\alpha$  (240 sec)



$\beta$ - $\gamma$  (60 sec)

Autoradiografie

15x

1mm  
└───┘

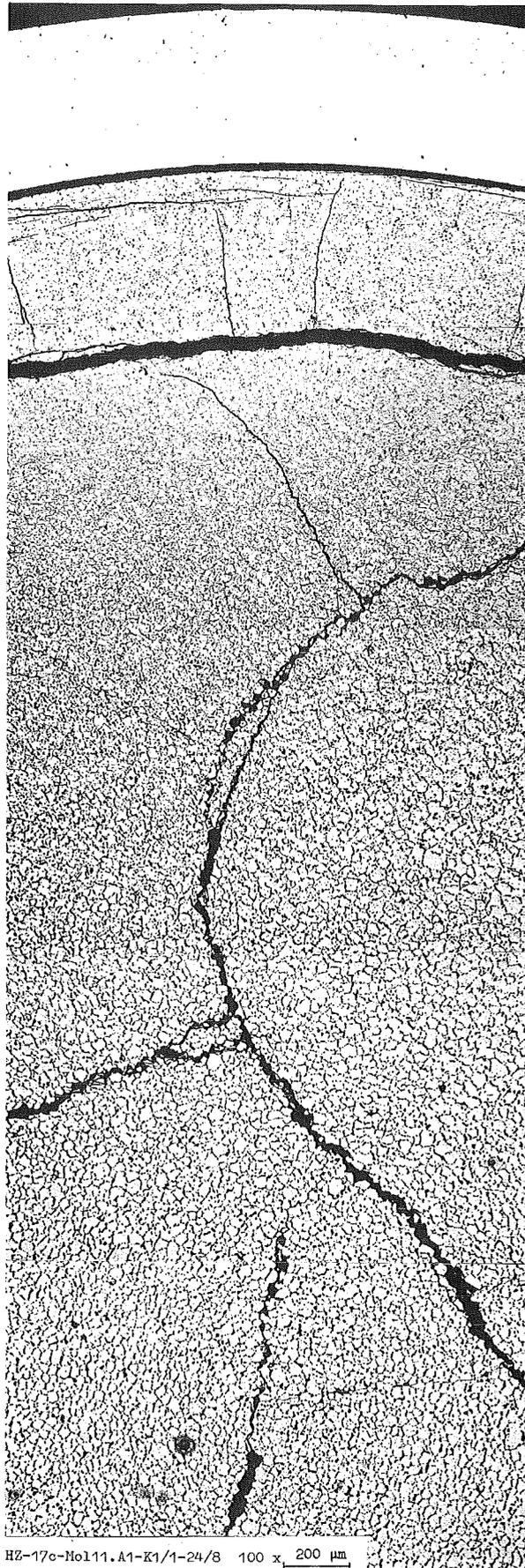
GfK Karlsruhe

IMF/III

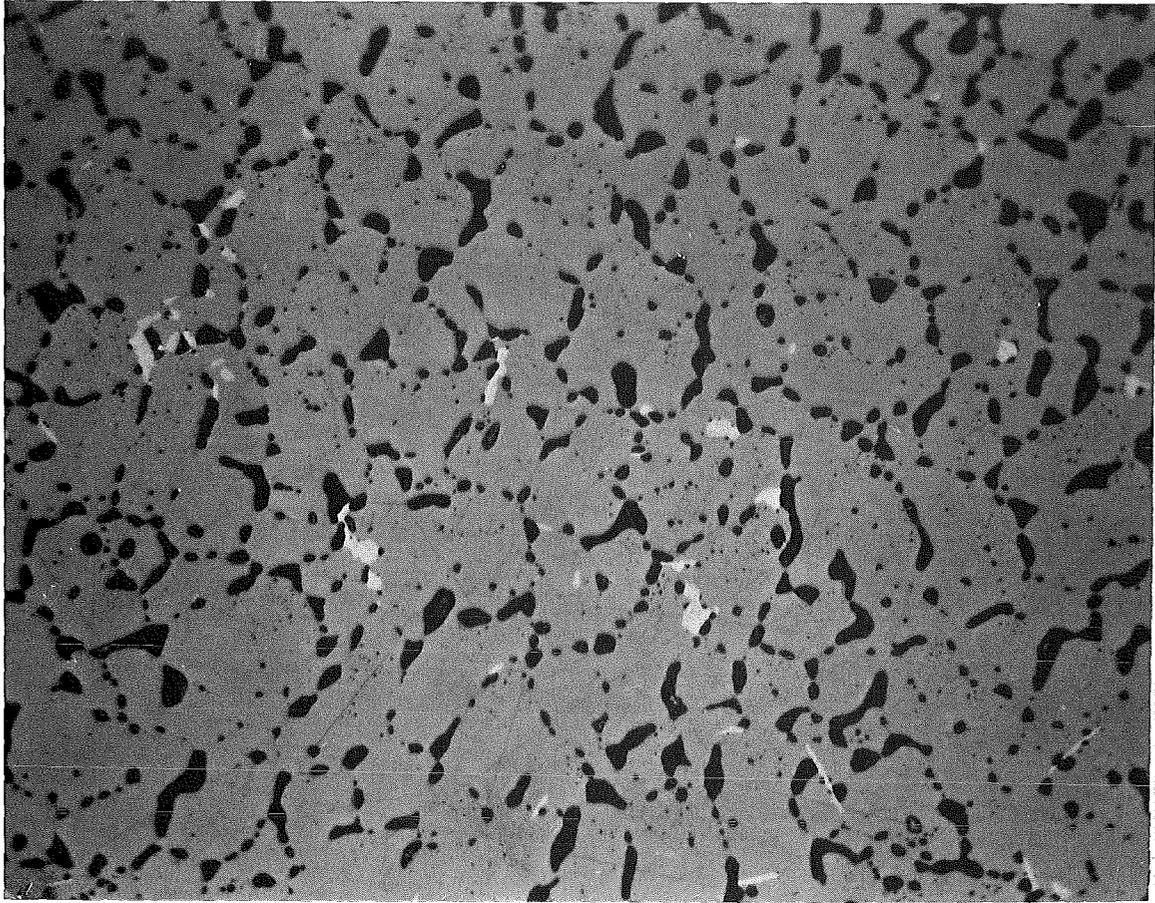
Mol 11: Stab K1-1, UC

Abb.

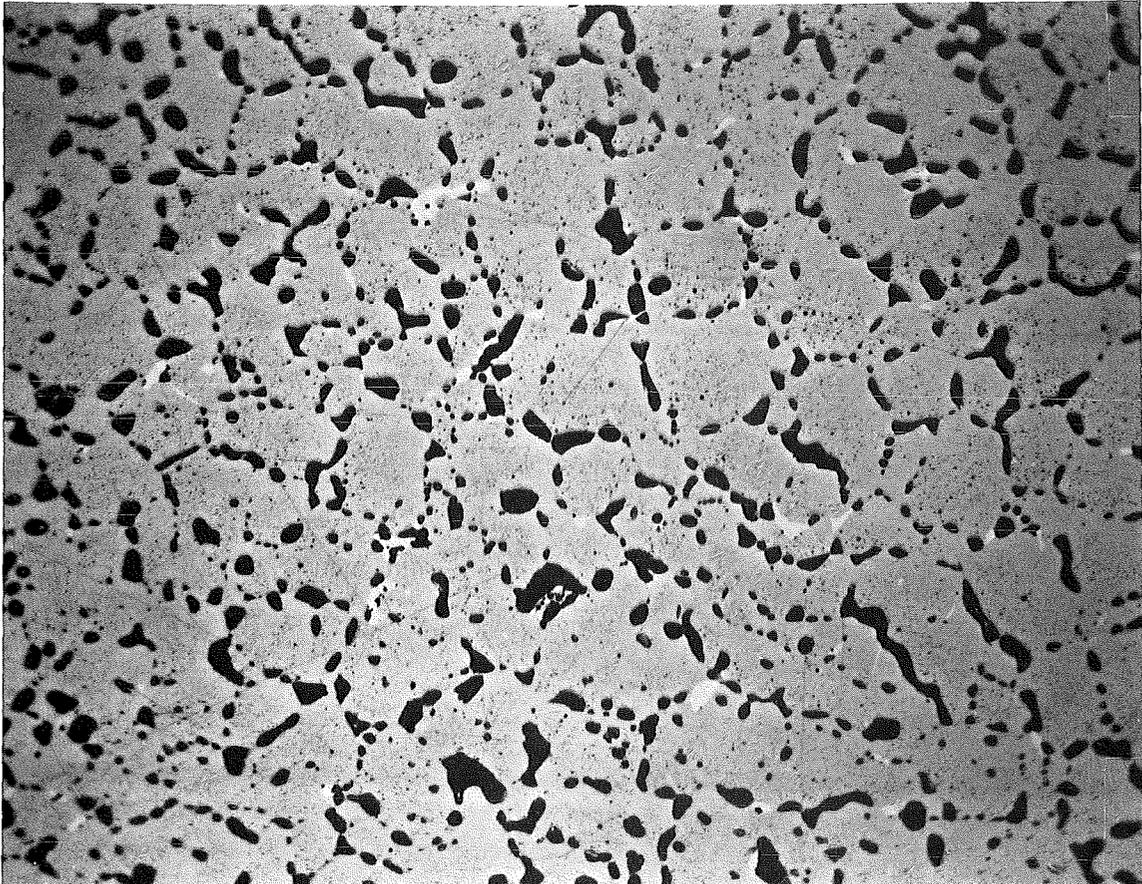
-II/20-  
K1-1 Schnitt 24



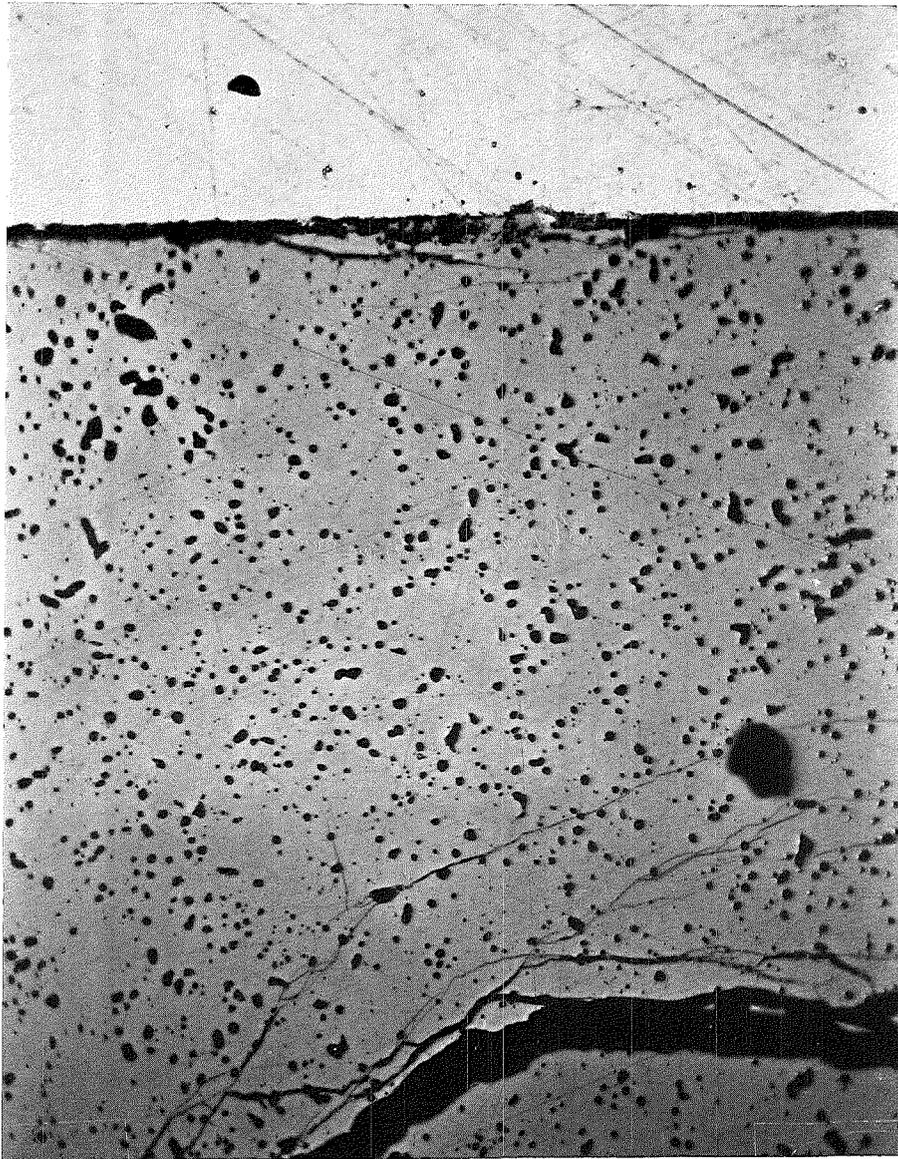
HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-24/8 100 x 200 μm



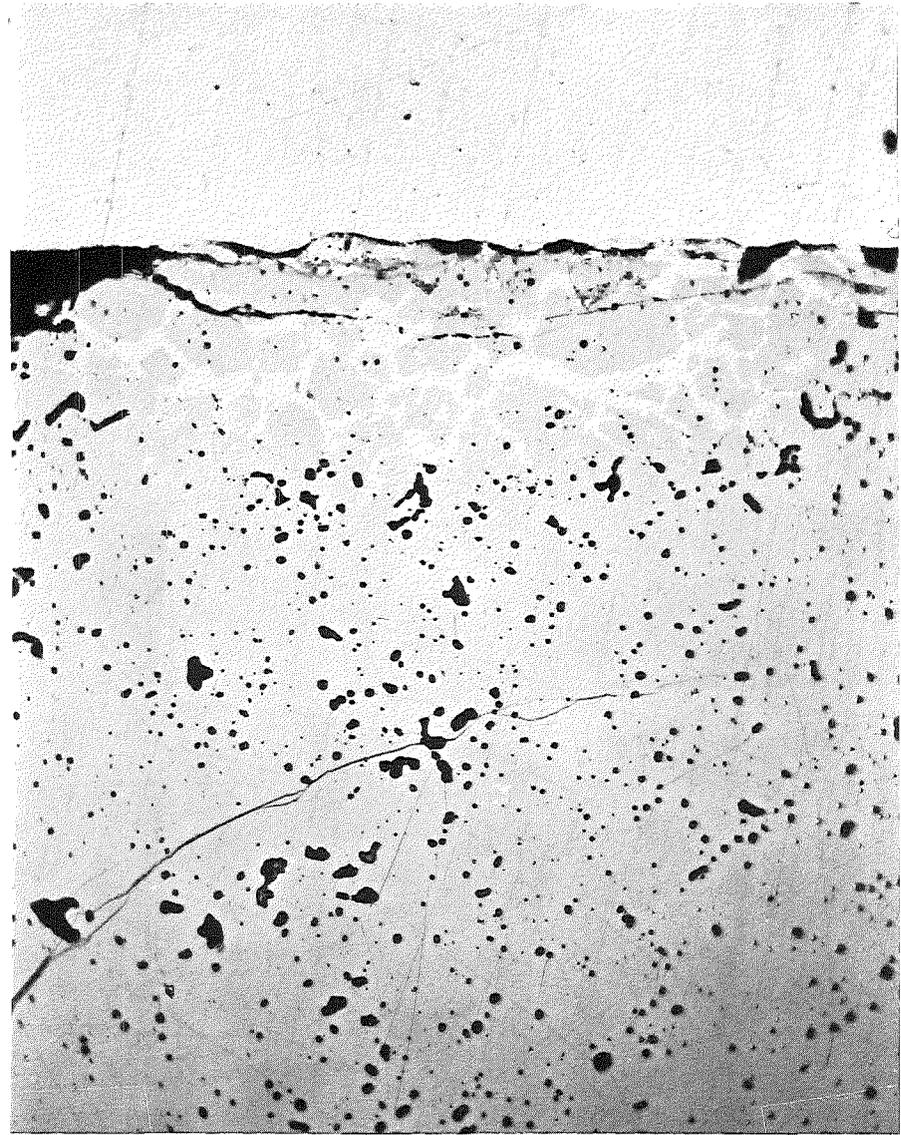
HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-24/9 500 x 40  $\mu$ m



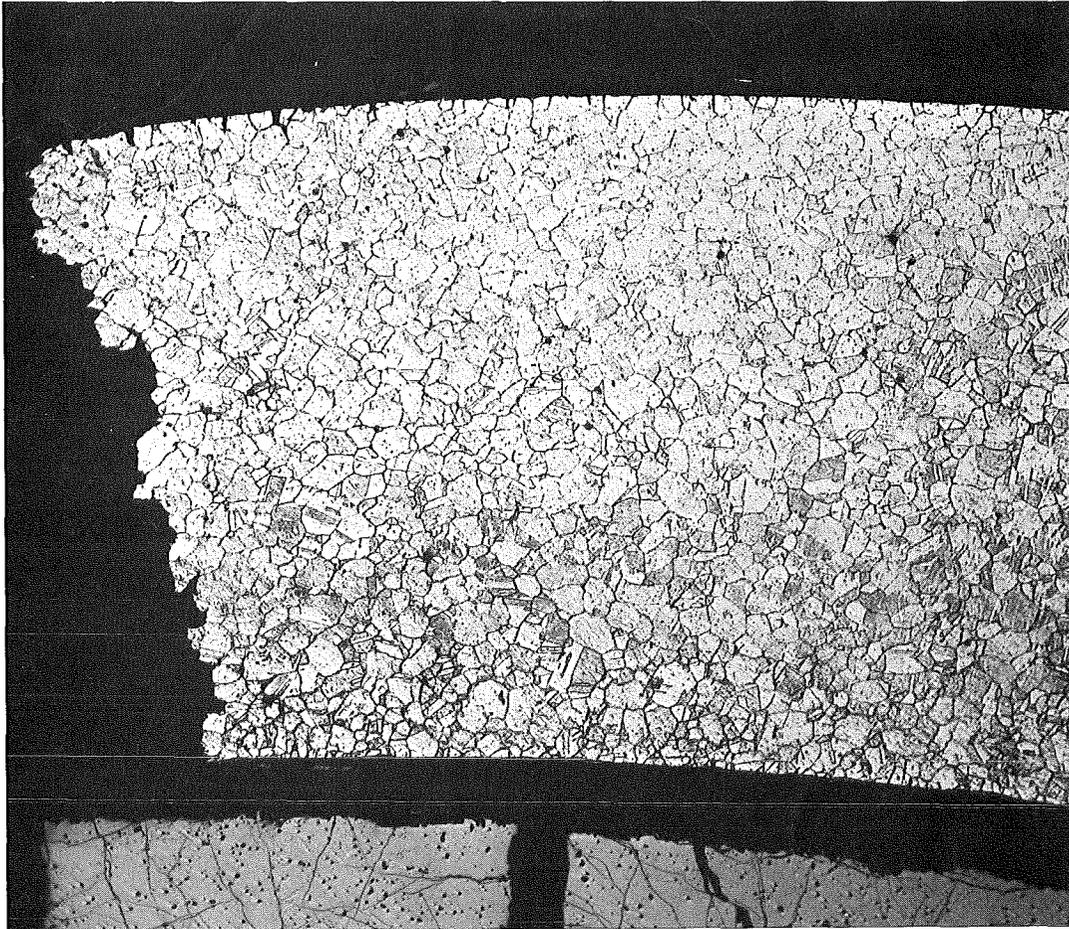
HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-24/10 500 x 40  $\mu$ m



HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-24/12 500 x  $40 \mu\text{m}$

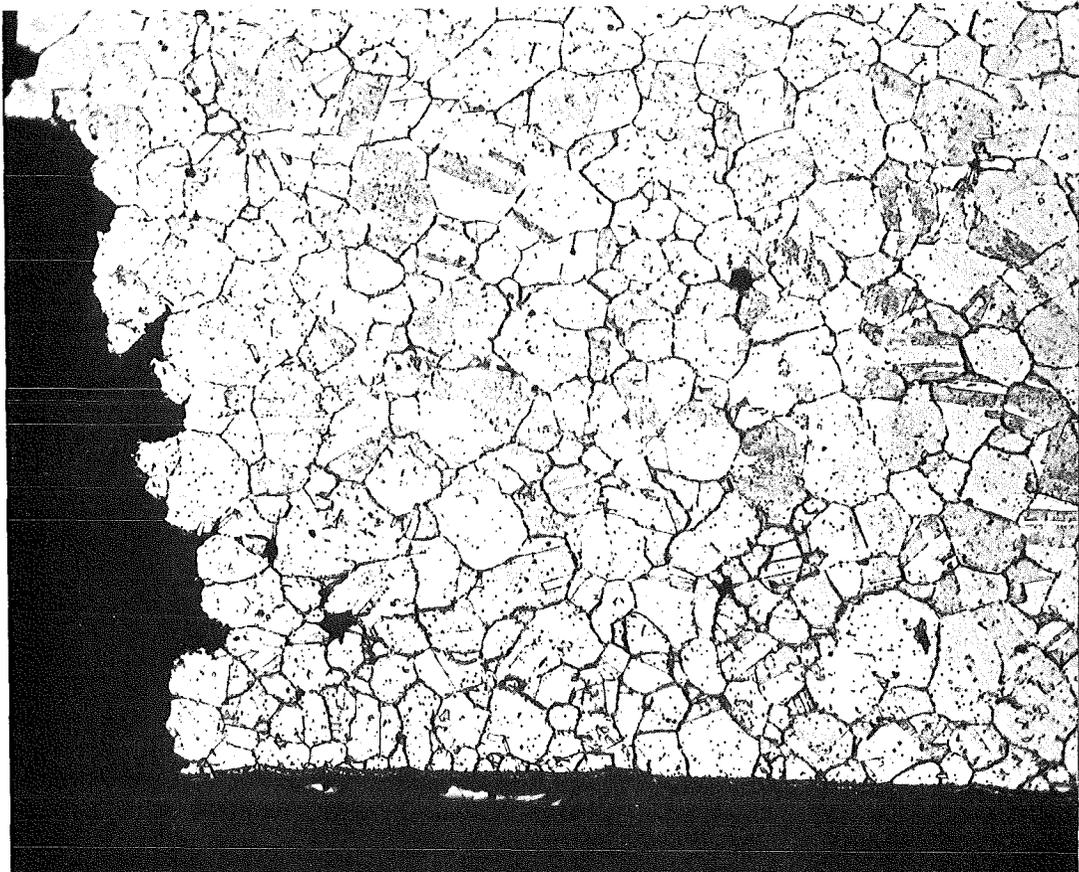


HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-24/11 500 x  $40 \mu\text{m}$



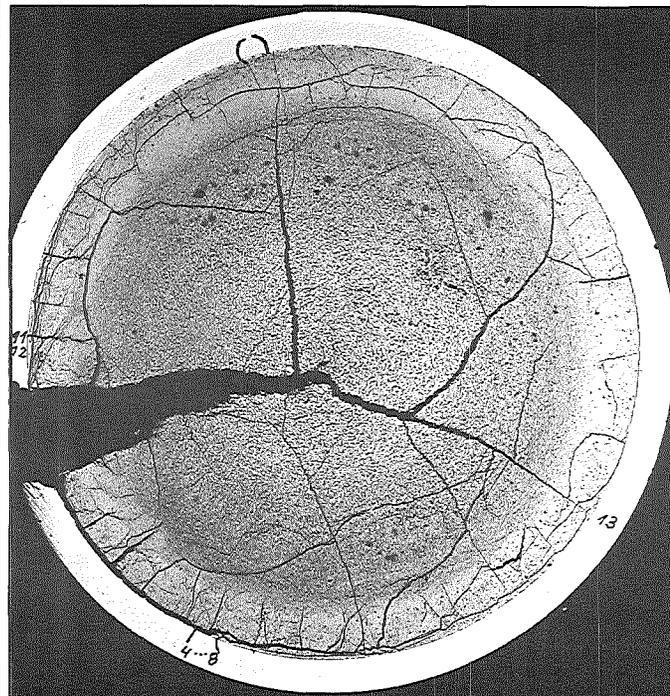
HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-24/19 200 x  
geätzt

100  $\mu\text{m}$



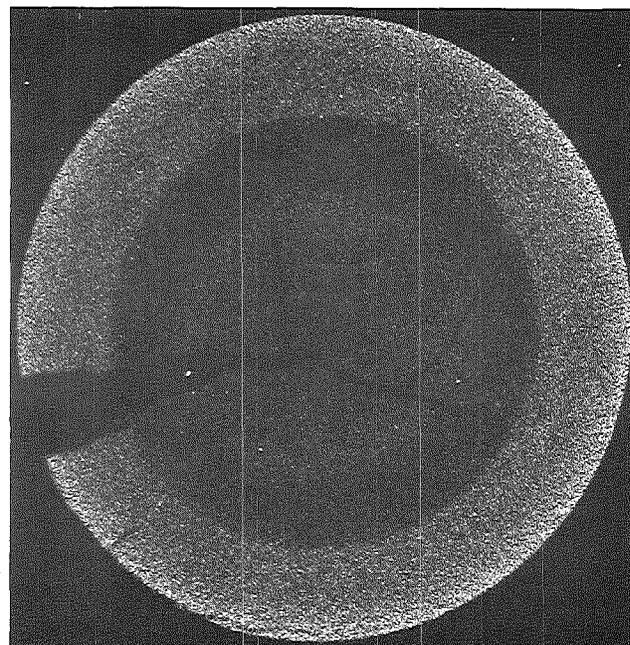
HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-24/20 500 x  
geätzt

40  $\mu\text{m}$



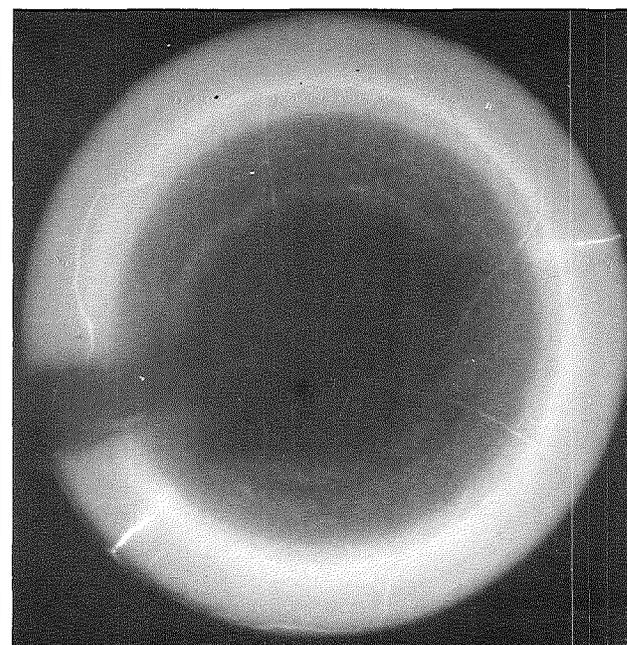
Schnitt 25

15x



$\alpha$  ( 240 sec)

1mm  
|-----|



$\beta$ - $\gamma$  ( 60 sec)

Autoradiografie

GfK Karlsruhe

IMF/III

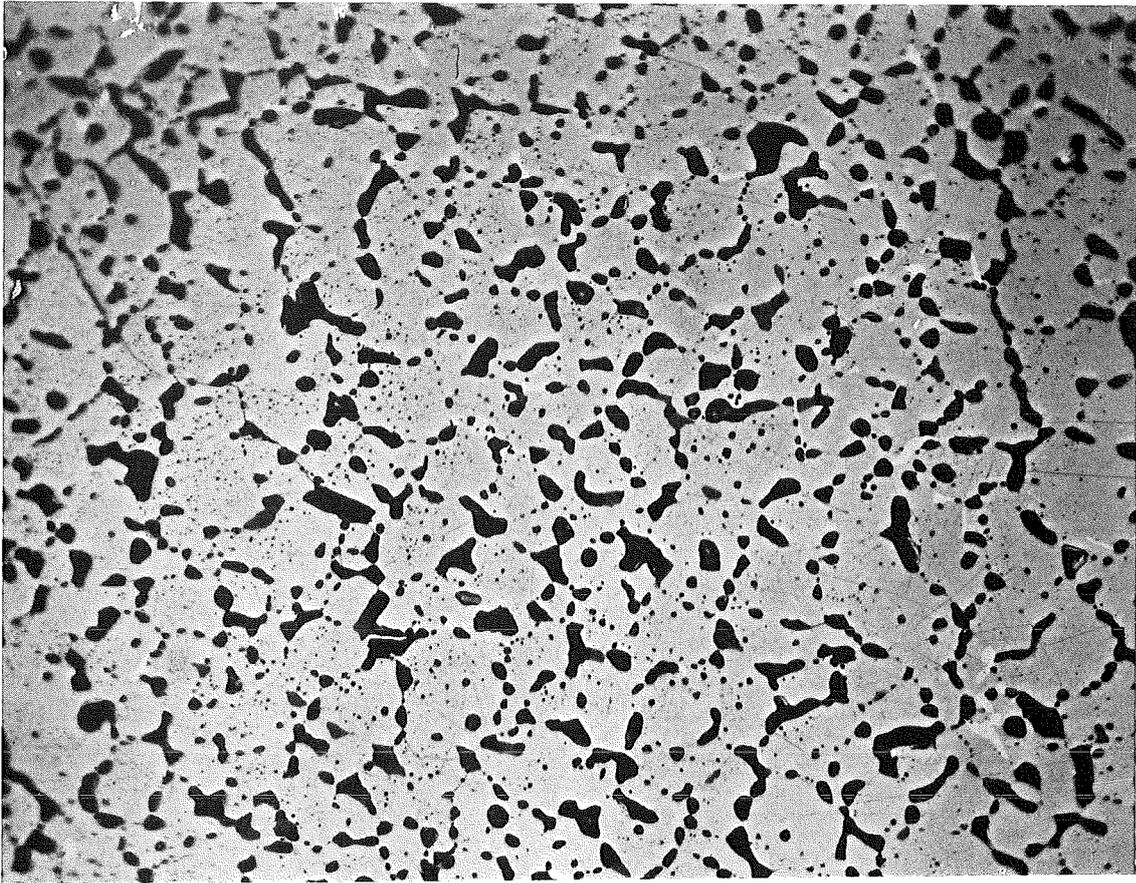
Mol 11: Stab K1-1 UC

Abb.

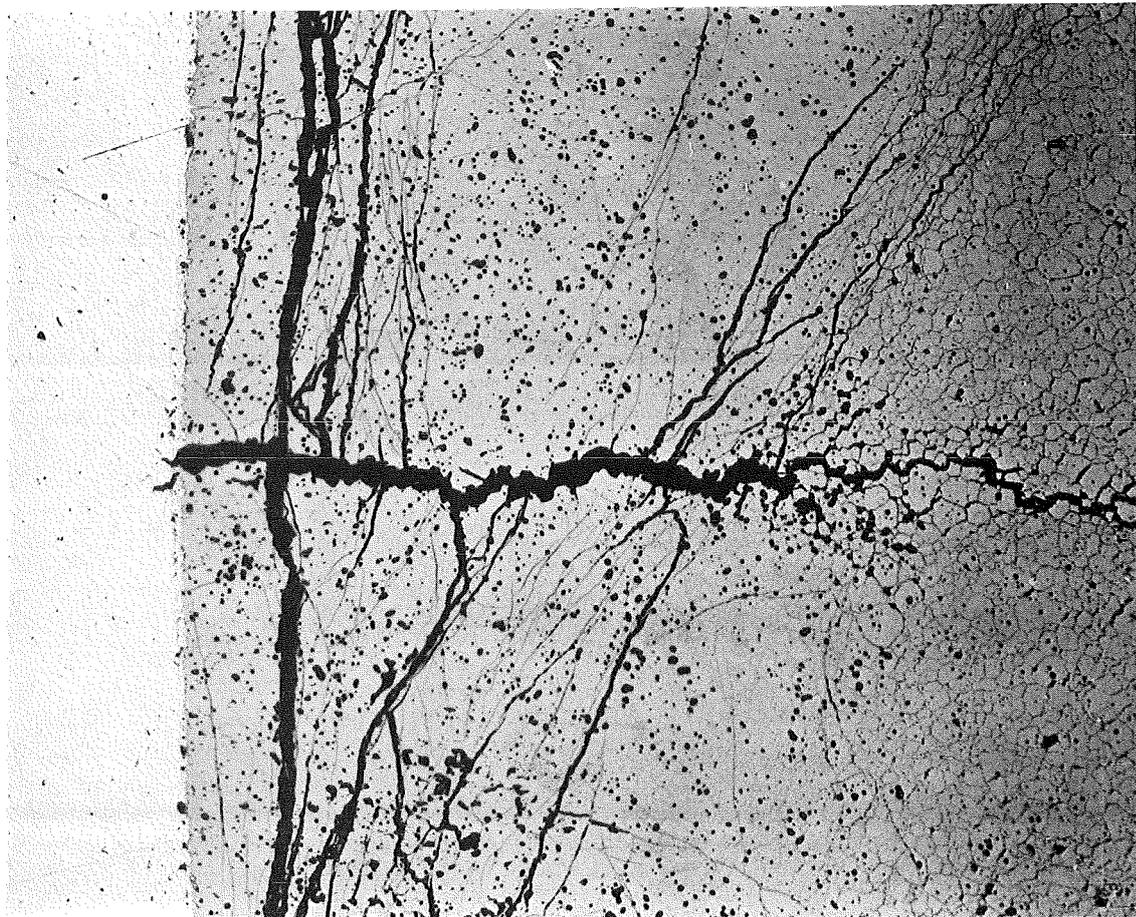
-I/25-  
K1-1 Schnitt 25



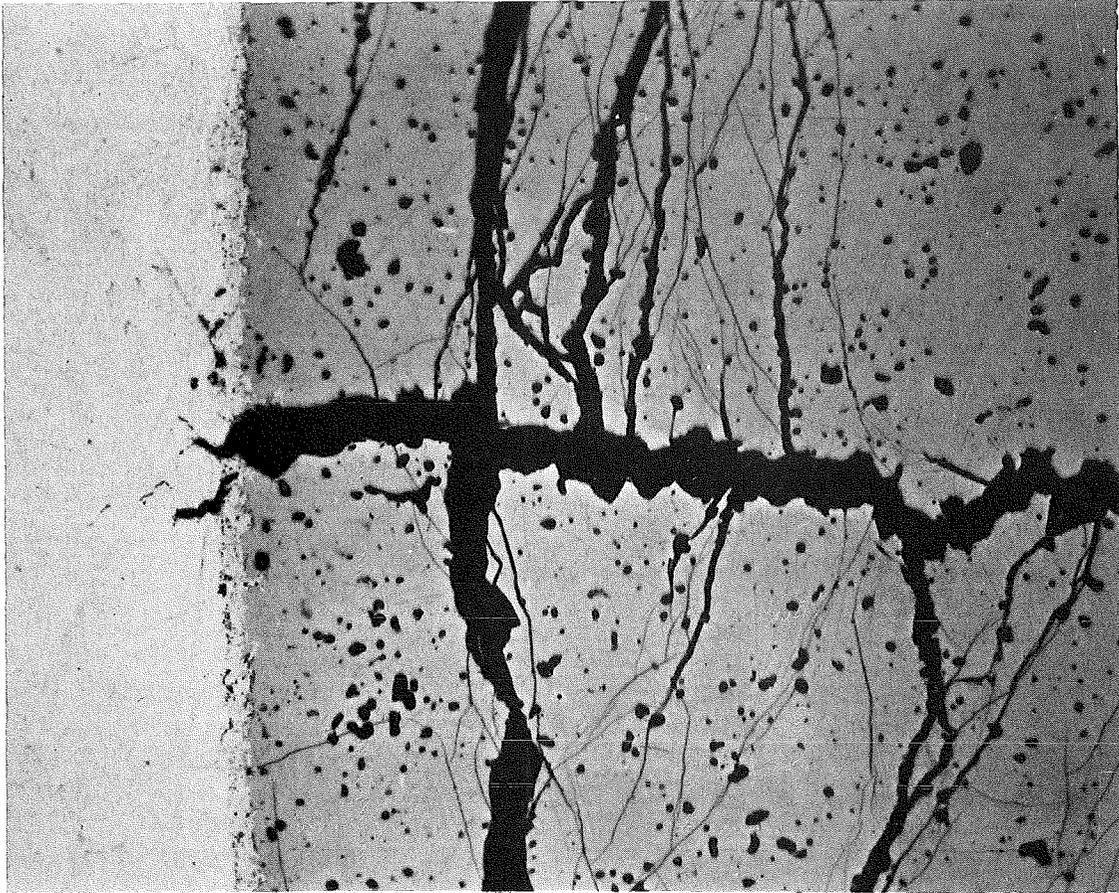
HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-25/8 100 x 200  $\mu\text{m}$



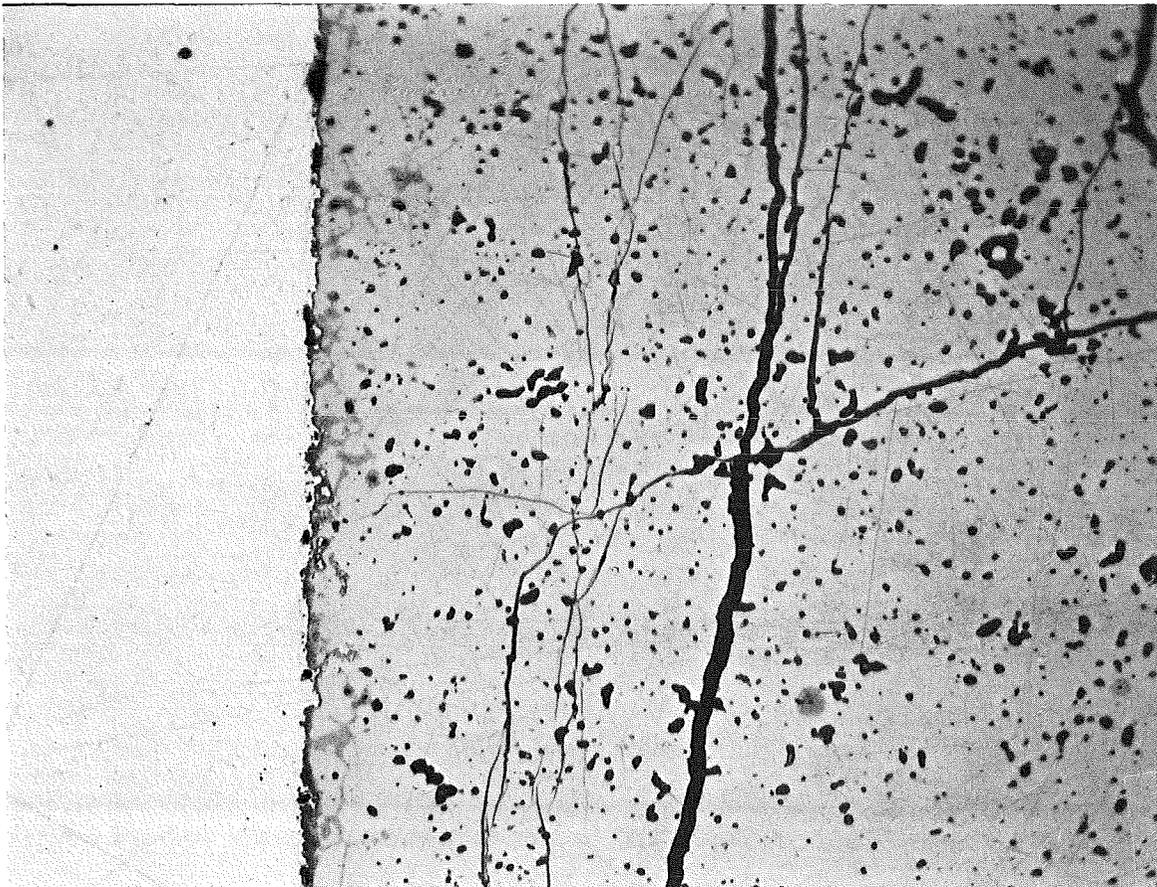
HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-25/10 500 x 40  $\mu$ m



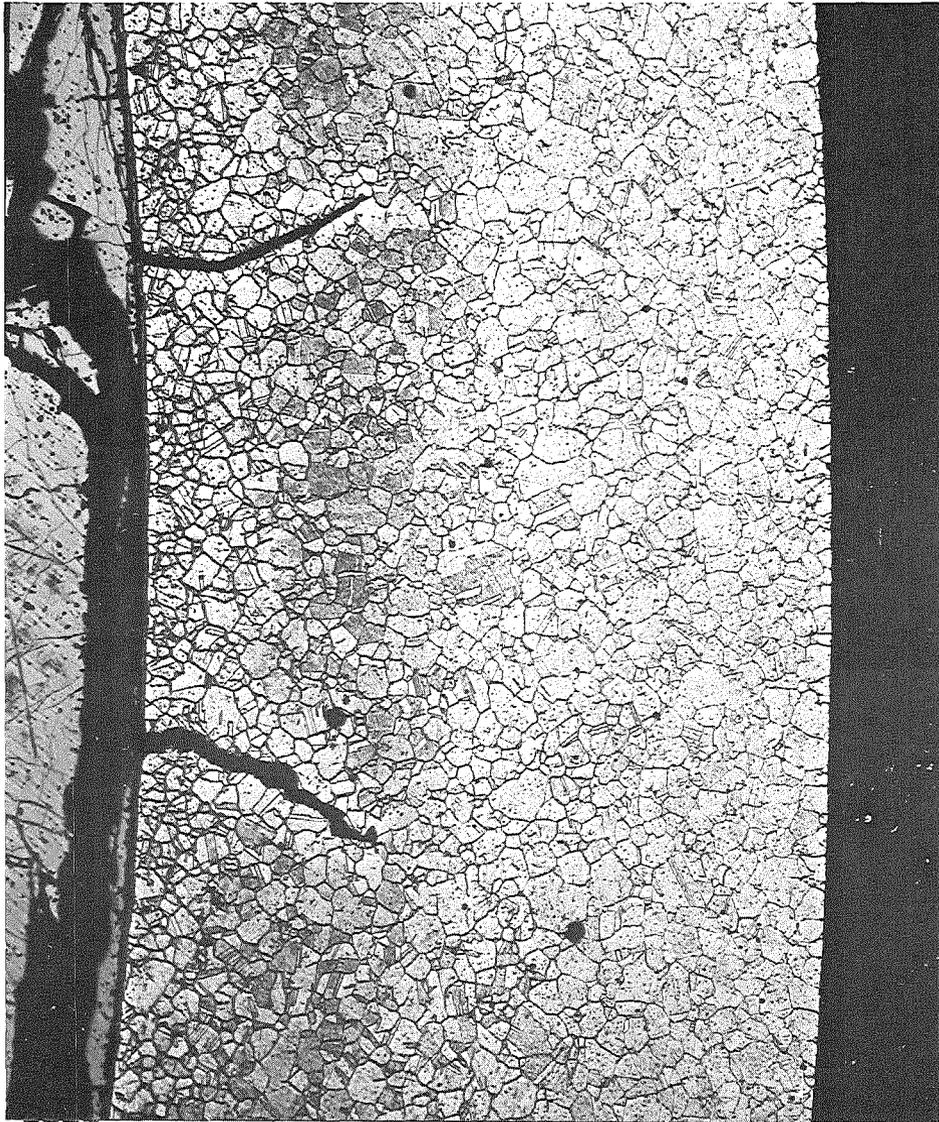
HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-25/11 200 x 100  $\mu$ m



HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-25/12 500 x 40 μm

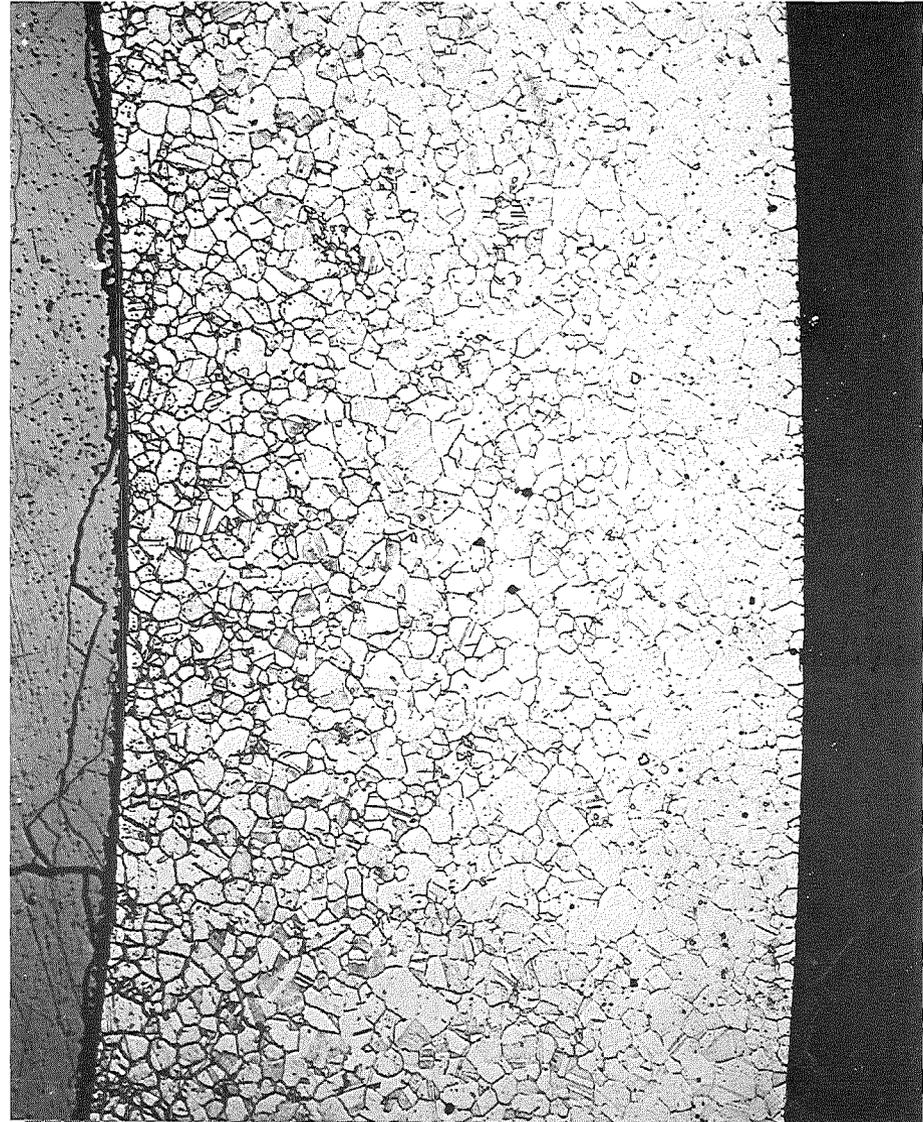


HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-25/13 500 x 40 μm



HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-25/24 200 x  
geätzt

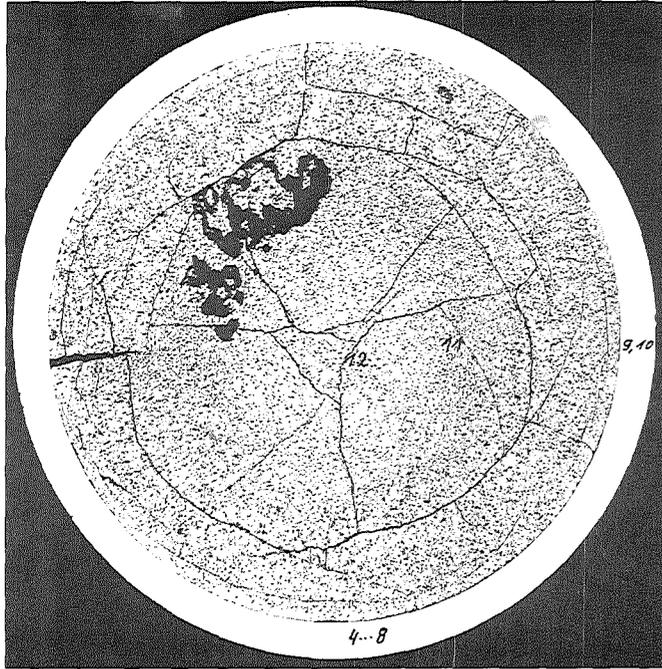
100  $\mu\text{m}$



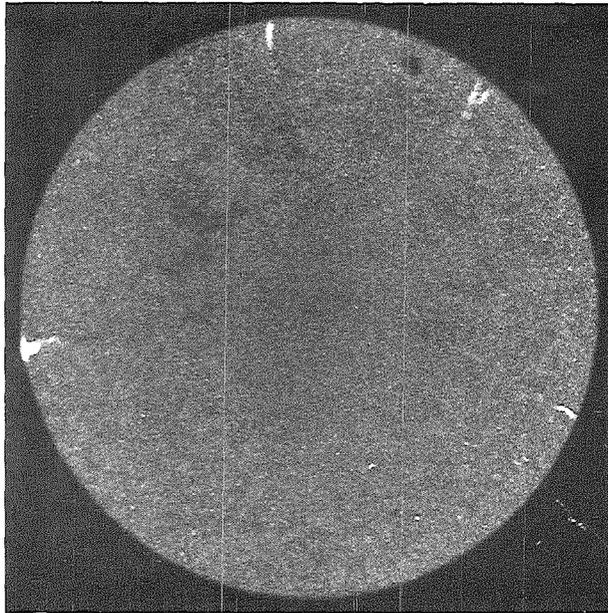
HZ-17c-Mo111.A1-K1/1-25/23 200 x  
geätzt

100  $\mu\text{m}$

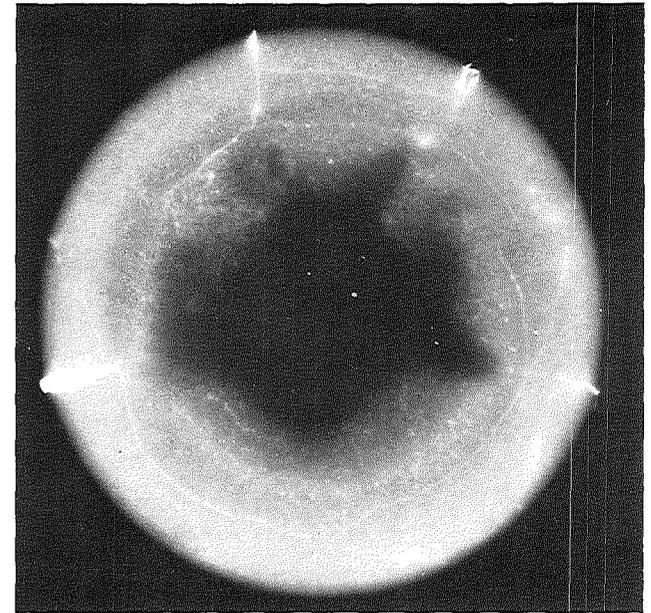




Schnitt 13



$\alpha$  (15 sec)



$\beta-\gamma$  (50 sec)

Autoradiografie

15x

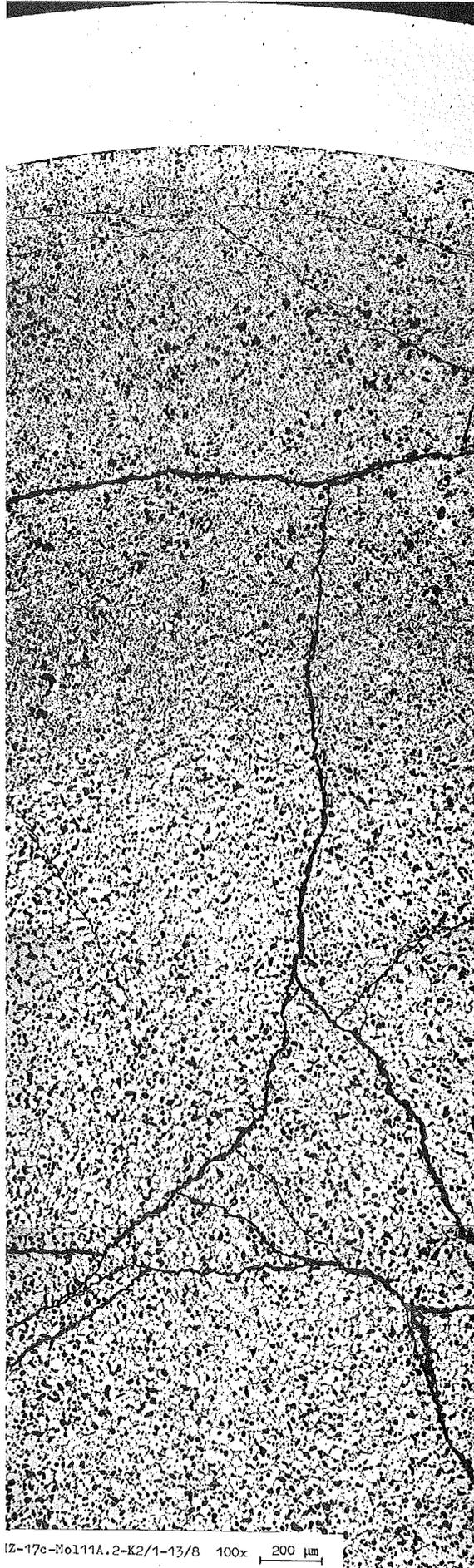
1mm  
—|—

GfK Karlsruhe

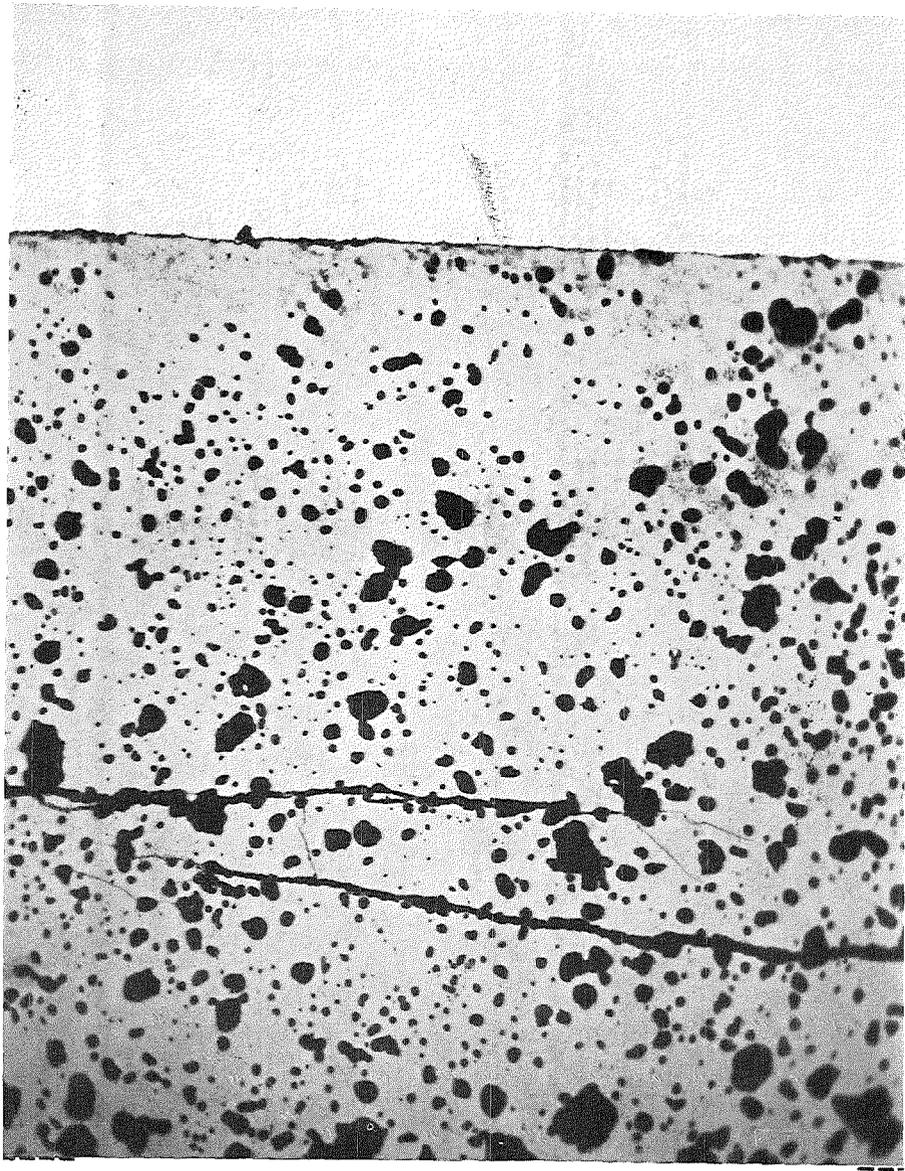
IMF/III

Mol 11: Stab K 2-1 (U,Pu)C

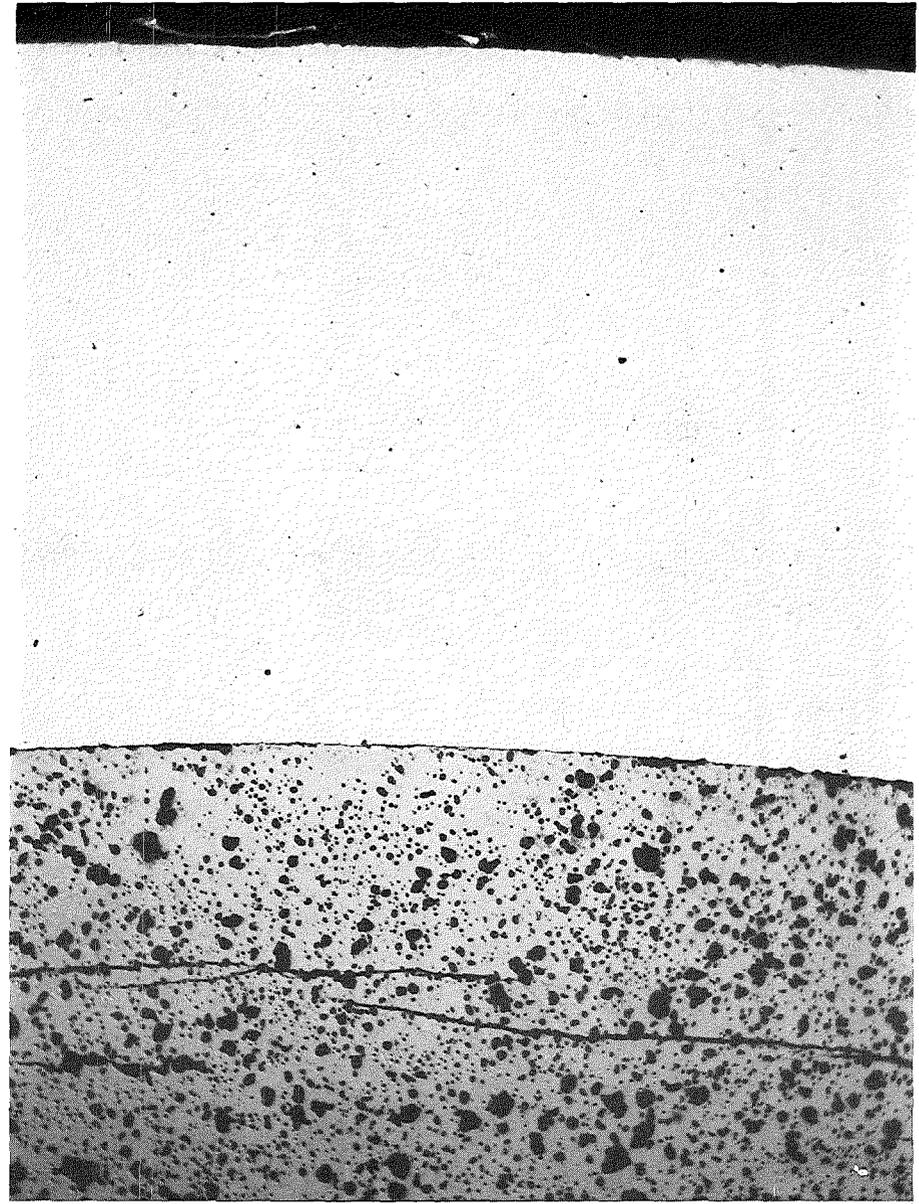
-II/32-  
K2-1 Schnitt 13



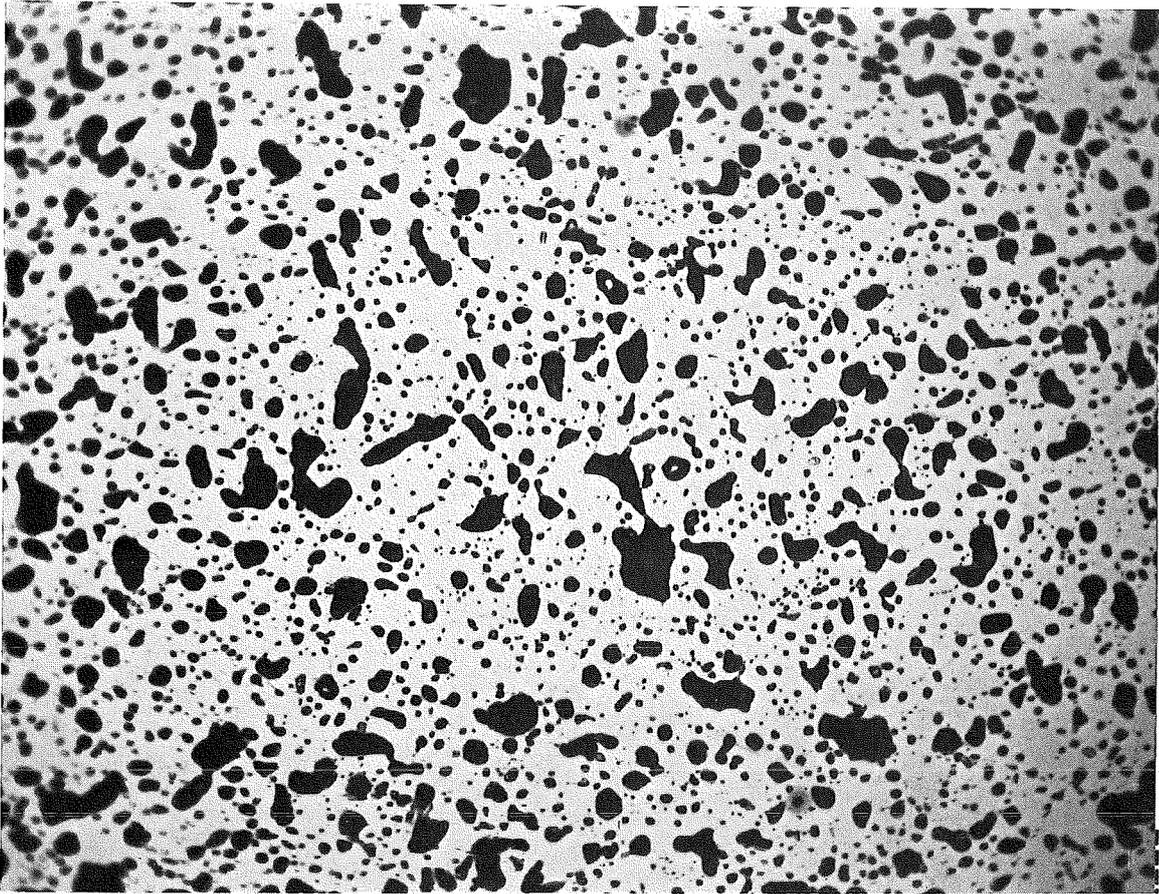
IZ-17c-Mo111A.2-K2/1-13/8 100x 200 µm



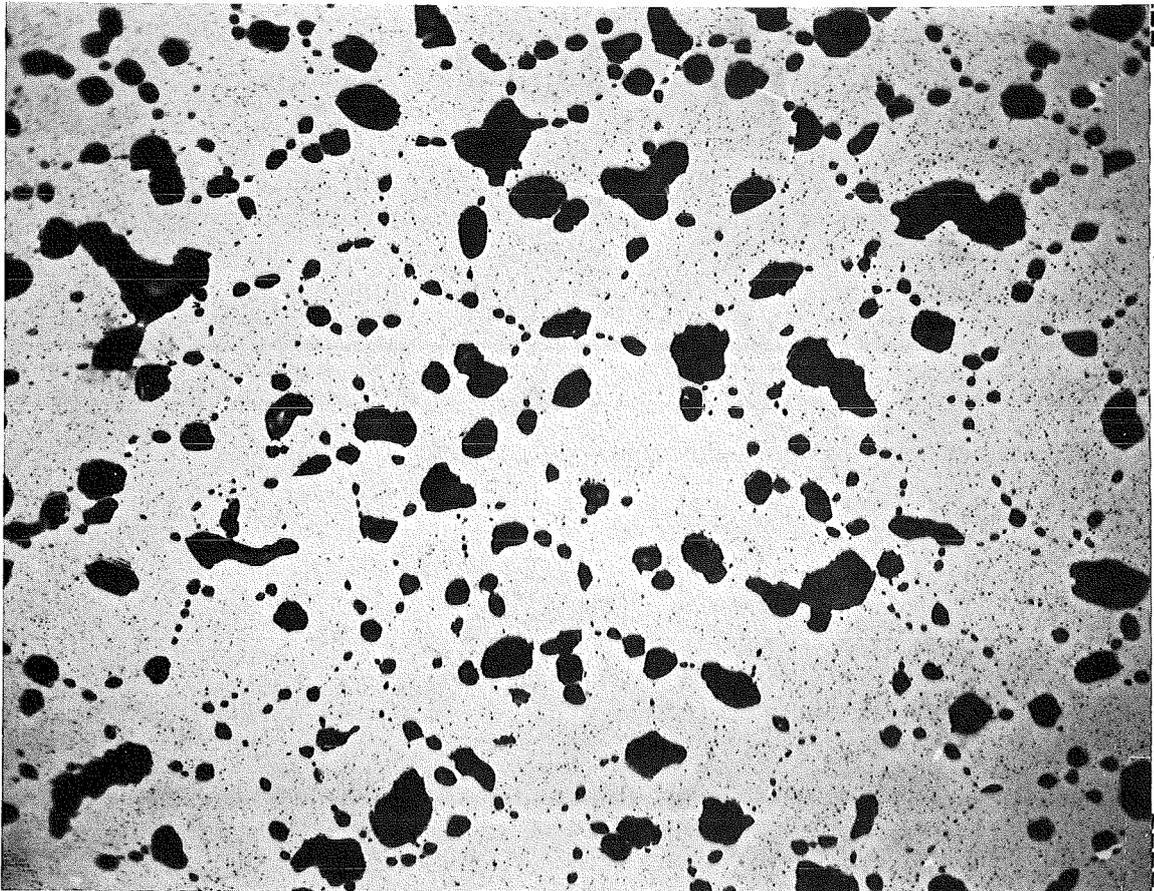
HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-13/10 500 x  $\overbrace{40 \mu\text{m}}$



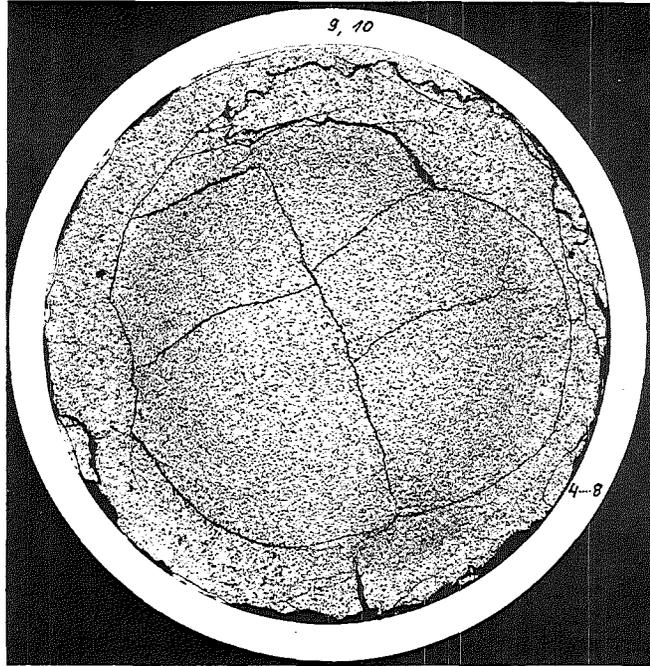
HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-13/9 200 x  $\overbrace{100 \mu\text{m}}$



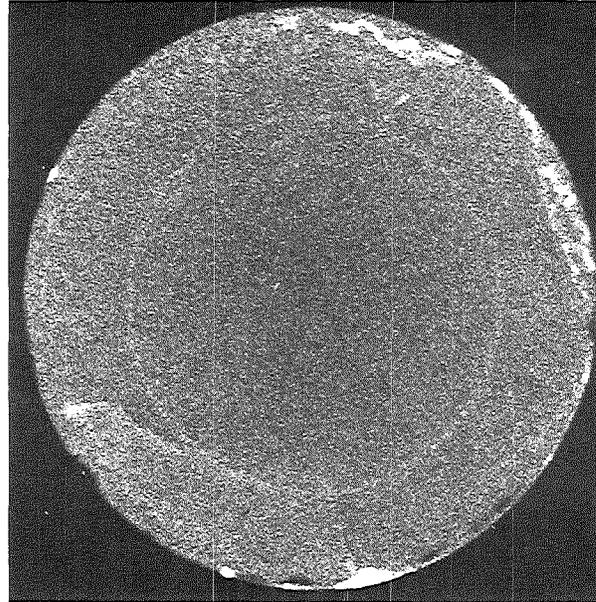
HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-13/11 500 x 40 µm



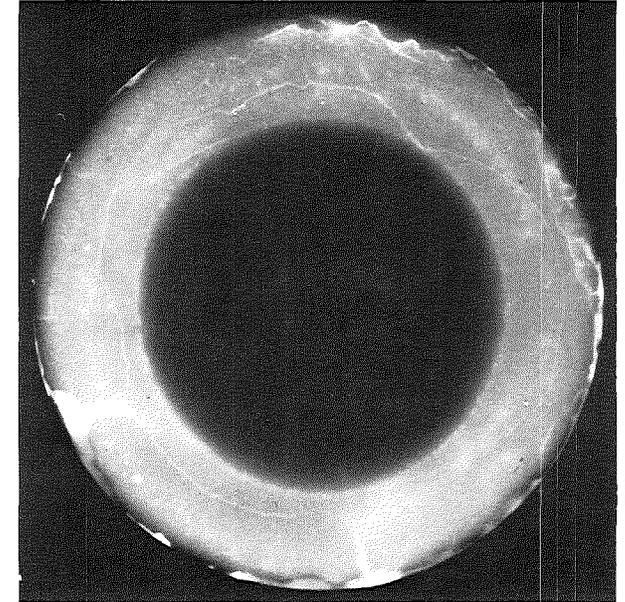
HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-13/12 500 x 40 µm



Schnitt 15



$\alpha$  (15sec)



$\beta$ - $\gamma$  (50 sec)

Autoradiografie

15x

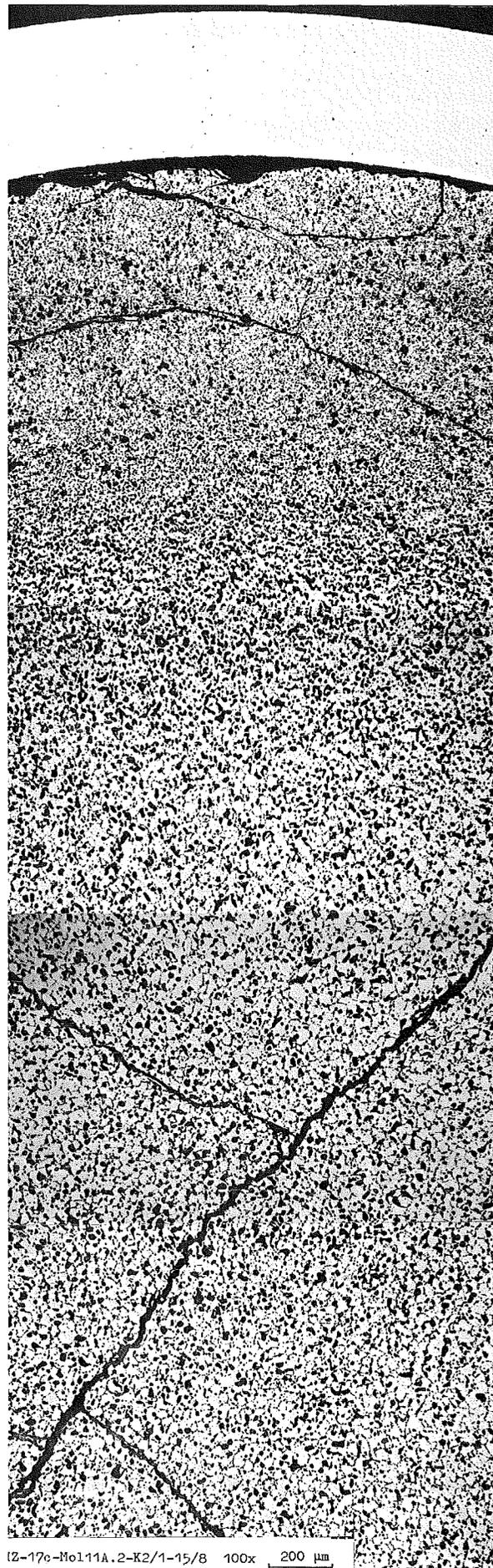
1mm  
|-----|

GfK Karlsruhe

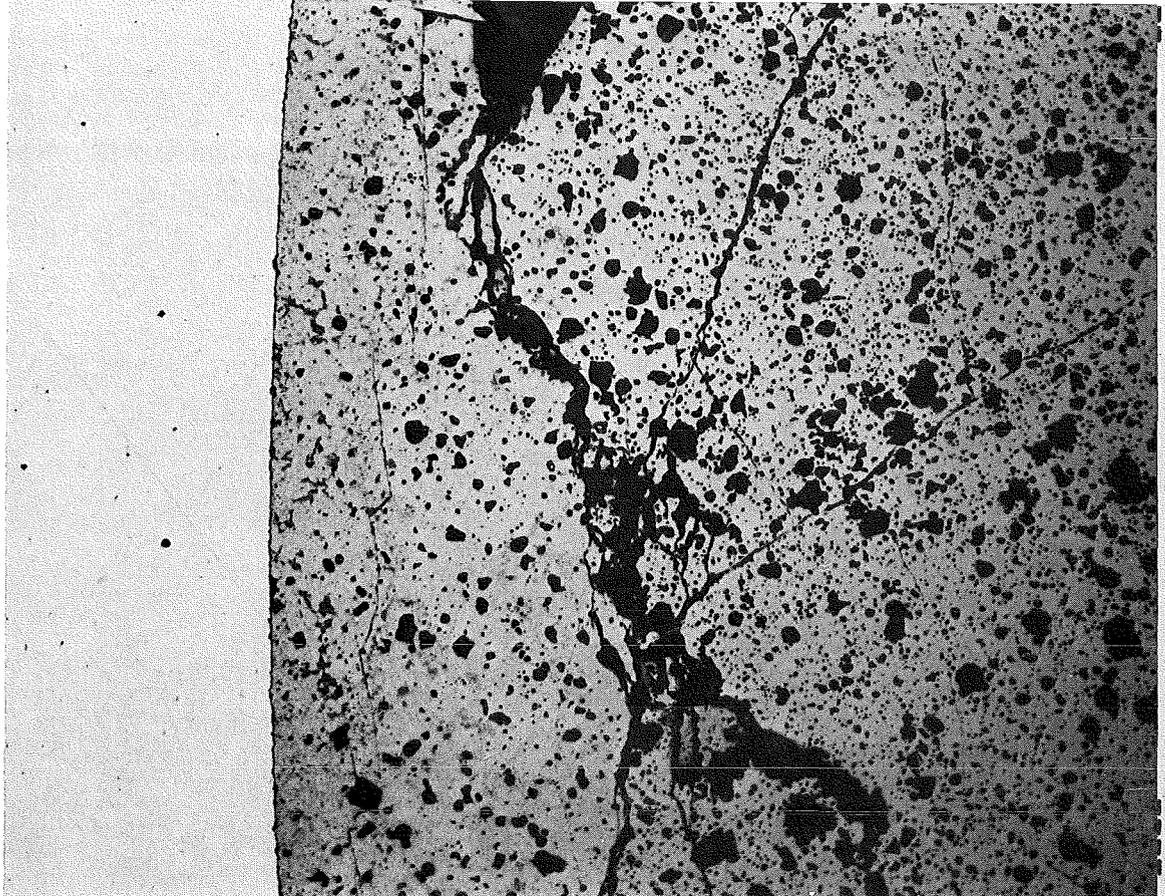
IMF/III

Mol 11: Stab K 2-1 (U,Pu)C

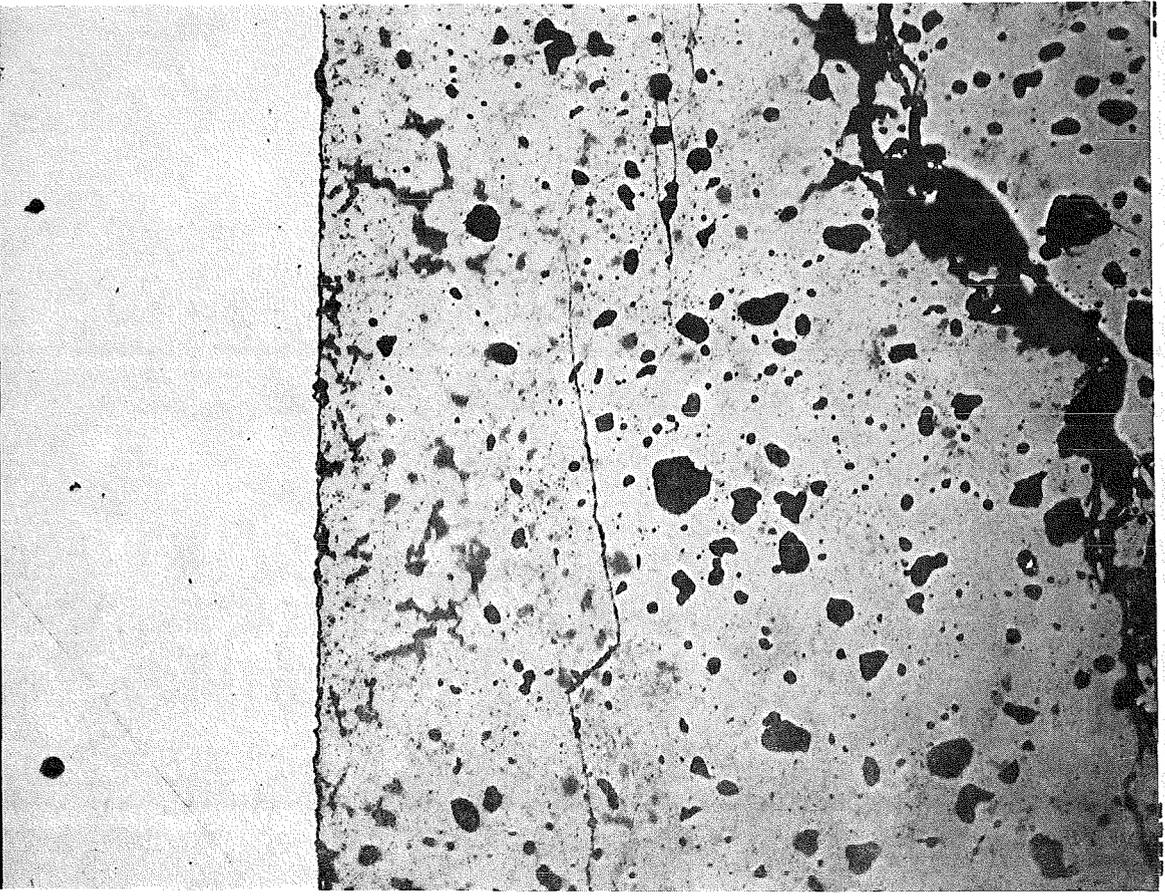
- II/36 -  
K2-1 Schnitt 15



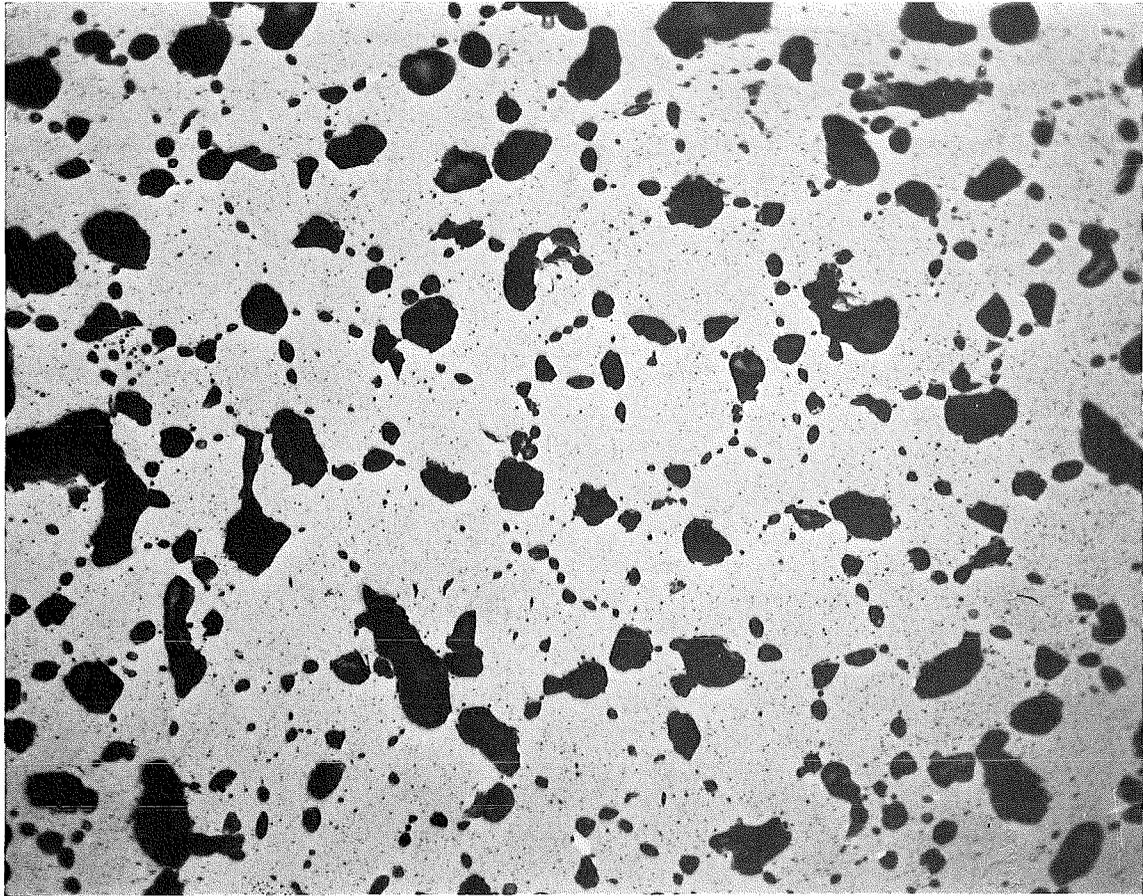
IZ-17e-Mo111A.2-K2/1-15/8 100x 200  $\mu\text{m}$



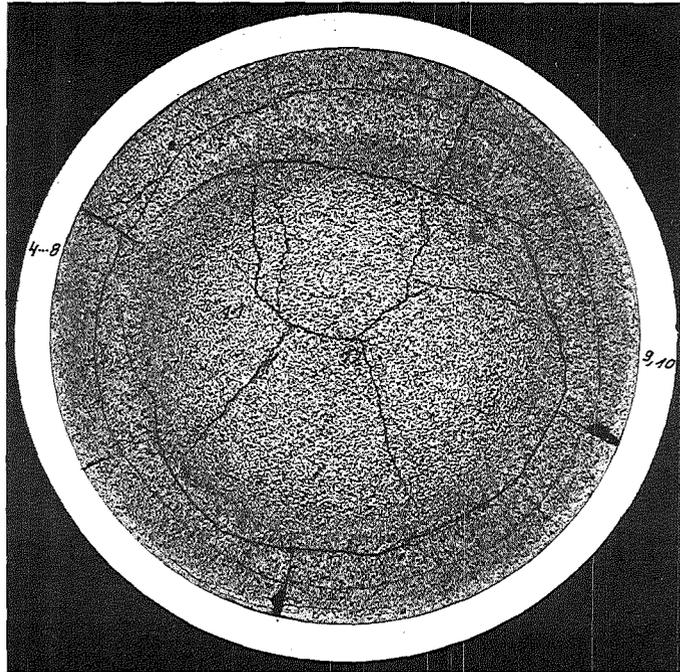
HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-15/9 200 x 100  $\mu\text{m}$



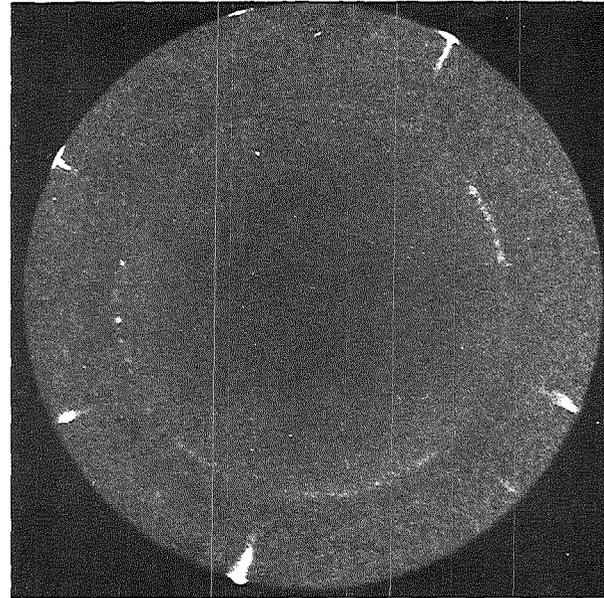
HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-15/10 500 x 40  $\mu\text{m}$



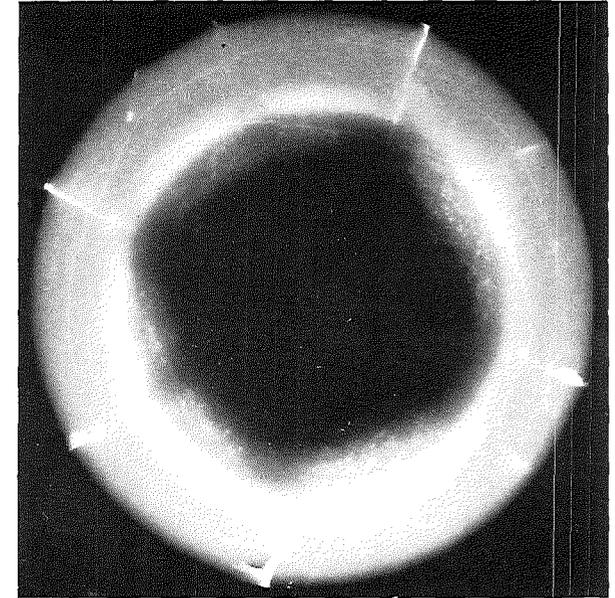
HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-15/11 500 x 40  $\mu\text{m}$



Schnitt 17



$\alpha$  (15 sec)



$\beta$ - $\gamma$  (50 sec)

Autoradiografie

15 x

1mm  
|-----|

GfK Karlsruhe

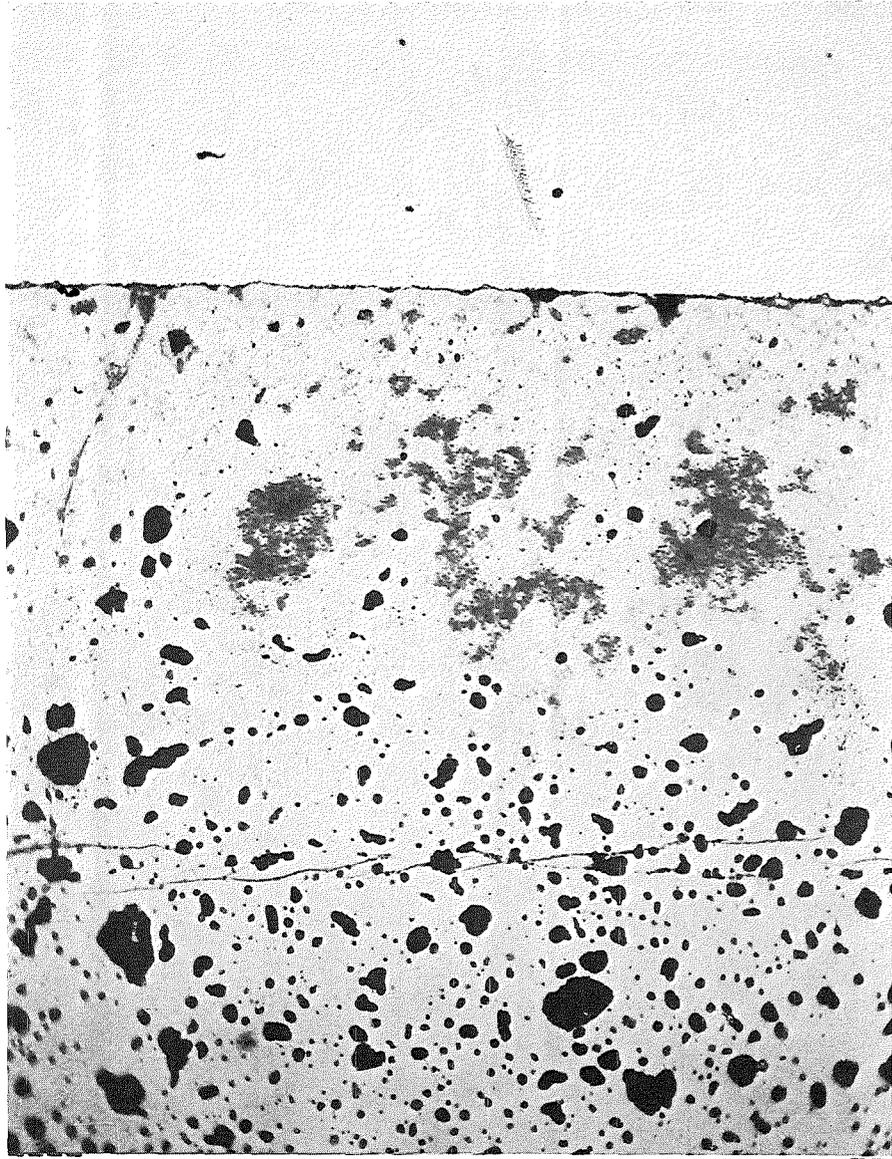
IMF/III

Mol 11: Stab K2-1 (U,Pu) C

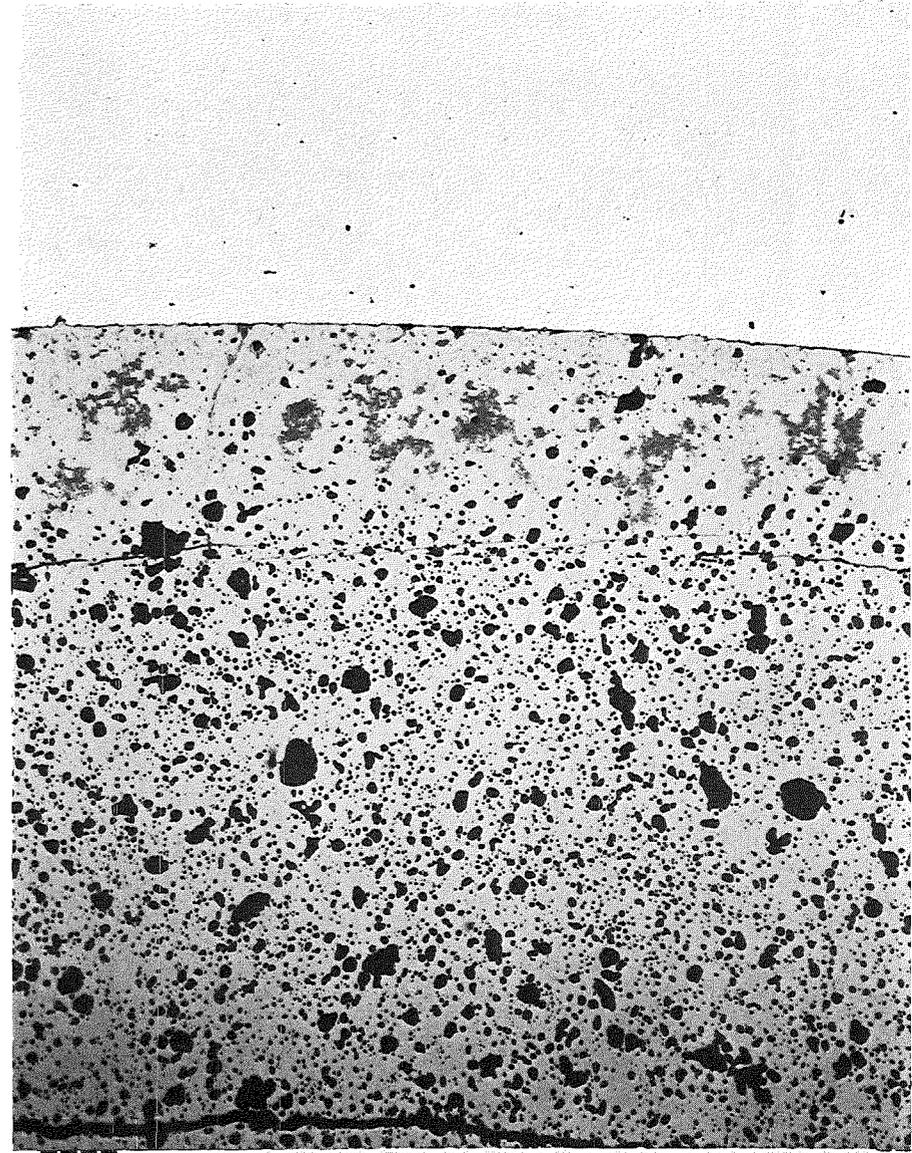
- II/40 -  
K2-1 Schnitt 17



HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-17/8 100 x 200  $\mu\text{m}$

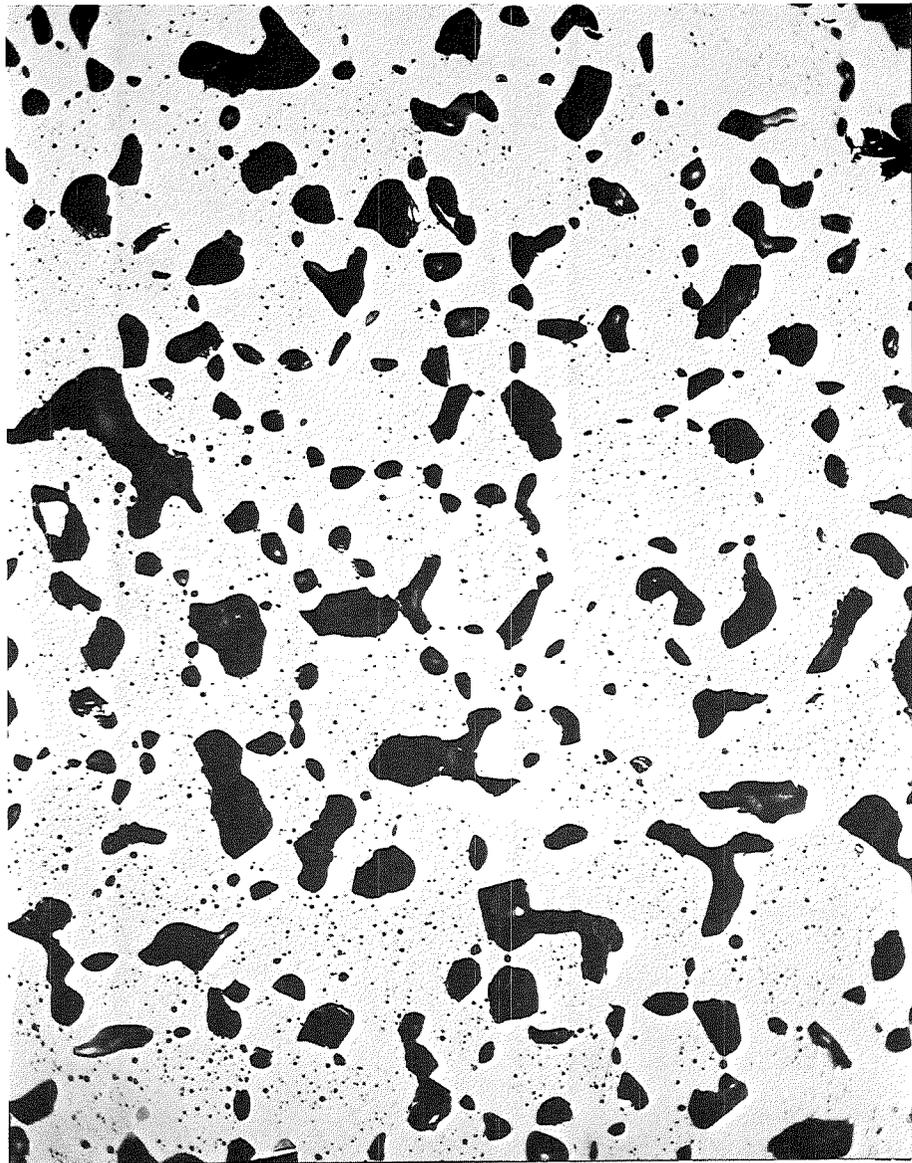


HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-17/10 500 x  $\overbrace{40 \mu\text{m}}$

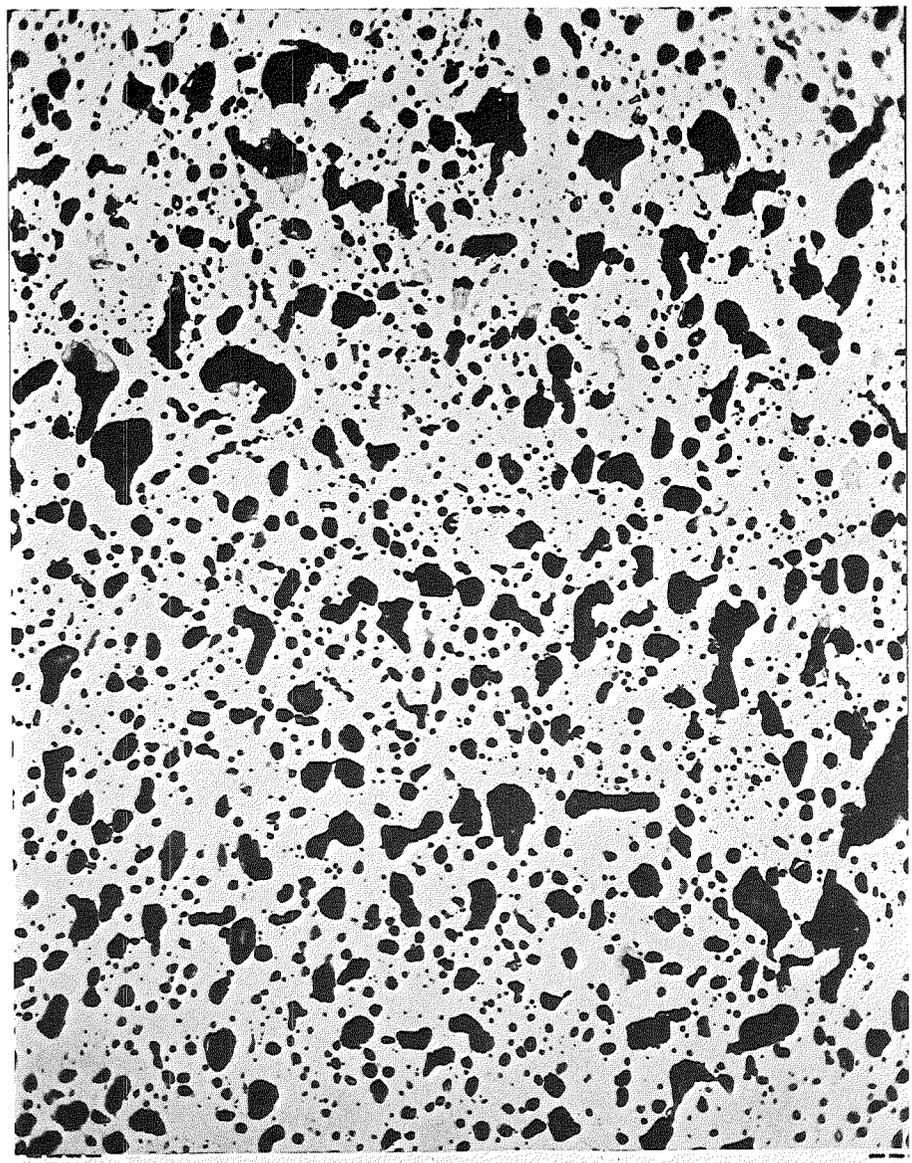


HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-17/9 200 x  $\overbrace{100 \mu\text{m}}$

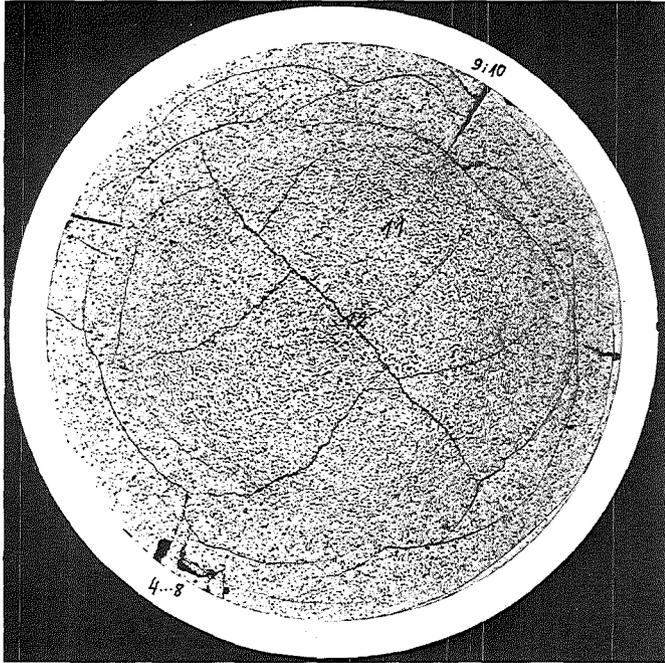
-II/41-  
K2-1 Schnitt 17



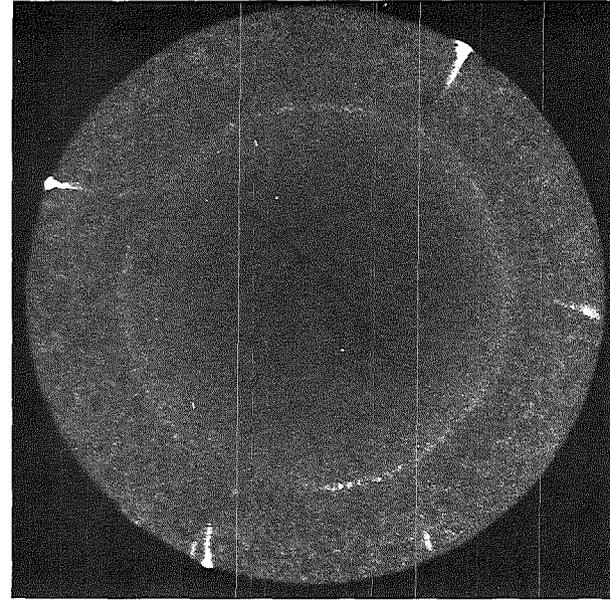
HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-17/12 500 x | 40 μm |



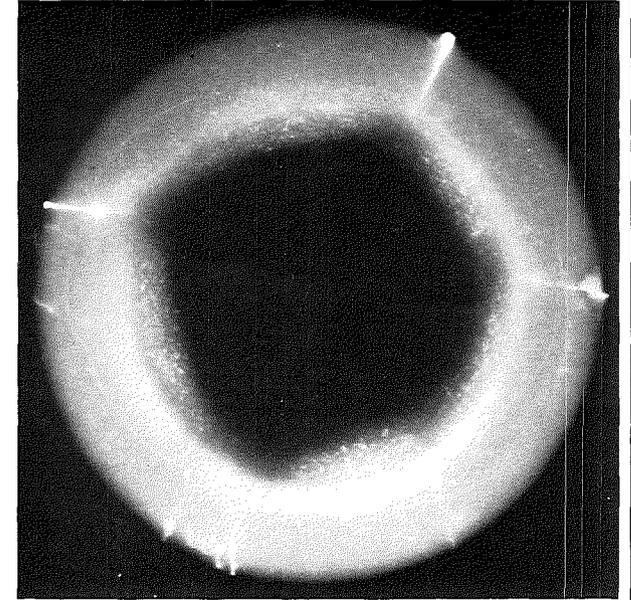
HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-17/11 500 x | 40 μm |



Schnitt 20



$\alpha$  (15 sec)



$\beta$ - $\gamma$  (50 sec)

Autoradiografie

15x

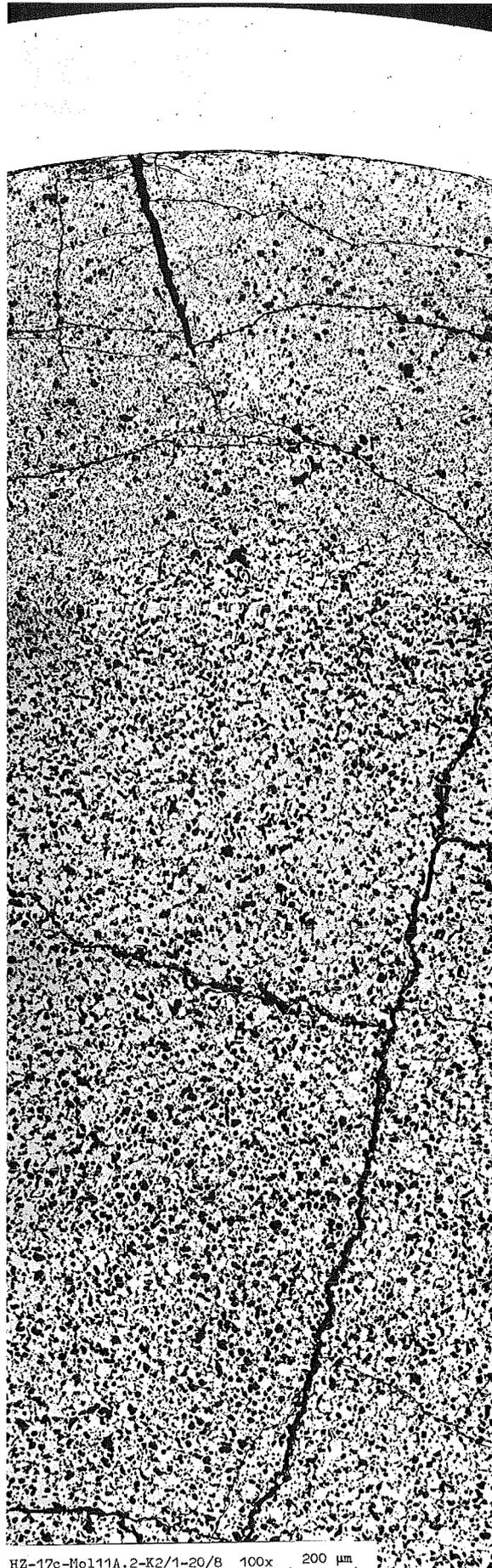
1mm  
|-----|

GfK Karlsruhe

IMF/III

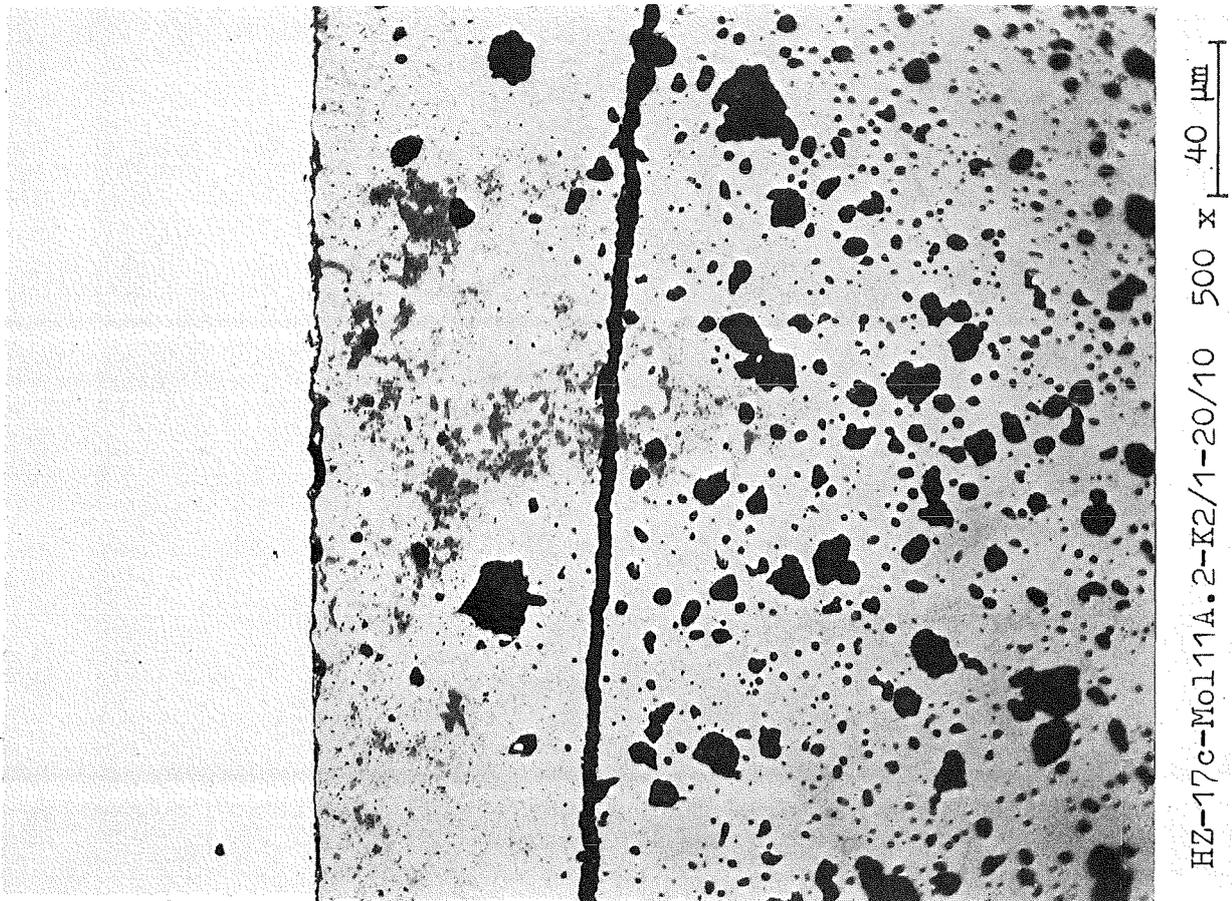
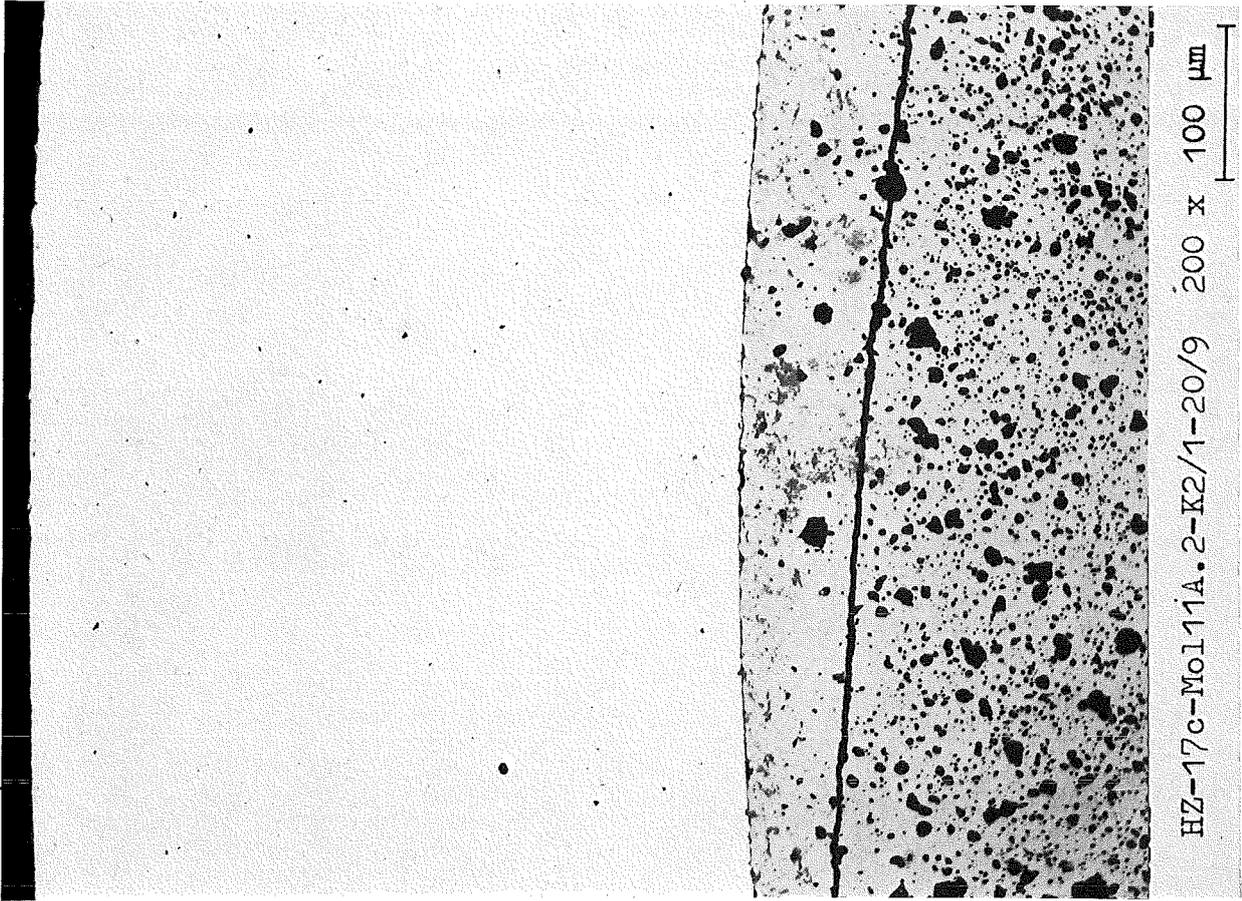
Mol 11: Stab K2-1 (U,Pu)C

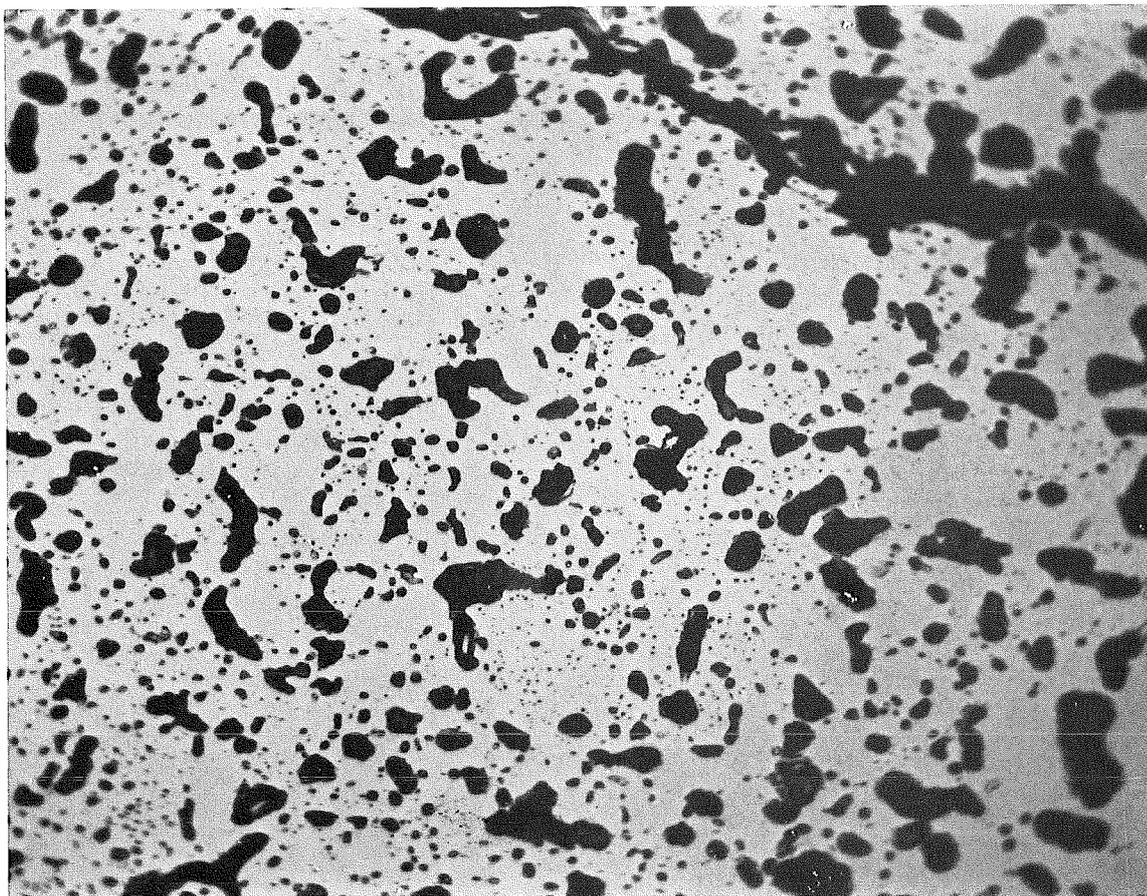
- II/44 -  
K2-1 Schnitt 20



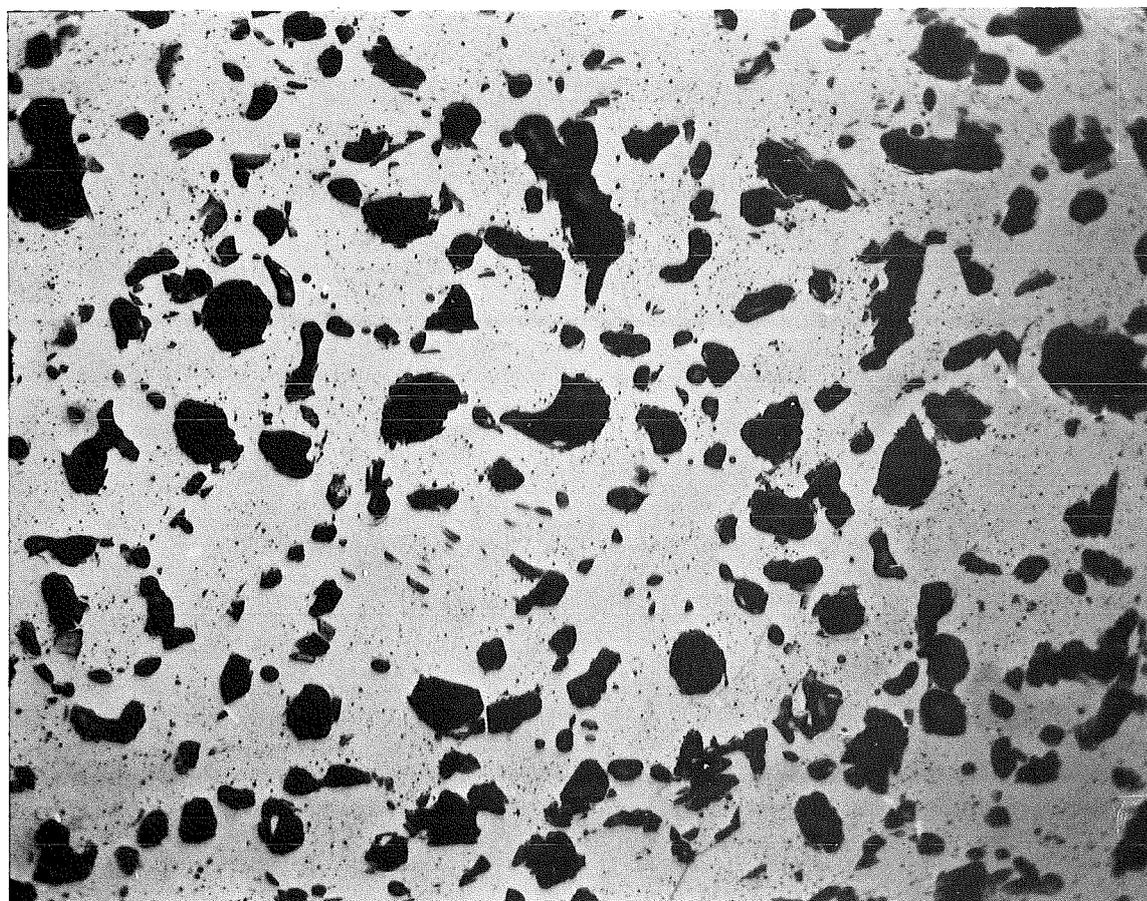
HZ-17c-Ho111A.2-K2/1-20/8 100x 200 μm

- II/45 -  
K2-1 Schnitt 20



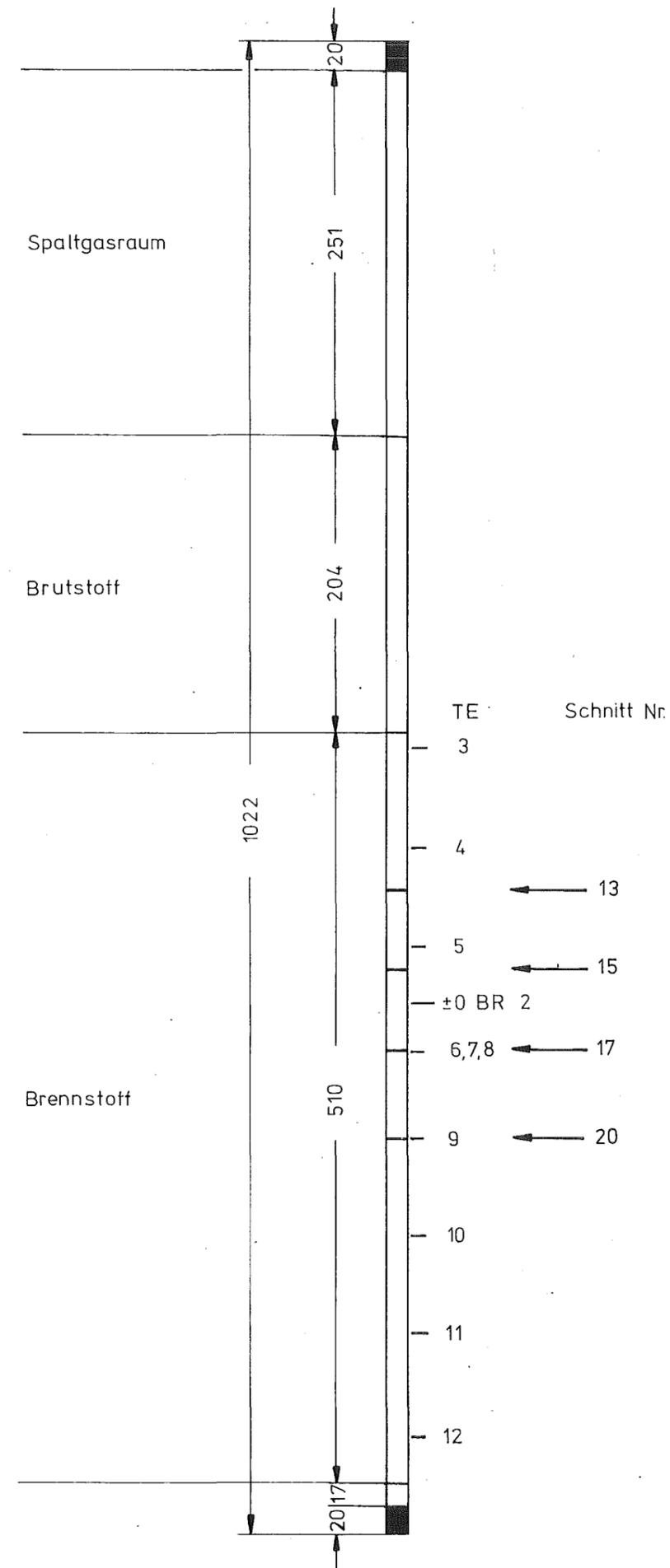


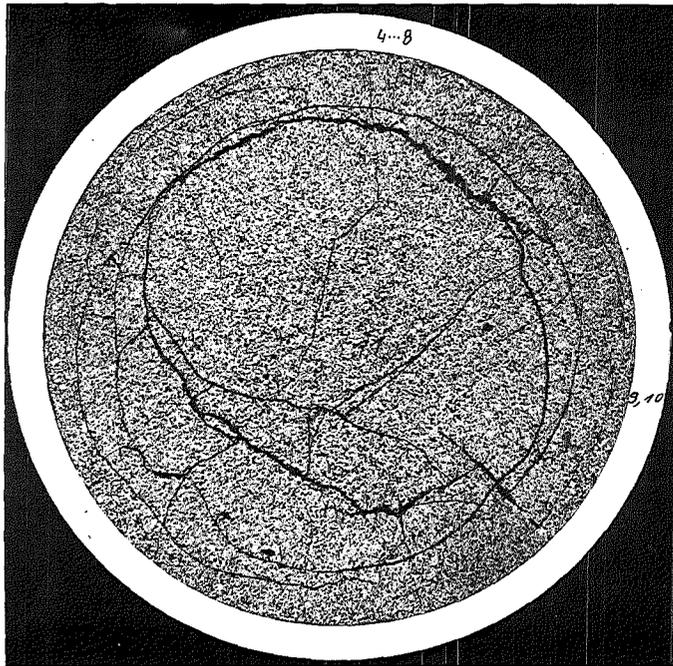
HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-20/11 500 x 40 µm



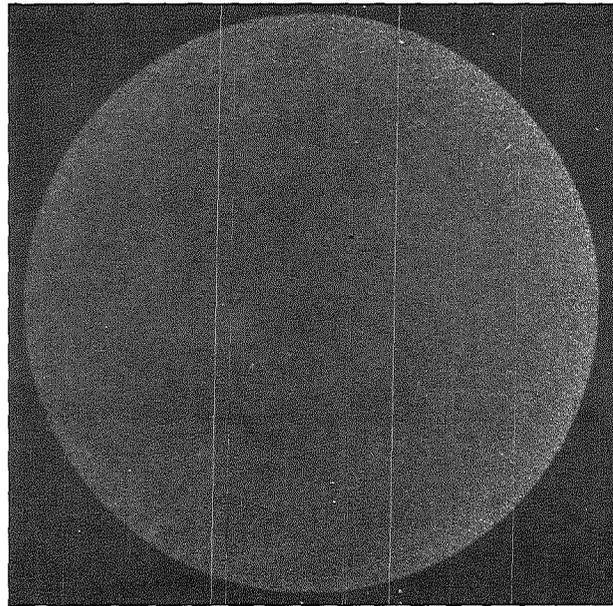
HZ-17c-Mo111A.2-K2/1-20/12 500 x 40 µm

<b>Prüfling K2-1</b>	
<b>Brennstoff:</b>	
Form	: Tabletten
Zusammensetzung	: (U,Pu)C
Tablettendichte	: 83,4 % th. D.
<b>Hülle:</b>	
Material	: 1.4988
Aussendurchmesser	: 8,0 mm
Wandstärke	: 0,45 mm
<b>Geometrie:</b>	
Länge des Prüflings	: 1022 mm
Länge der Brennstoffsäule	: 510 mm
Radiale Spaltweite	: 70 µm
Schmierdichte	: 80,0 % th. D.
<b>Bestrahlung:</b>	
Einrichtung	: Kapsel FASOLD Mk IIIc
Dauer	: 154 Vollasttage
Ende	: 6.10.72
Rechn. Abbrand max.	: 41,2 MWd/kg Me
Stableistung über alle Zyklen max	: 1163 W/cm

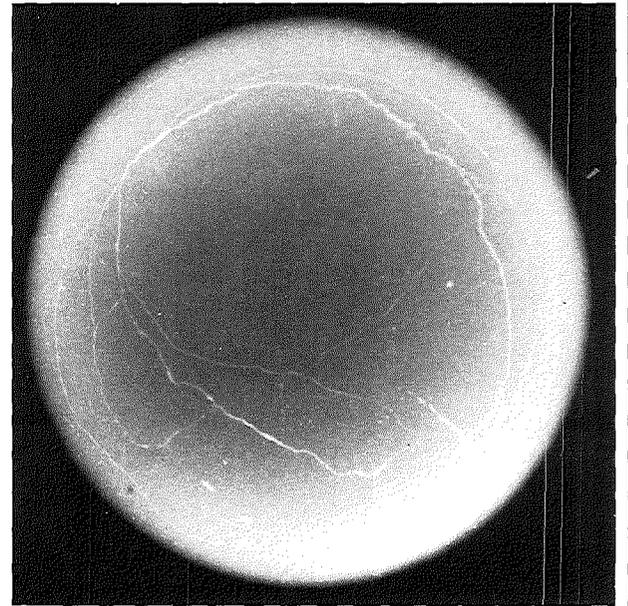




Schnitt 13



$\alpha$  (1,5 sec.)



$\beta$ - $\gamma$  (7 sec.)

Autoradiografie

15 x

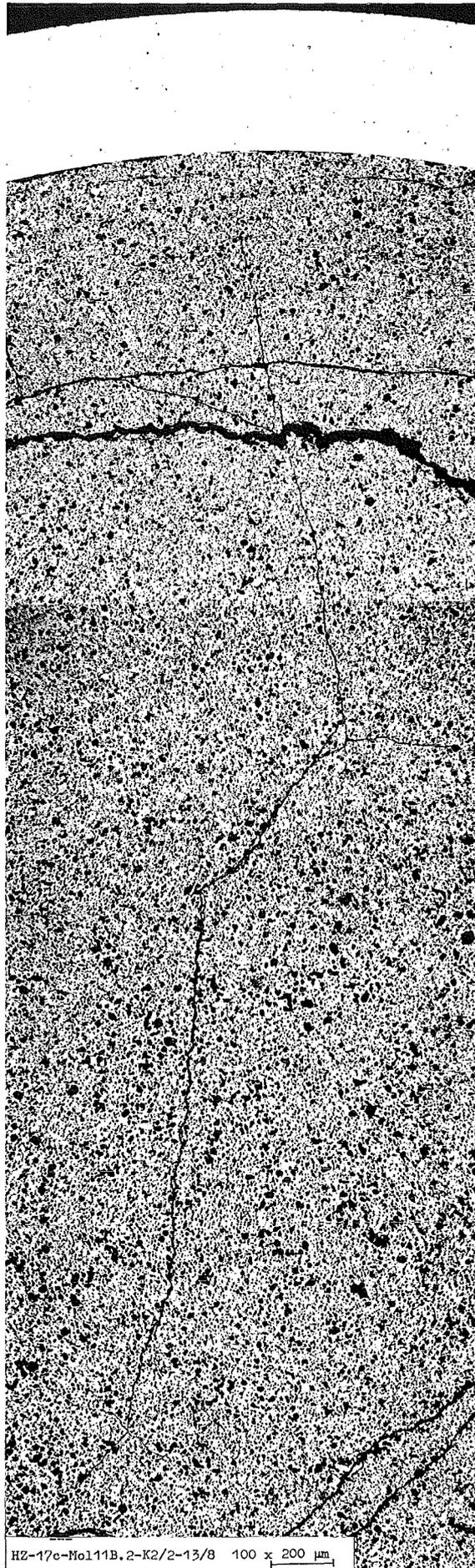
1mm  
|-----|

GfK Karlsruhe

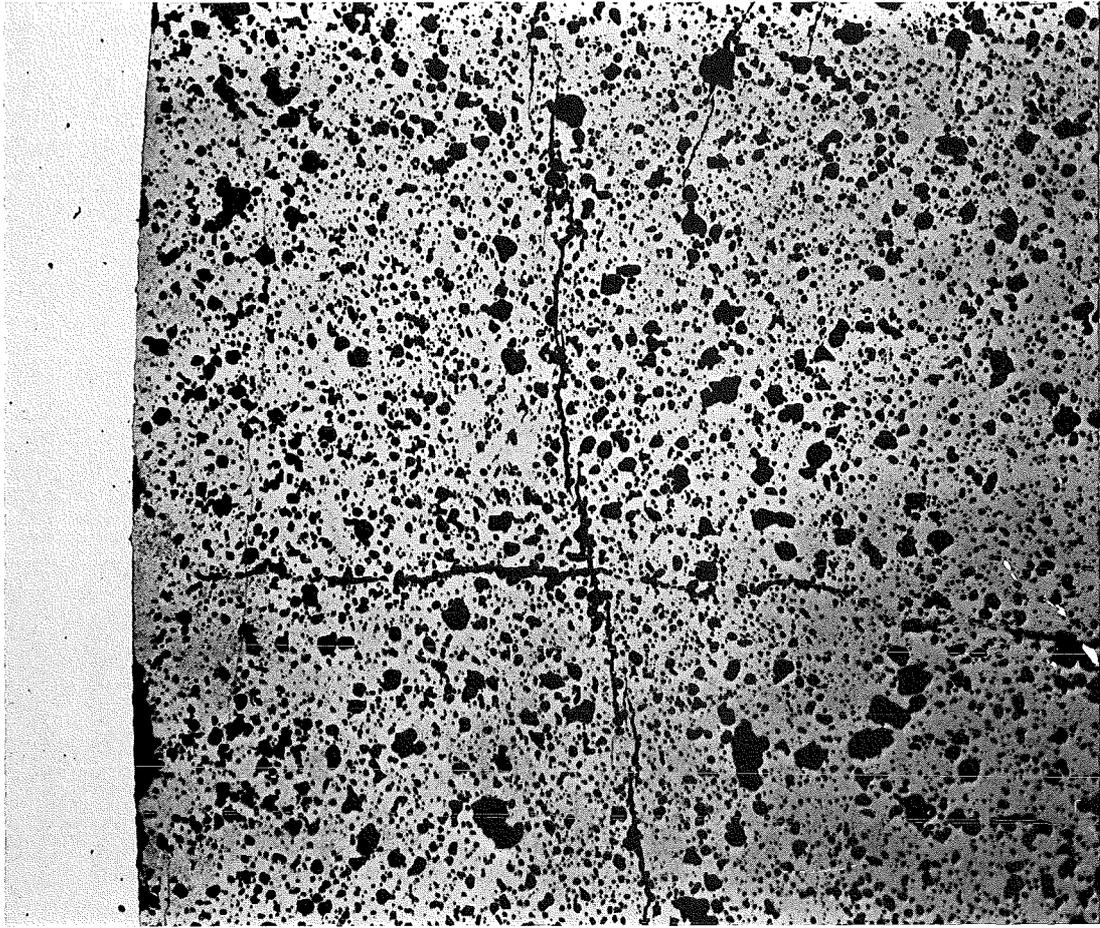
IMF/III

Mol 11: Stab K2-2 (U,Pu)C

-II/50-  
K2-2 Schnitt 13

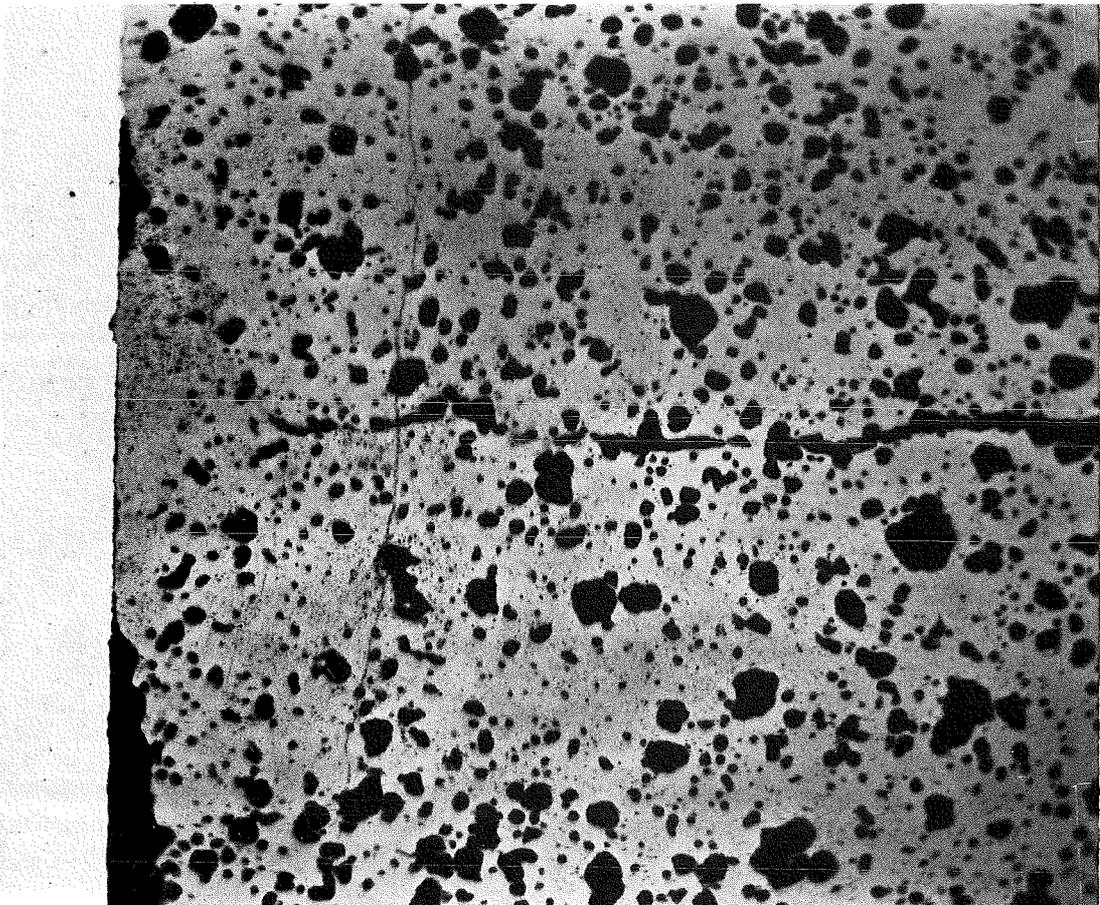


HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-13/8 100 x 200  $\mu\text{m}$



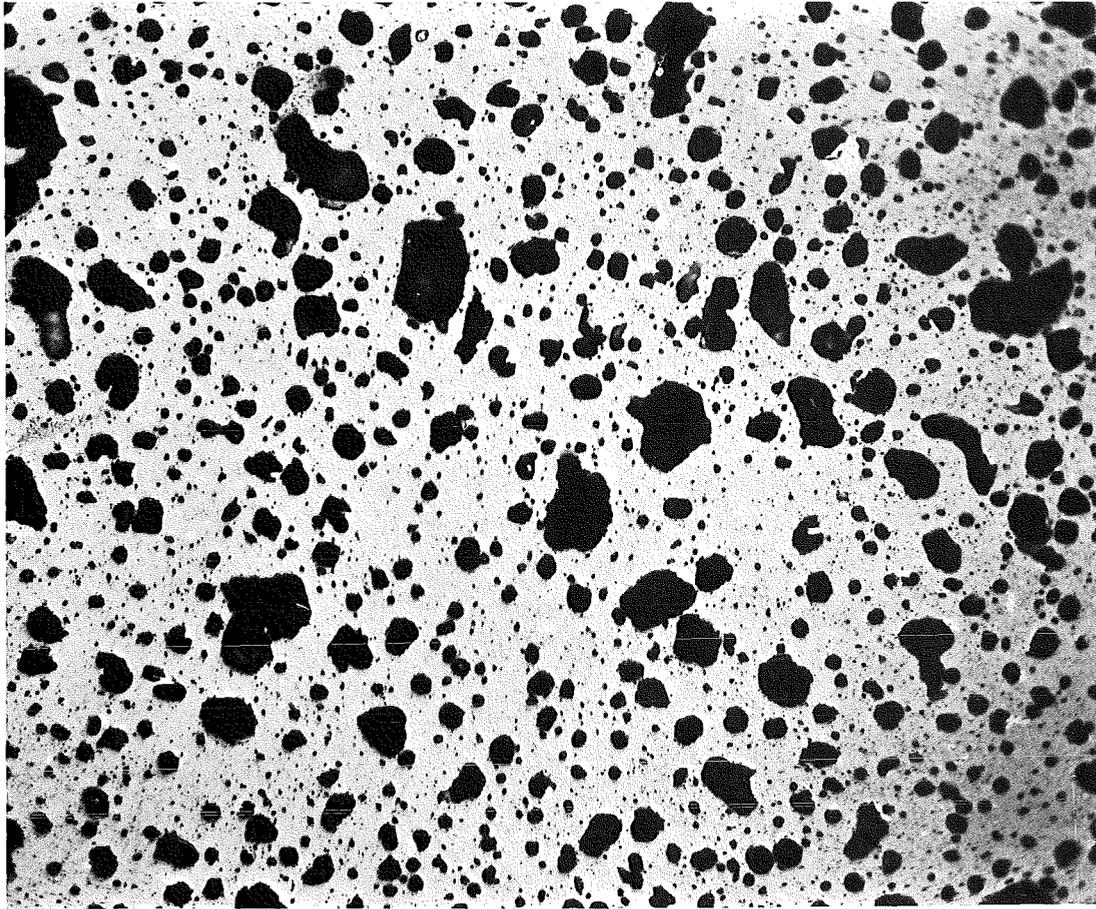
100  $\mu\text{m}$

HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-13/9 200x



40  $\mu\text{m}$

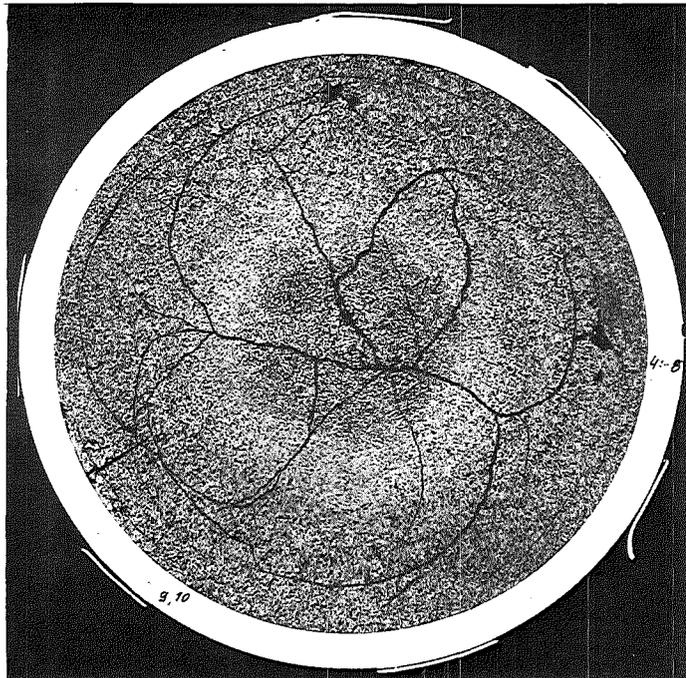
HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-13/10 500x



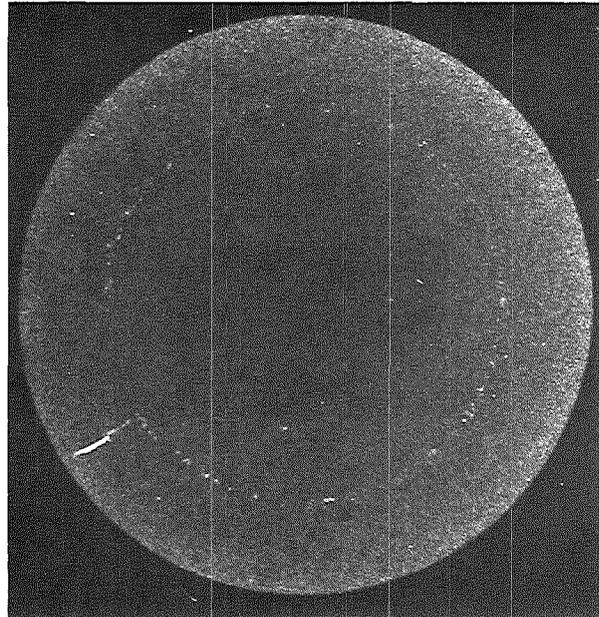
40  $\mu\text{m}$

500x

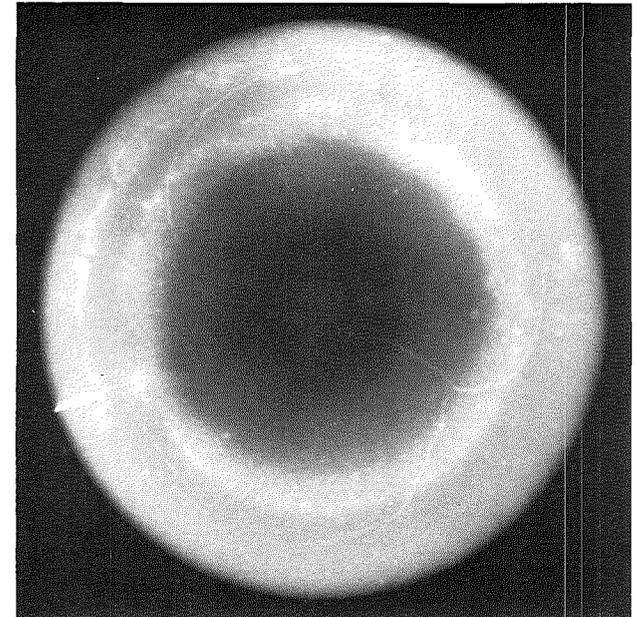
HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-13/11



Schnitt 16



$\alpha$  (1,5 sec)



$\beta$ - $\gamma$  (7 sec)

Autoradiografie

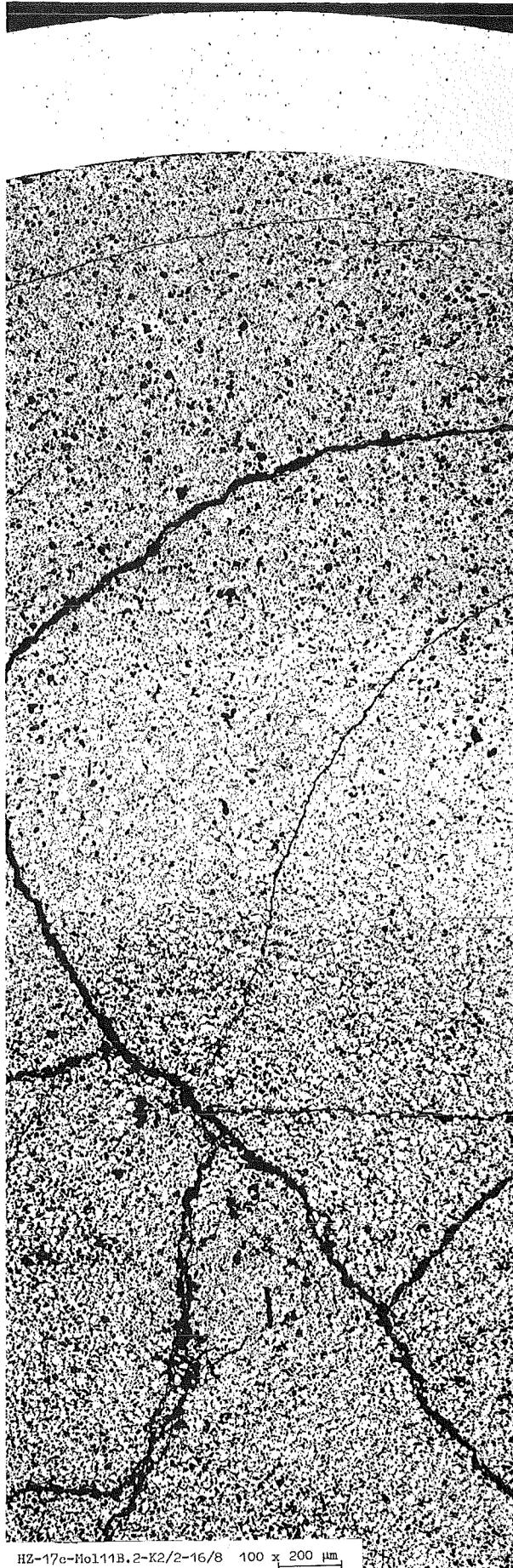
15x

1mm  
|-----|

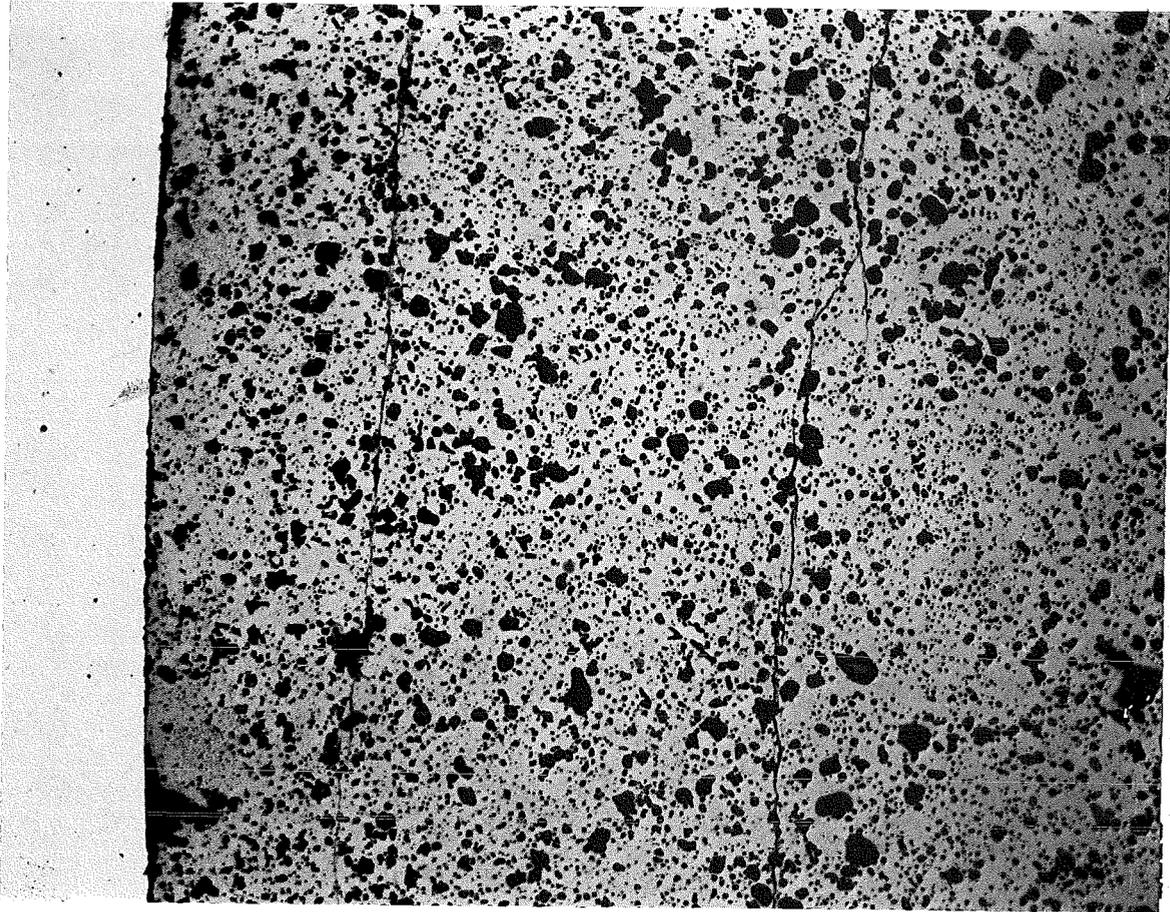
GfK Karlsruhe  
IMF/III

Mol 11: Stab K2-2 (U,Pu)C

- II/54 -  
K2-2 Schnitt 16

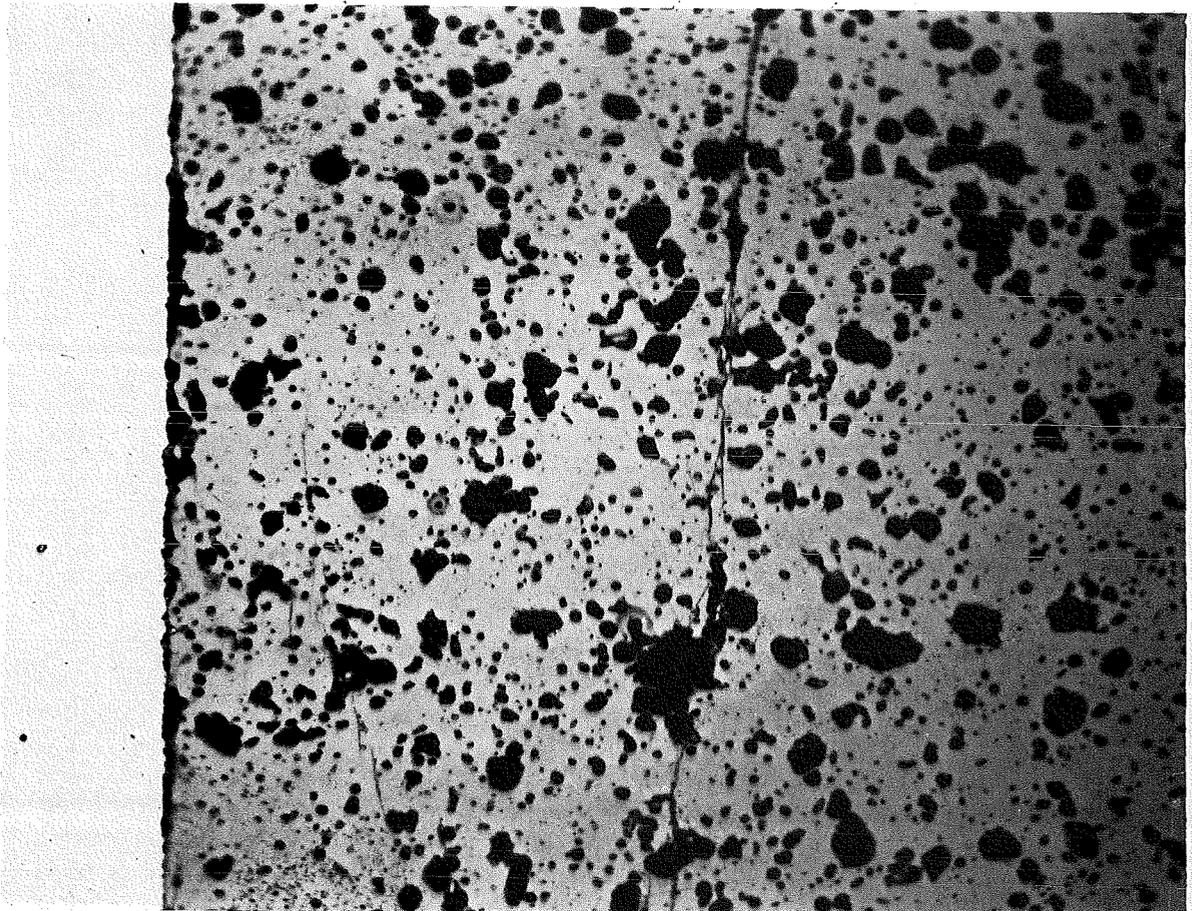


HZ-17e-Mo111B.2-K2/2-16/8 100 x 200 μm



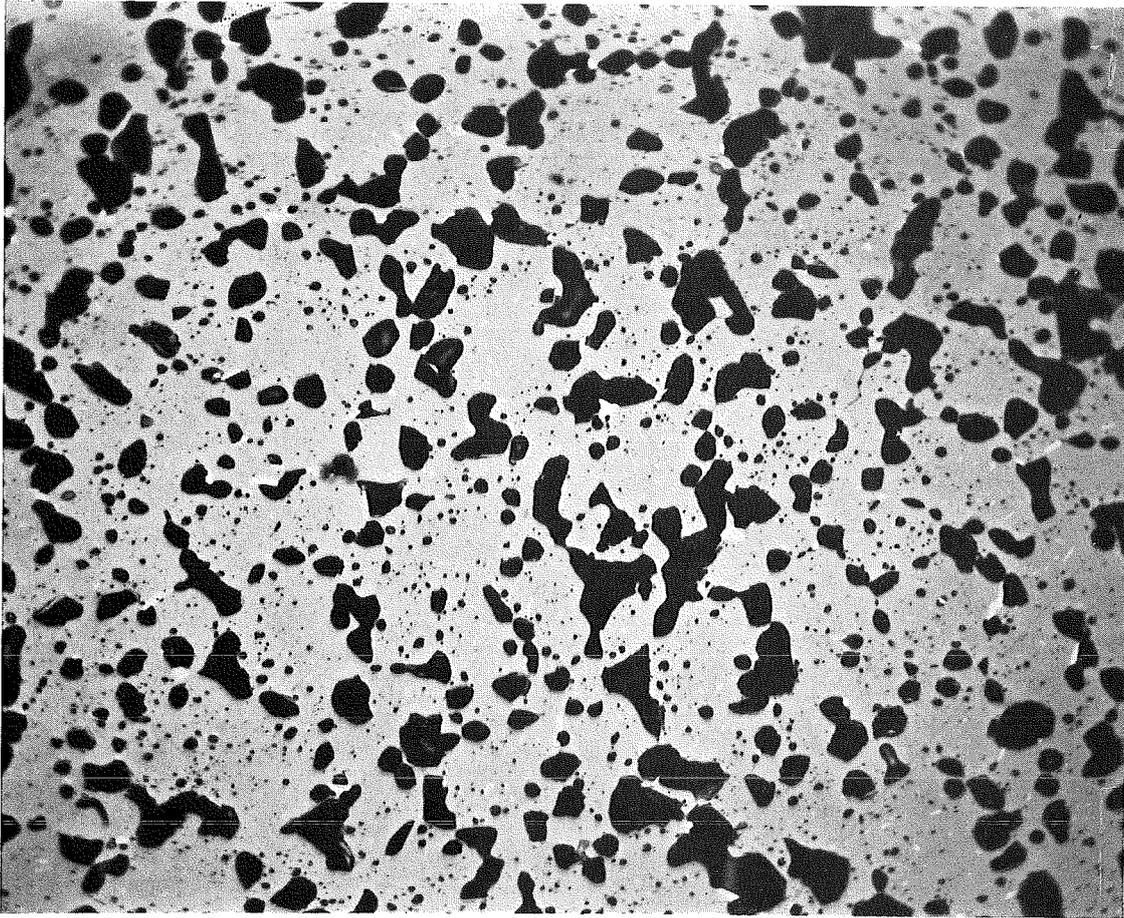
100  $\mu\text{m}$

HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-16/9 200x



40  $\mu\text{m}$

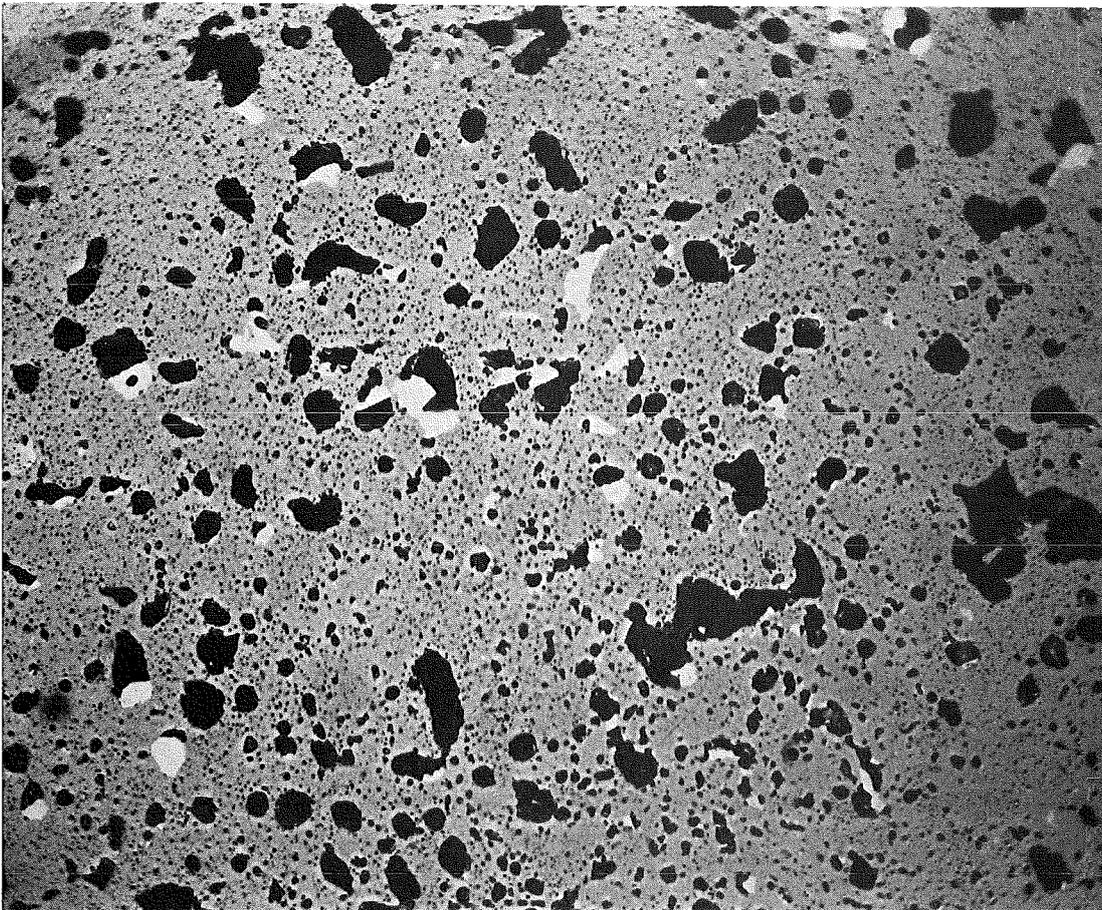
HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-16/10 500x



40  $\mu\text{m}$

500x

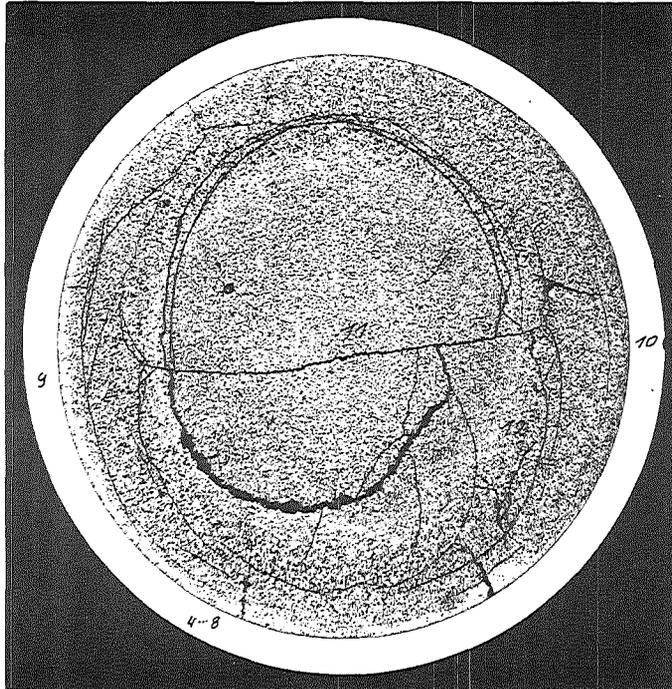
HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-16/11



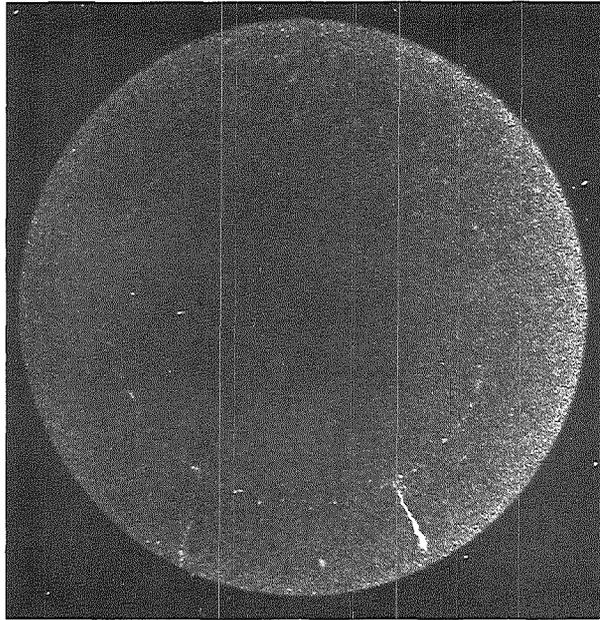
40  $\mu\text{m}$

500x

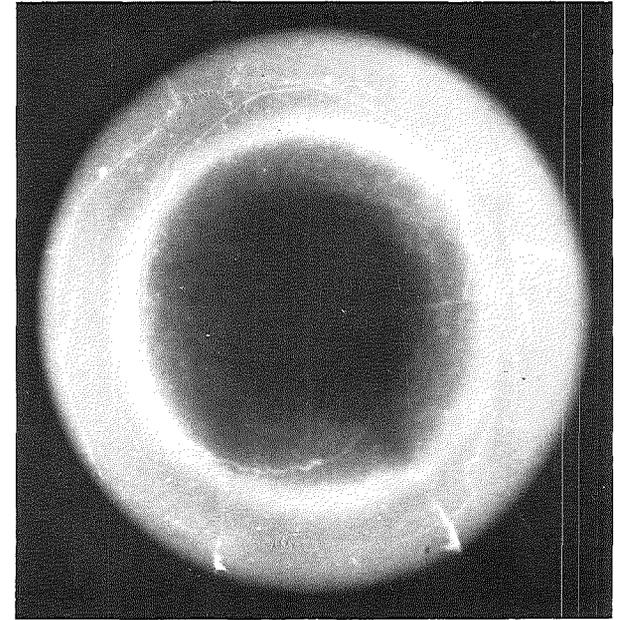
HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-16/12



Schnitt 19



$\alpha$  (1,5 sec.)



$\beta + \gamma$  (7 sec.)

Autoradiografie

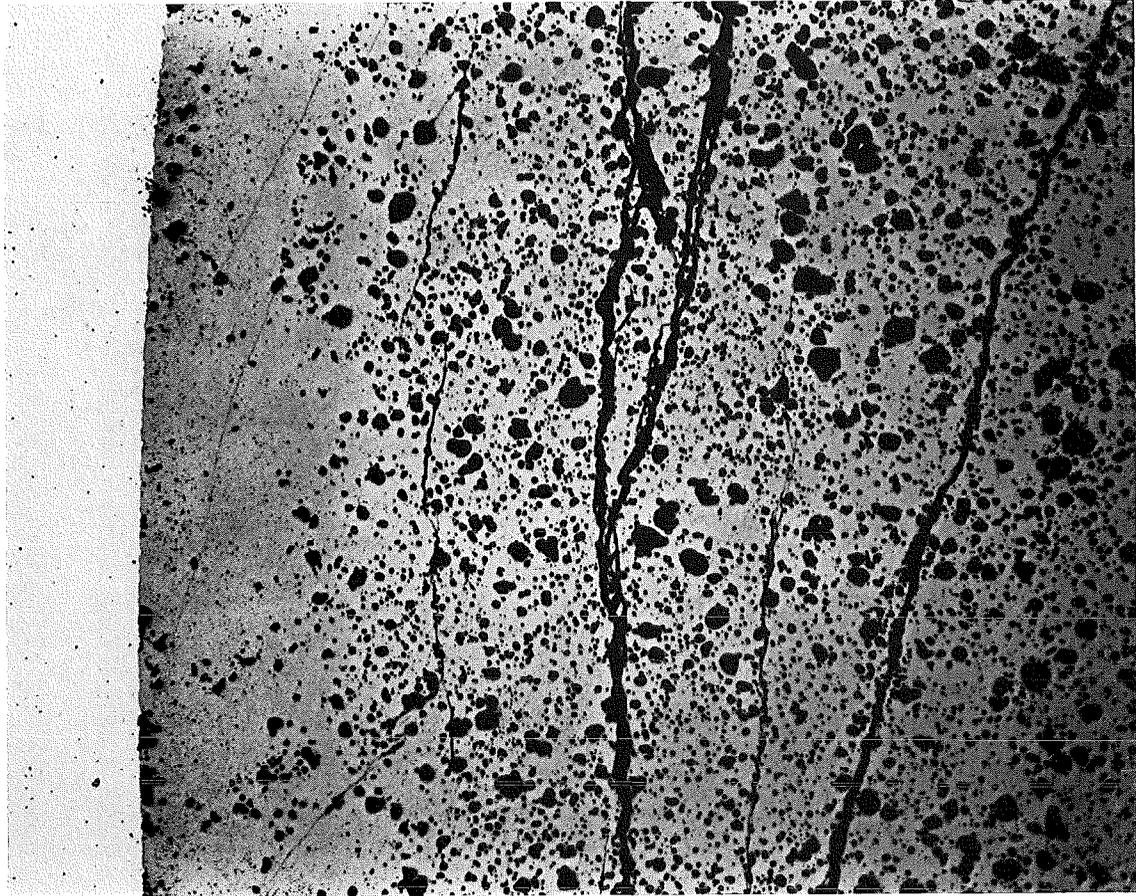
15x  1mm

GfK Karlsruhe

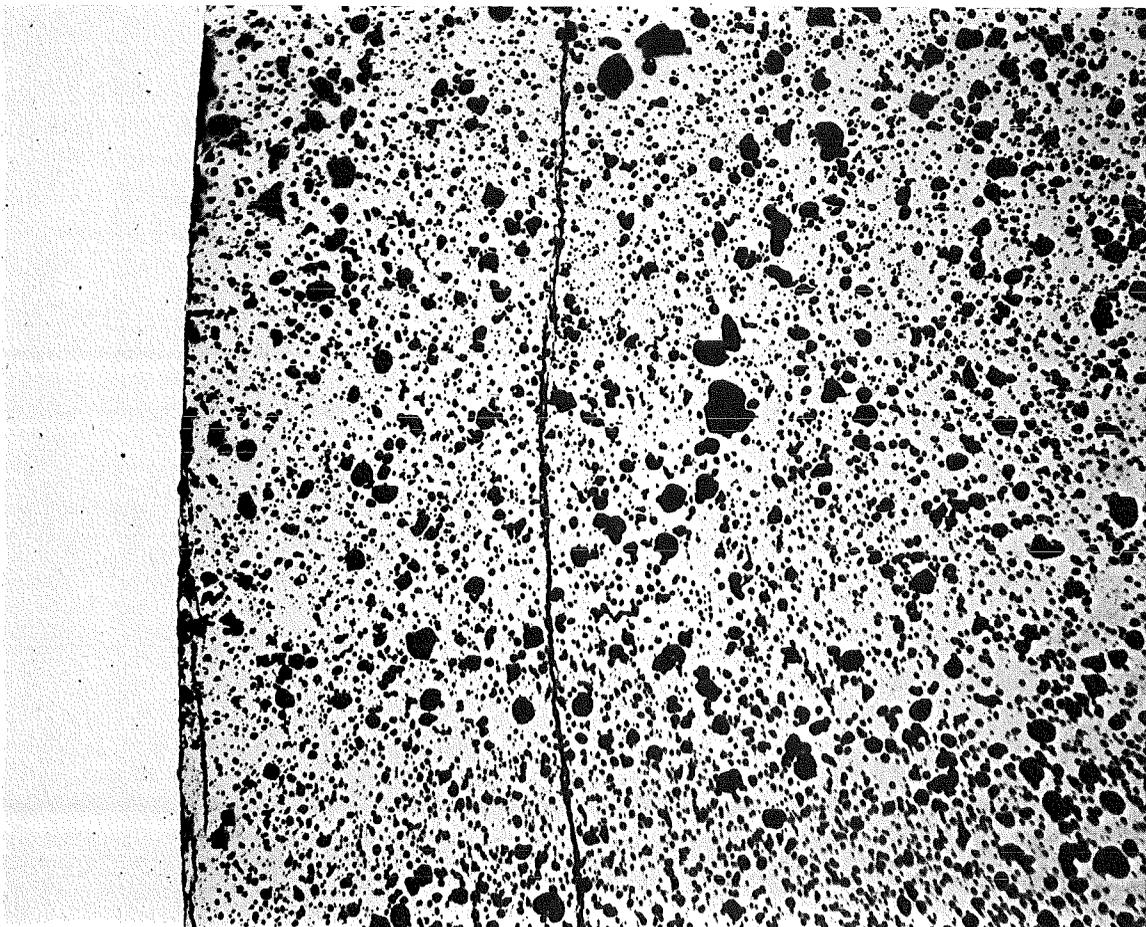
IMF/III

Mol 11: Stab K2-2 (U,Pu)C

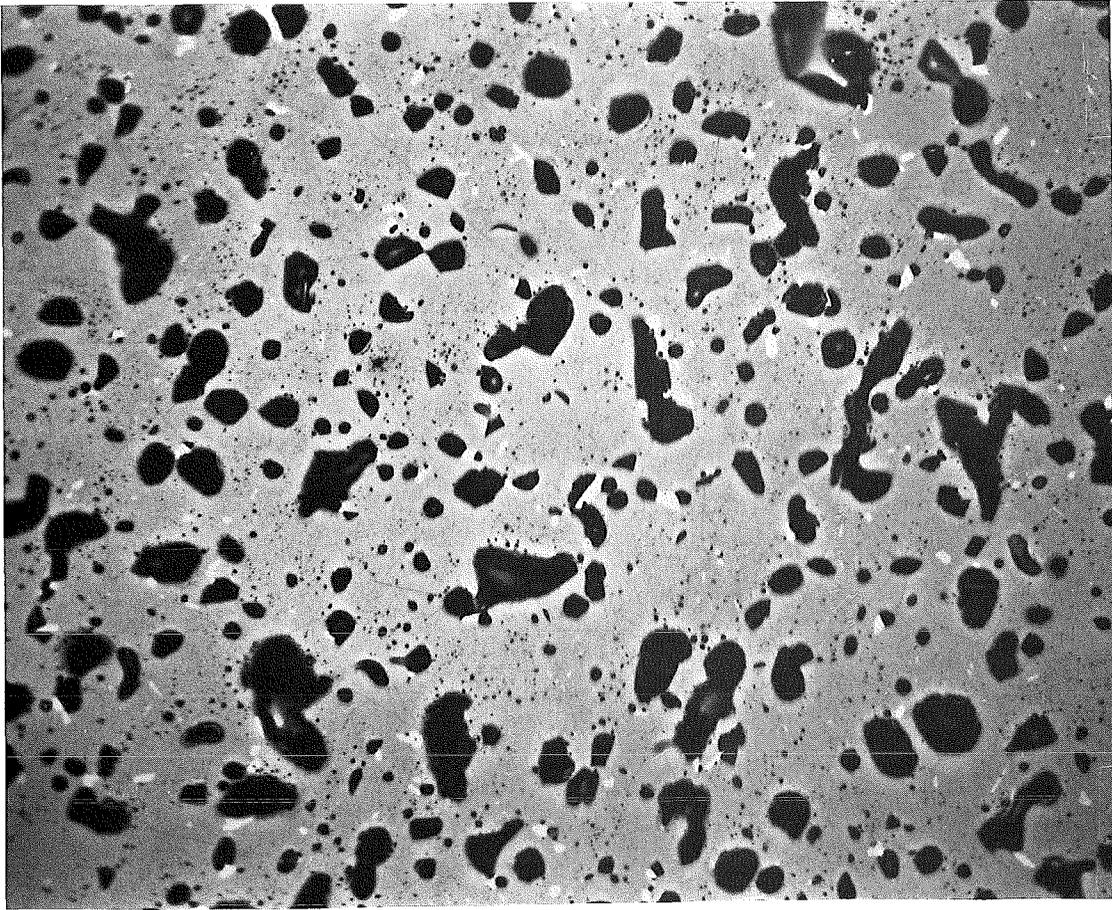




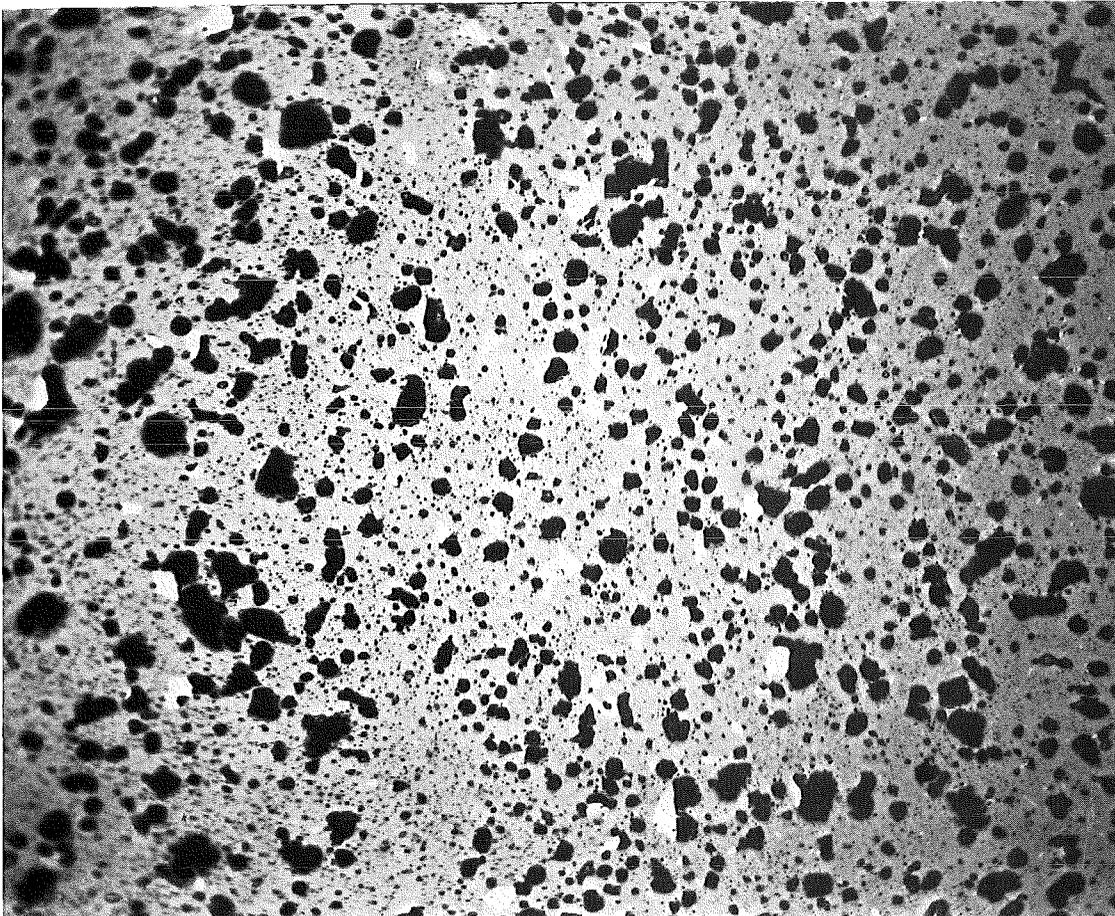
HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-19/9 200x 100 μm



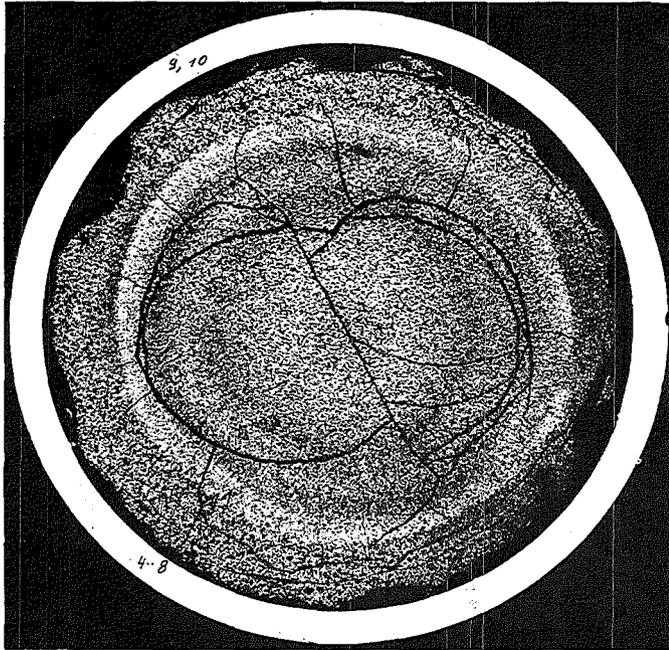
HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-19/10 200x 100 μm



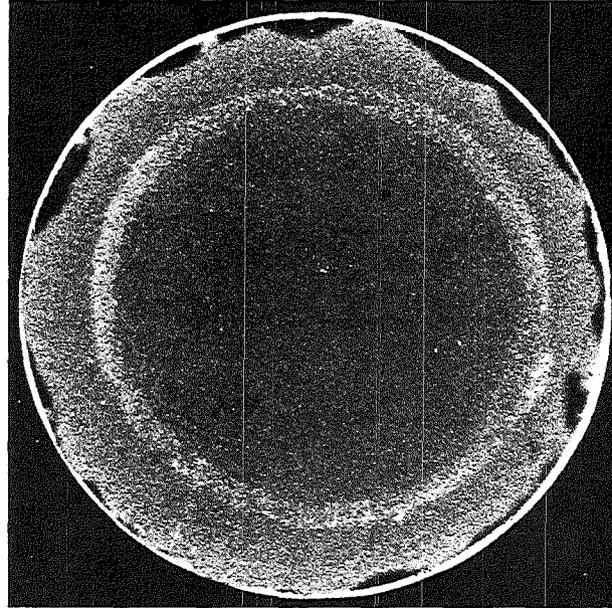
HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-19/11 500x 40  $\mu\text{m}$



HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-19/12 500x 40  $\mu\text{m}$



Schnitt 22



$\alpha$  (1,5 sec.)



$\beta$ - $\gamma$  (7sec.)

Autoradiografie

15 x

1mm  
└───┘

GfK Karlsruhe

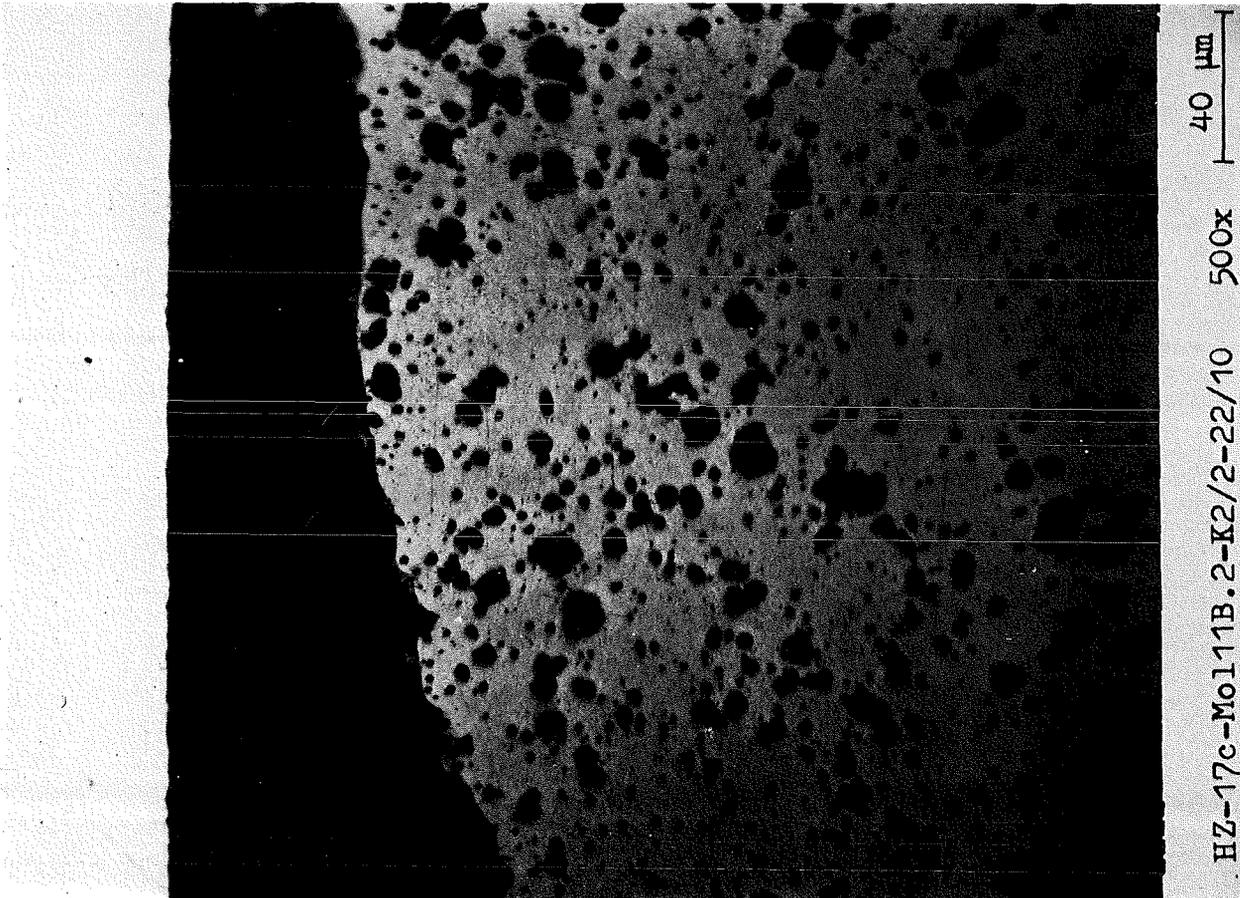
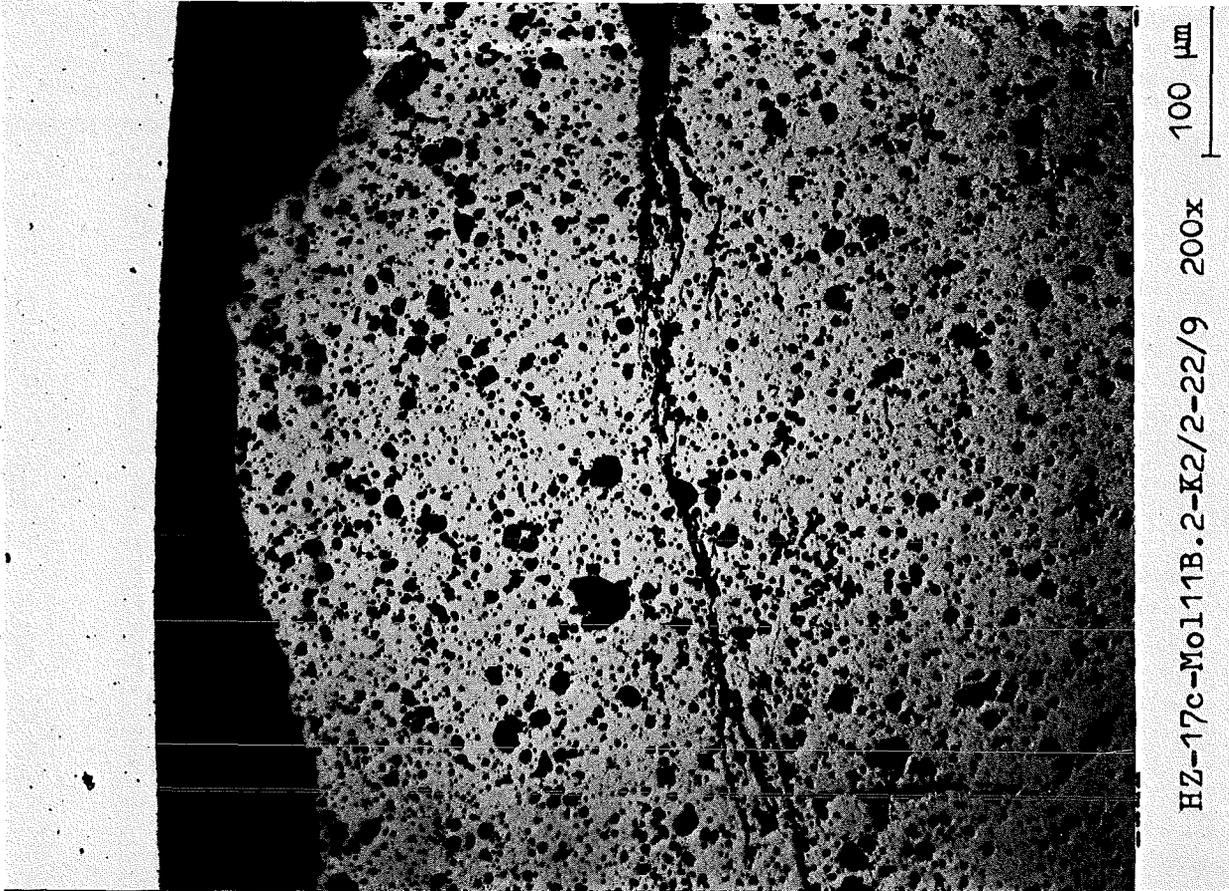
IMF/III

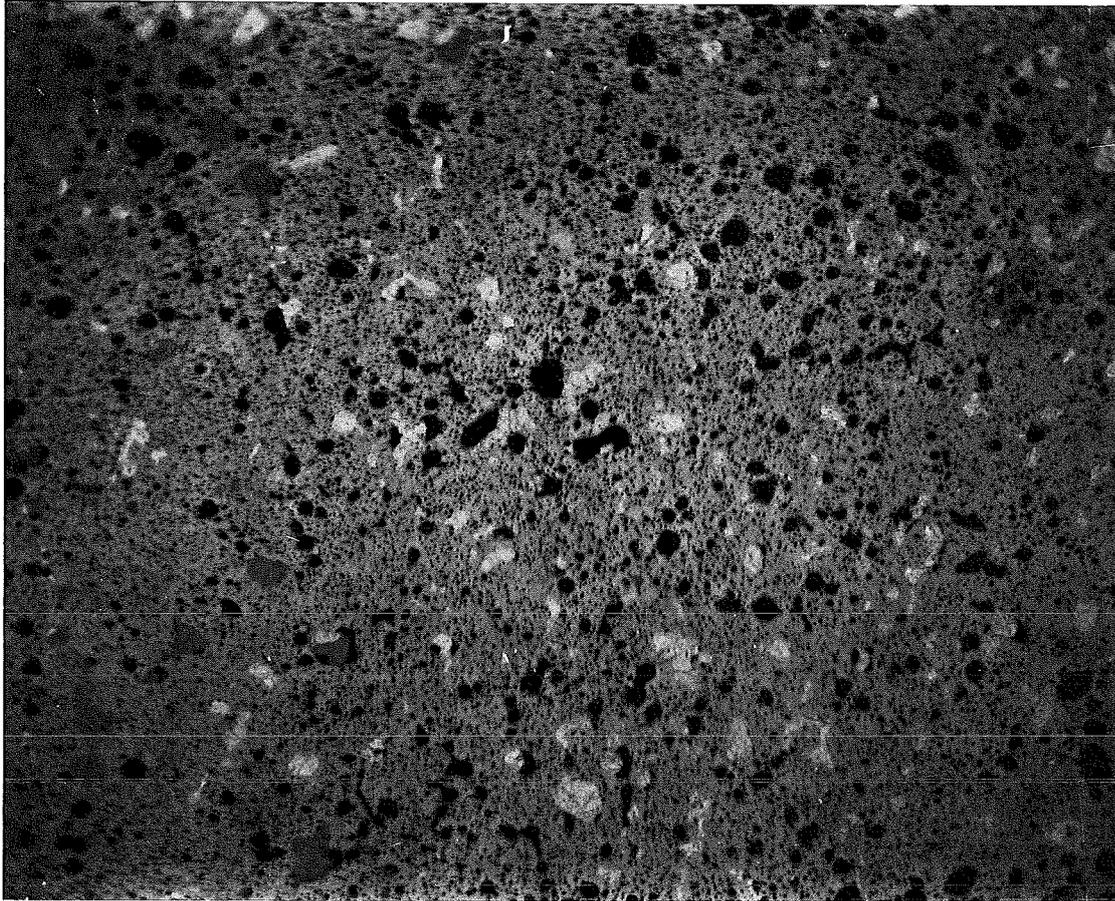
Mol 11: Stab K2-2 (U,Pu) C

- II/62 -  
K2-2 Schnitt 22

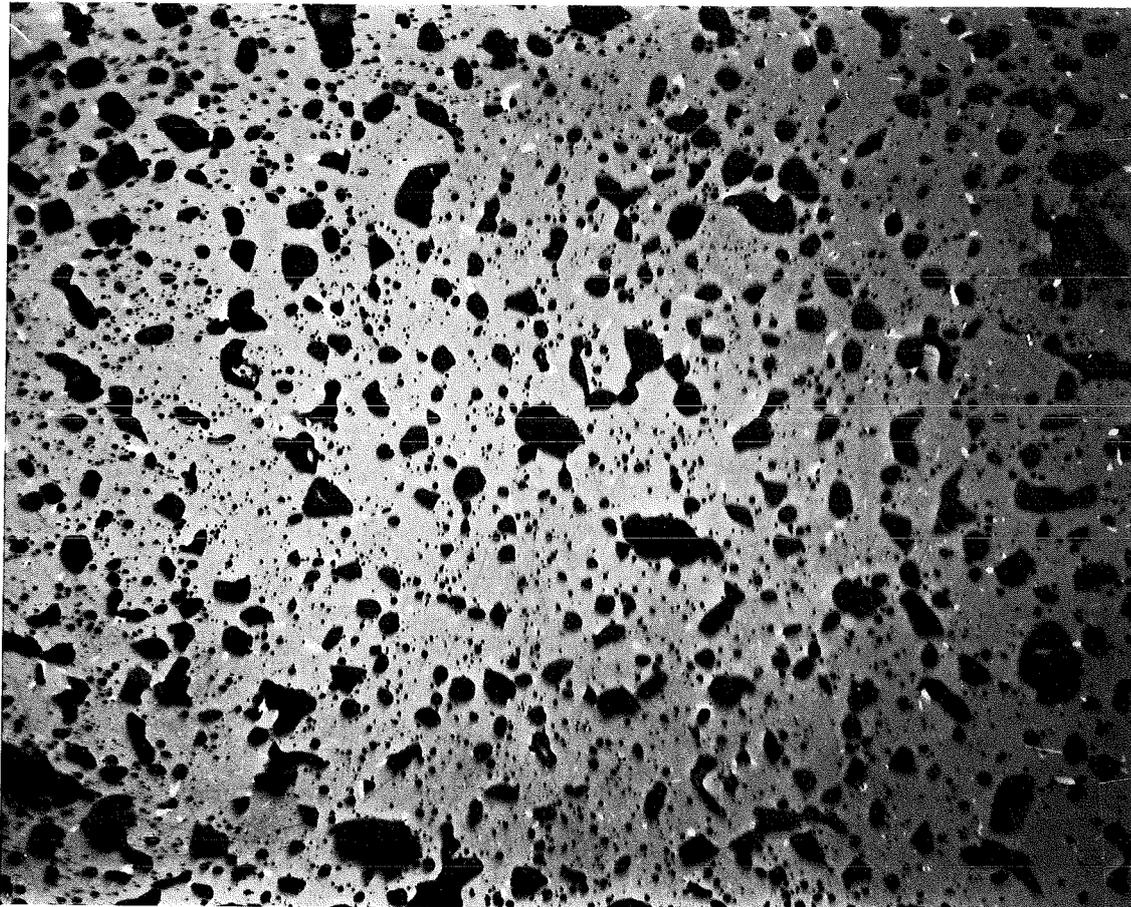


HZ-17c-No111B.2-K2/2-22/8 100x 200 µm





HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-22/11 500x 40 µm



HZ-17c-Mo111B.2-K2/2-22/12 500x 40 µm

Prüfling K2-2	
<b>Brennstoff :</b>	
Form	: Tabletten
Zusammensetzung	: (U,Pu)C
Tablettendichte	: 83,4 % th. D.
<b>Hülle :</b>	
Material	: 1.4988
Aussendurchmesser	: 8,0 mm
Wandstärke	: 0,45 mm
<b>Geometrie :</b>	
Länge des Prüflings	: 1022 mm
Länge der Brennstoffsäule	: 510 mm
Radiale Spaltweite	: 70 µm
Schmierdichte	: 80,0 % th.D.
<b>Bestrahlung :</b>	
Einrichtung	: Kapsel FASOLD Mk IIIc
Dauer	: 271 Vollasttage
Ende	: 29.9.73
Rechn. Abbrand max.	: 77,3 MWd/kg Me
Stableistung über alle Zyklen max	: 1230 W/cm

