

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

Oktober 1976

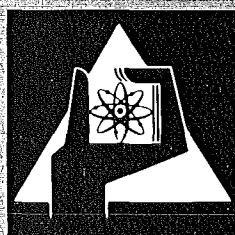
KFK 2416

Projekt Schneller Brüter

Das Brennelement des Natrium-Brüters

**Fachtag der Fachgruppe der Kerntechnischen Gesellschaft zum
Thema Brennelemente und Brennstoffkreislauf
Karlsruhe, 28./29. Oktober 1976**

Herausgeber: G. Karsten



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

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK-2416

Projekt Schneller Brüter

DAS BRENNELEMENT DES NATRIUM-BRÜTERS

Fachtag der Fachgruppe der Kerntechnischen Gesellschaft

zum Thema Brennelemente und Brennstoffkreislauf

Karlsruhe, 28./29. Oktober 1976

Herausgeber: G.Karsten

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

BERICHT ÜBER DIE KTG-FACHTAGUNG
AM 28. UND 29.10.76 IN KARLSRUHE

DIE FACHGRUPPE "BRENNELEMENTE UND BRENNSTOFFKREISLAUF" DER KERNTHEINISCHEN GESELLSCHAFT STELLTE IHREN FACHTAG 1976 UNTER DAS THEMA "DAS BRENNELEMENT DES NATRIUMBRÜTERS - ANFORDERUNGEN, ENTWICKLUNG, INTERNATIONALER STAND, POTENTIAL". DIE VORTRÄGE GABEN EINEN WEITGESPANNTEN ÜBERBLICK VON DEN LEITLINIEN DER SNR-BRENNELEMENT-ENTWICKLUNG ÜBER DIE KONZEPTE DER SNR-KERNE BIS ZUM SNR-2, DAS VERHALTEN DER BRENNELEMENTE BEI STÖRFÄLLEN, DIE HERSTELLUNGSTECHNOLOGIEN, DIE KARBID-BRENNELEMENT-ENTWICKLUNG BIS ZUR WIEDERAUFARBEITUNG DER SCHNELLBRÜTER-BRENNELEMENTE.

INHALTSVERZEICHNIS

	<u>Seite</u>
1. Entwicklungsstand und Herstellungstechnologien der Brüter-Brennelemente - Zusammenfassung - (G.Karsten, GfK)	1 - 3
2. Leitgedanken zur SNR-Brennelementforschung (G.Karsten, GfK)	4 - 11
3. Die SNR-Kerne-KNK-II, SNR-300 bis SNR-2 (J.Höchel, Interatom)	12 - 18
4. Brennelemente für Brüter-Kraftwerke - Internationaler Stand (K.Kummerer, GfK)	19 - 26
5. Die Kernelemente des SNR 300 (W.Biermann, H.Többe, K.H.Wenk, Interatom)	27 - 37
6. Kern- und Brennelementkonzepte für den SNR 2 (H.Spenke, U. Wehmann, Interatom)	38 - 41
7. Die Kernelemente bei Leistungsrampen und Störfällen (H.Többe, F.Gestermann, Interatom)	42 - 49
8. Defektstab- und Störfallexperimente (H.Plitz, GfK)	50 - 59
9. Stand der Karbid-Brennelement-Entwicklung (G.Mühling, GfK)	60 - 70
10. Mit Plutonium leben? (V.Volf, GfK)	71
11. Chemische und mechanische Wechselwirkung im Oxidbrennstab (F.Thümmler, W.Dienst, GfK)	72 - 79
12. Entwicklungsstand des Hüll- und Strukturmaterials für SNR-Kernelemente (W.Dietz, Interatom)	80 - 88
13. Zur Weiterentwicklung von Hüll- und Kernstrukturwerkstoffen (K.Anderko, GfK)	89 - 94
14. Herstellungstechnologie für Brüter-Brennelemente (P.Funke, Alkem)	95 -101
15. Auslegung von Karbid-Stäben (H.Steiner, GfK)	102 -108
16. Das Karbid-Brennelement für die KNK II-Nachladung (E.Bojarsky, GfK)	109 -111
17. Die Wiederaufarbeitung von Schnellbrüter-Brennelementen (W.Ochsenfeld, GfK)	112 -126

Kurzfassung

Der Fachtag 1976 galt den Brenn-, Brut- und Absorberelementen schneller Reaktoren, den damit zusammenhängenden Materialfragen und den vorgesehenen Reaktorkernkonzepten. Ein abschließender Vortrag behandelte die Wiederaufarbeitung abgebrannten Brennstoffs.

Die Referate zeigen, daß die Lösung des Problems zuverlässiger Brennelemente letztlich nur am Orte ihrer endgültigen Bestimmung zu erproben und zu finden ist, was im speziellen Fall des SNR in etwa fünf Jahren der Fall sein wird. Bis dahin werden Ungewißheit und Extrapolationen mit der Tagesarbeit verbunden bleiben.

Das Brennelement des Natriumbrüters ist über den Zweifel hinweg, ob es grundsätzlich funktioniert. Noch offen ist jedoch die Frage, was noch alles an Ausschöpfbarem in ihm steckt und was nicht.

Fuel Elements for Liquid Metal Fast Breeder Reactors

Abstract

The 1976 topical meeting on fast reactor fuel elements covered the aspects of fissile and absorbing elements, including materials and designs. One report was devoted to reprocessing. The contributions demonstrate that reliable proof testing of fuel elements only can be done in the SNR itself; this will be in about 5 years from now. During this intermediate period the designs will be based on extrapolations. However, there is no doubt that the present design is operable. It is only the potential which is unknown.

Zusammenfassung

Entwicklungsstand und Herstellungstechnologien

der Brüter-Brennelemente

KFK-Nachrichten 8,2/3,1976

G.Karsten, Kernforschungszentrum Karlsruhe

Projekt Schneller Brüter, Postfach 36 40, 7500 Karlsruhe

Die 16 Referate zeigten, daß die Lösung des Problems zuverlässiger Brennelemente am besten am Orte ihrer endgültigen Bestimmung zu erproben und zu finden sei, was im speziellen Fall des SNR in etwa fünf Jahren der Fall sein wird. Bis dahin werden Ungewißheit und Extrapolationen mit der Tagesarbeit verbunden bleiben. Das einleitende Referat über die Leitgedanken zur Brennelemententwicklung galt vor allem der Frage, wie die bisherigen technologischen Erfahrungen der großen Brüterprogramme in Frankreich und Amerika und der rasche Anpassungsprozeß an Umweltforderungen die eigene Entwicklung beeinflussen. Resümee: Zum ersten ist das Erfahrungsverhältnis beim Brennstab etwa

100 : 10 : 1

für Frankreich : Amerika : SNR-Gruppe,

also ein schwer einholbarer technologischer Entwicklungsvorsprung. Zum anderen wirken sich die Überwachungsmaßnahmen beim Spaltstoff und die Personenschutzmaßnahmen insofern wirtschaftlich erschwerend aus, als sie über ihre Investitionen die Kreislaufkosten belasten. Auf diese Weise stehen die Beweisführung der Zuverlässigkeit des oxidischen Brennelementes eigener Machart und die Mechanisierung bzw. die Automation des Brennstoffkreislaufes als wachsende Hindernisse auf dem Forschungswege der nächsten Jahre.

Es bahnt sich daher der vernünftige Weg an, sich zunehmend mehr auf Forschungsgebiete internationalen Brennpunktcharakters, z.B. Wiederaufarbeitung, Störfall-Unfallverhalten von Brennelementen und die Suche nach resistenteren Hüll-, Kasten- und Tankmaterialien als auf langwierige eigene Lösungen zu konzentrieren. Das bedeutet allerdings zunächst noch bis in die 80-er Jahre hinein, die eigenen begonnenen Lösungen zu vollenden - die bisherigen Erfolge sind ermutigend -, sich aber in bewußter Flexibilität auf die Anforderungen zukünftiger Marktsituationen vorzubereiten.

In weiteren Vorträgen kam auch das Thema Steigerung des Brutgewinns zur Darstellung. Beide Lösungen, das heterogene Oxid und das Karbid, zielen auf das Schließen einer möglicherweise aufkommenden Versorgungslücke, durch die Uranweltmarktsituation bedingt. Während der heterogene Oxidkern Gegenstand derzeitiger Durchrechnungen ist, läuft die Karbidentwicklung seit 1968 auf das zunächst begrenzte Ziel der Ersterprobung einiger Brennelemente im SNR 300 zu. Die Frage der Einführung effektiver brütender Lösungen wird wesentlich von der Entwicklung auf dem Gebiet der Energieversorgung abhängen.

Auf den zweiten Tag mit der Frage "Mit Plutonium leben?" überzuleiten (von Prof. Volf, einem Fachmann der Strahlenbiologie, in einem Abendvortrag beantwortet), ist eine glückliche Idee der Veranstalter gewesen. Denn hier wurde in humorvoller, aber informativer Weise das Problem der Plutoniuminkorporation dargestellt: Die Medizin steht ihm mit einer Reihe von Forschungsergebnissen und praktischen Lösungen behandelnd gegenüber.

Der zweite Tag galt zunächst der Materialentwicklung. Hat das Hüllrohr den chemischen Innenangriff des Brennstoffs überstanden, kann es, durch energiereiche Neutronen weitgehend versprödet, plötzlichen mechanischen Wechselbelastungen nach einer anfänglichen Teildeformation kaum noch standhalten, wenn die Reaktorleistung zu oft schwankt, z.B. infolge des Kraftwerkverbundbetriebes. Was hier vielleicht hilfreich erscheint, das raumgebende Aufschwellen des Hüllmaterials, wird dort zum Nachteil, wo der äußere geometrische Raum begrenzt wird, beim Brennelementkasten. Verbiegungen und Verspannungen können bei zu hohen Betriebszeiten das zulässige Maß überschreiten. Nach besseren Materialtypen wird daher geforscht. Einige Gruppen suchen dazu das Feld der Legierungen zwischen Eisen und Nickel ab, andere bemühen sich, durch mechanische oder thermische Methoden strukturell günstige Legierungszustände zu erzeugen. Das wird zu einer allseits befriedigenden Lösung sowohl national wie international noch Jahre in Anspruch nehmen.

Auf dem Gebiet der Herstellungstechnologien wurde deutlich, wie wertvolle Informationen aus größeren Übungen, z.B. der Fertigung des Kernes für den KNK II im Vorfeld der Kernherstellung des SNR, gewonnen werden können. Die beeindruckende Beschreibung anspruchsvoller Bestrahlungsexperimente mit Karbidbrennelementen im KNK II bildete den Abschluß brennelementspezifischer Referate.

Die Darstellung der Wiederaufarbeitung führte den Teilnehmern Probleme der Plutoniumverluste und der radiolytischen Zersetzung des Extraktionsmittels vor Augen, so daß der Brennelemententwickler an den Anfang der Überlegung zwei Einsichten stellen sollte:

- Schon bei der Herstellung des Brennstoffes muß berücksichtigt werden, daß er am Ende seines Betriebes noch löslich ist.
- Die Auswirkung eines erhöhten Abbrandes auf die Wiederaufarbeitung ist noch nicht völlig übersehbar.

Das Brennelement des Natriumbrüters ist über den Zweifel hinweg, ob es grundsätzlich funktioniert. Noch offen ist jedoch die Frage, was noch alles an Ausschöpfbarem in ihm steckt und was nicht.

Leitgedanken zur Brennelemententwicklung

G.Karsten

A. Einleitung

Die Begriffe von Forschung und Entwicklung werden häufig miteinander verwechselt, sodaß eine Klarstellung sinnvoll erscheint. Sobald seine beabsichtigte Aufgabe wissenschaftlich eindeutig definiert ist, unterscheidet sich die Forschung auch von der Entwicklung eindeutig; weil die Forschung voraussetzender Natur ist, wird damit die wesentliche Beschränkung der Forschung deutlich: Weil sie nicht empirisch zu kurzfristigen Lösungen geführt werden kann, muß sie, um ihr Ziel zu erhalten, an einer rahmengebenden Strategie orientiert werden, die dem zeitlichen, von der Sache her bedingten Rhythmus der Forschung angemessen ist.

So ist der Forscher letztlich dazu gezwungen, nach den jeweiligen Zusammenhängen der Strategie zu fragen. Wie sieht es diesbezüglich beim Schnellen Brutreaktor, speziell auch bei der SNR-Linie, aus? Der Schnelle Brutreaktor unterliegt wie kaum ein anderer Typ der Bewertung nationaler Rohstoff- und Versorgungspolitik, weil er als Brüter von Spaltstoff eine Ergänzungsfunktion zu anderen Spaltstoff verbrauchenden Reaktortypen hat. Diese strategische Funktion ist jedoch weitgehend volkswirtschaftlichen Ereignissen und Entwicklungen unterworfen, also variabel. Die Entwicklungsstrategie für Brennelemente wird außerdem vom Prinzip her von zwei wesentlichen typischen Brütermerkmalen beeinflusst, dem Stoffpaar Plutonium/Americium und der hohen Energie schneller Neutronen und, mit letzterer zusammenhängend, der Brutfähigkeit. Plutonium als toxischer Stoff und seine Isotope 238, 242, 241 und dessen Folgeprodukt Americium 241 als heftig n- oder γ -strahlende Stoffe setzen eine Umweltrandbedingung für die Fertigung; die schnellen Neutronen im Reaktor dagegen stellen eine technische Barriere für die Verwendbarkeit der Materialien dar, die über die Neutronenabsorption wiederum das Brutvermögen beeinflussen. Es ist also bei der Schwerpunktsetzung und Gestaltung der Forschung eine Doppelfrage zu stellen: Ist bei der Aufgabenstellung der Strategie oder dem Prinzip der Vorrang zu geben?

Unter Strategie wird hier die Einführungsstrategie des Brütters verstanden. Die Abb. 1, hier als ein Beispiel, sagt aus, daß der Brüter grundsätzlich schon relativ früh den Uranverbrauch mindert und im Falle des Karbidbrüters sogar bis zu 20 Jahre früher zur Unabhängigkeit als der Oxidbrüter mit homogenem Core führt. Das kann in Zeiten kritischer Energieversorgungslagen von erheblicher Bedeutung sein. Die Einführung wird also beeinflusst durch Parameter wie Spaltstoffinventar, Brutrate und im Sinne von Wirtschaftlichkeit auch Brennstoffkreislaufkosten bzw. allgemein Stromerzeugungskosten. Insgesamt unterliegt sie also einer Vielzahl von Variablen, die z.T. stark situationsabhängig sind. Unter Prinzip wird die grundlagenorientierte Materialforschung verstanden, die auf prinzipiellen Eigenschaften des Brutreaktors beruht, der Einwirkung schneller Neutronen auf Hüll- und Strukturmaterialien und den Umgang mit Plutonium im Brennstoffkreislauf. Die Strategie beeinflusst die Wahl des Brennstoffkonzeptes, z.B. Standardoxid, heterogener Kern oder Kern mit Karbidbrennstoff. Ferner hat im ökonomischen Sinne der Abbrand einen strategischen Einfluß. Abb. 2. Im Grunde gehören hierzu auch die Fabrikationskosten. Da sie jedoch vom Spezifikum der Plutoniumverarbeitung stark beeinflusst werden, werden sie per Definition durch die prinzipiellen Themen behandelt.

Für die prinzipielle Forschung ist die Strategie zunächst als Randbedingung vorgegeben. Es muß aber berücksichtigt werden, daß Strategieänderungen dann ohne Auswirkung bleiben werden, wenn sie innerhalb der Zeitkonstante der Grundlagenforschung angewendet werden sollen. Dieser zeitliche Rhythmus beträgt 5-7 Jahre; er ist durch die mittlere Dauer von solchen Experimenten gegeben, welche voraussetzender Natur für weitere Entwicklungsschritte sind.

B. Randbedingungen für die eigene Forschung

Der internationale Stand ist bei den verschiedenen Nationen in seiner Charakteristik gleich, nicht jedoch in seiner Erfahrungsmenge. Da liegt das Verhältnis bestrahlter Brennstäbe

Frankreich : USA : SNR wie 100 : 10 : 1,

wobei die größte Anzahl etwa 30.000 ist. Das bedeutet, daß in Frankreich eine pragmatische Forschung zusammen mit dem Bau von Prototypen betrieben worden ist, die die Brennelemententwicklung bis zur Ertüchtigung des Brenn-

elementes unter konventionellen Maßstäben getrieben hat. Beim SNR hat es von Beginn her, auch beim Brüter, den kommerziellen energiewirtschaftlichen Aspekt gegeben, der etwas einseitig und fast ausschließlich die Kostensenkung durch Abbrandsteigerung und Vergrößerung des Stabdurchmessers als Leitlinie hatte, Abb. 2 obere Kurve. Daraus resultierten bisher fast alle Leitlinien zur Brennelemententwicklung. Die Verminderung der Brüterrate durch neue Erkenntnisse physikalischer und Materialeigenschaften hat die Strategie der Brütereinführung insofern beeinflusst, als sie durch die Betrachtung von gemischten Strategien LWR/HTR/Oxidbrüter/Karbidbrüter, Abb. 1, umfassender gestaltet wurde. /1/

Eine umfassendere Betrachtung volkswirtschaftlicher Zusammenhänge bei der Energieversorgung unter Berücksichtigung einer gemischten LWR/Brüterstrategie und daraus folgender wirtschaftspolitischer Maßnahmen spielte bisher deshalb eine geringe Rolle, weil der Einfluß des Rohstoffmarktes (Öl, Kohle, Uran etc.) auf volkswirtschaftliche Entwicklungen schwer vorhersagbar ist. Zum andern dominierte die Rohstofffrage für den LWR auch nicht, weil bis etwa 1971 das Uran preislich günstig und unbeschränkt verfügbar war. Schließlich wurde von einer Extrapolierbarkeit der Brennelementfabrikationskosten aus Kleinanlagen der heutigen prototypischen Technologie auf solche aus großen Anlagen ausgegangen. Beides hat sich grundlegend geändert: Seit der Ölkrise ist der Uranmarkt, im weiteren Sinne der Spaltstoffmarkt, hinsichtlich Preis und Verfügbarkeit in Bewegung geraten, und andererseits wirken die Umweltforderungen auf die Kostengestaltung bei der Fabrikation Pu-haltiger Brennelemente erheblich ein. Wie die Randbedingung der Forschung sich dadurch ändern kann zeigt das Beispiel der unteren Kurve in Abb. 2, in welcher das Plutonium wegen des bestehenden Pu-Marktes einen Handelswert besitzt. Allerdings muß man hier berücksichtigen, daß, wie schon gesagt, die Forschungsorientierung außer von strategischen Überlegungen auch von prinzipiellen geleitet wird. So kann sich die untere günstigere Kostenkurve durch das Plutonium/Americium Problem wieder nach oben verlagern. Zusätzlich kann es durch schnelle Neutronen eine Abbrandverringerung und damit eine weitere Kostensteigerung geben. Dadurch wird der Forschungsbereich unter Berücksichtigung der Begrenzung der finanziellen Mittel eingegrenzt und definiert, Abb. 2 schraffierter Kreis.

/1/ R.Schröder/GfK; J.Wagner, Interatom; Überlegungen zur Einführung Schneller Brutreaktoren im DeBeNeLux-Bereich, KFK-Ext. 25/75-1, Juni 1975

Nachdem erkannt ist, daß die prinzipielle Forschung die strategische erheblich beeinflussen kann, kann sie zwischenzeitlich eine verstärkte Bewertung erhalten.

Es ist jedoch unerläßlich, ständig zwei Tatsachen im Auge zu behalten. Erstens ist die Uranversorgung für das nächste Jahrzehnt problematisch, Abb. 3, wodurch alle Einführungsstrategien der Kernenergie tiefgreifend verändert werden können. Dadurch könnte wieder ein Trend zur beschleunigten Brütereinführung entstehen, wodurch die Brutfähigkeit wieder höher bewertet würde. Zweitens kann es zu einer Neubewertung des Abbrandes insofern kommen als die Strategie des Brennstoffkreislaufes noch keineswegs festgelegt ist. Das hängt mit seinen komplexen Problemen zusammen. Schließlich ist die Bilanz volkswirtschaftlicher Belastbarkeit durch Energiepreissteigerung noch nicht gezogen, so daß auch hier dem Abbrand als preisintensiveren Faktor eine beständige Bedeutung zukommt.

C. Die Forschungsschwerpunkte der Brennelemententwicklung der nächsten Jahre

Aus dem bisher Gesagten ergeben sich die bereits beschriebenen zwei Forschungskategorien:

1. Die prinzipielle Forschung.
2. Die strategische Forschung.

Zur prinzipiellen Forschung zählen

- a) Senkung der Fabrikationskosten unter steigenden Umweltforderungen.
- b) Steigerung der Neutronenresistenz von Hüll- und Strukturmaterialien.

Zur strategischen Forschung zählen

- a) Brutgewinnsteigerung im Sinne der Spaltstoffversorgung.
- b) Abbrandsteigerung zum Zweck der Wirtschaftlichkeitsoptimierung.

Im einzelnen haben die Themen unter 1 und 2 folgende Kriterien und Merkmale der Forschung zur Folge:

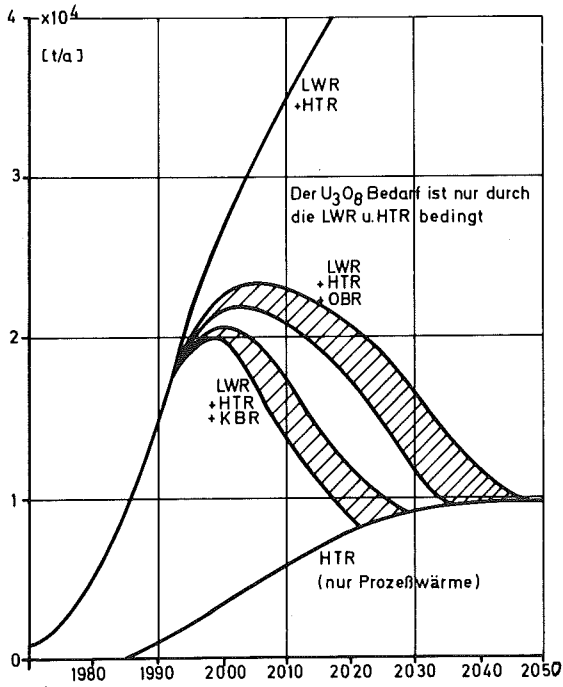
- 1a. Der Brennstoff muß umweltgerecht herstellbar sein. D.h. die Strahlung, insbesondere der γ - und n-strahlenden Isotope muß durch technologische Maßnahmen in eine zulässige Dosisbelastung umgesetzt werden, Tab. 1 - 3.

Das bedingt eine Wandlung der Herstellungstechnologie hin zur Mechanisierung und Automation, Abb. 4. Gleichzeitig muß der Brennstofftyp den Auflösungsanforderungen aus der Wiederaufarbeitung angepaßt sein.

- 1b. Das Hüll- und Strukturmaterial muß hinsichtlich der Versprödung, Abb. 5, des Kriechens und Schwellens widerstandsfähig gemacht werden. Dazu gibt es mehrere Methoden, nämlich metallphysikalische, Abb. 6, und thermisch/mechanische, Abb. 7. Diese Materialtypen sind sowohl stationärer als auch in einem Störfallprogramm nichtstationärer Erprobung zu unterwerfen. Die Kriterien des Störfallprogramms zeigt Abb. 8.
- 2a. Die Bruttogewinnsteigerung betrifft die Erprobung karbidischen Brennstoffes. Hier geht es im wesentlichen um die Entwicklung eines Herstellungsverfahrens des Brennstoffes und dessen Erprobung in zwei Konzeptvarianten, Abb. 9. Die Frage dabei ist, ob bei gleicher Schmierdichte eine Brennstofftablette mit hoher Dichte und großem Spalt oder kleiner Dichte und kleinem Spalt zu den geringsten mechanischen Betriebsbelastungen der Hülle führt.
- 2b. Die Abbrandsteigerung wird durch die Bearbeitung des Materialproblems unter 1b vom Prinzip her betrieben. Von der Marktstrategie her ist sie unter 2b durch Zuverlässigkeitstests von Brennelementen als Komponente zu betreiben.

D. Zusammenfassung

Innerhalb der Forschung zur SNR-Brennelemententwicklung verlagert sich der Schwerpunkt von der strategischen zur prinzipiellen Thematik. Nicht mehr der Bruttogewinn und der Abbrand stehen allein im Vordergrund, sondern vor allem das Fabrikationsverfahren und Materialfragen. Beim Fabrikationsverfahren spielen die Abschirmung gegen Plutonium und Americium mittels Mechanisierung und Automation, sowie im Hinblick auf die Wiederaufarbeitung, die Löslichkeit des Brennstoffes, eine führende Rolle. Bei den Materialfragen geht es um die Widerstandsfähigkeit gegen Strahlenschäden, also die Versprödung, das Schwellen und Kriechen, ferner im Störfallprogramm um nichtstationäre Belastungen. Die derzeit zweitrangig eingeordnete Karbid- und Abbrandforschung behandeln Fabrikations- und Konzeptfragen bzw. bei der Abbrandforschung Zuverlässigkeitstests.



JÄHRLICHER U_3O_8 BEDARF [t/a]
(STANDARDPROGNOSE) STROM-UND
PROZESSWÄRMEERZEUGUNG UNABHÄNGIG

Abb. 1

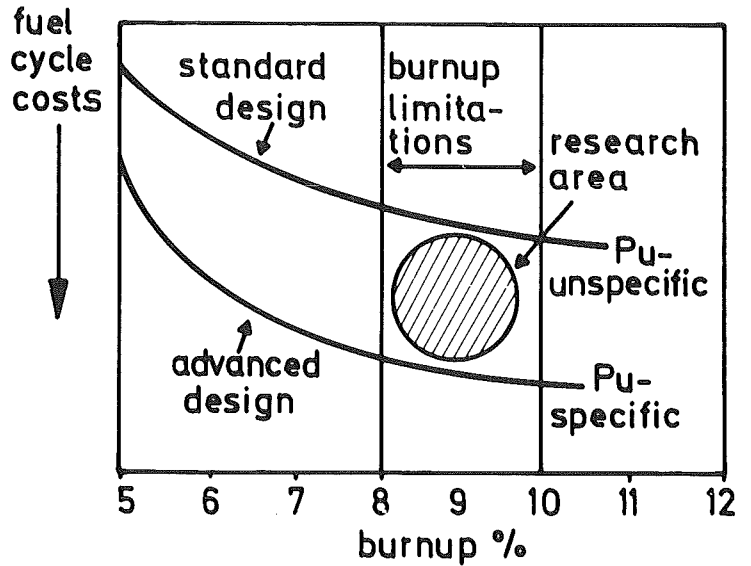
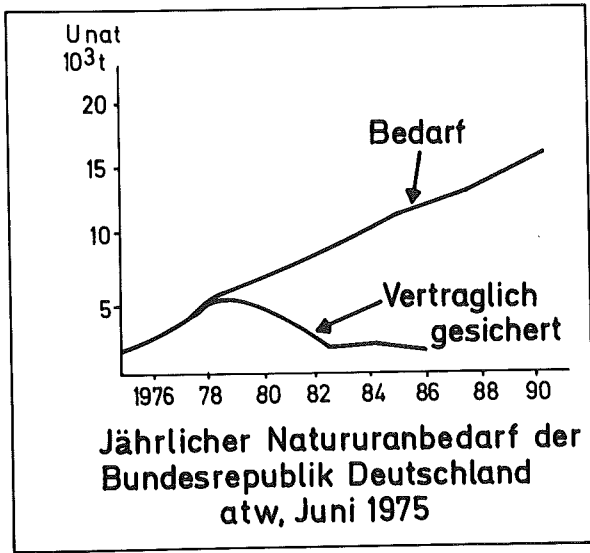


Abb. 2

Standortbestimmung der Forschung zwischen "ökonomischen" (obere Kurve) und "strategischen" (untere Kurve) Leitlinien. Vertikale Begrenzung durch Materialeigenschaften.

HIGH PERFORMANCE FUEL LABORATORY



Jährlicher Natururanbedarf der
Bundesrepublik Deutschland
atw, Juni 1975

Abb. 3

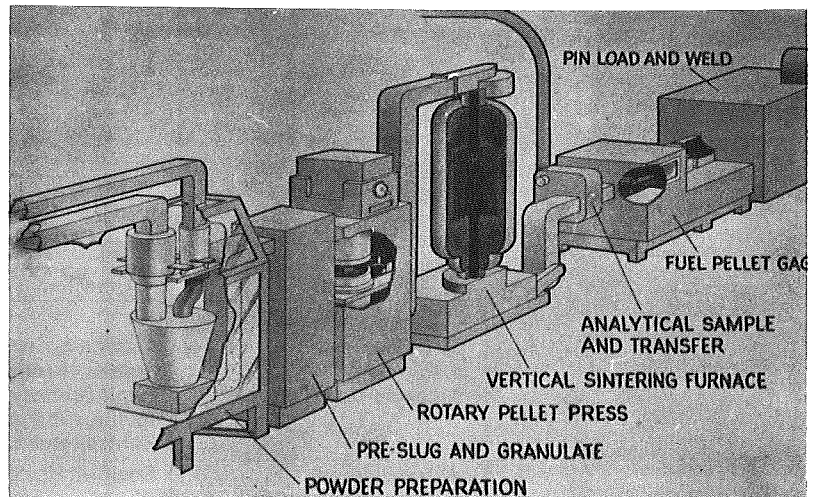


Abb. 4

Geschlossene automatische und abgeschirmte Brennelement-Fabrikationsanlage.

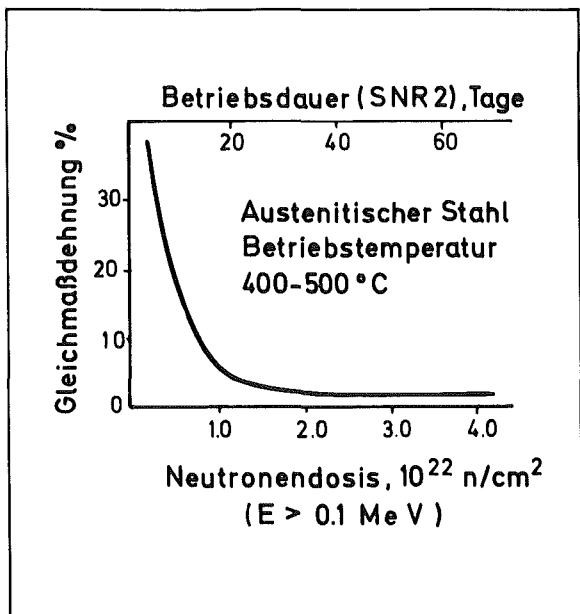


Abb. 5: Versprödungsverhalten in Abhängigkeit von der Betriebsdauer im Kraftwerksbetrieb

Metallurgical Optimization

III. Gruppe	IV. Gruppe	V. Gruppe	VI. Gruppe	VII. Gruppe	VIII. Gruppe
B 10.8	C 12.0	N 14.0			
	Si 26.1				
	Ti 47.9	V 50.9	Cr 51.9	Mn 54.9	Fe 55.8 Ni 58.7
	Zr 81.2	Nb 82.8	Mo 95.9		
			W 183.8		

Basic alloy
 Additives
 Stabilization

Abb. 6: Die Stahlchemie

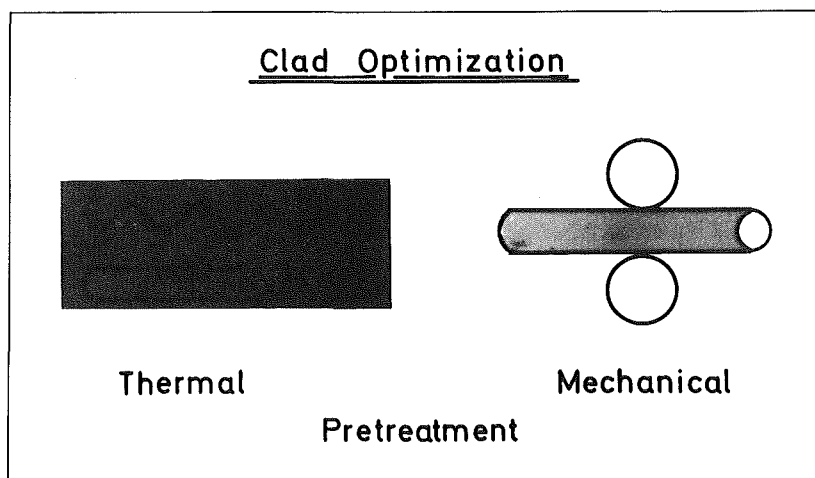


Abb. 7: Die Stahlvergütung

SNR-STÖRFALLPROGRAMM

Störfalltyp	Ursachen
1. LEISTUNGS STÖRUNGEN	
a. Hartes Zyklieren	Anormale Betriebsbedingungen
b. Rampen	Umladen, Kontrollstabbewegungen
c. Lokale Überhöhungen	Axiale Brennstoffverlagerung
	Toleranzüberschreitungen
	Kontrollstab bewegung
d. Transienten	Reaktivitätsstörungen
2. KÜHLSTÖRUNGEN, HÜLLTEMPERATUR- ÜBERHÖHUNGEN	
a. Lokale Hülltemperaturerhöhungen (Kurz-/langfristig)	Steuerstabbewegungen, Verengungen, Verbiegungen, Blockaden, Ablagerung
b. Globale Hülltemperaturerhöhungen	Pumpenausfall, Leckagen, Ausfall, Wärmesenken

Abb. 8

Carbide Design

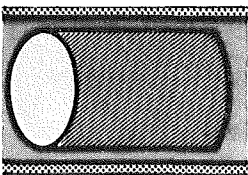
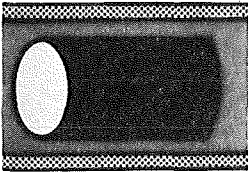


Abb. 9

Konzeptstudie optimaler Raumausnutzung durch geeignete Tablettdichte.

Tab. 1:

γ -Oberflächendosisleistung (rad/hkg) reiner Isotope

Pu-238	900
239	0,7
240	14
241	12
242	0,06
Am 241	1500

Die n-Dosisleistung der Pu-Isotope 238 und 242 hat etwa die gleiche Stärke wie die γ -Leistung von Am 241

Tab. 2:

Anstieg der Oberflächendosisleistung im Pu-241 durch Am 241

Zeit nach Am 241 Abtrennung (Jahre)	γ -Dosisleistung in rad/hkg
0.1	0.7
0.5	35
1.0	70
2.0	140
5.0	320

Tab. 3: Herkunftsabhängigkeit von Pu-Isotopenanteilen

Isotop / Strahlungsart	MTR	Magnox	LWR	LMFBR
Pu 238 n	<< 1	~ 0.1	1-2	< 0.1
239 α	92	70	60	< 70
240 n	7	25	25	20-25
241 γ	< 1	4	10	3-15
242 n	<< 1	0.5	3-4	< 1

Die SNR-Kerne - KNK-II, SNR-300 bis SNR-2

Dr.-Ing. J. HÖCHEL
INTERATOM GmbH, 5060 Berg. Gladbach 1

Compact

Während die schnellen Reaktoren der ersten Generation (Entwicklung bis 1960) (kleine Kerne mit externem Brüten) hauptsächlich auf die Verdopplungszeit ausgerichtet waren, wurde Anfang der 60er Jahre der Schwerpunkt auf den Brennstoffzyklus verschoben. Hoher Abbrand wurde zur Bedingung für einen wirtschaftlichen Brennstoffzyklus. UO_2/PuO_2 war der ausgewählte Brennstoff, auf dessen Grundlage Studien für große Reaktoren durchgeführt wurden. Zu dieser Zeit war es der Doppler-Koeffizient, der im Zentrum des Interesses lag (SEFOR). Kurz danach wandte sich die Aufmerksamkeit jedoch dem Na-Void-Koeffizienten zu, nachdem man beobachtet hat, daß große Oxid-Reaktoren einen positiven Na-Temperatureffekt haben können. Da man damals meinte, alle Leistungskoeffizienten unbedingt negativ zu halten, wurde insbesondere in den USA eine Reihe von Auslegungsstudien in Angriff genommen, die zu sehr ungewöhnlich flachen Kernformen führten. 1963/64 war man weltweit der Überzeugung, daß schnelle Reaktoren bis Ende der 70er Jahre wirtschaftlich verfügbar sein müssen und können, und daraus wurden $1000 MW_e$ als Zielgröße festgelegt. 1965 (ARGONNE) wurden die Ergebnisse der in den verschiedenen Ländern durchgeführten Entwurfsstudien vorgestellt, von deutscher Seite der $1000 MW_e$ -Na-1-Reaktor, der einen normalen homogenen Zylinderkern aufwies.

Der Verfasser dankt der INB für die Freigabe, der GfK und Belgonucléaire für die Überlassung des Materials sowie den Mitarbeitern der INTERATOM für die hilfreiche Unterstützung.

Zu dieser Zeit hatten fast alle Länder die Absicht, Prototypen in der Größenordnung von 200 bis 300 MW_e zu bauen. Der deutsche Prototyp wurde als Na-2-Reaktor 1967 (KFK-660) vorgestellt und stellte weitgehend die Basis für den in Kalkar im Bau befindlichen SNR-300 dar.

Der Kern des SNR-300 baute auf der Auslegung in der Na-2-Studie auf, wobei gewisse konstruktive Anpassungen infolge der Berücksichtigung des Stahlschwellens erforderlich waren.

Ausschließlich wirtschaftliche Überlegungen während der Auftragsverhandlungen zum Bau des SNR-300 führten zu einer Modifikation, da bereits vom 2. Kern an kostengünstigere Brennelemente mit vergrößertem Brennstabdurchmesser eingesetzt werden sollten. Dazu war es erforderlich, einen Ring Brennelemente zusätzlich um den ursprünglichen Kernaufbau zu legen, um auch mit dem 2. Kern, genannt Mk-II, die geforderte Reaktorleistung zu erbringen. Dafür wurden die drei Brutelementringe auf zwei verringert, um die Gesamtkern-Größe und den Tankdurchmesser nicht verändern zu müssen. Um nicht nach Ausbau des ersten Kerns, nun Mk-I genannt, aufwendige Umrüstarbeiten an den Gitterplatteneinsätzen der inneren Brutelementreihe für die Aufnahme des zusätzlichen Ringes von Mk-II-Brennelementen vornehmen zu müssen, wurde bereits der erste Kern ebenfalls auf die vergrößerte Anzahl von Brennelementen gebracht und erhielt die Bezeichnung Mk-Ia.

Die wichtigsten Daten der Kerne Na-2, SNR-300 Mk-I, SNR-300 Mk-Ia und SNR-300 Mk-II sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

Bei der Entscheidung für Mk-Ia wurde bewußt der Rückgang in der theoretischen Brutrate in Kauf genommen, da die sofortige Brutleistung des Prototyp-Kernkraftwerkes nicht im Vordergrund stand. Erst spätere Kerne (siehe Mk-II) liefern wieder deutliche Werte > 1 .

	Na-2 (1967)	SNR-300 Mk-I (1970)	SNR-300 Mk-Ia (1972)	SNR-300 Mk-II (1972)	
				BØL	Gleichgew.
Anzahl Brennelemente	150	151	193	193	205
Anzahl Absorber	18	18	12	12	12
Anzahl Blindelemente	-	-	12	12	0
Anzahl Leerpositionen	1	-	-	-	-
Anzahl Brutelemente	321	330	96	96	96
Durchmesser der Brennstäbe (mm)	6	6	6	7,6	
Durchmesser der Brutstäbe (mm)	9,5	9,5	11,6	11,6	
thermische Gesamtleistung (MW_{th})	730	730	762	762	
Pu-Masse (BØL) (kg)	1064	1056	1450	1500	
theoretische Brutrate	1,24*	1,16	0,96	1,06	
max. Stablängenleistung (W/cm)	446	461	354	450	
max. spez. Brennstoffleistung (MW/kg)	0,264	0,273	0,210	0,172	
Standzeit (EFPD)	350	351	441	570	
max. lokaler Abbrand (MWd/t_{HM})	85000	80700	83200	88700	
ermittelter Spaltstoffabbrand (MWd/t_{HM})	56000	54800	57100	59800	
$\phi_{total} \times t \times \bar{E}$ ($MeV \cdot n/cm^2$)	$1,3 \cdot 10^{23}$	$1,3 \cdot 10^{23}$	$1,2 \cdot 10^{23}$	$1,5 \cdot 10^{23}$	

* noch mit "alten" Wirkungsquerschnitten gerechnet

Wenngleich das jeweilige Einzelinventar des Mk-Ia- und Mk-II-Kernes größer als das eines Mk-I-Kernes ist, so verringert sich der akkumulierte Pu-Bedarf über die Betriebszeit der Anlage wegen der vergrößerten Standzeit von Brennelementen mit größerem Stabdurchmesser gegenüber einem Betrieb ausschließlich mit einem Mk-I-Kern.

Das Brennelement für den Mk-II-Kern mit 7,6 mm Brennstabdurchmesser ist in seiner Grundkonzeption auch gültig für den SNR-2, wobei Schlüsselweite und Länge der größeren Reaktorleistung optimal angepaßt werden müssen.

Abb. 1 zeigt den Querschnitt des SNR-2-Referenzkernes.

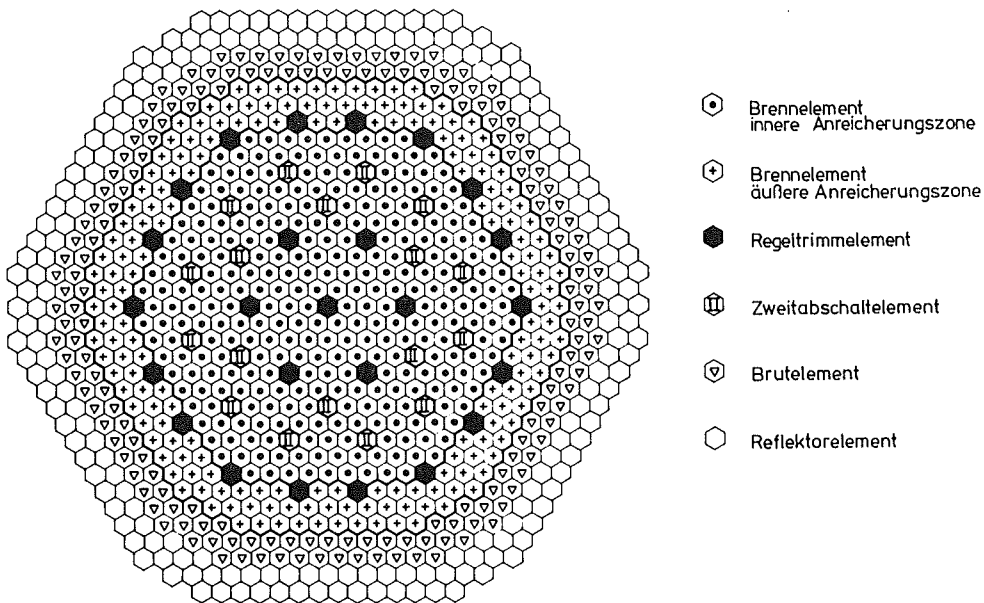


Abb. 1

In Tabelle 2 sind die wichtigsten vorläufigen Projektdaten für den Referenzkern zusammengestellt.

Tabelle 2

Anzahl Brennelemente	486	
Anzahl Absorber	43	
Anzahl Blindelemente	0	
Anzahl Leerpositionen	0	
Anzahl Brutelemente	174	
Durchmesser der Brennstäbe	7,6	mm
Durchmesser der Brutstäbe	11,6	mm
thermische Gesamtleistung	3910	MW _{th} (vorläufiger Wert)
Pu-Masse	6300	kg
theoretische Brutrate	1,17	
max. Stablängenleistung	450	W/cm
max. spez. Brennstoffleistung	0,160	MW/kg
Standzeit	548	EFPD
max. lokaler Abbrand	84000	MWd/t _{HM}
$\phi_{\text{total}} \times t \times \bar{E}$	$1,8 \cdot 10^{23}$	MeV·n/cm ²

Alternativen mit heterogenen Kernen für SNR-2 werden überlegt.

Die Brennstoffdichte für die SNR-300-Mk-Ia-Brennelemente ist mit 80 % Schmiedichte festgelegt worden. Dem weltweiten Trend folgend, wurde für SNR-2 bereits eine Schmiedichte von 85 % gewählt, Überlegungen zum Übergang auf höhere Dichten für die Nachfolgekerne SNR-300 finden statt.

Im Laufe der Projektbearbeitung SNR-300 mußte von dem ursprünglichen Referenzhüllwerkstoff 1.4988 abgewichen werden, da dieser selbst bei den bisher erreichten Dosen von $8 \cdot 10^{22}$ n/cm² zu starkes neutroneninduziertes Schwellen zeigt. Der neue Referenzwerkstoff für die SNR-Brennelemente ist der Stahl 1.4970.

Im Rahmen der Kernelemententwicklung für die Kerntypen kommt der KNK-II eine zentrale Bedeutung zu. Abb. 2 gibt die Kernbeladung des 1. Kerns wieder.

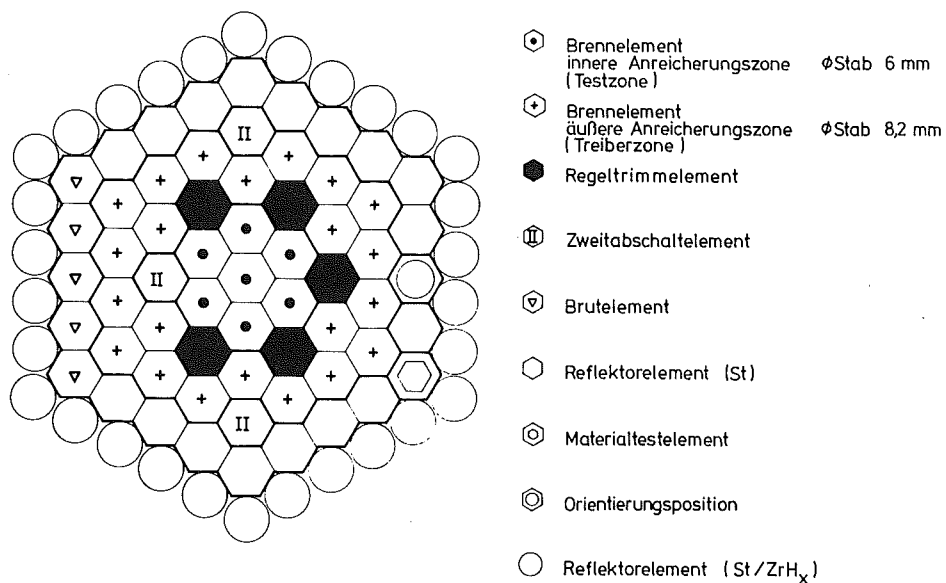


Abb. 2

Die erste Nachladung ist auch bereits weitgehend definiert.

Die KNK-II wird insbesondere bei der weiteren Entwicklung in Richtung höherer Brennstoffdichte, fortschrittlicher Brennstoffe und - falls erforderlich - heterogenem Kern für SNR-2-Alternativen eine wichtige Rolle spielen.

Die Verknüpfung von Experiment zu Projekt, bei der auch alle anderen wesentlichen Bestrahlungsexperimente in ihrer Bezie-

hung zu der jeweiligen Projektanforderung dargestellt sind, zeigt Abb. 3.

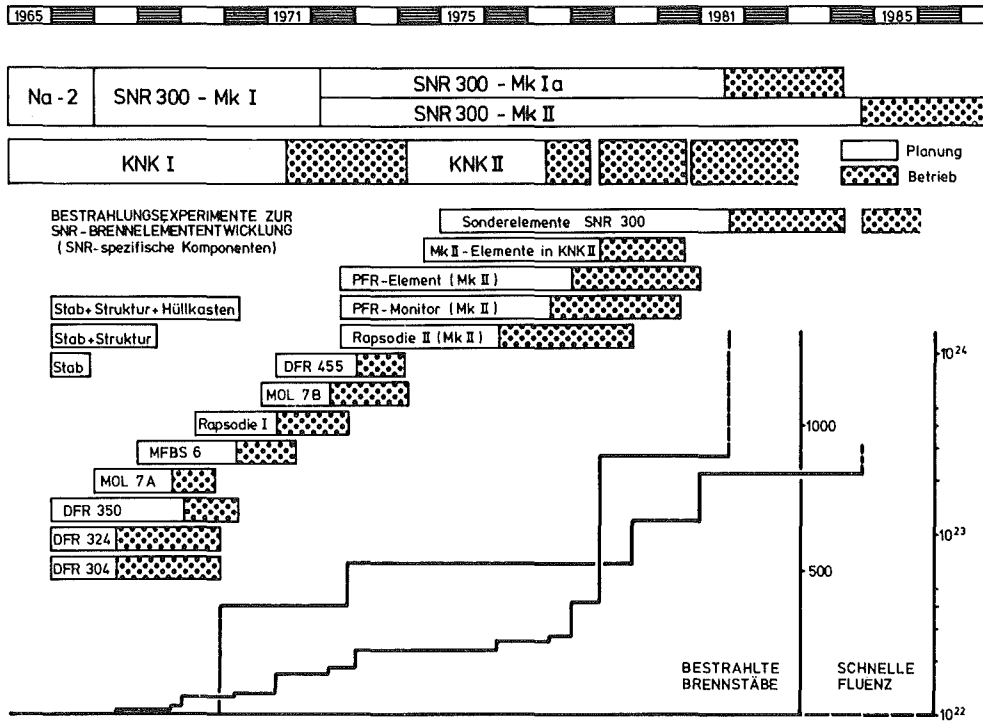


Abb. 3

BRENNELEMENTE FÜR BRÜTER-KRAFTWERKE

- Internationaler Stand -

K. Kummerer

Institut für Material- und Festkörperforschung

Kernforschungszentrum Karlsruhe

1. Übersicht über Schnelle Brutreaktoren

Die Übersicht umfaßt alle Schnellen Brutreaktoren, die bereits in Betrieb, in Bau oder in konkreter Planung sind. Man kann hierbei zwischen Forschungs- und Testreaktoren (FT), Prototyp-Leistungsreaktoren (PR) und echten Kraftwerks-Reaktoren (KR) unterscheiden. Die Liste in Tabelle I gibt nähere Einzelheiten (Name, Kategorie, Leistung, Standort, Baubeginn, Vollast) für die insgesamt 21 Schnellbrüter an.

2. Gesichtspunkte und Kriterien für die Brennelement-Auslegung

Aus den allgemeinen Anforderungen an Brennstoff, Hülle und Bündel ergeben sich Kriterien, das sind hierfür entscheidende Aspekte. Die Berücksichtigung dieser Kriterien führt zu praktischen Folgerungen für die Auslegung und zu Auslegungsgrenzen. Der logische Ablauf dieser Überlegungen ist in Tabelle II dargestellt.

3. Der Brennstab für den MARK-Ia-Kern des SNR-300

Als typisches Beispiel einer Brennstab-Auslegung sei der Brennstab für den ersten Kern des Prototyp-Reaktors SNR-300 angeführt. Tabelle III gibt die wichtigsten Auslegungsdaten wieder, zusammen mit einer Schema-Zeichnung.

4. Die Auslegungs- und Betriebsdaten aller Brennstäbe und Brennelemente

Die entsprechenden Daten für alle einleitend aufgeführten 21 Schnellbrüter sind in der umfassenden Tabelle IV zusammengestellt. Hierbei sind bei den Testreaktoren DFR und EBR-II nicht die Treiberelemente (mit Metall-Brennstoff), sondern die Oxid-Testbündel für die nachfolgenden größeren Reaktoren berücksichtigt. Die Tabelle enthält somit nur Brennelemente mit oxidischem Brennstoff. Mit Ausnahme der USSR-Brennstäbe wird als Brennstoff immer UO_2 - PuO_2 -Mischoxid eingesetzt. Die russischen Reaktoren laufen im Erstkern durchwegs mit angereichertem Uran in Form von UO_2 .

5. Der Aufbau der Brennstäbe

Schließlich wird die Konstruktion und der geometrische Aufbau für alle Oxid-Brennstäbe in schematischen Zeichnungen angegeben. Zuerst kommen gruppenweise Darstellungen, die einheitlichen Entwicklungsstufen zugeordnet sind, nämlich

- Abb. 1 mit kurzen Stäben in Forschungs- und Testreaktoren
- Abb. 2 mit langen Stäben in Forschungs- und Testreaktoren
- Abb. 3 mit Stäben für Prototyp-Leistungsreaktoren
- Abb. 4 mit Stäben für große Kraftwerks-Reaktoren

Alle diese Schemazeichnungen sind schließlich zu einer "Synopsis" in Abb. 5 zusammengefaßt. Diese vergleichende Übersicht läßt die Gemeinsamkeiten, aber auch manche wesentlichen Unterschiede in den Entwicklungslinien der verschiedenen Länder deutlich werden.

Tabelle I: Schnelle Brutreaktoren in Betrieb, Bau oder Planung

		Kategorie			Leistung MW _{th} , MW _e	Standort	Bau- beginn	Voll- last
		FT	PR	KR				
Frankreich	RAPSODIE	X			24	Cadarache	1961	1967
	RAPSODIE Fort.	X			40	Cadarache		1970
	PHENIX		X		250	Marcoule	1969	1974
	SUPER PHENIX			X	1200	Creys- Malville	1977	1981
Groß- britannien	DFR	X			15	Dounreay	1955	1961
	PFR		X		250	Dounreay	1966	1976
	CFR			X	1300		1979	
Deutschland	KNK-II	X			20	Karlsruhe		1977
	SNR-300		X		300	Kalkar	1973	1982
	SNR-2			X	≤ 2000		1985	
Italien	PEC	X			130	Brasimone (1970)		
USSR	BR-5	X			5	Obninsk		1959
	BOR-60	X			60	Dimitrovgrad	1965	1970
	BN-350		X		D ⁺ +150	Kasp.Meer	1964	1973
	BN-600			X	600	Belojarsk	1968	
USA	EBR-II	X			16	Idaho	1957	1964
	FFTF	X			400	Hanford	1970	1977
	CRBR		X		380	Clinch- River	1978	1984
Japan	JOYO	X			100	Oarai	1969	1976
	MONJU		X		300		1978	
Indien	FBTR	X				Madras	1973	
Anzahl →		11	6	4				

⁺) D = ca. 500 MW_{th} für Meerwasser-Entsalzung

Tabelle II:

Gesichtspunkte und Kriterien für die Auslegung

ANFORDERUNGEN	KRITERIEN	KONSEQUENZEN	AUSLEGUNGSGRENZEN
Stabile Brennstoff-Konfiguration	Brennstoff-Verteilung	Kein Schmelzen des Oxidbrennstoffs	Brennstoff-Temperatur < 2700 °C
Hülle ist die erste Barriere für Pu und Spaltprodukte	Hüllmaterial dicht und fest	Begrenzte innere und äußere Korrosion	Korrosionsangriff z.B., < 100 µm
		Geringer Brennstoffdruck auf die Hülle	Elastische Dehnung < 0,2 % Kriechdehnung z.B. < 0,2 %
		Begrenzter Spaltgasdruckaufbau	
Stabile Bündel-Konfiguration	Geometrie der Bündel-Komponenten	Begrenzt n-induziertes Schwellen	Volumenschwellen z.B. < 5 %

Tabelle III: Der Brennstab für den MARK-Ia-Kern des SNR-300

Brennstab	Durchmesser (mm)	6,0	
	Länge (mm)	2475	
Brennstoff	Material	UO ₂ -PuO ₂	
	Länge (mm)	950	
	Durchmesser (mm)	5,09	
	Tablettenform	Einsenkung	
	Brennstoffdichte (% th.D.)	86,5	
	Schmierdichte (% th.D.)	80	
Spalt	Brennstoff/Hülle diametral (µm)	150	
Hülle	Material	1.4970	
	Wandstärke (mm)	0,38	
Bündel	Anzahl der Stäbe	166+3	
	Stabteilung P/D	1,32	
	Abstandshalter	Gitter	
	Lin. Stableistung, max. ^{a)} (W/cm)	355/500	
	Hülltemperatur, max. ^{a)} (°C)	620/685	
	Zielabbrand, lok. max. (MWd/kgM)	85	
	Fluenz >0,1 MeV, lok. Max. (10 ²³ n/cm ²)	1,4	
Anmerkungen			
a) Nominal-/Heißkanal-Bedingungen			

Tabelle IV: Die Auslegungs- und Betriebsdaten der Schnellbrüter-Brennelemente mit Oxid-Brennstoff

	BRENNSTAB (mm)		BRENNSTOFF		Spalt (µm)	HÜLLE		BÜNDEL		BETRIEBSDATEN		Abbrand MWG/kg M	Fluenz >0,1 MeV (10 ²³ nv)
	Durchmesser	Länge	Tabletten Form	Schmierdichte (% th.D.)		Material	Wandstärke (mm)	Stabzahl	Abstandshalter	Stableistung max.nom. (W/cm)	Hülltemp. max.nom. (°C)		
RAPSODIE	6,70	485	Vollzylinder	89	230	316	0,45	37	Rippenrohr	400	600	35	
RAPSODIE Fort.	5,10	532	Vollzylinder	79	150	316	0,36	61	Draht	430	650	65	0,7
PHENIX	6,55	1793	Vollzylinder	80	150	316	0,45	217	Draht	430	650	50	2
SUPER PHENIX	8,50	2700	Zentralloch	85		316		271	Draht	450	620	70	3
DFR (MK.II Test)	5,84	532	Zentralloch	80		M 316	0,38	77	Gitter	435	700 ⁺⁾	100	0,9
PFR	5,84	2260	Zentralloch	80	130	M 316	0,38	325	Gitter	450	700 ⁺⁾	70	1,9
CFR	5,84	2205	Zentralloch	80		M 316	0,38	325	Gitter	445	700 ⁺⁾	100	2,4
KNK-II (Testzone)	6,00	1557	Einsenkung	80	210	1.4970/81/88	0,35	211+6	Gitter	460	620	90	0,9
SNR-300 MK Ia	6,00	2475	Einsenkung	80	150	1.4970	0,38	166+3	Gitter	350	620	85	1,4
MK II	7,60	2475	Einsenkung	80	190	1.4970	0,50	127	Gitter	450	620	85	1,7
SNR-2	7,60	3000	Einsenkung	85	190	1.4970	~ 0,50	271	Gitter	450	620	100	2,3
PEC	6,7		Zentralloch			316	0,45	91		390	640		
BR-5	5,0					Typ 321	0,40	19	Draht	180	600		
BOR-60	6,1	1100	Zentralloch	83,1 - 84,8		Typ 316	0,40	37	Draht	550	800 ⁺⁾		
BN-350	6,1	1140	Zentralloch	73		Typ 316	0,35	169	Draht	440	675 ⁺⁾		
BN-600	6,9	2445	Zentralloch	70,8 - 83,1		Typ 316	0,40	127	Draht	530	690 ⁺⁾		
EBR-II (FFTF-T.)	5,84		Einsenkung	85,5	140	316	0,38	61		460	630	80	1
FFTF	5,84	2380	Einsenkung	85,5	140	316	0,38	217	Draht	430	610	80	1,2
CRBR	5,84	2911				316	0,38	217	Draht	475	640	80(150)	1,2
JOYO	6,3	1910	Vollzylinder	87	200	316	0,35	91	Draht	230	650 ⁺⁾		
MONJU	6,5	2740			200	316	0,45	166+3		450	700 ⁺⁾	80	
FBTR	5,1	532				316		61	Draht				

⁺⁾ unter Heißkanalbedingungen

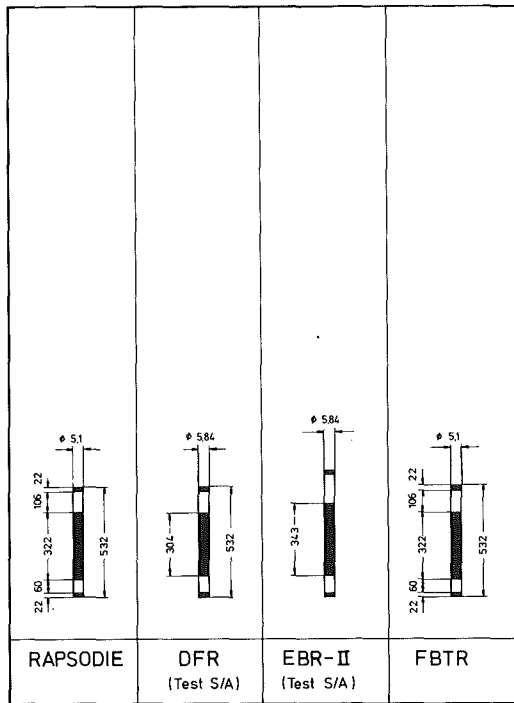


Abb. 1 Kurze Brennstäbe in Forschungs- und Testreaktoren

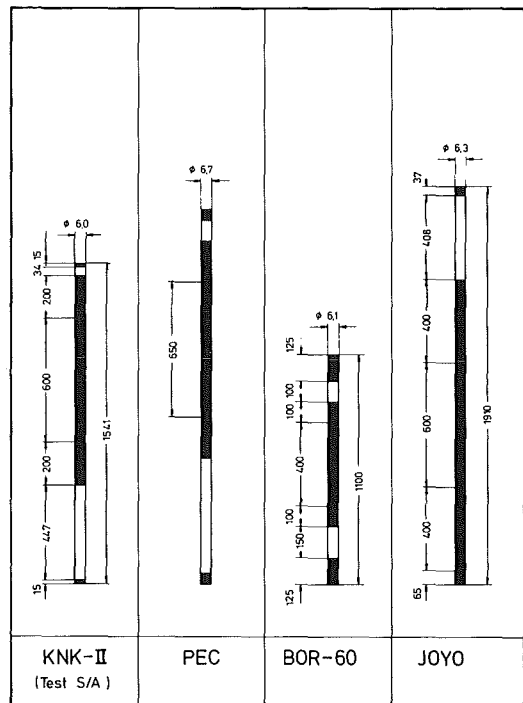


Abb. 2 Lange Brennstäbe in Forschungs- und Testreaktoren

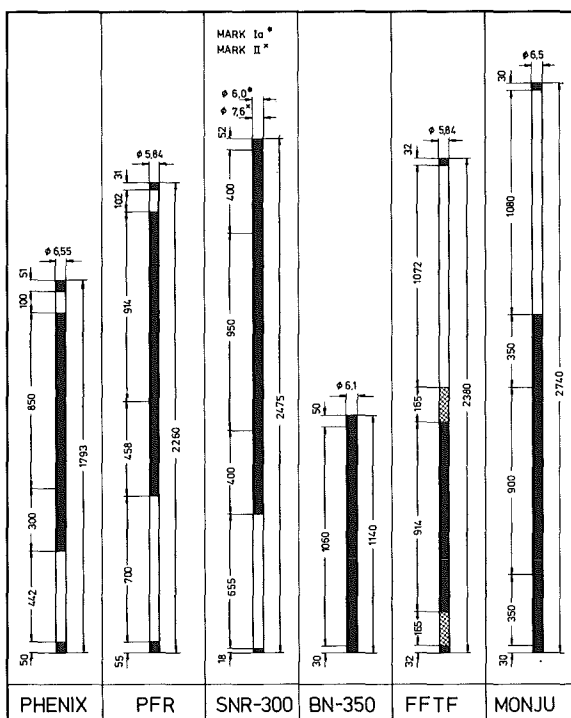


Abb. 3 Brennstäbe in Prototyp-Leistungsreaktoren

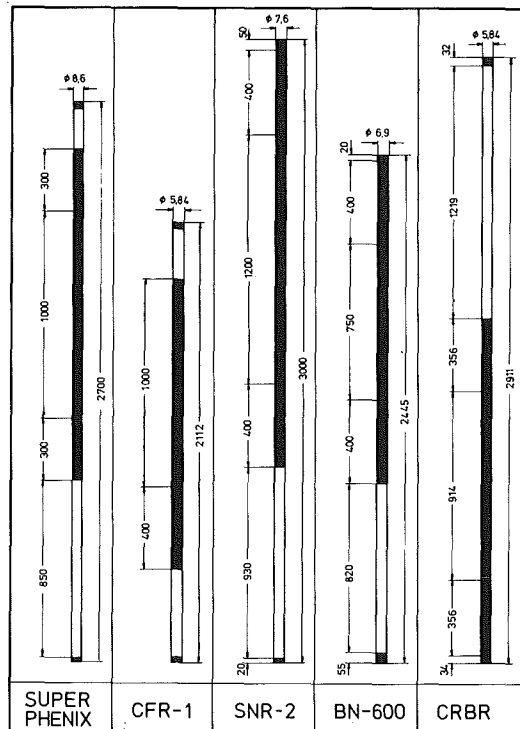


Abb. 4 Brennstäbe in großen Kraftwerks-Reaktoren

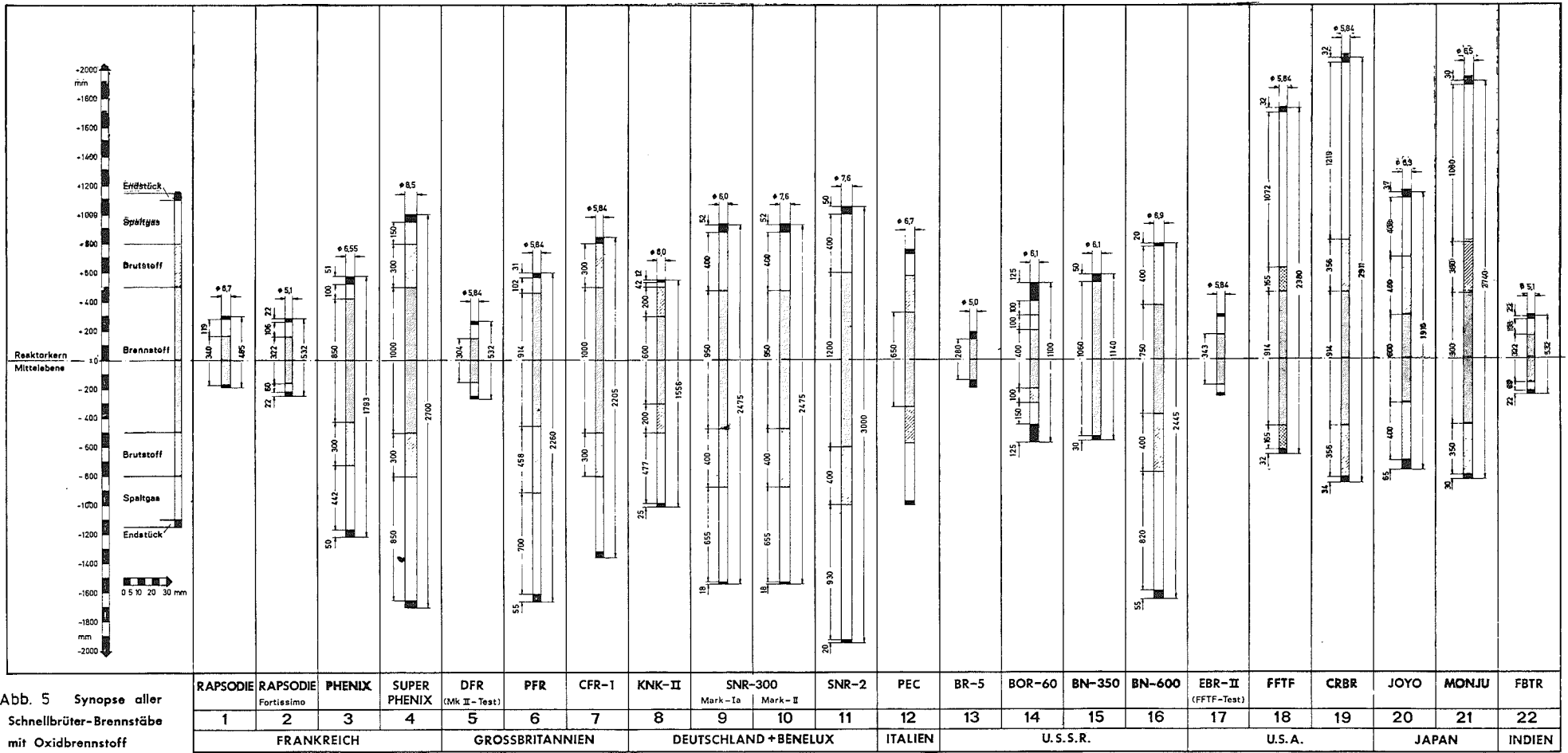


Abb. 5 Synopse aller Schnellbrüter-Brennstäbe mit Oxidbrennstoff

Die Kernelemente des SNR 300

W. Biermann, H. Többe, K. H. Wenk
INTERATOM, 5060 Bergisch Gladbach 1

Einleitung

Der SNR-Kern besteht aus den folgenden Kernelementen:

- Brennelemente
(mit zwei verschiedenen Anreicherungen)
- Brutelemente
- Regel-Trim-Elemente
- Zweitabschaltelemente
- Na-Blindelemente
- B₄C-Blindelemente
- lange Reflektorelemente
- kurze Reflektorelemente
- mechanische Reflektorelemente.

Die Vielzahl der unterschiedlichen Kernelementtypen resultiert aus den verschiedenen Aufgaben, die die Elemente zu erfüllen haben.

Konstruktiver Aufbau der Kernelemente

Trotz der Vielzahl der Elementtypen ist der Grundaufbau für alle Kernelemente gleich. Jedes Element besteht aus Kopf, Fuß und hexagonalem Hüllkasten. Die äußere Schlüsselweite beträgt ca. 110 mm, die Elementlänge ca. 3,7 m. Zur Abstützung der Elemente untereinander dienen Distanzpflaster, die am Elementkopf und im unteren Elementdrittel am Hüllkasten befestigt sind. In dieser Struktur werden dann entsprechend den unterschiedlichen Elementaufgaben die Brennstäbe, Brutstäbe, Absorberstäbe usw. fixiert.

Brennelemente des Erstkerns Mk Ia

Bei den Brennelementen des Erstkerns besteht das Brennstabbündel aus einem Skelett, gebildet aus 14 Abstandshaltern und 3 Strukturstäben, in das 166 Brennstäbe eingeschoben und an ihrem unteren Ende in einer Stabhalteplatte befestigt sind (Abb. 1 - 3).

Die Brennstäbe von 6 mm Durchmesser bestehen aus dünnwandigen Hüllrohren mit einer Brennstofffüllung aus UO₂PuO₂-Tabletten. Integriert in den Stab ist auch die axiale Brutstoffzone aus UO₂-Tabletten oberhalb und unterhalb der Brennstoffzone. Am unteren

Stabende befindet sich der Spaltgassammelraum; am oberen Ende fixiert eine Niederhaltefeder die Tablettensäule. Die Gesamtlänge des Stabes beträgt ca. 2,5 m.

Zur Abstandhalterung der Stäbe werden sog. Wabenabstandshalter (Abb. 4) verwendet, die aus gewinkelten und punktgeschweißten Bändern aufgebaut sind.

Abb. 4 zeigt auch die 3 Positionen innerhalb des Abstandshalters zur Aufnahme der Strukturstäbe, an denen die Abstandshalter befestigt werden.

Brennelemente Mk II

Es ist vorgesehen, anschließend an den Erstkern Mk Ia Brennelemente mit geänderten Bündelaufbau einzusetzen. Diese Elemente zeichnen sich durch einen größeren Brennstabdurchmesser und durch eine verbesserte Abstandhalterung aus, wobei die äußere Struktur der Mk Ia-Elemente im wesentlichen erhalten bleibt. Das Mk II-Brennstabbündel besteht aus 127 Brennstäben mit einem Durchmesser von 7,6 mm. Als Referenz-Abstandhalterung ist ein funkenerodierter Abstandshalter-Typ vorgesehen (Abb. 5).

Die Befestigung der Abstandshalter erfolgt über Schürzen direkt am Hüllkasten, d. h. daß im Gegensatz zu den Erstkern-Elementen keine Strukturstäbe mehr erforderlich sind und der Elementquerschnitt voll mit Brennstäben ausgefüllt ist (Abb. 6). Die Befestigung über Schürzen und die durch das Herstellungsverfahren mögliche, besonders günstige Formgebung des Abstandshalters führen zu einer verbesserten Temperaturverteilung und einem verbesserten thermohydraulischen Verhalten im Brennstabbündel. Ferner lassen sich diese Abstandshalter aus kaltverformtem Material fertigen und besitzen damit ein günstiges Schwellverhalten.

Brutelemente

Die Brutelemente enthalten ein Stabbündel mit 61 Brutstäben, die zur Abstandhalterung eine Drahtwendel tragen (Abb. 7). Der Brutstab mit einem Durchmesser von 11,6 mm enthält als Brutstoff UO₂-Tabletten. Wie beim Brennstab befindet sich im unteren Ende der Spaltgassammelraum und im oberen Ende eine Niederhaltefeder.

Abschaltsystem

Das Abschaltssystem besteht aus 9 Regel-Trimmelementen und 3 Zweitabschaltelementen. Die Regel-Trimmelemente regeln die Reaktorleistung und dienen zur Abschaltung des Reaktors im Normalbetrieb und bei Störfällen. Aufgabe der Zweitabschaltelemente ist es, diversitär zu den Regel-Trimmelementen ein Abschalten des Reaktors bei Störfällen zu gewährleisten.

Die Regel-Trimmelemente bestehen aus einem ummantelten Stabbündel, das sich in einem fest im Kernverband stehenden Führungsrohr frei bewegen kann. Das Bündel selbst besteht aus 19 Absor-

berstäben, die sich über integrale Rippen gegeneinander abstützen (Abb. 8). Als Absorberwerkstoff wird B_4C verwendet. Die beweglichen Absorberbündel sind über Gestänge mit den Antrieben auf dem mittleren Reaktordeckel verbunden.

Die Zweitabschaltelemente bestehen jeweils aus einer Kette mit 3 Gliedern, gelenkig miteinander verbunden, wobei die Kette sich in einem Führungsrohr bewegt. Die einzelnen Glieder bestehen wie bei den Regel-Trimmelementen aus einem Stabbündel mit B_4C -Füllung (Abb. 9). In Normalstellung ist die Kette unterhalb des aktiven Kernbereichs positioniert und über ein Gestänge mit dem Antrieb auf dem Reaktordeckel verbunden, d. h., daß im Störfall die Gliederkette von unten in den Kern gezogen wird (Abb. 10).

Blindelementsystem

Da für die Brennelemente des Erstkerns ein Batch-Management vorgesehen und dadurch eine hohe Überschußreaktivität im frischen Kern vorhanden ist, ist ein zusätzliches stationäres Absorbersystem erforderlich, um einen Teil der Überschußreaktivität zu kompensieren. Hierzu werden sog. Blindelemente in 2 Ausführungen verwendet: B_4C -Blindelemente und Na-Blindelemente.

In den frischen Erstkern werden 6 B_4C -Blindelemente eingesetzt und jeweils 3 am Ende des 1. und 2. Betriebszyklus durch Brennelemente ersetzt.

Die Na-Blindelemente dienen hauptsächlich zur Kompensation von Unsicherheiten. Ihre Anzahl wird zu Beginn eines jeden Betriebszyklus festgelegt.

Der Aufbau der B_4C -Blindelemente entspricht dem der Brennelemente bzw. Brutelemente, wobei das Stabbündel aus 37 Stäben besteht, die mit B_4C gefüllt sind. Die Hüllrohre haben dieselben Querschnittsabmessungen wie die der Regel-Trimmelemente (Abb. 11).

Die Na-Blindelemente bestehen lediglich aus der äußeren Kernelementstruktur und tragen zur Gewichtskompensation im Innern einen Stahlblock.

Reflektorelemente

Die Reflektorelemente haben neben ihrer eigentlichen Reflektoraufgabe noch Aufgaben zur Na-Strömungsführung im Normalbetrieb und im Notkühlfall zu übernehmen, was zu 3 verschiedenen Reflektorelementtypen führte. In allen 3 Elementtypen ist ein Stahlblock als Reflektor in dem Hüllkasten eingesetzt.

Die langen Reflektorelemente bilden die innere Reihe der Reflektorzone. Gegenüber allen anderen Kernelementen unterscheiden sich diese Reflektorelemente durch ihre Länge von ca. 4,7 m. Bedingt wird diese Länge durch ein lang ausgebildetes Fußteil, über das

die Kühlmittelzuführung in das Mitteldruckplenum erfolgt. Im Fußbereich sind außerdem Strömungsdioden untergebracht, die unterschiedliche Druckverluste bei Aufwärtsströmung (Normalbetrieb) bzw. Abwärtsströmung (Notkühlfall) aufweisen.

Die kurzen Reflektorelemente sind ähnlich wie die langen Reflektorelemente aufgebaut (Abb. 12). Es entfällt nur das untere lange Fußteil, über das bei den langen Reflektorelementen die Einströmung in das Mitteldruckplenum geregelt wird.

Die mechanischen Reflektorelemente bilden die äußerste Reihe des Kernverbandes. Die Besonderheit dieser Elemente ist, daß sich ihre Abstützpflaster in radialer Richtung nach innen verstellen lassen. Hierdurch kann der Abstand zwischen den Kernelementen vergrößert werden. Die Mechanik dieser Reflektorelemente wird im Normalbetrieb nicht benötigt; sie ist nur für den Fall vorgesehen, daß sich Kernelemente beim Handhaben verklemmen und ein größeres Spiel zwischen den Elementen benötigt wird.

Brennelementauslegung

Das heutige Konzept für die Brennelemente des SNR-300 ist das Ergebnis einer langjährigen Entwicklungsarbeit, die sich mit der Lösung von vier Schwerpunktfragen befaßte:

- . thermohydraulische und festigkeitsmäßige Optimierung des Elements und seiner Strukturteile,
- . Werkstofftechnologie, Herstellung und Qualifizierung,
- . out-of-pile Erprobung des Elements in speziellen Einzeltests und Dauertests unter Wasser oder Natrium,
- . Durchführung von Bestrahlungsexperimenten im schnellen Neutronenfluß.

Im internationalen Vergleich weist dieses Brennelementkonzept wesentliche Unterschiede nur bezüglich der Bündelauslegung und der Elementverspannung gegenüber den Konzepten gleichartiger Schnell-Brüter-Prototypkraftwerke auf.

Die wichtigsten Merkmale des SNR-Konzeptes betreffen die Auswahl stabilisierter austenitischer Werkstoffe im kaltverformten Zustand zur Erzielung einer ausreichenden Schwellresistenz im schnellen Neutronenfluß, die Wahl einer Brennstabfixierung durch axial gestaffelte Gitterabstandshalter, die erhebliche thermohydraulische Vorteile liefert gegenüber anderen Konzepten und die Verwendung eines speziellen Mischkopfes zur Verbesserung der Temperaturüberwachung der Brennelemente.

Die Erfahrungen zum Brennelementverhalten im schnellen Neutronenfluß führten zu Detailmaßnahmen, wie z. B. Bereitstellung ausreichender axialer und radialer Spiele im Element zur Aufnahme von Schwellverformungen der einzelnen Strukturteile, ge-

lenkige Befestigung der Abstandshaltergitter an den Strukturstäben in der Erstbeladung Mk Ia und Festlegung einer ausreichenden Anzahl von Abstandhaltern im Element zur Begrenzung von Brennstabverbiegungen.

Brennstabauslegung

Der als Hüllrohrwerkstoff ausgewählte Werkstoff 1.4970 (kv, a) zeichnet sich durch eine hohe Kriechfestigkeit im Temperaturbereich 600 - 700 °C und eine gute Formstabilität unter Neutronenbestrahlung aus. Darüberhinaus genügt er den Anforderungen hinsichtlich chemischer Verträglichkeit mit dem Kühlmittel Natrium und dem Brennstoff.

Die Brennstoffschmierdichte beträgt ca. 80 % der theoretischen Dichte. Es wird damit eine ausreichende Porosität im Brennstoff zur Aufnahme von Brennstoffschwellen und damit zur Erzielung von hohen Brennstababbränden zur Verfügung gestellt. Die Brennstoffdichte von 86,5 % TD und das Fabrikationsspiel von 150 µm diametral erwiesen sich als vorteilhaft hinsichtlich des mechanischen Brennstoffverhaltens, ohne aber wesentliche Nachteile im thermischen Brennstoffverhalten mit sich zu bringen. Die Möglichkeit, über eine Herabsetzung des Sauerstoff/Metall-Verhältnisses eine Verbesserung der chemischen Verträglichkeit zwischen Brennstoff und Hüllrohr zu erzielen, führte zur Spezifikation eines unterstöchiometrischen Brennstoffs.

Unterstützende F-E-Arbeiten

Innerhalb des bauzugehörigen Forschungs- und Entwicklungsprogramms SNR-300 wurden von den Kernforschungszentren GfK-Karlsruhe und CEN-Mol sowie den Industriepartnern INTERATOM und BELGONUCLEAIRE eine Reihe von Bestrahlungsexperimenten zur Sicherung des Brennstab- und Brennelementkonzepts durchgeführt. Die Versuchsparameter, aufgeschlüsselt nach max. Hüllrohrtemperatur, max. Stablängenleistung und Abbrand, sind in den Abb. 13 und 14 dargestellt. Sie zeigen, daß die Bestrahlungsversuche die Auslegungsanforderungen im SNR-300 Betrieb abdecken.

Die Verfasser danken der INB für die Freigabe, der GfK und BELGONUCLEAIRE für die Überlassung des Materials sowie den Mitarbeitern der INTERATOM für die hilfreiche Unterstützung.

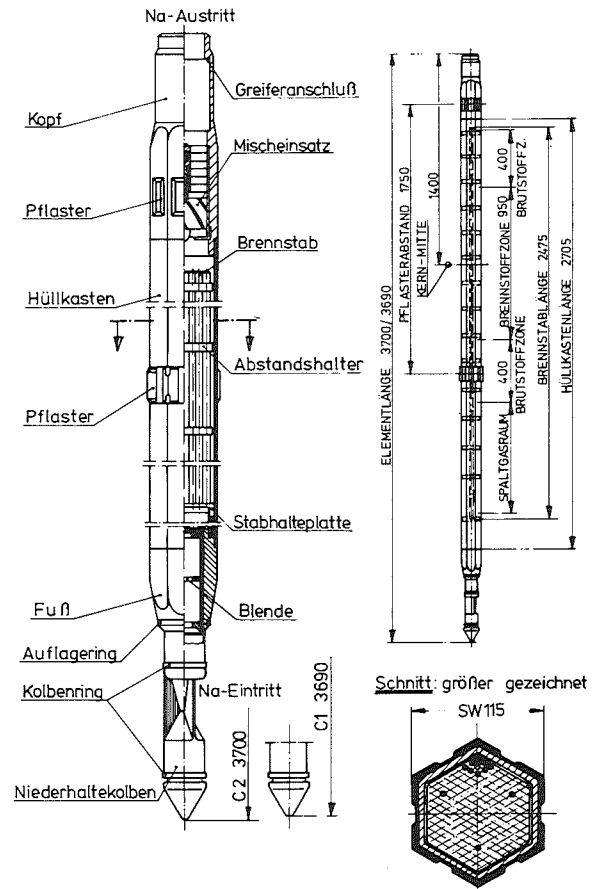


Abb. 1 Brennelement Mk Ia

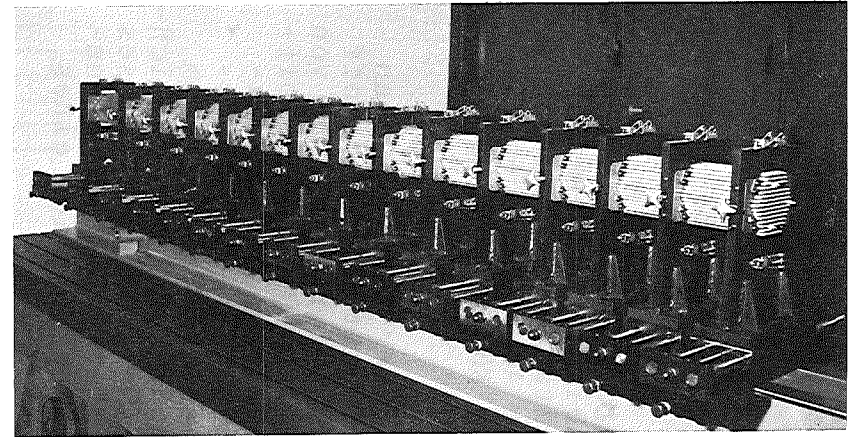


Abb. 2 Vormontiertes Versuchsbrennstabbündel

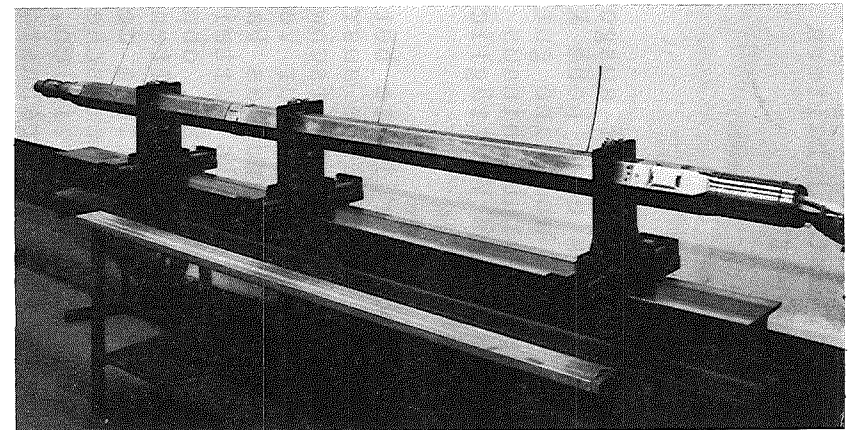


Abb. 3 Versuchsbrennelement Mk Ia

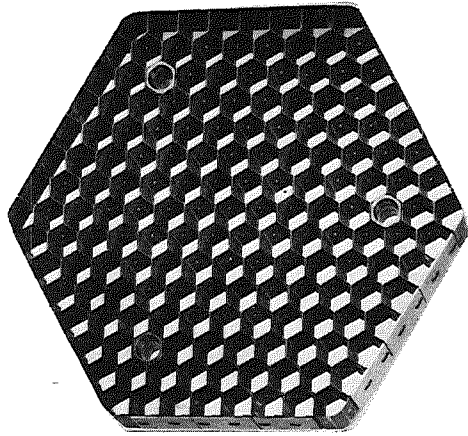


Abb. 4 Wabenabstandshalter Mk Ia

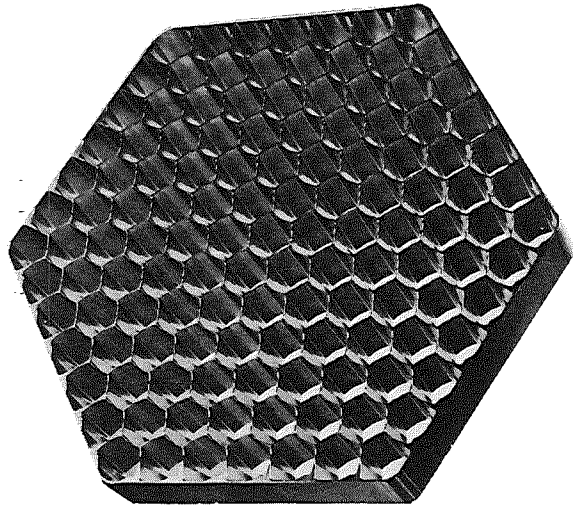


Abb. 5 Funkenerodierter Abstandshalter Mk II

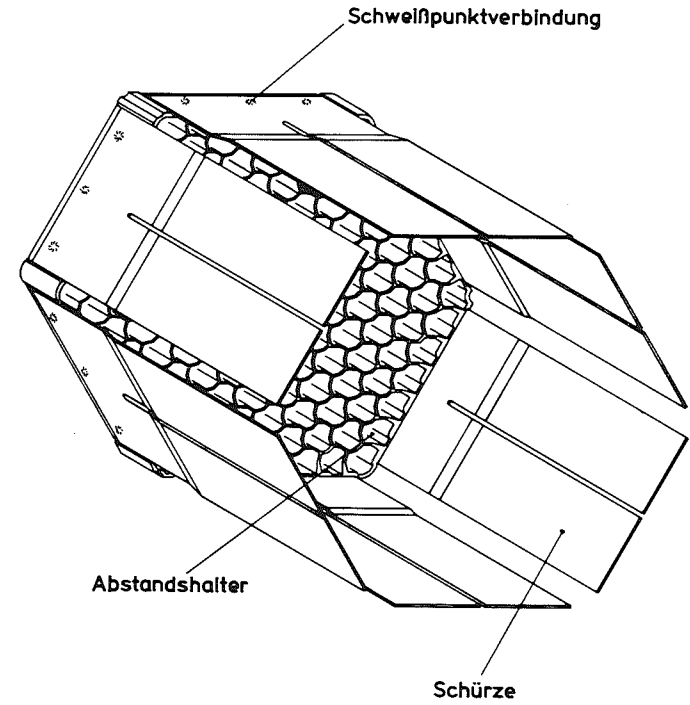


Abb. 6 Funkenerodierter Abstandshalter Mk II mit Befestigungsschürzen

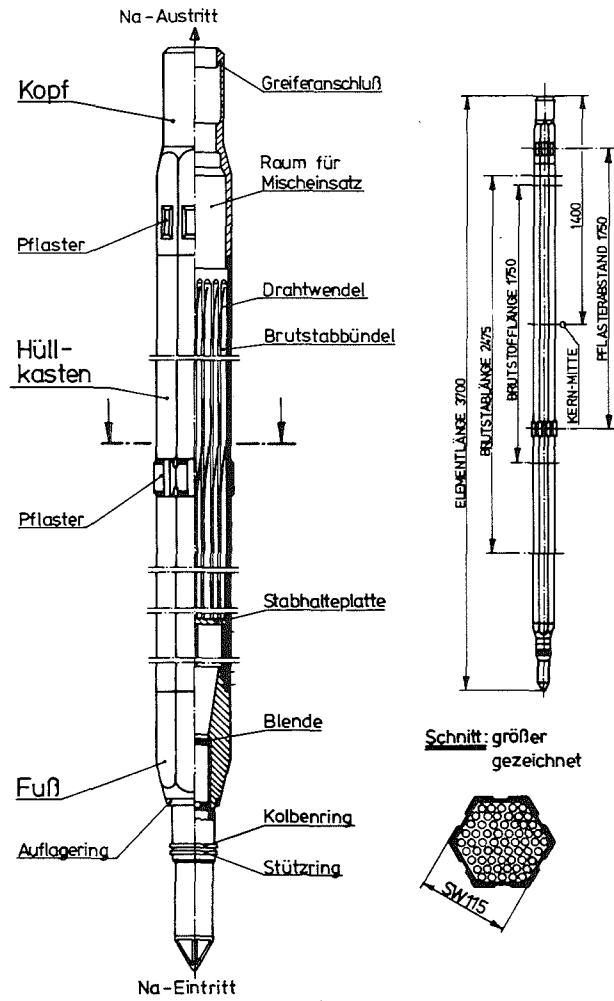


Abb. 7 Brutelement

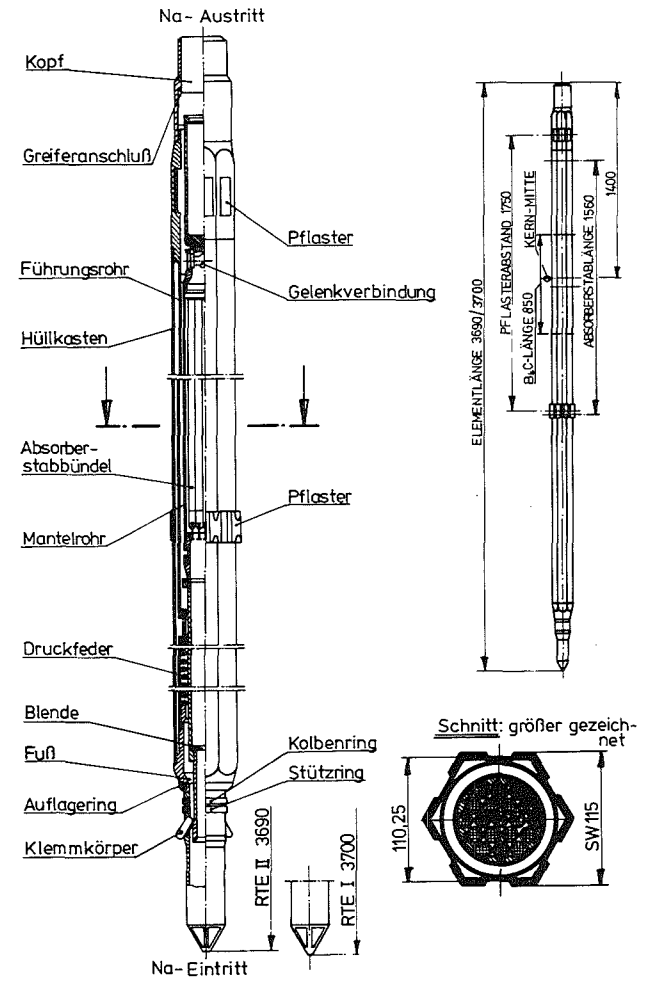


Abb. 8 Regel-Trim-Element

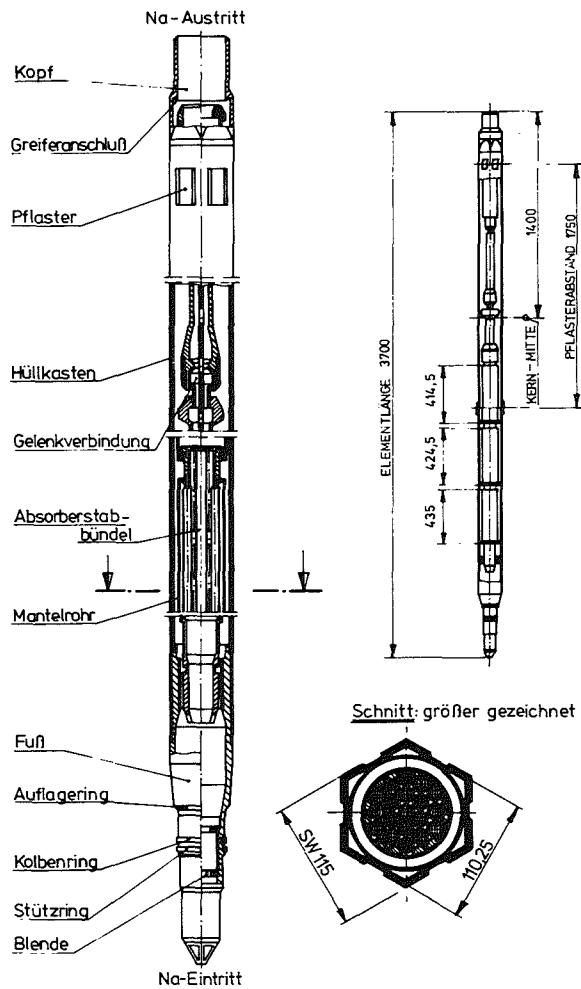


Abb. 9 Zweitabschaltelement

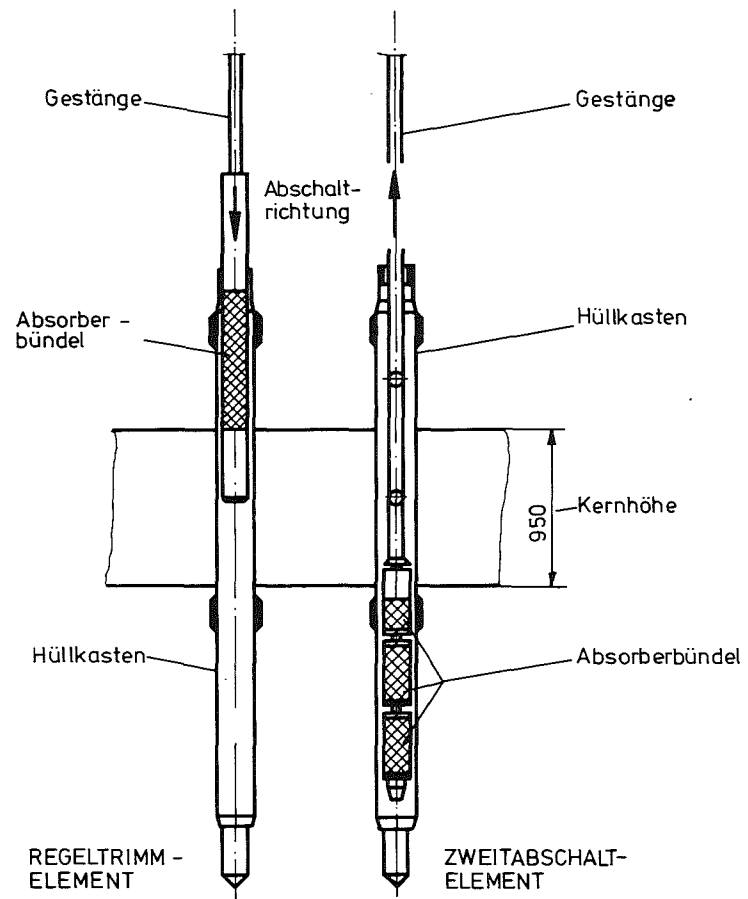


Abb. 10 Bewegungsrichtungen der Regel-Trim- und der Zweitabschaltelemente

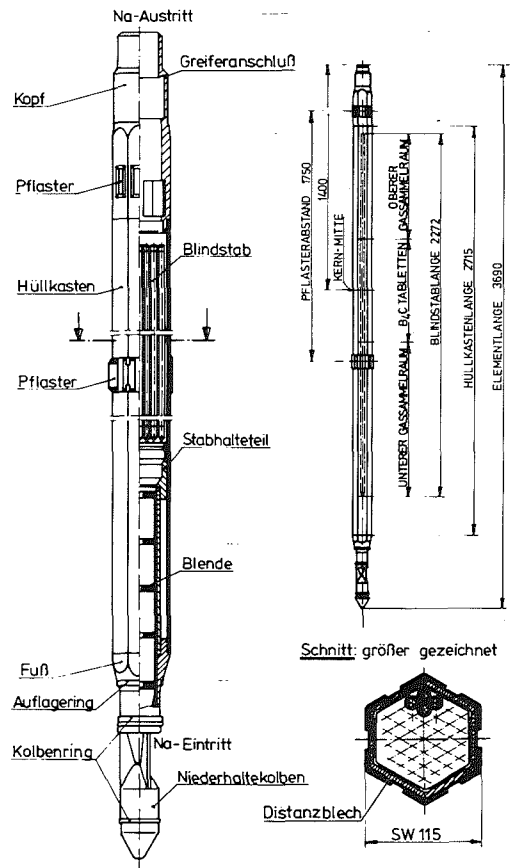


Abb. 11 B_4C -Blindelement

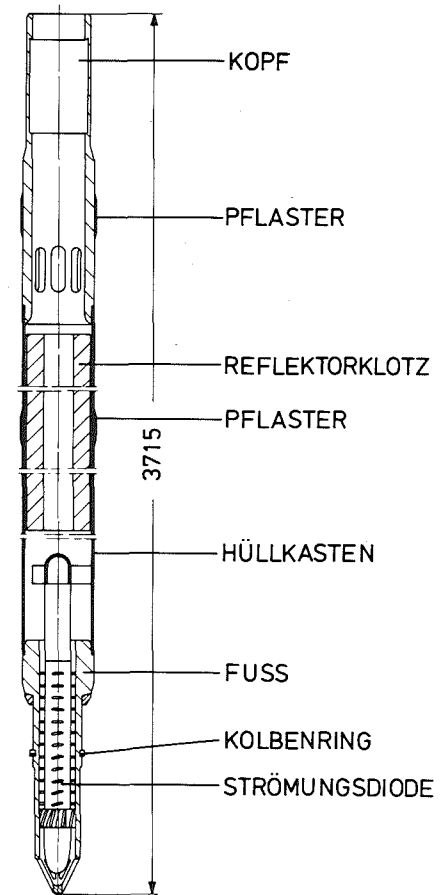


Abb. 12 Kurzes Reflektorelement

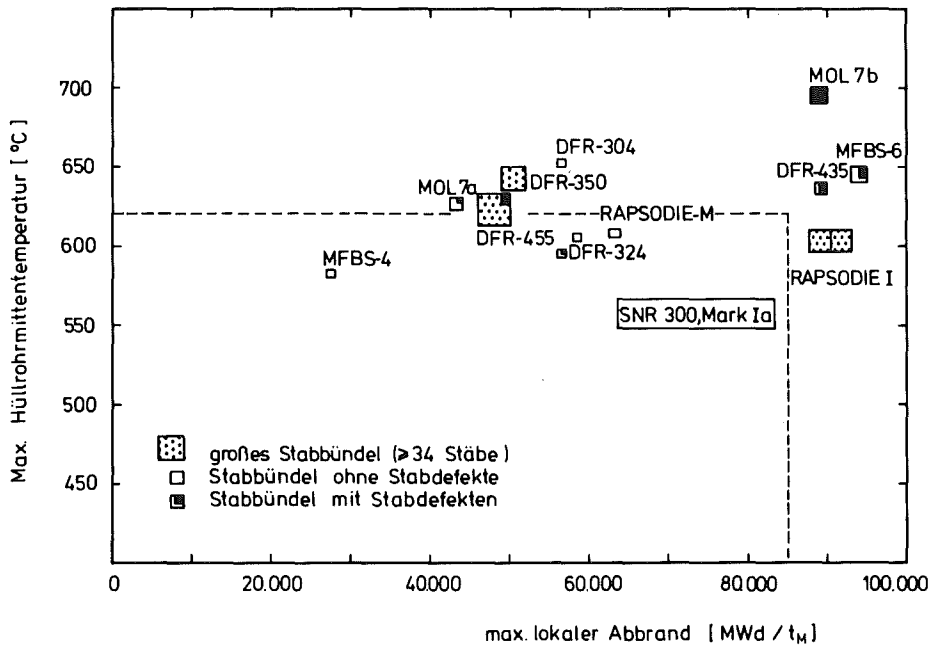


Abb. 13 DEBENELUX-Bestrahlungsexperimente
Hüllrohrtemperatur/Abbrand-Diagramm

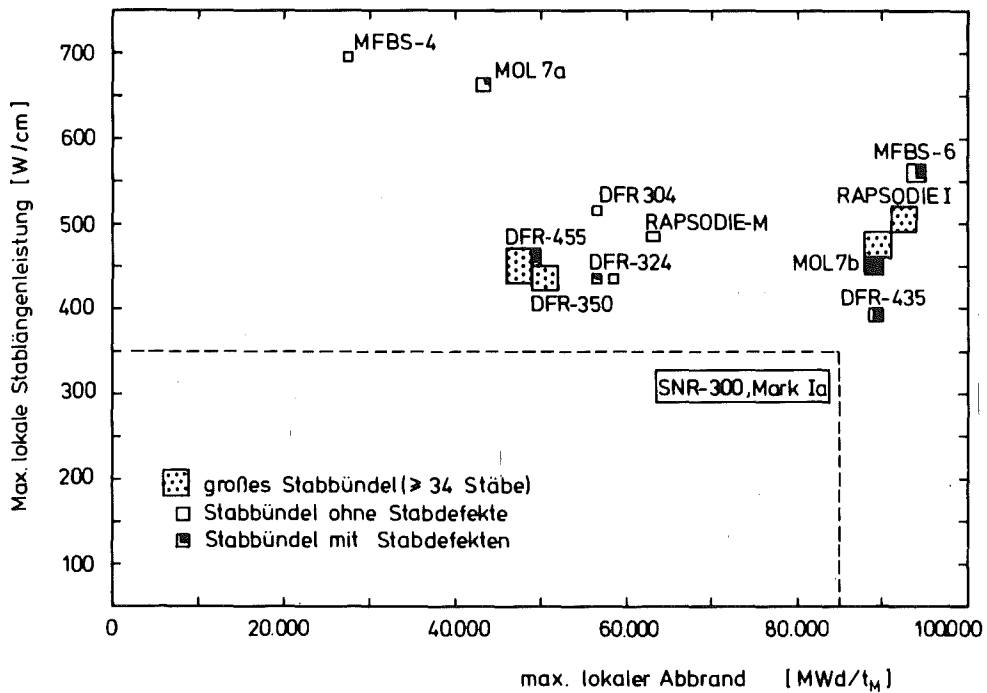


Abb. 14 DEBENELUX-Bestrahlungsexperimente
Stablängenleistung/Abbrand-Diagramm

Kern- und Brennelementkonzepte für den SNR 2

H. Spenke, U. Wehmann

INTERATOM, Bensberg

Aufbauend auf strategische Zukunftsuntersuchungen über Reaktorkonzepte in den Jahren 1970 bis 1972, sind die Eigenschaften der Kerne und Brennelemente von schnellen natriumgekühlten Reaktoren großer Leistungen in den anschließenden Jahren gemeinsam von GfK, BN und IA studiert und optimiert worden.

Die Optimierung kann nach verschiedenen Zielgrößen wie geringe Brennstoffzykluskosten, geringes Spaltstoffinventar, kurze Verdopplungszeit erfolgen und führt jeweils zu verschiedenen Element- und Kernkonzepten.

Die wichtigsten Einflußgrößen waren Brennstabdurchmesser, Abstandshalterung, aktive Kernhöhe und die Eingabeparameter der Kostenrechnung.

Unter Bevorzugung der Wirtschaftlichkeit ist eine Element- und Kernauslegung ausgewählt worden, die in den Abb. 1 und 2 dargestellt ist.

In den letzten beiden Jahren ist dann aufgrund der Erfahrung bei der sicherheitstechnischen Auslegung des Schnellbrüterprototyps SNR 300 ein neuer Aspekt der Kernauslegung für den Großbrüter hinzugekommen. Die Ertüchtigung der Gesamtanlage für die Klasse der sogenannten hypothetischen Störfälle muß bei Großbrütern sowohl beim Kern wie bei der Anlage erfolgen, wobei versucht wird, hierbei die Wirtschaftlichkeit der gesamten Stromerzeugungskosten zu optimieren. Dieses Kriterium hat in der Folge zur

Untersuchung von neuen Kernkonzepten, den sogenannten heterogenen Kernen geführt. Das wesentliche Merkmal dieser Kerne ist die Einbringung von Brutstoffelementen in die eigentlichen Brennstoffgebiete des Reaktorkerns (Abb. 3). Mit diesem Prinzip gelingt es, die sicherheitsmäßig relevanten nuklearen Eigenschaften des Kerns (hauptsächlich Void- und Dopplereffekt) in der günstigen Richtung zu beeinflussen. Außerdem werden dabei auch die für die Kosten wichtigen Kerngrößen (Abbrandreaktivität, Leistungsformfaktor und Brutvermögen) verändert. Die z.Zt. untersuchten heterogenen Kerne werden vorgestellt und ihre bis heute ermittelten Eigenschaften angegeben (Abb. 4). Ein nach allen Kriterien optimierter heterogener Kern liegt noch nicht vor, es ist aber bereits aus Abb. 4 erkennbar, daß sowohl sicherheitstechnische wie ökonomische Kerndaten mit dem heterogenen Prinzip günstig beeinflußt werden können.

INTERATOM, 20.10.76

SNR 2 BRENNELEMENTDATEN

WERKSTOFF: 1.4970 (KV)

BRENNSTAB:

TABLETTENDURCHMESSER	6,5 MM	
BRENNSTOFFTABLETTENDICHTE	85 %	SCHMIERDICHTE
HOLLROHRWANDSTÄRKE	0,5 MM	
STABDURCHMESSER	7,6 MM	
AKTIVE SPALTSTOFFLÄNGE	0,95 M	
AXIALE BRUTSTOFFLÄNGE	2 x 0,40 M	

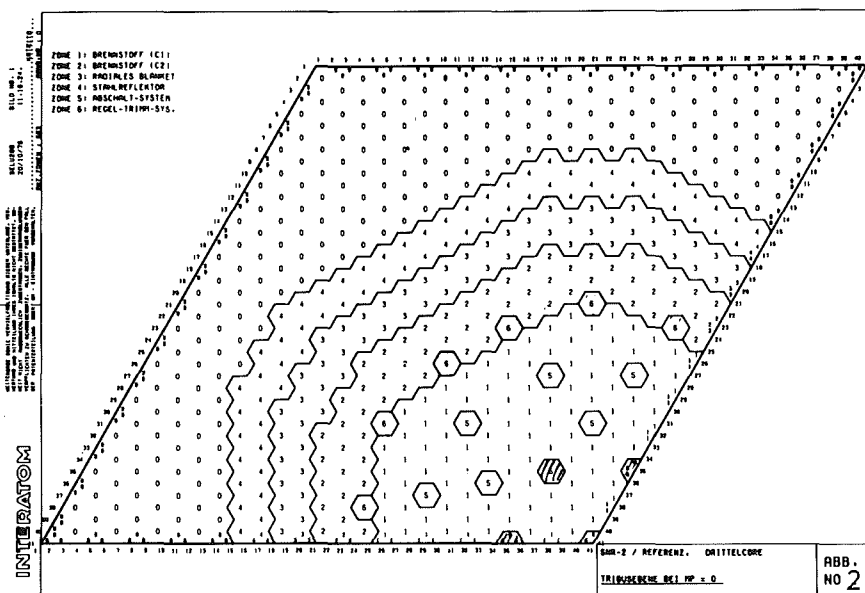
BONDEL:

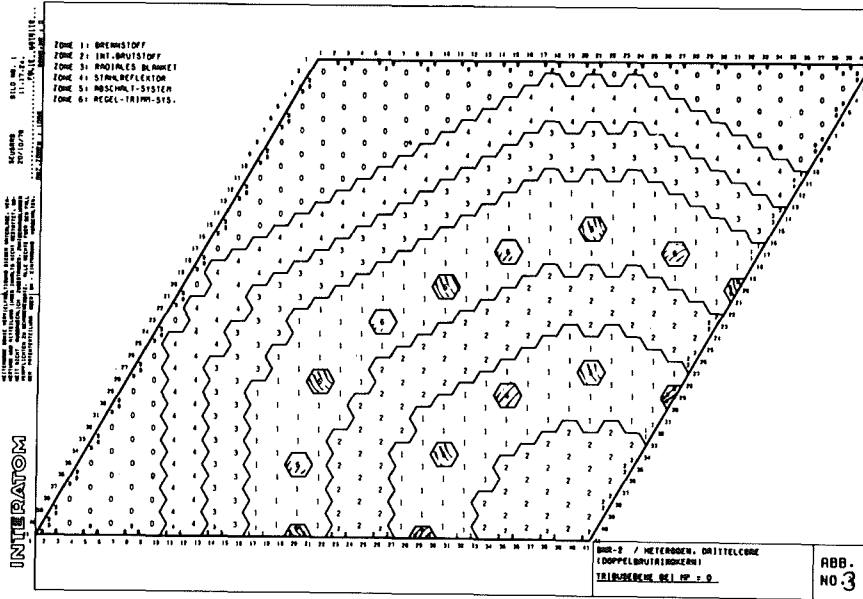
STABTEILUNG	9,1 MM
P/D	1,2
ANZAHL DER STÄBE	271 IN DREIECKSANORDNUNG
ABSTANDSHALTERUNG	FUNKENERODIERTER GITTERABSTANDS- HALTER MIT SCHORZEN, DIE AUCH DER BEFESTIGUNG DES BONDELS AM KASTEN DIENEN

KASTEN: HEXAGON

INNENSCHLUSSELWEITE	152 MM
KASTENWANDSTÄRKE	4,4 MM
AUSSENPFLESTERDICKE	CA. 5 MM

ABB. 1





INTERATOM, 25.10.76

Vergleich verschiedener Kerne für SNR 2

	Homogener Kern	Doppelringkern		Inselkern		Vierfach Ringkern
		R = 38/D = 15	R = 83/D = 46	N = 1	N = 7	
α in Pu/Pu + U	0,18	0,20	0,245	.215	.215	0.24
Anzahl v. BE	486	432	438	432	486	517
Elementen int. BU	-	67	289	109	133	270
Abs.	43	30	30	30	30	30

R_{core} [cm ⁻¹]	200	200	240	208	222	250
$N_{BE} \cdot \alpha$						
abs.	87	86	107	93	104	124
rel.	1.00	.99	1.23	1.07	1.19	1.40

Brut-rate						
Spaltst.	.82	.681	.53	.63	.63	0.55
int. BU	-	.20	.40	.26	.26	0.42
rad. BU	.12	.14	.22	.14	.13	0.16
ax. BU	(.20)	.18	.14	(.20)	(.20)	0.28
total	1.14	1.20	1.29	1.23	1.22	1.41

$\Delta k/k$ (bu.275 VLT) [%]	3.3	4.2	3.2	2.2	3.1	2.2

Max. pos. Void						
Spaltst.	6.3	3.8	1.7	4.5	2.0	2.2
int. BU	-	0.7	0.2	-	-	1.3

Dopplereff.						
Spaltst.	5.0	3.6	2.6	5	3.7	2.8
$-10^{-6} \Delta k/k$ int. BU	-	1.2	1.4	2.5	1.5	3.0

ABB. 4

Die Kernelemente bei Leistungsrampen und Störfällen

H. Többe, F. Gestermann

INTERATOM 5060 Bergisch Gladbach 1

Auslegungsanforderungen für Kernelemente SNR-300

Für die Auslegung der Kernelemente des SNR-300 werden drei Betriebsarten unterschieden, aus denen unterschiedliche Anforderungen an die Elemente resultieren. Es sind dies

- . bestimmungsgemäßer Betrieb (z. B. stationärer Leistungsbetrieb, Lastzyklen und Lastrampen, Betrieb mit geringer Anzahl defekter Brennstäbe),
- . Auslegungsstörfälle als Folge von Reaktivitätsstörungen oder Leistungsrampen (z. B. Ausfahren des Regelstabes, lokale Gasblasen im Kern), oder Durchsatzstörungen (z. B. Ausfall einer Primärpumpe, Zufahren eines Schiebers im Primärsystem, Leck im Primärsystem), bei denen die Störung aber durch die Sicherheitsinstrumentierung des Reaktors frühzeitig erkannt wird und die Gegenmaßnahmen zur Beherrschung der Störung wirksam werden,
- . Hypothetische Störfälle (z. B. Leck im Primärsystem mit Versagen der Notspiegelhaltung), bei denen angenommen wird, daß die Sicherheitsinstrumentierung die Störung teilweise oder ganz nicht rechtzeitig erkennt und Gegenmaßnahmen teilweise oder ganz nicht wirken.

Aus diesen drei Betriebsarten leiten sich unterschiedliche Auslegungskriterien ab. So sollen die Kernelemente bei bestimmungsgemäßem Betrieb mit genügendem Sicherheitsabstand gegenüber Grenzbelastungen betrieben werden. Bei Auslegungsstörfällen kann ein Überschreiten dieser Grenzbelastungen erfolgen, aber nur in einem solchen Umfang, daß ein vertretbares Risiko für die Verfügbarkeit des Reaktors nicht überschritten wird. Hieraus ergibt sich also die Notwendigkeit, eine Korrelation zwischen der Eintrittswahrscheinlichkeit eines Störfalles und der Eintrittswahrscheinlichkeit von Kernelementschäden zu entwickeln. Für hypothetische Störfälle wird gefordert, daß die Elemente in der Phase, in der der Reaktor noch nicht in einen sicheren Betriebszustand zurückgeführt worden ist (z. B. Nachwärmeabfuhr durch Notkühlung), ihre Funktion der Wärmeabfuhr und Zurückhaltung radioaktiver Spaltprodukte in dem Umfang erfüllen, wie es von anderen Sicherheits-

einrichtungen (z. B. radiologische Abschirmung) vorgegeben wird.

Brennstabverhalten bei Reaktivitäts- und Kühlmitteldurchsatzstörungen

Das Brennstabverhalten bei Störfällen ist im wesentlichen abhängig von drei Einflußgrößen: der Stablängenleistung bei Einsetzen der Störung, der Leistungsgeschichte oder dem Abbrand und dem zeitlichen Ablauf der Störung. Hieraus resultieren unterschiedliche Ursachen für Brennstabfehler bei Reaktivitäts- und Kühlmitteldurchsatzstörungen. Die wesentlichen Ursachen sind:

1. Unterschiedliche Wärmedehnungen von Brennstoff und Hüllrohr,
2. Spontane Spaltgasfreisetzung und -Expansion,
3. Transientes Brennstoffschwellen,
4. Lokales Kühlmittelsieden an der Hüllrohroberfläche,
5. Überhöhte Hüllrohrtemperaturen.

Zwei Prozesse sollen gesondert erläutert werden:

Spontane Spaltgasfreisetzung und -Expansion

Durch Vergleich der freigesetzten Spaltgasmengen von Brennstäben, die einem Leistungstransienten unterworfen wurden und solchen, die stationär bestrahlt wurden, fand man [1], daß ein erheblicher Anteil des im Brennstoff gespeicherten Spaltgases während eines Leistungstransienten freigesetzt wird. Dies gilt auch für Brennstäbe, in denen kein Brennstoffschmelzen auftrat. Man nimmt an, daß das gespeicherte Spaltgas in Bläschen in den Brennstoffkörnern oder an den Korngrenzen zurückgehalten wird. Bei starken Temperaturerhöhungen kommt es zu einer verstärkten Ansammlung an den Korngrenzen und zum Expandieren dieser Spaltgasbläschen sowie zu einem Aufbrechen der Korngrenzen des Brennstoffs. Das Spaltgas wird freigesetzt und expandiert in den Raum, der ihm zur Verfügung steht. Wenn der Zugang zu den Spaltgassammelräumen für eine schnelle Expansion teilweise oder ganz versperrt ist, resultiert hieraus eine lokale Belastung des Hüllrohrs.

Transientes Brennstoffschwellen

Das Expandieren der Spaltgasbläschen während eines Temperaturtransienten kann ein transientes Schwellen des Brennstoffs verursachen. Das transiente Schwellen infolge intragranularer Spaltgasblasenansammlung und -Expansion tritt im wesentlichen in kälteren Brennstoffbereichen auf. Der maximal gefundene Schwellwert war $\Delta V/V \approx 3,6\%$ [1].

Das Zusammenwirken aller oben aufgeführten Prozesse kann zu Brennstabfehlern führen, Abb. 1. Allgemein kann man folgern, daß für Reaktivitätsstörungen (in der Regel schnelle Störungen mit

"heißem" Brennstoff und "kaltem" Hüllrohr) die Prozesse 1. bis 3. wirksam sind, und daß für Kühlmitteldurchsatzstörungen (in der Regel langsame Störungen mit "kaltem" Brennstoff und "heißem" Hüllrohr) die Prozesse 4. und 5. für eventuelle Brennstabfehler verantwortlich sind. Aus den experimentellen Erfahrungen [1] kann man weiter folgern, daß Brennstäbe mit hoher Stablängenleistung ($\chi > 350$ W/cm) infolge geringer Spaltgaszurückhaltung und dem Vorhandensein eines Zentralkanals im Brennstoff ein höheres Potential zur Beherrschung von Störfällen ohne Brennstabfehler besitzen als Brennstäbe mit niedriger Stablängenleistung.

Hüllrohrverhalten bei kurzzeitigen Belastungen

Entscheidend für die Beherrschung eines Störfalles ohne Hüllrohrfehler sind die Festigkeitseigenschaften des Hüllrohrwerkstoffs nach Bestrahlung (Strahlungsversprödung, Innenkorrosion) unter den speziellen Randbedingungen des Störfalles. Die Versagensgrenze des Hüllrohrwerkstoffs AISI 316, 20 % CW wurde in einem Versuchsprogramm ermittelt [2]. Ausgehend von einer Temperatur von 370 °C wurden die Temperaturen mit einer Änderungsgeschwindigkeit von 6 °C/sec bzw. 110 °C/sec solange erhöht, bis ein Hüllrohrfehler auftrat. Die Belastung durch Innendruck wurde während der Temperaturerhöhung konstant gehalten. Die Versuchsergebnisse sind in Abb. 2 dargestellt. Diese Daten dürften auf den SNR-300 Hüllrohrwerkstoff 1.4970 (kv, a) übertragbar sein.

Es zeigt sich, daß bei der kleineren Temperaturänderungsgeschwindigkeit infolge Erholungsvorgänge im Werkstoff eine Erniedrigung der Bruchspannung eintritt; sie ist aber korreliert mit einer Erhöhung der Bruchdehnung. Zugleich sieht man, daß Hüllrohrproben mit Innenkorrosionsangriff bei geringeren Spannungen versagen als Proben ohne Innenkorrosion.

Beispiele für Störfälle: Belastungen und Beurteilung

- a) Reaktivitätsstörung: Ausfahren des Regelstabes (SNR-300) [3]
Die Regelung versagt. Der Regelstab fährt ohne Unterbrechung bei 100 % Leistungsbetrieb aus. Einschließlich 20 % Unsicherheitszuschlag entspricht dies maximal einer Rampe von 5,1 cent/sec. Je später der Schnellschluß erfolgt, um so höher fallen die Temperaturspitzen im Kern aus. Dies ist in Abb. 3 für die Schnellschlußanregungen "Neutronenfluß zu Durchsatz hoch" und, wenn die erstere Anregung ausfällt, für die Schnellschlußanregung "Mittlere Kernaustrittstemperatur hoch" dargestellt. Die maximale Brennstab-Hüllrohrtemperatur erreicht kurzzeitig ca. 800 °C unter Extremalbedingungen.
- b) Kühlmitteldurchsatzstörung: Ausfall einer Primärpumpe (SNR-300) [3]
Das Antriebsmoment einer Pumpe wird plötzlich Null. Die Pumpendrehzahl fällt ab. Die übrigen Pumpen laufen geregelt mit

konstantem Pumpendurchsatz weiter, wobei ihre Pumpendrehzahl leicht zurückgeht. Der gesamte Primärkreisdurchsatz fällt ab, bis Schnellschluß erfolgt und der Reaktor und die übrigen Pumpen abgeschaltet werden. Analog dem ersten Beispiel erreichen die Brennstab-Hüllrohrtemperaturen um so höhere Werte, je später der Schnellschluß erfolgt. Dies ist in Abb. 4 für die Schnellschlußanregungen "Neutronenfluß zu Durchsatz hoch" und, wenn die erstere Anregung ausfällt, für die Schnellschlußanregung "Mittlere Kernaustrittstemperatur hoch" dargestellt. Die max. Hüllrohrtemperatur erreicht kurzzeitig ca. 840 °C unter Extremalbedingungen.

c) Hypothetischer Störfall: Notkühlung des Reaktorkerns
(KNK-II) / 4 /

Im Primärsystem wird ein großes Leck mit Kühlmittelverlust angenommen. Es wird weiter angenommen, daß das Schnellschlußsignal "Natriumspiegel im Reaktortank niedrig" ausfällt und die Pumpenabschaltung versagt. Der Natriumspiegel sinkt unter das Niveau der Ansaugstutzen im Tank. Damit unterbricht sich der Kühlmittelkreislauf von selbst; es tritt ein tankinterner Naturumlauf durch Konvektion ein. Bei diesem Notkühlfall treten im Reaktorkern für einige Stunden Kühlmitteltemperaturen bis zu 810 °C auf. Der zeitliche Verlauf dieser Temperaturen ist in Abb. 5 für die Absorberstäbe dargestellt.

Die Störfälle a) und b) werden auch unter extremalen Annahmen ohne Brennstab-Hüllrohrschäden beherrscht, da die Hüllrohrbelastung durch Spaltgasinnendruck von 64 N/mm² zu Ende der Einsatzzeit bei den kurzzeitig auftretenden Spitztemperaturen unterhalb der Versagensgrenze des Hüllrohrwerkstoffs (siehe Abb. 2) liegt. Die mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hüllrohr wurde hier nicht untersucht, sie führt aber im Störfall b) sowie im Störfall a) bei Ansprechen der 1. Schnellschlußanregung nicht zu kritischen Belastungen des Hüllrohrs.

Im Störfall c) sind einige der im vorlaufenden Normalbetrieb hochbelasteten Absorberstäbe ausfallgefährdet. Die Absorberstabhüllrohre sind infolge von He-Freisetzung mit einem hohen Innendruck beaufschlagt, der im Notkühlfall mit den Temperaturen anwächst. Gleichzeitig wird infolge der überhöhten Hüllrohrtemperaturen die Kriechfestigkeit des Hüllrohrwerkstoffs herabgesetzt. Durch Überlagerung der nominellen Häufigkeitsverteilung des mittleren Stababbrands und damit des Stabinnendrucks mit einer Wahrscheinlichkeitsverteilung aller Auslegungsunsicherheiten gewinnt man eine Verteilung der Hüllrohrschädigungsrate und die kumulative Häufigkeit der ausfallgefährdeten Absorberstäbe. Der zeitliche Verlauf dieser Kurven ist in Abb. 5 dargestellt. Die Zahl der Stäbe, die die Auslegungsgrenze überschreiten, gelten als ausfallgefährdet. Nimmt man an, daß diese Stäbe als Absorber völlig ausfallen, kann auch dann der Nachweis erbracht werden, daß der Reaktor in einem sicheren Zustand gehalten werden kann.

An diesen drei Beispielen kann man sehen, daß die Kernelemente für typische Störfälle die oben genannten Auslegungsanforderungen erfüllen.

Die Verfasser danken der INB für die Freigabe des Materials sowie den Mitarbeitern der INTERATOM für die hilfreiche Unterstützung.

Referenzen

- [⁻1_] Scott, J.H., Baars, R.E., Culley, G.E., Hunter, C.W.
"Microstructural Dependence of Failure Threshold in Mixed Oxide LMFBR Fuel Pins", HEDL-TME 75-9 (1974)
- [⁻2_] Hunter, C.W., Johnson, G.D., Fish, R.W.
"Mechanical Properties During Simulated Overpower Transients of Fast Reactor Cladding Irradiated from 700-1000°F", HEDL-TME 75-28 (1975)
- [⁻3_] Ertel, V.
"CODY II-Rechnungen zur Störfallbeherrschung mit Schnellschluß, 1. Teil: Betriebsstörungen" (1975) unveröffentlicht
- [⁻4_] Gestermann, F.
"KNK-II Absorberverhalten der Erst- und Zweitabschalt-einrichtung im Notkühlfall" (1976) unveröffentlicht

URSACHEN FOR BRENNSTABFEHLER BEI
REAKTIVITÄTS- UND KOHLMITTELDURCHSATZSTÖRUNGEN

	FRISCHER BRENNSTAB		ABGEBRANNTER BRENNSTAB			
	SCHNELL	LANGSAM	NIEDRIGE LEISTUNG		HOHE LEISTUNG	
			SCHNELL	LANGSAM	SCHNELL	LANGSAM
1. WÄRMEDEHNUNGEN BRENNSTOFF/HOLLROHR	■	■	■	■	□	
2. SPONTANE SPALTGAS- FREISETZUNG			■			
3. TRANSIENTES BRENN- STOFFSCHWELLEN			■	■	□	
4. LOKALES KOHLMITTEL- SIEDEN		□		■		■
5. OBERHÖHTE KOHLMITTEL- TEMPERATUREN				■		■

T8/Ge 28.10.76

Abb. 1: Ursachen für Brennstabfehler bei Reaktivitäts- und Kühlmitteldurchsatzstörungen

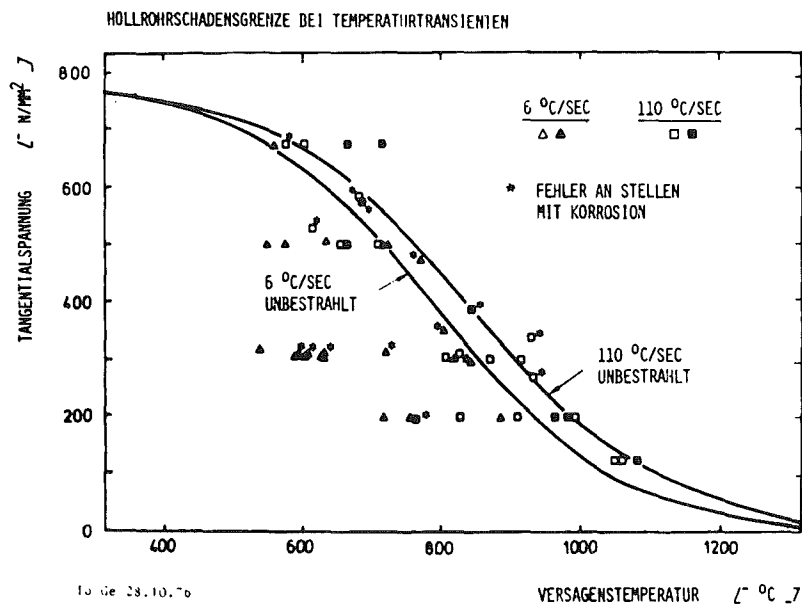
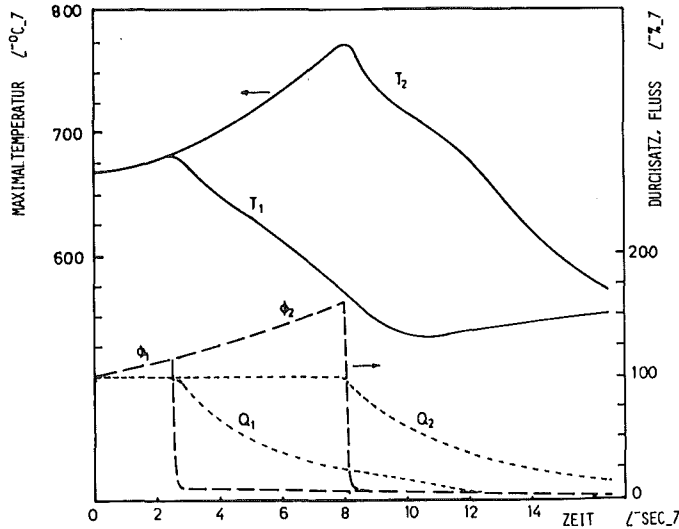
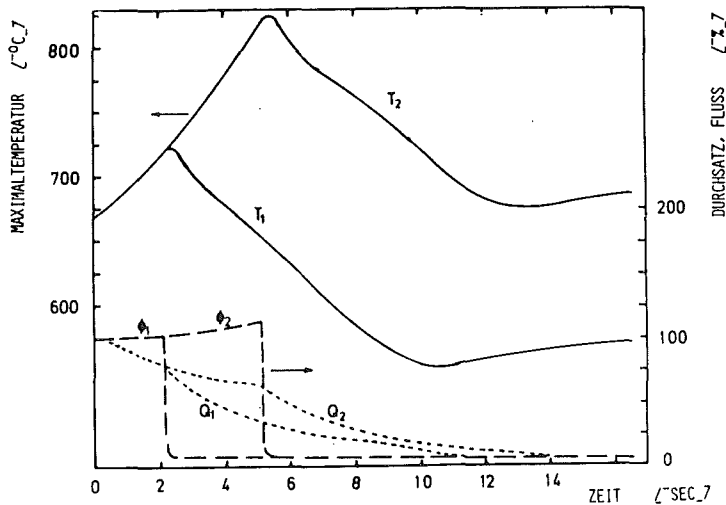


Abb. 2: Hüllrohrschadensgrenze bei Temperaturtransienten für AISI 316, 20 % kv. Vergleich von Hüllrohren mit und ohne Bestrahlungsgeschichte unter verschiedenen Transienten. Eine Verringerung der Hüllrohrwandstärke durch Korrosion wurde bei der Berechnung der Tangentialspannung berücksichtigt.



T8/Ge 28.10.76

Abb. 3: SNR-300, Brennstab. Störfall durch Ausfahren des Regelstabes aus 100 % Leistung, EOL. Aufgetragen sind die Austrittstemperaturen T aus dem heißesten Kühlkanal, der Neutronenfluß ϕ und der Kühlmitteldurchsatz Q gegen die Zeit nach Beginn der Störung. Die Indices bedeuten:
 1... Scramanregung wirksam $\phi / Q \geq 1,12$
 2... Temperaturscramanregung wirksam $T \geq T_0 + 30K$



T8/Ge 28.10.76

Abb. 4: SNR-300, Brennstab. Störfall durch Ausfall einer Primärpumpe bei 100 % Leistung, EOL. Aufgetragen sind die Austrittstemperaturen T aus dem heißesten Kühlkanal, der Neutronenfluß ϕ und Kühlmitteldurchsatz Q gegen die Zeit nach Beginn der Störung. Die Indices bedeuten:
 1... Scramanregung wirksam $\phi / Q \geq 1,12$
 2... Temperaturscramanregung wirksam $T \geq T_0 + 30K$

TEMPERATURVERLAUF UND SCHADENSERWARTUNG BEI NOTKÜHLUNG ABSORBER KNK-II

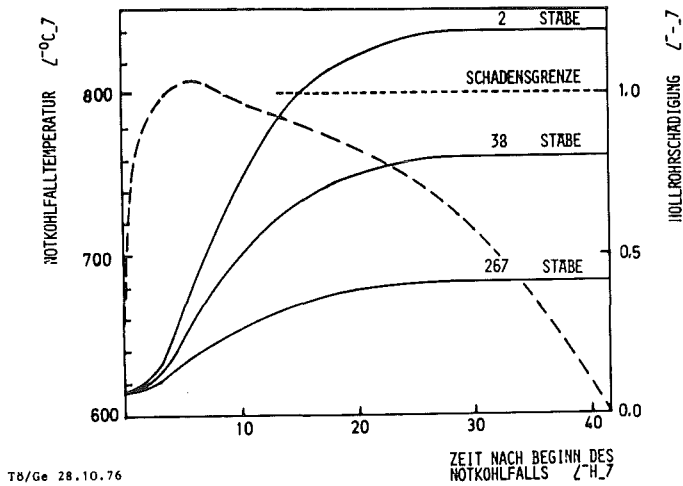


Abb. 5: KNK-II, Absorberstab. Temperaturverlauf und Absorberstab-Schadenserwartung bei Notkühlung durch Naturkonvektion bei abgesenktem Natriumspiegel. Aufgetragen ist die Notkühltemperatur im heißesten Stabbereich (gestrichelte Kurve) sowie die akkumulierte Hüllrohrschädigung (durchgezogene Kurven) gegen die Zeit nach Beginn des Notkühlfalls. Bei einem Notkühlfall, der nach 365 VLT angenommen wurde, überschreiten aufgrund der unterschiedlichen Abbrandgeschichte von 275 Absorberstäben 9 die Schadensgrenze, wobei 2 Stäbe die maximale Schädigung von 1,2 erreichen.

Defektstab- und Störfallexperimente

H.Plitz/GfK

1. Einleitung

Im Laufe der letzten Jahre wurden die Arbeiten zur Untersuchung von Störfällen des Schnellen Natriumgekühlten Reaktors (SNR) verstärkt. Daraus könnte man nun folgern, daß der SNR unsicher ist oder zumindest unsicherer als der heute in großen Stückzahlen gebaute Leichtwasserreaktor (LWR).

Dies ist aber nicht der Fall.

Bei der Einführung des LWR in Deutschland baute man zunächst nach USA-Muster ein kleines Demonstrationskraftwerk und danach größere Kraftwerke. Erst nach dieser Bauphase wurden gezielt weiterführende Sicherheitsuntersuchungen und sicherheitsbezogene Experimente durchgeführt.

Anders ist heute der Verfahrensweg für den SNR, bei dem erst alle hypothetischen Unfälle und Störfälle durchdacht, berechnet und belegt werden müssen. Diese Sicherheitsnachweise für die Lizenzierung, für das Festlegen des Baukonzeptes und das Einplanen von Gegenmaßnahmen gegen die Auswirkungen hypothetischer Unfälle sind seit langem in Arbeit und weitgehend grundsätzlich erbracht worden.

Doch nun wird nach Baubeginn des SNR-300 das Verhalten der Brennelemente bei durchaus möglichen, betrieblichen Störfällen interessant, und zwar nicht aus Sicherheitsgründen, sondern aus ökonomischen Gründen.

Beim LWR ist die Inspektion schadhafter Brennelemente wegen der Durchsichtigkeit des Kühlmediums Wasser leicht möglich und die Reparatur bzw. das Auswechseln von Brennstäben vor Ort durchführbar.

Beim SNR sind diese Operationen, wie Aufspüren defekter Brennstäbe, die Entladeprozedur, die Reparatur vor Ort nicht so einfach, sodaß die Betriebskosten und die Anlagenverfügbarkeit negativ beeinflußt werden durch Betriebsschäden an Brennelementen. Da die Erfahrungen mit dem Weiterbetrieb von leicht defekten Brennstäben uns einige Erkenntnisse brachten, haben wir verstärkt Anlaß, die Schadensgrenzen, die Ursachen, den Versagensablauf und die möglichen Auswirkungen bei betrieblichen Störfällen an Brennelementen gezielt zu untersuchen.

2. Überblick über hypothetische Störfälle und betriebliche Störfälle und deren Auswirkungen

In Abb. 1 ist eine Übersicht über wesentliche hypothetische Unfälle und betriebliche Störfälle des SNR zusammengestellt.

Die wesentlichen Ursachen und Auswirkungen von Brennstabschäden sind in Abb. 2 zusammengefaßt.

3. Übersicht über Brennstabbestrahlungserfahrungen

In der Abb. 3 ist die internationale Statistik der Brennstabbestrahlungserfahrung im schnellen Neutronenfluß zusammengestellt.

Man erkennt, daß bei dem Betrieb von größeren Reaktoren, wie PHENIX, die Schadensraten unter 1 Promille liegen. Die Schadensraten bei anderen Reaktoren, insbesondere beim Bestrahlungsprogramm des PSB, liegen aber wesentlich höher.

Beim PSB-Bestrahlungsprogramm wurden bewußt in einigen Fällen die für den Prototypreaktor SNR-300 festgelegten max. nominalen Betriebsbedingungen überschritten, um mögliche Belastungsgrenzen in bezug auf Stableistung, Hüllentemperatur und Abbrand auszutesten. Nachdrücklich muß hier festgestellt werden, daß die Brennstabschäden beim Überschreiten der für den SNR ausgelegten Betriebsdaten aufgetreten sind und somit nur u.U. für einige wenige höchstbelastete Brennstäbe im ganzen Reaktorkern möglich sind.

Für den SNR werden ähnlich geringe Ausfallraten gelten wie für PHENIX.

4. Experimentelle Störfallprogramme

Da wir im Vergleich etwa zum CEA Frankreich einen Rückstand in der statistischen Erprobung von Brennstäben haben, konzentrieren sich unsere Forschungsarbeiten auf das Verhalten von Brennstäben vor, während und nach Störfällen, um Schadensschwellen für das Auftreten von Defekten bei betrieblichen Störfällen zu ermitteln und damit die statistischen Erfahrungen zu ersetzen durch genaue Kenntnis von Schadensgrenzen und damit die Vermeidung von Stabschäden zu erreichen.

In Abb. 4 ist das Spektrum der Experimente zur Untersuchung der Auswirkungen von Leistungsstörungen und in Abb. 5 zur Untersuchung der Auswirkungen von Kühlstörungen schematisch dargestellt.

Die in der ersten Phase durchzuführenden Experimente des Störfallprogrammes mit Einzelstäben sind in Abb. 6 zusammengestellt.

Die ersten Experimente mit hartem Zyklierbetrieb und bei Überlast werden Anfang 1977 im HFR-Petten beginnen. Es werden Oxid- und Karbidbrennstäbe eingesetzt. Ab etwa 1978 sollen auch im schnellen Neutronenfluß vorbestrahlte Testbrennstäbe, nach Möglichkeit in Na-Loops wie VIC im BR-2, mit der Möglichkeit, Leistungen und Hülltemperaturen zu regeln, getestet werden.

Es ist besonders zu betonen, daß hier nur betriebliche Störfälle angesprochen sind, nicht hypothetische Unfälle. Man kann definieren, daß bei hypothetischen Unfällen die Brennstäbe zerstört werden, bei betrieblichen Störfällen jedoch werden die Brennstäbe nicht notwendigerweise defekt.

Das Störfallprogramm zielt darauf ab, Schadensgrenzen durch betriebliche Störungen aufzuzeigen (Run to Failure Programs).

5. Defektstabprogramm

Einen anderen Zweck soll das sogenannte Defektstabprogramm (Run Beyond Failure Program) erfüllen, nämlich aufzeigen, wie ein defekter

Brennstab sich im Weiterbetrieb verhält, welche Phänomene auftreten und welche Schadenskonsequenzen zu erwarten sind. Deshalb wurde ein Defektstabprogramm im gut instrumentierten Natriumkreislauf des Reaktors SILOE in Grenoble begonnen.

Zunächst sind 2 Experimente mit frischen und 2 Experimente mit abgebrannten (in RAPSODIE 92.000 MWd/tM vorbestrahlt) Testbrennstäbe vorgesehen. Die Stäbe wurden einheitlich an der Hüllheizstelle künstlich beschädigt (Schlitz 30x1 mm).

Wesentliche Ziele dieser Experimente sind:

- a) Weiteres Verhalten SNR-typischer defekter Brennstäbe in Abhängigkeit von Abbrand, Leistungsgeschichte, Na-Verhältnissen.
- b) Verlauf der Na-Oxid-Reaktion in-pile.
- c) Ablagerung von Spaltprodukten im Primärkreis.
- d) Schadenserkennung und Verfolgung mit Instrumentierungen.

In Abb. 7 ist kurz das Defektstabprogramm beschrieben.

Dies Experimente im SILOE-Reaktor werden mit geeigneten Instrumenten laufend verfolgt, um das zeitliche Verhalten der Brennstabdefekte zu überwachen.

Der erste Versuch (S2) ist inzwischen abgeschlossen, und die wesentlichen Ergebnisse dieses ersten Defektstabexperimentes mit einem nicht im schnellen Neutronenfluß vorbestrahlten SNR-spezifischen Brennstab liegen größtenteils vor.

Das wesentlichste Ergebnis dieses Experimentes ist das Schwellen des Stabes an der Defekstelle.

Die Abb. 8 zeigt den Testbrennstab S2 zu Einsatzbeginn und nach Experimentende (Abbrand 6000 MWd/tM). Man erkennt, daß der Stab infolge der Na/Brennstoff-Reaktion stark geschwollen ist, jedoch hat sich kein Sekundärschaden eingestellt.

6. Na/Oxidbrennstoff-Reaktion bei defekten Brennstäben

Im Falle des Defekteintrittes ist die ablaufende Reaktion zwischen dem eindringenden Kühlmittel Na in den Mischoxidbrennstoff entscheidend für das weitere Verhalten von defekten Stäben. Im System Brennstoff/Na/Sauerstoff bildet sich nach Überschreiten einer sehr niedrig liegenden und deshalb im praktischen Fall immer überschrittenen Gleichgewichts-Sauerstoff-Konzentration ein Reaktionsprodukt der Form $\text{Na}_3 \text{MO}_4$, das eine geringe Dichte ($5,5 \text{ g/cm}^3$), eine schlechte Wärmeleitfähigkeit (10% von UO_2) und einen geringen Schmelzpunkt von $1420 \text{ }^\circ\text{C}$ hat. Diese Reaktion bewirkt eine starke Schwellung des defekten Brennstabes, wobei die ablaufende Reaktionskinetik abhängt von der Brennstoffstöchiometrie (erhöhter Effekt mit steigendem Abbrand), den Reaktionstemperaturen, den geometrischen Verhältnissen, den thermohydraulischen Verhältnissen, der Schadensgröße, der Schadensform, der Stableistung, der Brennstoffmorphologie etc, Abb. 9.

Diese Stabschwellung kann zu Kühlkanalverengungen, zu Blockaden und zur Schadenspropagation führen.

In Abb. 10 ist die Durchmessererweiterung in Abhängigkeit der effektiven Stöchiometrie aufgetragen, wobei die aufgrund thermodynamischer Überlegungen mit niedrigen Sauerstoffdiffusions-Koeffizienten errechneten theoretischen Durchmesserzunahmen weit unter den experimentell ermittelten Werten liegen. Die alten theoretischen Vorstellungen mußten verworfen und durch neue, kompliziertere ersetzt werden, wobei Prozesse entlang der Korngrenzen im wesentlichen zu berücksichtigen waren. Man erkennt, daß die Aufweitung mit steigendem Abbrand (1% Abbrand entspricht 0,005 Stöchiometrieerhöhung) wächst (Mol-7B).

Die experimentell ermittelten Aufweitgeschwindigkeiten bei großen Defekten sind in Abb. 11 aufgetragen, wobei amerikanische, französische und deutsche Erfahrungen (Versuch S2) zusammengestellt wurden. Diese Aufweitgeschwindigkeiten gelten für große Defekte an der Hüllenheißstelle.

Im Normalfall wird nicht mit so großen primären Defekten zu rechnen sein. Insbesondere die Erfahrungen des CEA mit Stabdefekten (vor allem EROS-Ergebnisse, kleine Defekte im Plenumbereich, langsames Na-Eindringen, Schwellen wird zunächst in internen Hohlräumen im Stab aufgefangen bzw. abgeleitet) ergaben, daß abhängig von Abbrand und Reaktionstemperaturen das Auftreten von Sekundärschäden durch Aufreißen der Hülle bei Duktilitätsüberschreitung durch schwellendes Na_3MO_4 erst sehr viel später eintritt.

In Abb. 12 ist dies dargestellt, wobei die Annahme getroffen wurde, daß erst bei Überschreiten von 1% Hüllaufweitung der betreffende Stab entladen werden muß, weil danach die weitere Aufweitung rasch abläuft (vgl. Abb. 11) und zu Kühlkanalverengungen und damit zur Schadenspropagation führen kann.

Aus der Abb. 12 kann abgelesen werden, wie lange ein Brennstab nach Schadenseintritt (kleiner Defekt) als Funktion von Abbrandzustand und Reaktionstemperatur Brennstoffoberfläche/Na noch im Reaktor belassen werden kann, bis erfahrungsgemäß 1% Hüllaufweitung überschritten wird und das weitere Stabverhalten kritisch verlaufen kann. Man erkennt, daß bei angenommenen 900°C Brennstoff/Na-Reaktionstemperatur der betroffene Brennstab bei 20.000 MWd/tM noch ca. 1 Woche, bei 60.000 MWd/tM-Abbrand und gleichzeitiger Schadensindikation aber nur 12 Stunden im Reaktor betrieben werden kann.

Mit höherem Abbrand nimmt also die Limitierung stark zu, so daß bei Schadensindikationen an hochabgebrannten Brennstäben der Reaktor möglichst bald abgeschaltet werden sollte.

In den Abb. 13 und 14 sind schematisch zur Abrundung und zum besseren Verständnis dieser doch komplizierten Na-Brennstoff-Schwellvorgänge die Situationen Brennstabdefekt/eindringendes Natrium dargestellt.

7. Folgerungen

Die Grenzwerte für das Auftreten von Schäden an Brennelementen des Natriumbrüters bei verschiedenen betrieblichen Störfällen als Funktion der Leistungsdichte und des Abbrandes sind heute noch nicht experimentell genau genug belegt. Ebenso sind die Konsequenzen für den Betrieb eines Natriumbrüters mit defekten Brennstäben heute

noch nicht ganz geklärt:

Man ist gezwungen, schrittweise experimentelle Erfahrungen zu sammeln. Dabei sind insbesondere die folgenden Fragen zu beantworten:

- Versagensschwellen für das Spektrum der betrieblichen Störfälle
- Versagensschwellen in Abhängigkeit von Leistungsdichte und Abbrand
- Einfluß der Hüllmaterialversprödung
- Korrelation und Interpretation von Schadensursache, Schadenstyp, Schadensgröße mit den Signalen der Schadenserkenkungssysteme
- Axiale Effekte
- Lokale Effekte
- Sekundär-Effekte (Na-Eindringen, Zyklrierbetrieb)
- Bündelverhalten (Abstandshalter, Kästen)
- Entwicklung und Absicherung von Rechenprogrammen zu Schadensprognosen, Schadensablauf und -auswirkungen als Funktion der betrieblichen Störfallart.

8. Zusammenfassung

Zusammenfassend läßt sich folgendes feststellen:

Aus den vorliegenden Erfahrungen mit Bestrahlungsexperimenten mit teilweisen Betriebsstörungen und mit dem nicht beabsichtigten Weiterbetrieb von defekten Brennstäben darf vermutet werden, daß bei Betriebsstörungen der Reaktor abhängig von Schadenstyp, Schadenszeitpunkt und Schadensausmaß eventuell weiterlaufen kann. Da der Reaktor auf jeden Fall bei oder nach betrieblichen Störfällen abgeschaltet werden kann, sind die Auswirkungen betrieblicher Störfälle, keine Frage der Sicherheit, sondern der Wirtschaftlichkeit. Um die Wirtschaftlichkeit bzw. die Verfügbarkeit des SNR zu erhöhen, sollte für den Reaktorbetrieb eine Art Katalog über die möglichen betrieblichen Störfälle, deren Dauer und Auswirkungen, eventuelle Schadensursachen, Schadenstypen, Schadensauswirkungen und die notwendigen Gegenmaßnahmen bzw. Betriebsvorkehrungen, entwickelt werden.

Aus diesen Gründen werden besondere Programme zur Untersuchung der Auswirkungen betrieblicher Störfälle auf das Verhalten von Brennelementen und das Verhalten defekter Brennstäbe im Weiterbetrieb durchgeführt.

Danksagung:

Einigen Herren verschiedener Institute des Kernforschungszentrums Karlsruhe, Kollegen und anderen möchte ich an dieser Stelle danken für Mitarbeit und Überlassung von Informationen.

WESENTLICHE HYPOTHETISCHE UNFÄLLE UND BETRIEBLICHE STÖRFÄLLE DES SNR

- I. Hypothetische schwere Unfälle
 1. Leistungsexkursionen (Reaktivitätsunfälle)
 2. Kühlmittelverlust
 3. Nachunfallphase (Wärmeabfuhr)
- II. Betriebliche Störfälle
 1. Leistungsstörungen
 - a) Hartes Zyklieren
 - b) Leistungsüberhöhungen
 - c) Rampen
 - d) Transienten
 2. Kühlstörungen
 - a) Lokale Überhitzungen
 - b) Verengungen
 - c) Verbiegungen
 - d) Ablagerungen
 - e) Lokale Blockaden
 - f) Pumpenausfall
 - g) Ausfall der Wärmesenken
 - h) Leckagen

Abb. 1

Stabversagensarten und Auswirkungen

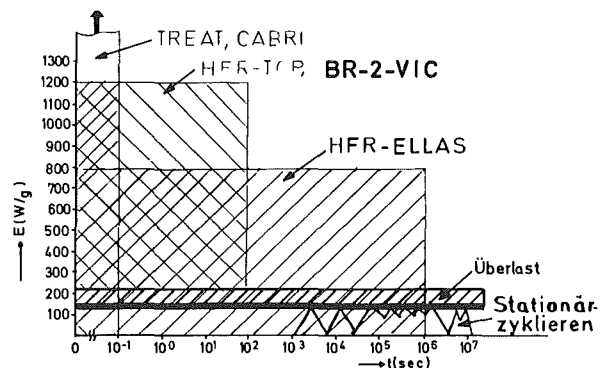
- a) Hüllrohrperforation (Haarrisse, Pinholes): Freigabe von Spaltgasen, flüchtige Spaltprodukte
- b) Hüllrohrbruch (plast. Verformung, Ermüdungsbruch, Kriechdehnung): Austritt von Spaltprodukten und Brennstoff, Eindringen des Kühlmittels, Sekundäreffekte
- c) Endstopfdefekte: Freigabe von Spaltgasen, u.U. Austragung von Brennstoff
- d) Hüllrohrschmelzen: Brennstoffaustragung
- e) Propagation

Abb. 2

Reaktor	Anzahl bestrahlter Stäbe	Anzahl defekter Stäbe	Defektrate (%)
BR-5, BOR-60	4,600	~ 150	3,3
DFR	~ 1,000	~ 50	5,0
Rapsodie	25,000	24	0,1
Phénix	> 30,000	~ 10	0,03
EBR-II, SEFOR	1,500	10	0,7
GfK-Programm	209	30	14,5
	~ 62,300	274	0,44

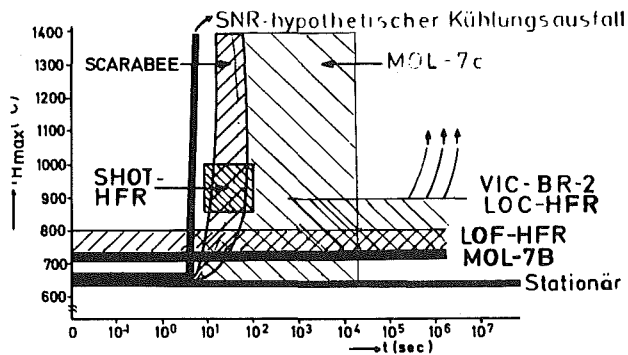
Statistik bestrahlter Oxidbrennstäbe in Na-gekühlten schnellen Reaktoren

Abb. 3



Mögliche Belastungsfälle des SNR-Brennstabes, Experimente zu hypothetischen und betrieblichen Störfällen

Abb. 4



Experimente mit überhöhten Hülltemperaturen, hypothetische und betriebliche Störfälle durch Kühlstörungen an SNR-Brennstäben

Abb. 5

STÖRFALLEXPERIMENTE (1. Phase 1976-78)

Störfallkategorie	Leistungsbedingung	Hülltemperaturbedingung	Experimente
1. Leistungsstörungen			
a) Zyklieren	<0,15%/sec	<1 °C/sec	HFR-ELLAS (BR-2)
b) Oberhöhungen, Rampen	<150%	<+100 °C	HFR-TRIO (BR-2)
c) Transienten	<50%/sec	<+100 °C/sec	BR-2-VHS, BR-2-VIC
2. Kühlstörungen			
a) In-Pile	<0,15%/sec	<100 °C/sec <+ 300 °C	HFR-SHOT, BR-2-VIC
b) Out-Pile	-	<200 °C/sec <1500 °C	GfK

Abb. 6

PSB-Defektstabprogramm

Basis:

- a) Auswertung von Defekten aus PSE-Bestrahlungen
- b) CEA-Programm (5 SILOE, 2 PEACE, 8 APSODIE)
- c) USA-Programm (13 GETP, 9 EBP-II)

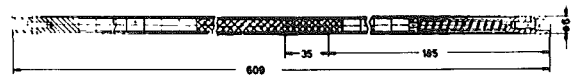
SILOE-Programm:

Experiment	Abbrand	Betrieb
S 1	0	konst./zykl.
S 2	0	zykl.
S 3	10,6%	konst./zykl.
S 4	10,6%	zykl.
S 5	0/10,6%	konst./zykl.

KNK-II-Programm

- Mehrstabexperimente in Planung

Abb. 7



Aufsicht auf Ausgangsdefekt



Aufsicht auf Defekt nach ca. 8000 MWd/tM (Zykl.programm)

PSB-Defektstabprogramm im SILOE:
Aussehen des künstlich defekt gemachten Brennstabes S2 (Schlitz 35x1mm)

Abb. 8

WESENTLICHE PARAMETER DER Na/DIOXBRENNSTOFF-REAKTION BEI HOLLROHREDEFEKTEN

	Primäre Parameter	Sekundäre Parameter
Art des Schwellens (gleichmäßig oder lokal)	1. Spaltgröße 2. Art, Lage, Größe des Defektes (Defektdimension) 3. Brennstoffdichte (Zentralkanal) 4. Kühlkanalverhältnisse	Leistung, Abbrand, lokale Spannungen, Hüllmaterialdaten
Ausmaß des Schwellens	1. Verfügbare O im Brennstoff (O/M) 2. Art des Schwellens (Defektdimension) 3. Axialer Sauerstofftransport 4. Temperaturen 5. Abbrand/Zeitdauer 6. Brennstoffdichte 7. O-Gehalt in Na	Spaltgröße, Geometrien, Stöchiometrie, Brennstoffmorphologie, Leistung, Temperaturgradienten, Zyklieren, Kühlkanalverhältnisse
Schwellenrate	1. Brennstoffoberflächentemperatur 2. Stöchiometrie-Verteilung 3. Na-Kühlverhältnisse 4. Diffusionsraten (O,Na)	Leistung, Zyklieren, Position, Na-Temperatur, Abbrand, Brennstoffdichte, Temperaturgradienten, Defektgröße, Hüllmaterialdaten, Geometrie, Kühlkanalverhältnisse

Abb. 9

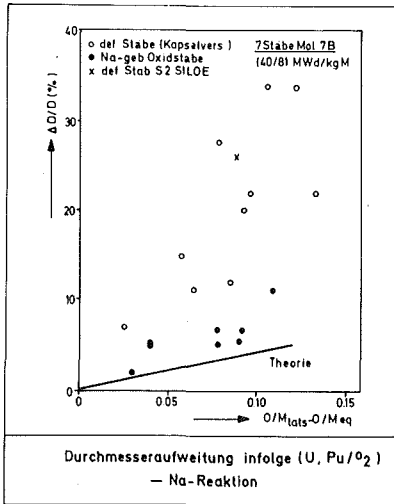


Abb. 10

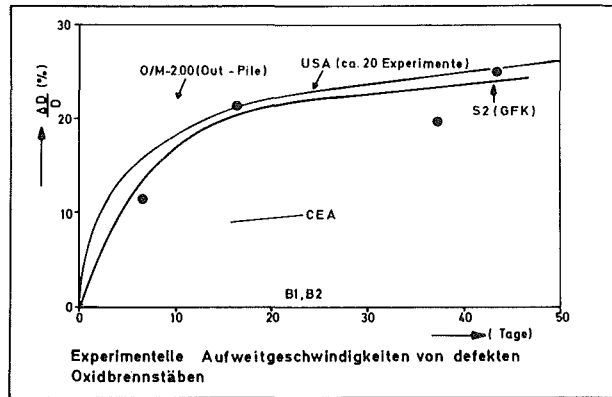


Abb. 11

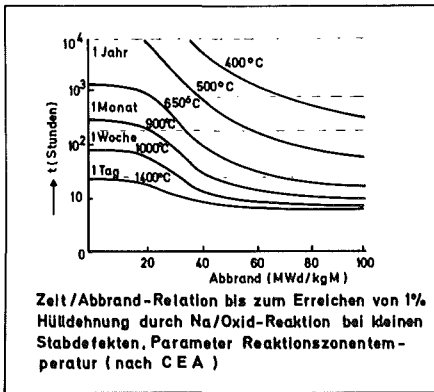


Abb. 12

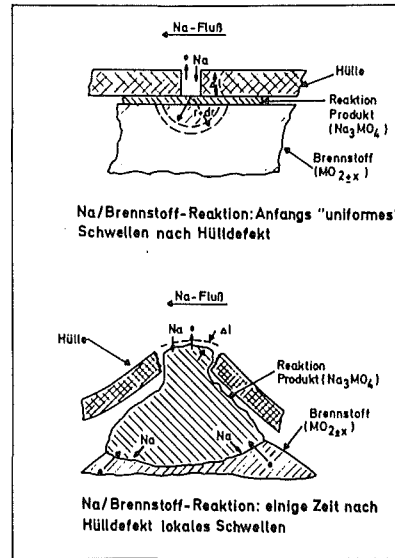


Abb. 13

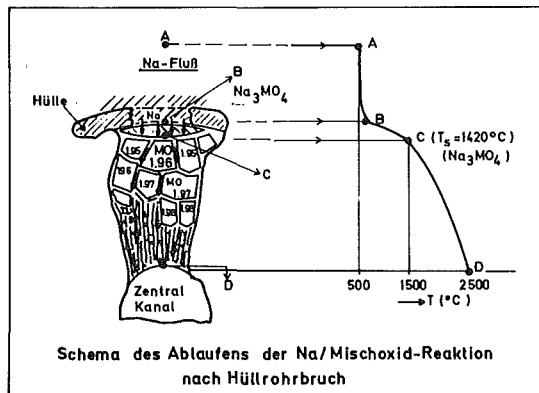


Abb. 14

Beitrag zur KTG-Fachtagung am 28./29. Oktober 1976

"STAND DER KARBID-BRENNELEMENT-ENTWICKLUNG"

G.Mühling - GfK

1. Einleitung

Seit 1968 läuft bei der GfK ein Arbeitsprogramm zur Entwicklung eines karbidischen Brennelementes für den SNR 300. Wesentliche Schwerpunkte dieses Programmes sind:

- die Entwicklung eines geeigneten Herstellungsverfahrens für das U-Pu-Mischkarbid im technologisch relevanten Maßstab. Diese Entwicklung wird in Zusammenarbeit mit den Industriepartnern Alkem und Nukem abgewickelt
- die Durchführung von Grundlagenuntersuchungen zur Ermittlung spezieller Materialdaten wie Kriechverhalten, Schwellen usw.; überwiegend ausgeführt im IMF-I der GfK
- die Planung, Auslegung und Durchführung von Bestrahlungsexperimenten, sowie deren Nachuntersuchung und Auswertung.

Ergänzende Arbeiten zu all den genannten Entwicklungsschwerpunkten werden beim CEN/MOL, im EIR/Würenlingen und beim T.U.I./Karlsruhe durchgeführt.

Da sowohl über die Karbidherstellung als auch über spezielle Materialdaten gesondert berichtet wird, befaßt sich der nachfolgende Beitrag nur mit dem letztgenannten Schwerpunkt, nämlich dem Karbid-Bestrahlungsprogramm.

Als Begründung der laufenden Karbidaktivitäten werden die bekannten Vorteile gesehen, die das Karbid als Schnellbrüter-Brennstoff gegenüber dem Oxid auszeichnen. Es sind dies vor allem die höhere Schwermetalldichte, das bessere Moderationsverhalten und die bessere Wärmeleitfähigkeit. Diese Vorteile wirken sich auf eine Verbesserung der Brutrate und auf eine Erniedrigung des Spaltstoffinventars im Falle des karbidischen Brennelementes aus, beides wesentliche Voraussetzungen im Hinblick auf die Verwirklichung einer langfristigen Energieversorgungsstrategie mit dem Ziel einer weitgehenden Schonung der Uranreserven.

2. Karbid-Bestrahlungsprogramme

Das Bestrahlungsprogramm bis 1980 ist in 2 Phasen gegliedert. Phase 1 ist gekennzeichnet durch Einzelstabbestrahlungen in den thermischen Reaktoren FR-2 und BR-2.

Bei den Einzelstabbestrahlungen handelt es sich durchwegs um Grundlagenexperimente zur Parameterermittlung und Konzeptfestlegung. Die Abb. 1 und 2 geben einen Überblick über die Durchführung der Experimente.

Die Phase II umfaßt als Schwerpunkte Bündelbestrahlungen im schnellen Fluß sowie die Durchführung von ersten Tests zum Störfallverhalten von Karbidstäben. In Abb. 3 sind die laufenden bzw. geplanten Bündelexperimente zusammengestellt. Während als Zielsetzung bei den DFR-Versuchen Aussagen über das allgemeine Bestrahlungsverhalten im Schnellen Fluß angestrebt waren, stehen bei den ab Mitte 77 laufenden PFR- bzw. KNK-Experimenten die Erprobung des ausgewählten Referenzkonzeptes sowie das Verhalten ganzer Brennelementbündel unter relevanten SB-Bedingungen im Vordergrund.

Die Abb. 4 zeigt die geplanten Karbid-Störfallexperimente im HFR-Petten. Ziel dieser Bestrahlungen mit Einzelstäben ist es, das Verhalten bei leichten betrieblichen Störfällen zu untersuchen und bei eventuell aufgetretenen Schäden Aussagen über Schadensgrenze, über Ursachen und mögliche Schadensauswirkungen zu erhalten. Dazu werden die Experimente unter harten Zyklierbedingungen und bei Überlast durchgeführt.

Eine Übersicht über den zeitlichen Stand, über die Laufzeit der einzelnen Experimentgruppen sowie über die geplante Programmweiterführung gibt Abb. 5.

3. Konzeptauswahl

Für den Aufbau eines karbidischen Brennstabes existieren eine Reihe von möglichen Konzepten, deren wichtigste Beispiele bereits in den Abb. 1-3 aufgeführt wurden.

Wie beim Oxidstab kann der Brennstoff in Form dichtgesinterter Tabletten oder als vibrierfähiges Partikel in den Stab eingebracht werden und ähnlich zum Oxid gelten für beide Varianten auch im Falle des Karbids die bekannten Vor- und Nachteile des jeweiligen Konzeptes:

- so basiert z.B. die Tablettenherstellung auf einer weithin erprobten Fertigungstechnologie, und in Kombination mit einer veränderlichen Spaltweite und einem breiten Dichtespektrum können große Schmierdichtebereiche abgedeckt werden
- beim einvibrierten Stab fehlt bisher jede großtechnische Erprobung sowohl für das Herstellungsverfahren als auch bei der Bestrahlung. Dafür bietet diese Variante aber Vorteile im Hinblick auf geringeren Staubanfall (Problematik der Strahlenbelastung), geringere Zahl an Fertigungsschritten und einer besseren Automatisierbarkeit.

Eine weitere Möglichkeit zu Variationen des Karbidstabkonzeptes ist durch die verschiedenen Bindungsarten (Gas- oder Na-Bindung) gegeben. Und auch hier stehen sich wieder wie beim Brennstofftyp Vor- und Nachteile der jeweiligen Variante gegenüber.

Für die Gas-Bindung (fast ausschließlich He) sprechen z.B.:

- die deutlich einfachere und billigere Herstellung (bis auf die Handtierung unter Inertgas entsprechen die Verfahrens- und Prüfmethode genau denen des Oxidstabs)
- die bisherigen Bestrahlungsergebnisse zeigen eine geringere Fehlerrate als die der Na-gebundenen Stäbe.

Dagegen liegen die Vorteile des Na-gebundenen Konzeptes mehr auf ökonomischem Sektor, nämlich in der Möglichkeit, das vorhandene Potential des Karbids voll auszunutzen durch hohe Stabileistungen ($> 1000 \text{ W/cm}$), hohe Schmierdichten ($> 80\%$) und hohe Abbrände.

Ausgehend von Analysen internationaler und eigener Ergebnisse wurde ein Referenzkonzept ausgewählt, dessen Daten in der Abb. 6 zusammengefaßt sind. Hauptgründe für die Auswahl waren:

- das Stabkonzept mit Tablettenbrennstoff und He-Bindung ist hinsichtlich Herstellung deutlich einfacher und billiger als das Na-Konzept und basiert auf technologisch erprobten Verfahrensschritten
- die Verwirklichung erscheint ohne großen F+E-Aufwand möglich
- die bisherigen Bestrahlungserfahrungen sind gut; für die gewählten milden Bestrahlungsbedingungen (Stabileistung und Zielabbrand) werden hinsichtlich Brennstoff- und Hüllmaterialschwellen keine allzugroßen Probleme auftreten, sodaß auch mit einem Minimum an Stabfehlern zu rechnen ist

- trotz der milden Bedingungen befriedigen Brutrate (die immer noch deutlich besser ist als beim Oxid), Spaltstoffinventar und Verdopplungszeit bei diesem Konzept, das daher für ein Testelement des SNR-300 geeignet erscheint.

Selbstverständlich stellt das gewählte Referenzkonzept nicht das Endziel einer Karbidbrennelemententwicklung dar. Im kleineren Umfang werden daher noch 2 Konzeptvarianten verfolgt, die optimaler erscheinen. Es sind dies:

- der He-gebundene Stab mit einvibrierten Karbidpartikeln (diese Entwicklungsarbeiten laufen in Zusammenarbeit mit dem EIR). Aussichtsreich erscheint hier, daß das Brennstoffherstellungsverfahren besonders gut für ein "remote-handling" geeignet ist
- der Na-gebundene Stab mit Tablettenbrennstoff aus den bereits genannten Gründen der optimalen Potentialausschöpfung.

4. Stand, internationaler Vergleich

Bisher konnte die Bestrahlung von ca. 50 Brennstäben abgeschlossen werden, dabei wurden bei Einzelstabbestrahlungen im BR-2 bis zu 90 und bei den DFR-Bündelbestrahlungen ca. 70 MWd/kgM Abbrand bei Stableistungen erzielt, die im Mittel um ca. 1000 W/cm, d.h. deutlich höher als beim gewählten Referenzkonzept lagen. Die Bestrahlungen zeigen weiter, daß sich bei richtiger Auslegung Brennstoff- und Hüllschwelen beherrschen lassen, und daß damit die Grundvoraussetzungen für die Weiterentwicklung des karbidischen Brennelementes erfüllt sind.

Abschließend gibt Abb. 7 eine Übersicht über Karbidexperimente in anderen Ländern. Die Abb. zeigt, daß an allen Stellen, an welchen Schnellbrüterentwicklung getrieben wird, auch Entwicklungsarbeiten zum Karbidbrennelement durchgeführt werden. Die Zahl der Bestrahlungsvorhaben ist einigermaßen ausgeglichen, wobei allerdings die englischen PFR-Elemente noch nicht mitberücksichtigt wurden.

EXPERIMENT	STABZAHL	VERSUCHSZIEL	KONZEPT (% THEOR.D.) U. (MM)	BESTR. BEDINGUNGEN (W/CM) U. (MWd/KGM)	STAND
Vg 4A	7	ANFAHRVERHALTEN	HE-BDG: 10,0 86/80	1000 KURZZEITTESTS	ABGESCHLOSSEN
6A	7	SCHWELLEN, VERTRÄGLICHKEIT	HE-BDG: 10,0 86/80	> 1000 3 - 50	NBU
6C	6	ZENTRALTEMPERATUR	AR-BDG: 10,0 86/80	800 - 1000 25 - 75	NBU
6D	3	KONZEPTVERGLEICH	HE-BDG: 10,0 86/82	~ 1000 75	13/76
6E	3	KONZEPTVERGLEICH	NA-BDG: 10,0 93/82	~ 1000 75	13/76
LOOP Vg 5k	5	MECHAN. WECHSEL- WIRKUNG	HE-BDG: 8,0 91 UND 86	~ 1000 (ZYKLIERT)	2/1/78
KARBID - BESTRAHLUNGEN IM FR2					GFK/PSB

Abb. 1

EXPERIMENT	STABZAHL	VERSUCHSZIEL	KONZEPT (% THEOR.D.) U. (MM)	BESTR. BEDINGUNGEN (W/cm) U. (MWd/KGM)	STAND
MOL 11/K-2	3	SPALTGASFREI- SETZUNG	HE-BDG: 8,0 83/80	~ 1000 40-70	NBU (TEILW. ABGESCHL.)
K-3	4	SCHWELLEN	NA-BDG: 8,0 90/80	800 100	2/2/77
K-4	4	SCHWELLEN	HE-BDG: 8,0 96/80	800 75	-/1/78
K-5	4	REFERENZKONZEPT SPALTGASFREISETZUNG	HE-BDG: 8,0 84/75	800 70)	IN VORBEREITUNG BESTR. BEGINNT ENDE 77
(EIR)	1	KONZEPTERPROBUNG MIT EINVIBRIERT. BRENNST.	HE-BDG, 8,0 (75)	800) 70	
MOL 15	4	MC/M ₂ C ₃	NA-BDG: 5,6 90/80	1000 65-90	NBU ABGESCHLOSSEN
KARBID - BESTRAHLUNGEN IM BR-2					GFK/PSB

Abb. 2

EXPERIMENT	STABZAHL	VERSUCHSZIEL	KONZEPT (% THEOR.D.) U. (MM)	BESTR. BEDINGUNGEN (W/cm) U. (Mwd/KGM)	STAND
DFR 330/1	7	BÜNDELTEST IM SCHNELLEN FLUSS	NA-BDG; 9,50 96/78	1200 46	NBU
330/2	7	BÜNDELTEST MIT KONZEPTVERGLEICH	HE-BDG; 9,50 83/72	1200 70	BESTR. BEENDET
330/3	7	BÜNDELTEST MIT KONZEPTVERGLEICH	NA-BDG; 9,50 90/72	1200 70	BESTR. BEENDET
PFR/DMSA-1	7	ERPROBUNG DES REFERENZKONZEPTES	HE-BDG; 8,50 84/75	800 70	BESTR. BEGINNT 1977
DMSA-2	7) UNTER) RELEVANTEN SB-BEDINGUNGEN	HE-BDG; 8,5 90/81	800 70	BESTR. BEGINNT 1977
KNK-II (2 BE)	121	ERPROBUNG DES REFERENZKONZEPTES	HE-BDG; 8,50 84/75	800 70	IN VORBEREITUNG BESTR. BEI 1. NACHLADUNG
KARBID - BÜNDELBESTRAHLUNGEN					GfK/PSB

EXPERIMENT	STABZAHL	VERSUCHSZIEL	KONZEPT (% THEOR.D.) U. (MM)	BESTR. BEDINGUNGEN (W/CM) U. (MWD/KGM)	STAND
TRIO-1	3	ÜBERLASTBETRIEB	HE-BDG: 8,5 84/70, 75 u. 80	CA. 1200 70	BESTR. BEGINN 77
ELLAS-1	1	LEISTUNGSZYKLIEREN	HE-BDG: 8,5 84/75	800 (ZYKLIEREN) 70	BESTR. BEGINN JANUAR 77
TRIO-2	3	ÜBERLAST) WIE EXPERIMENTE NR. 1 NUR OHNE ANFAHRBESCHRÄNKUNG		AB 78
ELLAS-2	1	LEISTUNGSZYKLIEREN			
KARBID - STÖRFALLEXPERIMENTE (1. PHASE) IM HFR					GFK/PSB

Abb. 4

EXPER.-TYP		REAKTOR	ZIELE	1970	1975	1980
PHASE I EINZELSTABBESTR.	GRUNDLAGENEXPERIMENTE	FR-2	ANFAHRVERHALTEN, KRIECHEN, SCHWELLEN	20 STÄBE	11	
	PARAMETERTESTS					
	KONZEPTERPROB.	BR-2	VERTRÄGLICHKEIT ABBRAND	7	13	
PHASE II STÖRFALL- U. BÜNDEL- EXPERIMENTE	STÖRFALLGRUNDLAGEN- VERSUCHE	HFR	ÜBERLAST, LEISTUNGS- ZYKLIEREN		8	
	BÜNDELVERHALTEN IM SCHNELLEN FLUSS	DFR	KONZEPTAUSWAHL	3 x 7		
		PFR	KONZEPTERPROBUNG UNTER RELEVANTEN SB-BEDINGUNGEN		2 x 7	
	TESTS MIT ORIGINAL BE	KNK-II	BÜNDELVERHALTEN, STATISTISCHE KONZEPTBELEGUNG			2 x 121
STAND U. PLANUNG DER GFK-KARBIDBESTRAHLUNGEN						GFK/PSB

BRENNSTOFF-TYP	(U,Pu)C-TABLETTEN
SCHMIERDICHTE	75% THEOR. DICHTE
BINDUNG	HELIUM
HÜLLMATERIAL	1,4970 K.V.
STABDURCHMESSER	8,0 MM
WANDSTARKE	0,5 MM
STABLEISTUNG (MAX. NOM.)	800 W/CM
HÜLLWANDTEMPERATUR (MAX. NOM.)	620 °C
ABBRAND (MAX. NOM.)	70 MWd/KGM
REFERENZ - DATEN FÜR SNR - 300	
KARBID - BRENNELEMENT	
	GFK/PSB

Abb. 6

	CEA	UKAEA	USA	UDSSR	GFK
HE-BINDUNG	18	ca. 100	110	3x19	37
NA-BINDUNG	30	ca. 150	70	19	25
BRENNSTOFFTYP	TABLETTEN	TABL./PARTIKEL	TABLETTEN	TABLETTEN	TABLETTEN
TABL. DICHTE	79-97	80-95	77-99	90-96	83-95
SCHMIERDICHTE	65-94	ca. 75	70-98	78	72-82
STABLEISTUNG (W/cm)	450-1400	400-1200	400-1500	550	800-1200
ABBRAND %	2-12	5-12	1-12	3-7	1-9
REAKTOR	RAPSODIE	DFR	EBR-II	BOR-60	FR-2, BR-2 DFR
INTERNATIONALE KARBIDEXPERIMENTE (STAND ANFANG 1976)					GFK/PSB

- 70 -

Abb. 7

MIT PLUTONIUM LEBEN?

V. V o l f

Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Strahlenbiologie

Abstrakt des Abendvortrags anlässlich der Tagung "Das Brennelement des Natrium-Brüters", Karlsruhe, 28./29. Oktober 1976

Es werden die wichtigsten Merkmale der Ökologie und Biologie von Plutonium erörtert: Biozyklus von Plutonium, dessen Resorption, Ablagerung und Ausscheidung aus dem Körper sowie die Toxizität von Plutonium. Zur Illustration der von Anfang an systematischen Arbeit auf diesem Gebiet werden auch die Beiträge der ersten zehn Jahre nach Plutonium-Separation erwähnt.

Im Mittelpunkt des Vortrags stehen die möglichen Folgen einer Plutonium-Inkorporation beim Menschen, wobei auf die Besonderheiten bei verschiedenen Bevölkerungsgruppen hingewiesen wird. Es werden ferner Faktoren erläutert, welche die Plutonium-Kinetik in der Umwelt und im menschlichen Körper beeinflussen können.

Als Antwort auf die Frage, ob es einen Schutz gegen die biologische Wirkung von Plutonium gibt, werden die bedeutenden Erfolge der Dekorporationstherapie von Plutonium mit Hilfe von Chelatbildnern sowie die limitierenden Faktoren auf Grund eigener experimenteller Erfahrung mit Plutonium dargestellt.

Literatur:

1. V. VOLF, Biologie der Transurane. In: Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie, Ergänzungsband 8/A2 "Transurane-Elemente", SS. 402-424, Verlag Chemie, Weinheim (1973)
2. V. VOLF, Plutonium Decorporation in Rats. Experimental Evidence and Practical Implications. In: "Diagnosis and Treatment of Incorporated Radionuclides", pp. 307-322, I.A.E.A., Wien (1976)

Chemische und mechanische Wechselwirkung im Oxidbrennstab

F.Thümmler, W.Dienst

Kernforschungszentrum Karlsruhe
Institut für Material- und Festkörperforschung

Ein entscheidendes Anliegen bei der Auslegung von Brennstäben ist die Vermeidung von Hüllschäden und besonders von Hüllrissen bis zum vorgesehenen Zielabbrand. Zur Rissbildung führende Hüllrohrspannungen können durch mechanische Belastungen der Hülle von innen entstehen, wobei auch eine chemische Schädigung durch Brennstoff-Hüllreaktionen eine wichtige Rolle spielt. Im Kernforschungszentrum Karlsruhe wird seit etwa 10 Jahren auf dem Gebiet der chemischen und mechanischen Wechselwirkungen zwischen Brennstoff und Hüllwerkstoff in Brennelementen für Schnelle Brutreaktoren gearbeitet.

1. Mechanische Wechselwirkung

1.1 Stationäres Schwellen und Kriechen des Brennstoffes

Aus Bild 1 ist ersichtlich, dass die freie Schwellung stark temperatur- und abbrandabhängig ist. Bei hohen Abbränden und Temperaturen dürfte sich näherungsweise eine Sättigung einstellen, da die Spaltgase grösstenteils entweichen. Nur bei relativ niederen Temperaturen tritt ein etwa abbrandproportionales Schwellen bis zu hohen Abbränden auf. In der Anfangsphase kann das Schwellen durch strahleninduziertes Nachsintern in Brennstoffen hoher Porosität kompensiert oder sogar überkompensiert werden, was in Bild 1 nicht berücksichtigt ist.

Nach dem Schliessen des Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle wird das Schwellen behindert und beim porösen Brennstoff in einer hinreichend festen Hülle durch einen Brennstoffkriechvorgang in inneres Leervolumen geleitet. Bild 2 zeigt Ergebnisse zum strahlungsinduzierten Kriechen /1/ von UO_2 und UO_2 - PuO_2 . Man erkennt eine nur geringe Temperaturabhängigkeit und eine höhere Kriechgeschwindigkeit des UO_2 - PuO_2 gegenüber UO_2 . Das Kriechverhalten des heterogenen Mischoxids kann durch die sehr grosse Plastizität des PuO_2 unter Bestrahlung erklärt werden, so dass die PuO_2 -Partikel wie eine effektive zusätzliche Porosität wirken. Im übrigen ist die strahleninduzierte Kriechgeschwindigkeit proportional zur Spannung und zur Spaltungsrate. Aus den Ergebnissen lassen sich für einen stationären Brennelementbetrieb Schwelldrücke von ≈ 1 MPa für Mischoxid einer Dichte von 85-90% TD errechnen. Hierdurch sind kaum gravierende Hülldehnungen oder Hüllschäden möglich.

1.2 Verhalten bei Leistungszyklen

Die dennoch an Mischoxidbrennstäben beobachteten, zum Teil beträchtlichen Hülldehnungen setzen sich im schnellen Fluss aus einem Schwellanteil des Hüllwerkstoffes sowie einer plastischen Deformation der Hülle (Bestrahlungskriechen, thermisches Kriechen und Fliesen) zusammen. Bei Bestrahlungen im thermischen Fluss ist die plastische Hülldehnung wegen des Wegfalls der Hüllschwellung unmittelbar messbar. Einen direkten Hinweis auf die Mitwirkung des Festkörperdruckes ergeben Resultate über die Abhängigkeit der maximalen Hülldehnung von der Brennstoffschmierdichte (Bild 3). Man erkennt einen starken Einfluss einer erhöhten Schmierdichte, besonders bei mittleren Stabileistungen um 300 W/cm. Experimentell ist gezeigt worden, dass insbesondere beim Übergang von Teillast auf Vollast Schübe einer plastischen Hülldehnung in Brennstäben auftreten. Die Erscheinungen können gedeutet werden durch die Annahme, dass während der Leistungsverminderung (Abkühlphase) auftretende Risse innerhalb des Brennstoffs nach hinreichendem Teillastbetrieb beim Übergang auf Vollast (Wiederaufheiz-

phase) nicht mehr reversibel geschlossen werden können. Die thermische Ausdehnung des Brennstoffes wirkt dann unmittelbar durch einen kurzzeitigen Druckanstieg auf die Hülle, die dabei plastisch verformt werden kann. Die ursprünglichen Risse können durch folgende Vorgänge geschlossen werden: lokales strahleninduziertes Sintern, transientes Schwellen, Verdampfung und Kondensation einschl. Hohlraumwanderung.

Der Einfluss der Lastwechsel auf die plastische Hülldehnung ist sowohl modellmässig als auch experimentell angegangen worden. Für die Modellrechnungen /2/ wurde eine vollständige Blockierung aller Spalte und Risse nach längerem Teillastbetrieb, d.h. ein sofortiger Hüllkontakt bei Leistungserhöhung, elastisches Verhalten eines kühlen Brennstoffringes und vollplastisches Verhalten der inneren heissen Brennstoffzonen angenommen. Bild 4 zeigt einen Vergleich von Messungen und Rechnungen. Man erkennt, dass in den meisten Fällen der gemessene ϵ -Wert höher liegt als der errechnete. Deswegen wurde die zusätzliche Annahme in das Rechenmodell eingeführt, dass auch nach völligem Abschalten die entstehenden Risse im Brennstoff beim Wiederanfahren nicht vollständig schliessbar sind. Die beste Angleichung der Experimente an das Modell erhält man durch Einführung einer etwa 2,5% Abbrandschwelle für den zur Hülldehnung erforderlichen Brennstoff/Hülle-Kontakt. Der dann verbleibende Unterschied zwischen errechneten und gemessenen Werten beruht auf dem zuvor genannten Einfluss.

Die experimentellen Untersuchungen ergaben weiter, dass eine Teillastzyklendauer <10 h keine nennenswerte Hülldehnung ergibt, ebenso Teillaststabilitäten bis zu 200 W/cm. Dies sind offenbar die Mindestbedingungen für ein stärkeres Auftreten lokalen strahleninduzierten Sinterns oder beträchtlichen transienten Schwellens.

1.3 Verhalten flüchtiger Spaltprodukte

Durch axialen Transport von Cäsium infolge Verdampfung und Wiederkondensation kommt es an den Brennstoff/Brutstoff-Übergängen zu lokalen Cäsiumansammlungen. Dadurch kommt es dort nach hinreichendem Abbrand auch zu stark lokalisierten radialen Hülldehnungen (Durchmesser-"Peaks"). Der Brennstoff/Brutstoff-Übergang wirkt als "Senke" für Cäsium. Dabei ist das heissere Ende infolge des Sauerstoffangebots der ersten Brutstofftablette (leicht überstöchiometrisches UO_2) eine chemische Senke, das kühlere Ende eher eine physikalische Senke, wobei die chemische Reaktion wahrscheinlich langsamer eintritt. Die Auswertung eines Brennstabbündelexperimentes im Hinblick auf die lokalen Hülldehnungspeaks an allen Brennstäben ergibt eine Grössenverteilung entsprechend Bild 5. Hieraus sind folgende Ergebnisse ablesbar:

- die geringer schwellende 1.4970 Hülle zeigt mehr grosse Peakhöhen als die stärker schwellende 1.4988 Hülle
- die 1.4970 Hülle gibt mehr Peaks am kühlen Ende der Brennstoffsäule, die 1.4988 Hülle mehr am heissen Ende
- ein Brennstoff mit höherem O/M-Verhältnis ergibt Peaks besonders am heissen, Brennstoff mit niederem O/M mehr am kühleren Ende.

Im übrigen ist bei niederem O/M des Brennstoffs die Cäsium-Ansammlung insgesamt stärker, da mehr Cäsium axial transportiert werden kann. Bei höherem O/M wird weniger Cäsium axial transportiert, da ein grosser Teil oxidisch gebunden bleibt.

Die Ergebnisse zeigen, dass eine schwellresistente Hülle diesem mechanischen Angriff etwas stärker ausgesetzt ist als eine stärker schwellende Hülle, die das System offenbar teilweise entlastet. Es zeigt sich auch, dass im Hinblick auf dieses Problem eine zu starke Unterstöchiometrie des Brennstoffs nicht vorteilhaft ist. Der Brutstoff sollte in seinem O/M-Verhältnis möglichst nahe an 2,00 liegen, wodurch voraussichtlich eine stärker verteilte Ablagerung des axial transportierten Cäsiums erreicht würde.

2. Chemische Wechselwirkungen

2.1 Stoffliche Umverteilungen und Hüllangriff

Chemische Reaktionen zwischen Brennstoff und Hülle bestehen in einer selektiven Oxidation des Hüllwerkstoffes unter Mitwirkung von Spaltprodukten. Ein umfangreiches Untersuchungsprogramm zum Verträglichkeitsverhalten /3/ hat gezeigt, dass wiederum das Cäsium das gefährlichste Spaltprodukt darstellt und daneben auch Tellur und Jod in die Reaktionen einbezogen sind. Sowohl der Sauerstoff /4/ als auch die Spaltprodukte unterliegen einer radialen Umverteilung während des Reaktorbetriebs. Bild 6 zeigt dies für Sauerstoff. Die Umverteilungen wurden mittels einer abgeschirmten Mikrosonde gemessen, speziell die Sauerstoffumverteilung anhand des Mo-MoO₂-Verhältnisses in Spaltproduktausscheidungen. Geringe Unterschiede der O/M-Verhältnisse in der Nähe der Hülle bringen schon starke Verschiedenheiten der Sauerstoffaktivität des Brennstoffes mit sich, das zu unterschiedlichen Hüllangriffen bei stöchiometrischem und unterstöchiometrischem Brennstoff führt.

Als relevant für die Brennelementauslegung werden die maximalen Hüllangriffstiefen und deren Abhängigkeiten betrachtet. Diese sind für mehrere Bestrahlungsexperimente in Bild 7 zusammengestellt. Hieraus ist erkennbar:

- die untere Grenze der Temperatur, bei der ein nennenswerter Angriff erfolgt, liegt etwa bei 500°C. Oberhalb ca. 650°C scheint eine Abflachung der Temperaturabhängigkeit des Angriffs aufzutreten.
- Brennstoff mit niedrigerem O/M ergibt deutlich niedrigere maximale Angriffstiefen
- eine Abhängigkeit des Angriffs vom Hüllmaterial ist nicht sichtbar
- eine kleine Zahl von besonders grossen maximalen Angriffstiefen macht eine statistische Aussage erforderlich, weshalb eine 95% Grenze eingeführt wurde.

Weitere, nicht aus diesem Bild entnommene Schlüsse sind:

- unter unseren Bedingungen scheint ein Stagnieren des Hüllangriffs bei einer maximalen Tiefe von etwa 150 µm einzutreten. Die dann erfolgende "Passivierung" könnte durch Cr₂O₃-Bildung in den Tiefen der Korngrenzen bei dem dort herrschenden geringen Sauerstoffpartialdruck erfolgen
- eine Abbrandabhängigkeit des Angriffs scheint gegeben zu sein, jedoch dürfte sie oberhalb 6-8% Abbrand keine Vergrösserung der genannten bzw. dargestellten maximalen Angriffstiefen mehr beinhalten.

Es hat sich herausgestellt, dass diese durch mikroskopische Untersuchung erhaltenen Werte allein nicht aussagekräftig genug sind, sondern noch durch Festigkeits- und Zeitstanduntersuchungen entsprechend korrodierter Hüllwerkstoffe zu ergänzen sind /5/. Ergebnisse hierzu sind in Bild 8 zusammengestellt. Aus Festigkeitsmessungen gewonnene Werte der Angriffstiefe müssen nicht mit den gemessenen Angriffstiefen übereinstimmen. Dem wird durch die Einführung eines Wirkungsfaktors Rechnung getragen: Ein Wirkungsfaktor unter eins bedeutet, dass auch der durch Korrosion beeinflusste Teil der Wandstärke noch zur Festigkeit beiträgt, ein Wirkungsfaktor über eins, dass auch der mikroskopisch unangegriffen erscheinende Teil der Wandstärke geschädigt ist. Aus der Abbildung ist zu erkennen, dass

- ein höherer simulierter Abbrand eine höhere effektive Korrosionstiefe ergibt, wobei die gemessene Tiefe nicht unterschiedlich sein muss
- verschiedene Kaltverformungszustände sich zwar in der gemessenen Korrosionstiefe bemerkbar machen, nicht aber im effektiven Wert

- sich keine wesentlichen Unterschiede zwischen den verwendeten Hüllwerkstoffen zeigen
- die Berücksichtigung der gemessenen Angriffstiefe als vorsichtige Beschreibung der verminderten Hüllbelastbarkeit anzusehen ist.

Ähnliche Untersuchungen der Zeitstandfestigkeit (meist bei 600°C) ergeben zwar streuende Ergebnisse, zeigen jedoch, dass das Zeitstandverhalten befriedigend beschreibbar ist, wenn als Hüllstärke die um die maximale Angriffstiefe verminderte Dicke eingesetzt wird.

2.2 Wechselwirkungen in defekten Stäben

Das Verhalten defekter Stäbe beim weiteren Reaktorbetrieb ist entscheidend für den Zeitpunkt einer evtl. erforderlichen Abschaltung. Im Laufe von einigen Tagen können Hüllaufweitungen von 20% und mehr im Bereich von Hüllrissen erfolgen. Sowohl der Sauerstoff des Natriums als auch derjenige des Brennstoffs trägt zur Bildung eines Natriumuranats bei, das durch niedrige Dichte, niedrigen Schmelzpunkt und geringe Wärmeleitfähigkeit gekennzeichnet ist. Dabei erfolgen andersartige Umverteilungen des Sauerstoffs und des Plutoniums als in unbeschädigten Brennstäben /6/. Der Brennstoff wird durch die Bildung des Reaktionsprodukts auf ein Gleichgewichts-O/M reduziert, das etwa bei 1,96 liegt. Das im Normalbetrieb auftretende Pu-Profil wird grossenteils durch bevorzugte PuO-Verdampfung in Zentralkanalnähe rückgängig gemacht, und die Pu-Konzentration wird, abgesehen von der stark verarmten Reaktionszone, ziemlich radiusunabhängig.

3. Schlussbemerkung

Bezüglich der mechanischen Wechselwirkungen sind es besonders die Leistungszyklen, die Probleme mit sich bringen. Während das Kriech-, Schwell- und Nachsinterverhalten beim stationären Betrieb heute hinreichend genau eingeschätzt werden kann, stehen wir beim Brennstabverhalten unter Lastwechsel noch am Anfang der Untersuchungen. Im Hinblick auf die chemischen Reaktionen sind die hervorstechenden Parameterabhängigkeiten hinreichend untersucht, wenn auch einige Detailfragen noch offen sind. Eine wesentliche Unsicherheit besteht noch bezüglich des Einflusses von Verunreinigungen, evtl. auch in Zusammenhang mit der Brennstoffdichte. Man kann feststellen, dass in allen beobachteten Fällen einer Hüllrohrbildung der chemische Angriff von innen eine Rolle spielt. Insoweit ist das Gebiet der chemischen und mechanischen Wechselwirkungen im Brennstab voneinander nicht trennbar.

Literatur

- /1/ Dienst W., J.Nucl.Mat.61 (1976) 185
- /2/ Müller I., KFK 2376, im Druck
- /3/ Götzmann O., Hofmann P., Thümmler F., J.Nucl.Mat.52 (1974) 33
- /4/ Kleykamp H., J.Nucl.Mat., im Druck
- /5/ Götzmann O., Hofmann P., J.Nucl.Mat.59 (1976) 192
- /6/ Kleykamp H., KFK 2218 (1976) Abschn. 6.

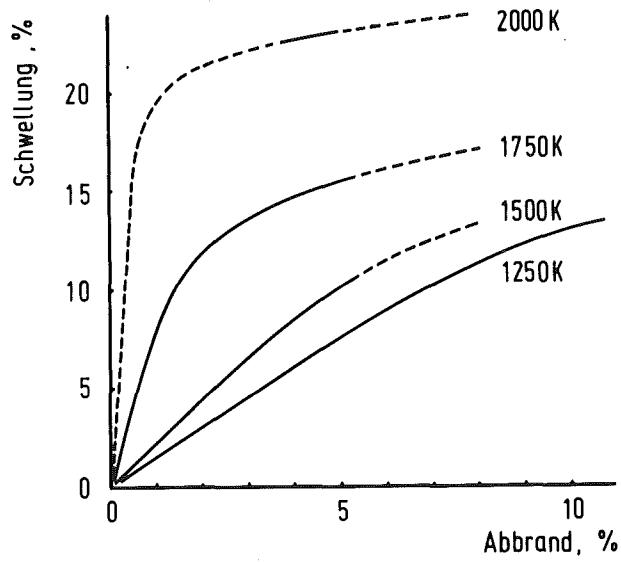


Bild 1: Freie Schwellung von UO_2 in Abhängigkeit von Abbrand und Temperatur

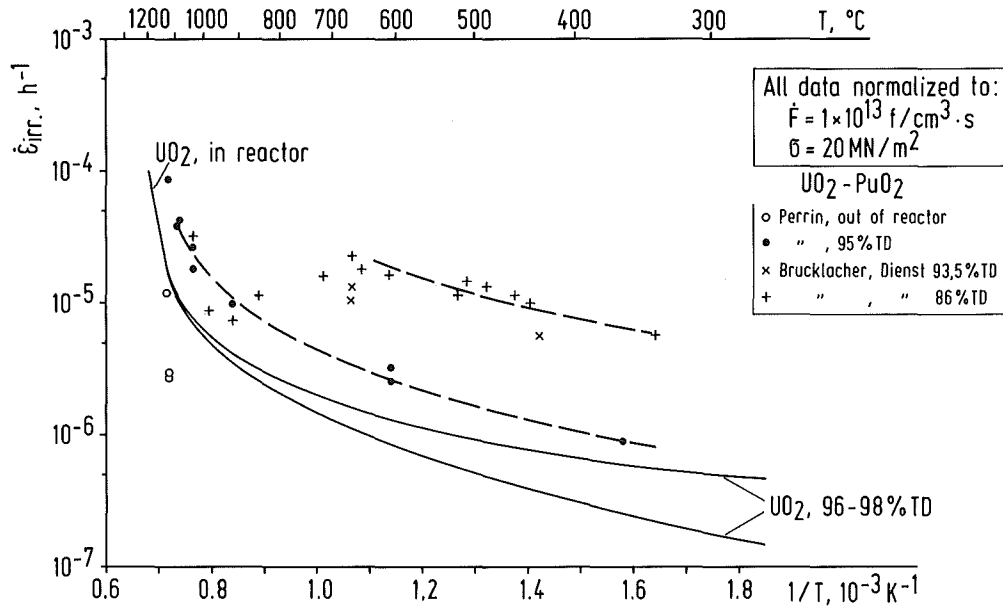


Bild 2: Bestrahlungsinduziertes Kriechen von UO_2 - PuO_2 und von UO_2 zum Vergleich

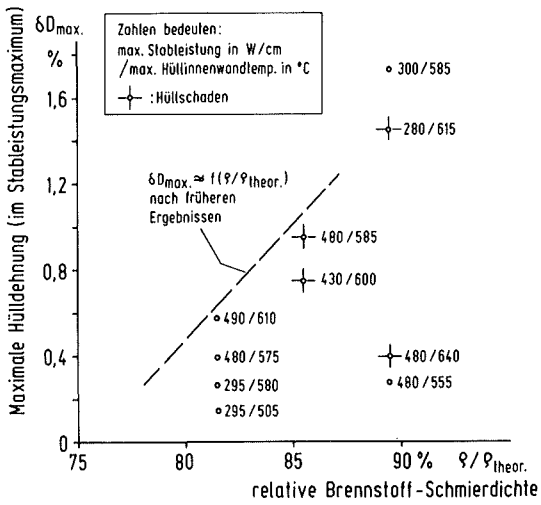


Bild 3: Maximale Hülldurchmesser-Vergrößerung bei den Brennstab-Kapselbestrahlungen Mol 8 C im BR 2. Max. Stableistungen und Hülltemperaturen über alle Bestrahlungszyklen gemittelt. Max. Abbrand jeweils 10-12%

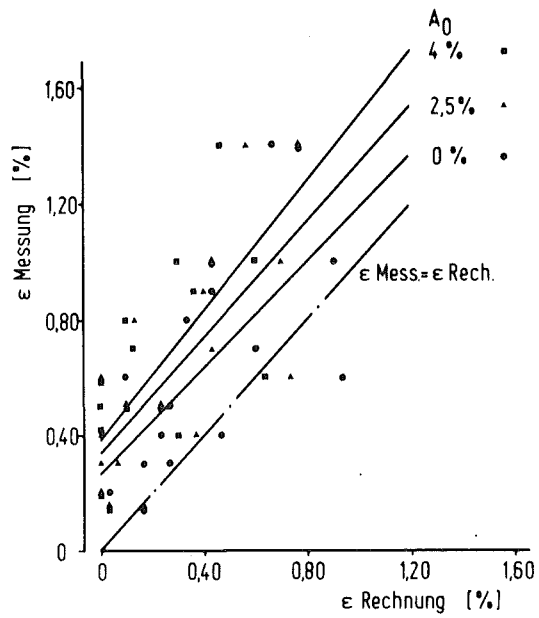


Bild 4: Vergleich gemessener und berechneter Hülldehnungen nach FR 2-Bestrahlungen mit verschiedenen angenommenen Abbrandschwellwerten A_0 für den Brennstoff/Hülle-Kontakt

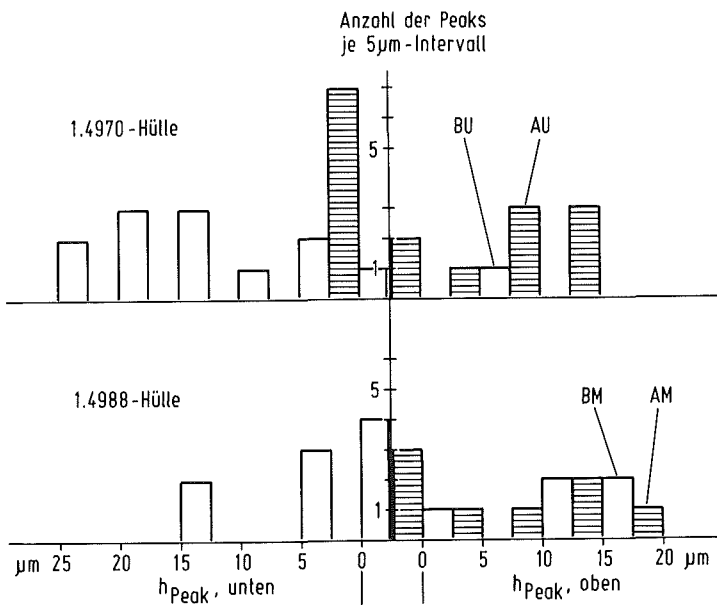


Bild 5: Größenverteilung der Höhen der Hülldurchmesser-Peaks am oberen, heißen und unteren Brennstoffende (im Diagramm nach rechts bzw. links aufgetragen), gemessen an den Rapsodie I-UO₂-PuO₂-Brennstäben

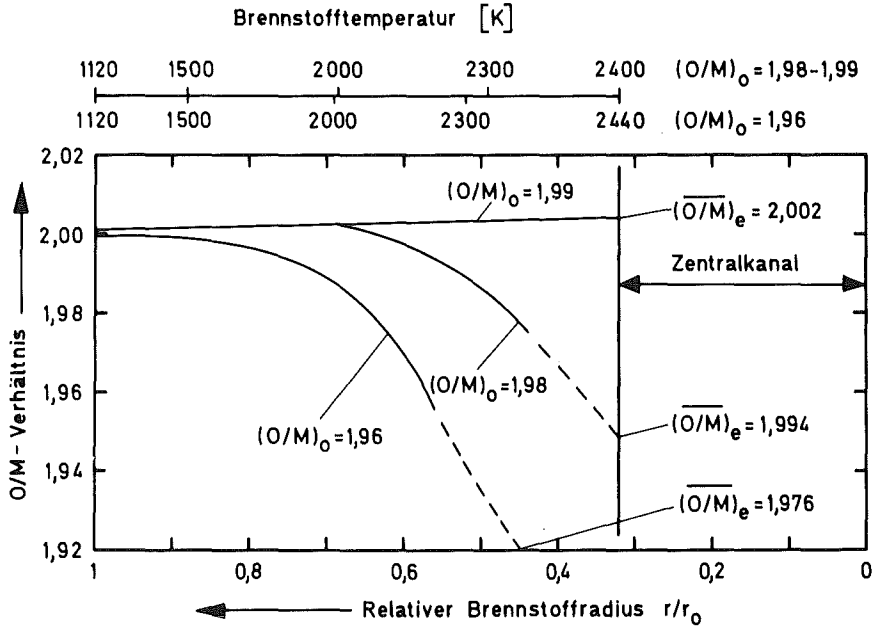


Bild 6: Radiale Sauerstoff-Verteilung im Brennstoff von UO_2 - PuO_2 -Brennstäben mit verschiedenen ursprünglichen O/M-Verhältnissen $(O/M)_0$, nach 7% Abbrand. $(O/M)_e$ = Endzusammensetzung

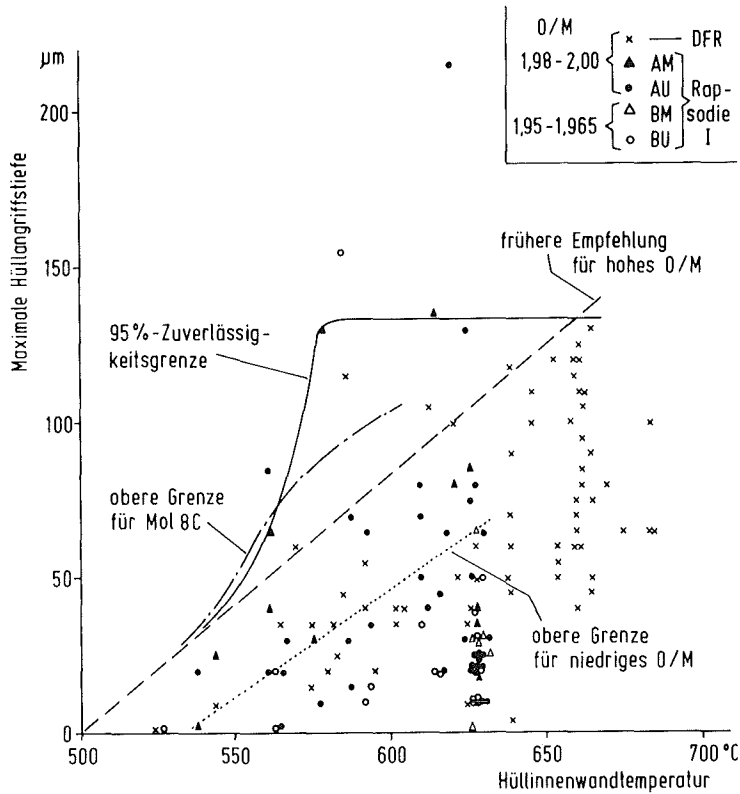


Bild 7: Maximale Hüllangriffstiefe in bestrahlten UO_2 - PuO_2 -Brennstäben in Abhängigkeit von der Hülltemperatur, bei hohem und niedrigem O/M-Verhältnis und für verschiedene Hüllmaterialien (x und M: 1.4988, U: 1.4970)

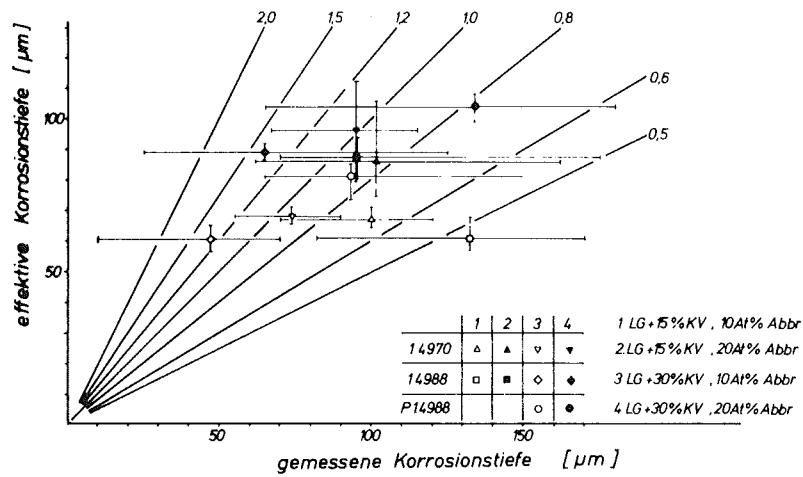


Bild 8: Im Zugversuch bei R.T. bestimmte effektive Korrosionstiefe im Vergleich mit der mikroskopisch gemessenen, für verschiedene Hüllmaterialien, Kaltverformungsgrade und simulierte Abbrände. Verhältniszahlen im Diagramm = "Wirkungsfaktor"

ENTWICKLUNGSSTAND DES HÜLL- UND STRUKTURMATERIALS
FÜR SNR-KERNELEMENTE

Dipl.-Ing. W. DIETZ
INTERATOM GmbH, 5060 Berg. Gladbach 1

Compact

Das Werkstoffproblem im Schnellen Brüter war in den letzten Jahren vielfach Thema internationaler Konferenzen^{1,2,3}). Das Materialverhalten wurde dabei unter den Gesichtspunkten der Korrosion, der Plastizität, der Strukturstabilität, des Verschleißes und der Festkörperphysikalischen Modelltheorie behandelt. Der folgende Beitrag konzentriert sich auf Fragen der Hochtemperaturplastizität und des Schwellens, die bei der mechanischen Kernausslegung eine wesentliche Rolle spielen. Diese Fragen müssen generell für Komponenten und ihre Werkstoffe (s. Tab. I und II) im Bereich des SNR-Kernes behandelt werden. Hier erfolgt eine Beschränkung auf die Werkstoffe und ihre metallurgischen Zustände (Tab. III), wie sie beim SNR-300 Mk-Ia für das Hüllrohr und den Brennelementkasten spezifiziert sind. Die experimentellen Daten stammen aus den in Abb. 1 zusammengestellten Bestrahlungsversuchen. Temperatur und Neutronendosis als wesentliche Größen sind in Abb. 2 angegeben. Die Experimente wurden im allgemeinen im Rahmen des gemeinsamen bz F+E-Programms der Kernforschungszentren und der Industrie durchgeführt. Der Schwerpunkt der Heißen Zellen-Arbeiten lag im Kernforschungszentrum Karlsruhe.

Hochtemperaturplastizität

Die Zusammenhänge zwischen Verformung des Werkstoffes und den verschiedenen Einflußgrößen, wie mechanische Belastung, Zeit,

Temperatur und Neutronenfluß, sind im allgemeinen sehr komplex. Auf Abb. 3 ist z. B. angegeben, welche Spannungen erforderlich sind, um bei Kurz- und Langzeitbelastungen (10^4 h) eine plastische Verformung (ϵ_{PL}) von 0,2 % zu erzielen. (Die Daten für Bestrahlungskriechen gelten für SNR-Mk-Ia-Kernmitte mit $\bar{E}\phi \sim 3 \cdot 10^{15}$ MeV·n/cm²).

Es ist inzwischen durch zahlreiche Untersuchungen an verschiedenen bestrahlten austenitischen Stählen experimentell belegt, daß das Dehnvermögen ("Duktilität") unter bestimmten Belastungsbedingungen unterschiedlich ist. Während für Bestrahlungskriechen bei Langzeitbelastungen im Reaktor bei ca. 450 °C und $\bar{E}\phi t \approx 8 \cdot 10^{22}$ MeV·n/cm² bisher plastische Dehnungen bis zu 5 % ohne Bruch erreicht wurden, tritt bei Kurzzeitbelastungen in diesem Temperaturbereich ("Tieftemperaturversprödung") gerade eine starke Reduktion im Dehnvermögen auf (Abb. 4). Ähnlich wie von HOLMES⁴⁾ wurde weiterhin bei Temperaturen oberhalb 550 °C ein Bereich der "Hochtemperaturversprödung" ermittelt (Abb. 4). Die bisherigen Untersuchungen weisen ähnlich wie für Stahl AISI 304⁵⁾ nicht darauf hin, daß für höhere Dosiswerte als bisher experimentell abgedeckt ($\bar{E}\phi t \sim 5 \cdot 10^{22}$ MeV·n/cm²) die Versprödung zunimmt. Die in der Auslegung benutzten Werte für zulässige plastische Verformungen von $\epsilon = 0,5$ % für Kurzzeitbelastungen werden als genügend konservativ angesehen. Generell wurde gefunden, daß für Langzeitbelastungen oberhalb 600 °C die Kriechbruchdehnung weiter erniedrigt wird. Eine deutliche Abhängigkeit von der Neutronendosis oberhalb $\phi t > 10^{21}$ n/cm² und der Verformungsgeschwindigkeit ($\dot{\epsilon} < 10^{-4}$ h⁻¹) wurde jedoch nicht gefunden. Bei der Auslegung von Brennstäben werden 0,2 % Verformung durch thermisches Kriechen zugelassen. Bis auf Einzelwerte liegen alle gemessenen Bruchdehnungswerte deutlich oberhalb dieser Grenze. Damit die vorgegebenen Dehnungsgrenzen für bestrahltes Material nicht überschritten werden, ist eine genaue Kenntnis der Festigkeitseigenschaften erforderlich. Abb. 4 zeigt, daß für die Kurzzeitfestigkeit $\sigma_{0,2}$ die Werte von unbestrahltem Material benutzt werden können, da unterhalb 550 °C durch Bestrahlung eine Verfestigung vorliegt. Von Prototypkomponenten liegen heute zahlreiche Materialdaten für kaltverformte Werkstoffe vor. Oberhalb 600 °C muß die zeit- und temperaturabhängige Erholung der kalt-

verformten Struktur berücksichtigt werden. Bei 700 °C wurde nach 10^4 h ein Abfall der Streckgrenze um ca. 20 - 30 % gefunden.

Die mechanische Langzeitfestigkeit des SNR-Hüllmaterials ist auf Abb. 5 für 700 °C angegeben^{6,7)}. Durch die Hochtemperaturversprödung wird die Zeitstandfestigkeit des unbestrahlten Materials für Dosiswerte oberhalb 10^{21} n/cm² um ca. 30 % reduziert. Die Zeitstandfestigkeit σ_R (bestrahlt) liegt oberhalb des Streubandes der 0,2 %-Zeitdehngrenze von unbestrahltem Material, in dem sich auch Ergebnisse von Kriechversuchen an bestrahltem und von natriumkorrodierten Proben befinden. Die Auslegung von Brennstäben erfolgt daher heute auf der Basis von Untersuchungen an unbestrahltem Material. Die Gültigkeit der Aussagen dieser Art wird generell erschwert durch die Streuung der Daten. Grundsätzlich fehlen zur Zeit "in-pile"-Daten mit hohem Fluß ($\phi > 10^{15}$ n/cm²s) im Temperaturbereich, wo thermisches Kriechen einsetzt (s. Abb. 3, Temperaturen $T > 550$ °C).

Schwellen

Obwohl seit ca. 1969 in zunehmendem Maße über Ergebnisse von Schwelluntersuchungen an verschiedenen Werkstoffen in der Literatur berichtet wird, kann zur Zeit noch kein befriedigendes theoretisches Modell angegeben werden. Für die Auslegung der Kernelemente ist ein wesentlicher Punkt die Spannungs-, Temperatur- und Dosisabhängigkeit des Schwellens.

Die auf Abb. 6 dargestellten experimentellen Daten^{8,9)} von 1.4970 KV/A und 1.4981 KV für ein begrenztes Temperaturintervall in Abhängigkeit von der Dosis zeigen:

- Die Daten von 1.4981 und 1.4970 liegen im gleichen Streuband.
- Die vorliegenden Daten lassen sich mit gleichem Vertrauensgrad durch ein Potenzgesetz $\Delta V/V = f(T) \cdot (E\phi t)^n$ mit $n \sim 2,2$ und durch eine lineare Anpassung mit $n = 1$ (im Anschluß an ein Potenzgesetz als "Anlauffunktion") beschreiben.

Auf Abb. 7 ist eine Extrapolation für beide Korrelationstypen angegeben. Die Ergebnisse machen deutlich, daß bei Vorliegen eines Potenzgesetzes für Neutronendosen eines SNR-2 Schwellwerte

(20 %) auftreten, die von der Auslegung nur schwer zu beherrschen sind. Es soll hier nur darauf hingewiesen werden, daß unsere Werkstoffe zwischen 400 und 500 °C eine geringe Temperaturabhängigkeit im Schwellen im Vergleich zu AISI 316 KV zeigen. In welchem Umfang sich das Bild ändert, wenn Ergebnisse bei höherer Dosis über den gesamten Temperaturbereich vorliegen, ist zur Zeit noch unsicher.

Bestrahlungsinduziertes Kriechen

Das Bestrahlungskriechen ist von besonderer Bedeutung für die Auslegung der BE-Kästen (Abbau von Biegespannungen aus differentiellen Schwellen, "bulging" der Kästen). Vorliegende Daten⁹⁾ aus dem Experiment Ripcex sind auf Abb. 8 dargestellt. Entsprechend dem allgemeinen Formelansatz

$$\frac{\epsilon}{\sigma} = K_1 \cdot \bar{E} \phi t + K_2$$

wurden die Ergebnisse ausgewertet. Die Ergebnisse bestätigen die in der Literatur ebenfalls angegebene lineare Abhängigkeit der Kriechverformung ϵ von der Spannung σ . Im Temperaturbereich 400 bis 500 °C wurde keine Temperaturabhängigkeit gefunden. Die unterschiedliche Kriechrate in den verschiedenen Dosisbereichen hat Konsequenzen bei der Bewertung von experimentellen Daten für die Auslegung von Kernelementen. Die verschiedene Abhängigkeit in den Dosisbereichen führte dazu, daß 1976 mit dem Vorliegen von Ergebnissen bei höherer Dosis die Auslegungsformel zur Beschreibung des "in-pile"-Kriechens korrigiert werden mußte. Der Anstieg im Bestrahlungskriechen erfolgt bei einer Dosis, bei der auch Schwellen meßbar einsetzt. Aus der Verknüpfung mit Schwellen ergibt sich allerdings auch die Frage nach der Temperaturabhängigkeit des Bestrahlungskriechens. Da noch keine Versuche bei 500 - 600 °C vorliegen, können hierzu noch keine Aussagen gemacht werden. Amerikanische Untersuchungen weisen oberhalb 500 °C eine Zunahme des Bestrahlungskriechens mit der Temperatur nach. Für 1.4970 wurden ähnliche "in-pile"-Kriechraten gefunden wie für 1.4981.

Ausblick

Anlässlich des SNR-Statusberichtes 1976 wurde zusammenfassend über Schwerpunkte zukünftiger Arbeiten berichtet¹⁰⁾. Für das Referenzmaterial gilt es, für die Zukunft die bisherigen experimentellen Befunde auf eine breitere technische Basis zu stellen. Dazu sind die geplanten Bestrahlungen im KNK, PFR und später im SNR geeignete Mittel.

Die erforderlichen Basisinformationen für Auslegungskorrelationen für Neutronendosiswerte $\bar{E} \phi t > 10^{23} \text{ MeV} \cdot \text{n/cm}^2$ zu bestrahlungsinduzierten Materialdeformationen müssen durch systematische Materialexperimente in instrumentierten Bestrahlungsrigs noch erarbeitet werden. Für 1.4970 ist bei einem Einsatz für höhere Strahlenbelastungen als im Mk-Ia-Kern eine weitere Materialoptimierung, insbesondere bezüglich Reduktion des Schwellens, erforderlich.

Referenzen

- 1) BNES/KTG-Conference on irradiation behaviour of fuel cladding, Karlsruhe, 3./5. Dec. 1974
- 2) IAEA-Symposium on fuel elements, July 1973
- 3) ASTM-Conference STP-570, June 1974
- 4) J.J. Holmes, J. Nucl. Mat. 46 (1973) 113
- 5) R.L. Fish, ASTM-STP 520, p. 149
- 6) H. Schäfer, GfK/IMF, persönliche Mitteilung
- 7) H. Bergmann, H. Braun, H. Weinert (1975) unveröffentlicht
- 8) K. Ehrlich, H.J. Bergmann, D. Haas (1975) unveröffentlicht
- 9) H.J. Bergmann et al. (1976) unveröffentlicht
- 10) K. Ehrlich, W. Dietz, SNR-Statusbericht, 16.3.1976, Atoomenergie en haar toepassingen, 18 (1976) S.189-94

Den Herren Dr. Ohly, Dr. Knoblauch, Weinert und Bergmann danke ich für die Erstellung von Unterlagen für diesen Bericht.

TABELLE I: HÜLL- UND STRUKTURMATERIAL IM SNR-KERN (Mk Ia)

Werkstoff	Komponente
1.4970, KV/A	Brennstab- und Brutstabhülle
1.4970, KV	Absorberstabhülle
1.4981, KV	BE-Kasten; Abstandshalter; BE-Struktur- stangen; Führungsrohr Absorber
INCONEL 718 STELLIT 6	BE-Pflaster; Verschleißteile
1.6770	Kernhalterungsring
1.4948	Gitterplatte; BE-Fuß; Reflektor

TABELLE II: CHEMISCHE ZUSAMMENSETZUNG (NOMINELL) VON
SNR-WERKSTOFFEN (Gew.-%)

Element	Cr	Ni	Mo	Si	Nb	Ti	C	Sonstige
1.4970	15	15	1,2	0,4	-	0,4	0,10	Rest Fe, 0,006 B
1.4981	16	16	1,8	0,4	0,8	-	0,06	Rest Fe
INCONEL 718	18	Rest	3		5	0,9	0,08	0,6 Al
STELLIT 6	29	3*	1,5*	1,5*	-	-	1	5 W, 3 Fe*, Rest Co
1.4948	18	11	0,5*	0,7	-	-	0,06	Rest Fe
1.6770	2 ¹ / ₄	0,5	1	0,3	1	-	0,1*	Ta/Nb ≥ 10 C

* max.

TABELLE III: METALLURGISCHER ZUSTAND DES BRENNSTABHÜLLROHRES
UND KASTENMATERIALS

1.4970	Lösungsglühen 1080 - 1120 °C, 5 - 10 min + 12 - 20 % kaltverformt (Querschnittsreduktion) + 800 °C/2 Std.
1.4981	Lösungsglühen 1050 - 1100 °C + 12 - 20 % kaltverformt

PLASTIZITÄT
VERSPRÖDUNG MOL 2 / MOL 3
DFR 397
RAPSODIE I / MAT.-BESTRAHLUNG *

SCHWELLEN RAPSODIE I / MAT.-BESTRAHLUNG *
RIPCEX I
DFR 397
VEC (Ni⁺)

BESTRAHLUNGS-
KRIECHEN MOL 5
RIPCEX I

INTEGRALES
STABVERHALTEN RAPSODIE I * (MOL 7B) *
DFR 455

*) NUR 1.4970 KV/A

Abb. 1

Bestrahlungsexperimente
zum Materialverhalten
von 1.4970 KV/A und
1.4981 KV

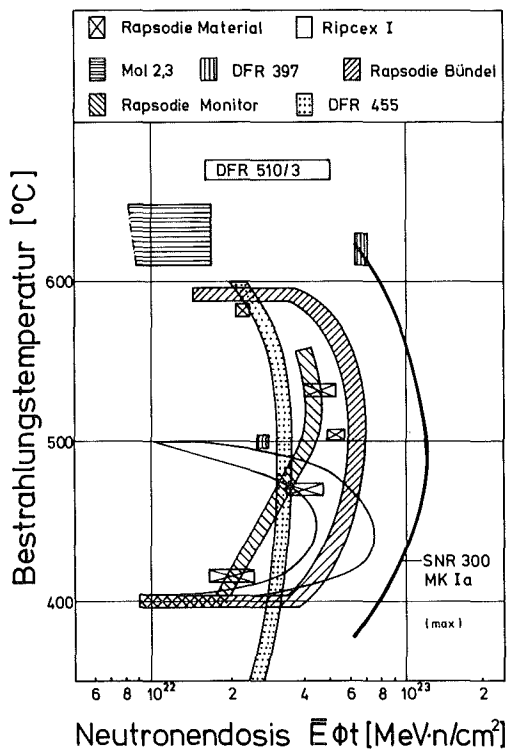


Abb. 2

Bestrahlungsbedingungen
von Experimenten zur
SNR-Materialentwicklung

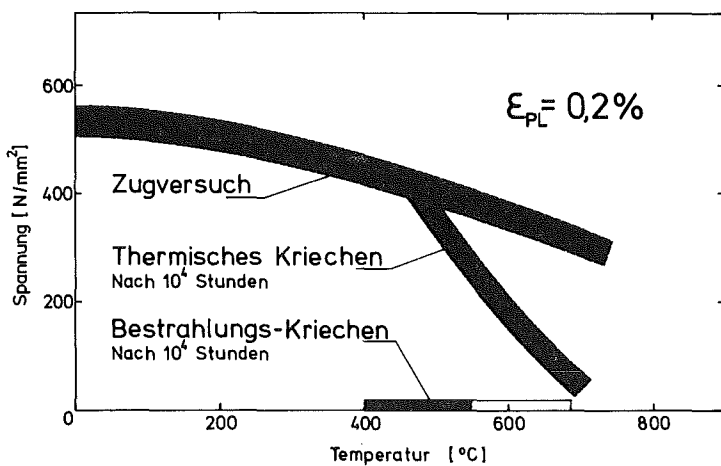


Abb. 3

Plastizität von W.Nr.
1.4970 (LG, KV, A) bei Kurz-
zeit- und Langzeitbe-
lastungen

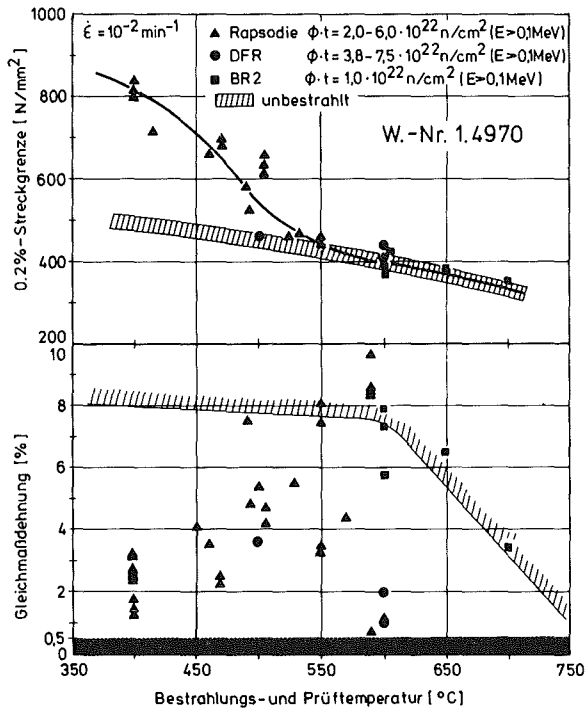


Abb. 4

0,2 %-Streckgrenze,
Gleichmaßdehnung von
bestrahltem Werkstoff
(1.4970)

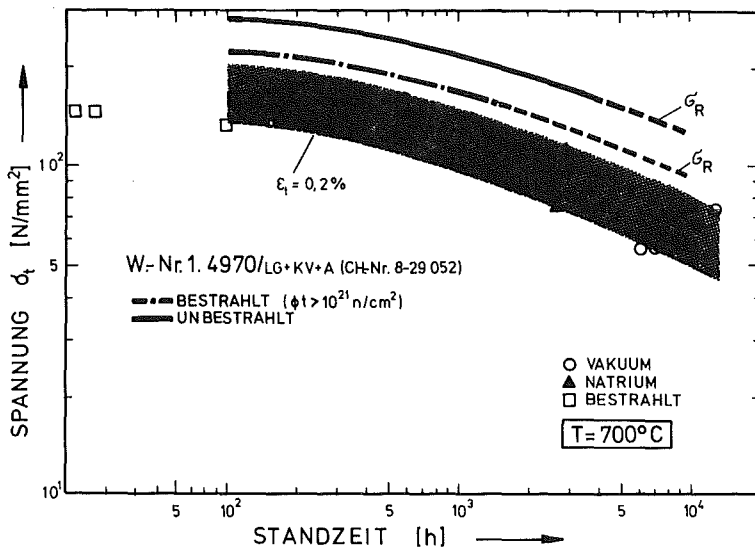


Abb. 5

Zeitstandfestigkeit und
0,2 %-Zeitdehnungsgrenze von
Rohren aus 1.4970

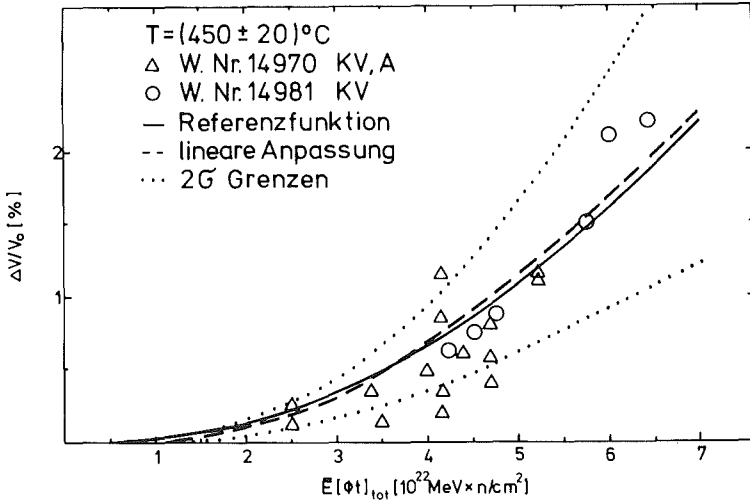


Abb. 6

Dosisabhängigkeit des Volumenschwellens für W.-Nr. 1.4981 KV und W.-Nr. 1.4970 KV, A

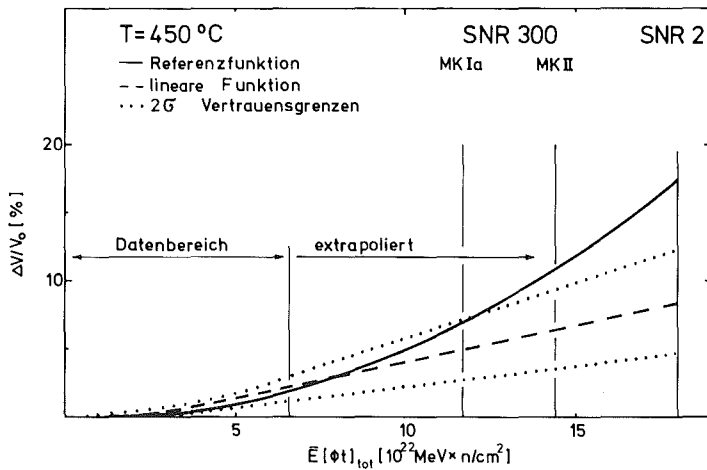


Abb. 7

Dosisabhängigkeit des Volumenschwellens bei W.-Nr. 1.4970 KV, A und W.-Nr. 1.4981 KV für $T = 450^\circ\text{C}$

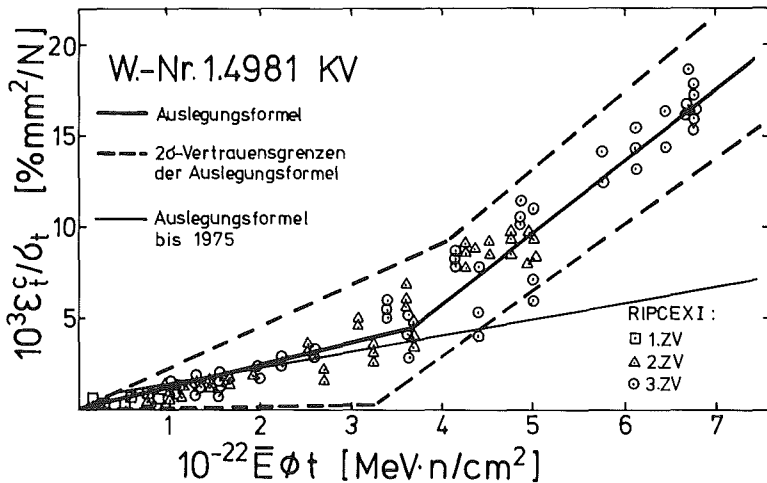


Abb. 8

Bestrahlungsinduziertes Kriechen von W.-Nr. 1.4981 KV

Zur Weiterentwicklung von Hüll- und Kernstrukturwerkstoffen

K. Anderko

Die wirtschaftliche Effizienz der geplanten kommerziellen Schnellen Brüter wird nicht unwesentlich von der Leistungsfähigkeit der zum Einsatz kommenden Hüll- und Strukturmaterialien abhängen. Angesichts der beeindruckenden amerikanischen Entwicklungsanstrengungen bedarf es gründlicher Überlegung, wo im ungleich schwächer dotierten Legierungsentwicklungsprogramm des Projektes Schneller Brüter der Hebel angesetzt werden sollte. Im Hinblick auf den teils bereits eingeleiteten teils geplanten Erfahrungsaustausch auf internationaler Ebene (Frankreich, USA, England), der eine Arbeitsteilung in der Verfolgung von Entwicklungszielen nahelegt, erscheint es sinnvoll zu sein, als erste Stufe eines eigenen Untersuchungsprogrammes eine Optimierung des Debene-Referenzwerkstoffes 1.4970 anzustreben. Dieser Ti- und B-legierte austenitische Stahl (X10NiCrMoTiB 1515) besitzt nämlich vom Aufbau her ein wesentlich höheres Entwicklungspotential als der amerikanische und französische Referenzwerkstoff AISI 316. Beim 1.4970 eröffnen sich zusätzliche Möglichkeiten, den Ausscheidungszustand durch thermisch-mechanische Behandlungen in einer gewünschten Richtung zu verändern.

Zunächst werden das Kriechbruchverhalten bestrahlter Werkstoffe und Möglichkeiten zu seiner Verbesserung besprochen. Bekanntlich führt die Bestrahlung austenitischer Stähle mit schnellen Neutronen bei einer gleichzeitigen oder nachfolgenden Kriechbeanspruchung zu einer verstärkten Tendenz zum verformungsarmen interkristallinen Bruch. Dieser Duktilitätsverlust ist hauptverantwortlich für die bestrahlungsbedingte Verringerung der Zeitstandfestigkeit.

Nach Bloom [1] kann man als Funktion der Bestrahlungs- und Prüftemperatur drei Bereiche im Zeitstandbruchverhalten geglühter austenitischer Stähle unterscheiden (Bild 1). In allen drei Bereichen wird angenommen, daß Heliumanreicherungen an den Korngrenzen den Keim zur Bildung von Kriechporen (cavities) bilden. Nach der vorherrschenden Modellvorstellung wachsen die Kriechporen vornehmlich in senkrecht zur Hauptspannungsrichtung orientierten Korngrenzen durch Eindiffusion von Leerstellen. Die treibende Kraft für den Kondensationsvorgang ist die herrschende mechanische Spannung.

Angesichts der verstärkten Tendenz zum relativ verformungsarmen interkristallinen Bruch bei bestrahltem Material stellt sich die Aufgabe, die Korngrenzen durch geeignete metallkundliche Maßnahmen weniger anfällig gegen Anrißbildung zu machen. Hierzu können Korngrenzenausscheidungen dienlich sein, wenn sie ausreichende Eigenfestigkeit besitzen und durch die wirkenden Spannungen nicht aus der Bindung zur Matrix herausgelöst werden. Nach Harries [2] kommt es zum Wachstum der Kriechporen nur, wenn die angelegte Spannung

$$\sigma > \frac{2\gamma}{r_v} \frac{N_p G b r_p}{b} \ln \frac{r_p}{b} \quad \text{ist}$$

(γ = Oberflächenenthalpie, r_v = Radius der Kriechpore, N_p = Dichte der Korngrenzenausscheidung, $G = \sqrt{}$ Schermodul der Matrix, $b = \sqrt{}$ Atomabstand, r_p = Radius der Ausscheidungen).

Nach Aussage dieses Ansatzes kann durch eine dichte Belegung (N_p) die kritische Spannung bis über die Zugfestigkeit angehoben werden. Eine weitere Beziehung, die Formel von Stroh - deren Aussagen von McLean und Weaver modifiziert worden sind - sagt ebenfalls eine günstige Wirkung von Korngrenzenausscheidungen voraus

$$\sigma_{nuc1} = \left(\frac{12\gamma G}{\pi \cdot l} \right)^{1/2}$$

worin σ_{nuc1} = kritische Normalspannung für Rißbildung an Korngrenze;
 γ = Rißflächenenergie; l = mittlerer Teilchenabstand auf der Korngrenze.

Wie erwähnt, bieten sich beim Stahl 1.4970 gegenüber 316 zusätzliche Möglichkeiten, den Ausscheidungs-zustand durch thermisch-mechanische Behandlungen in einer gewünschten Richtung zu verändern. Das Ausscheidungsverhalten von 1.4970 ist durch das Hinzutreten der sehr feinteiligen und daher dispersionshärtenden TiC-Phase und durch die Einflüsse von B-Gehalt und -verteilung charakterisiert. Beispiele für das dadurch sehr variabel werdende Ausscheidungsverhalten zeigen die Bilder 2a-c in schematischer Darstellung. Es wurde angenommen, daß die Stähle nach den unterschiedlichen Vorbehandlungen einer einheitlichen (kurzzeitigen) Kriechbeanspruchung bei 700°C ausgesetzt wurden. Bild 2a zeigt das Gefüge der im Ausgangszustand lösungsgeglühten Probe ("L"). Man findet Ausscheidungen von $M_{23}C_6$ an Korngrenzen und im Korninnern, hier vorzugsweise an inkohärenten Zwillingsgrenzen. TiC-Ausscheidungen treten vornehmlich zeilenförmig an Versetzungslinien und gehäuft an Stapelfehlern auf. Die Bilder 2b und 2c geben das Gefüge der im Ausgangszustand kaltverformten + angelassenen ("MT") bzw. angelassenen + kaltverformten ("TM") Proben wieder. Der Hüll-Referenzzustand "MT" (Bild 2b) weist eine relativ schwache Korngrenzenbelegung mit $M_{23}C_6$ auf. Das durch die Kaltverformung erzeugte Versetzungsnetzwerk bot dagegen ideale Ausscheidungsmöglichkeiten für die thermodynamisch sehr stabile, aber langsam wachsende TiC-Phase. Das Netzwerk erreicht dadurch eine hohe thermische Stabilität und verleiht dem Werkstoff eine hohe Kriechfestigkeit. Die Matrixverformbarkeit ist allerdings begrenzt. Wird nach dem Lösungsglühen angelassen (Zustand "T"), so bilden sich zahlreiche $M_{23}C_6$ -Ausscheidungen an den Korngrenzen, und zwar in einer erwünschten perlschnurartigen Verteilung. Die TiC-Ausscheidung in der Matrix ist demgegenüber auf relativ wenige gröbere Partikel beschränkt. Die anschließende Kaltverformung schafft weitere Ausscheidungsmöglichkeiten für sehr feinteiliges TiC an den gebildeten Versetzungen während einer Kriechbeanspruchung (Bild 2c). Die Matrixversetzungen scheinen allerdings beweglicher zu sein, denn es wurde eine Zell- oder Subkornbildung beobachtet, deren Maschenweite offenbar vom mittleren Abstand der relativ groben (von der 800°C-Glühung herrührenden) TiC-Ausscheidungen bestimmt wird. Es ist zu erwarten, daß die stärkeren Korngrenzenausscheidungen und die höhere Mobilität der intragranularen Versetzungsstrukturen sich in einer erhöhten Kriechbruchduktilität ϵ_B der Variante TM bemerkbar machen. Die bisher vorliegenden Meßwerte bestätigen diese Vermutung (Bild 3). Diese erhöhte Duktilität wird nur bei hohen Spannungen mit einem Verlust an Standzeit als

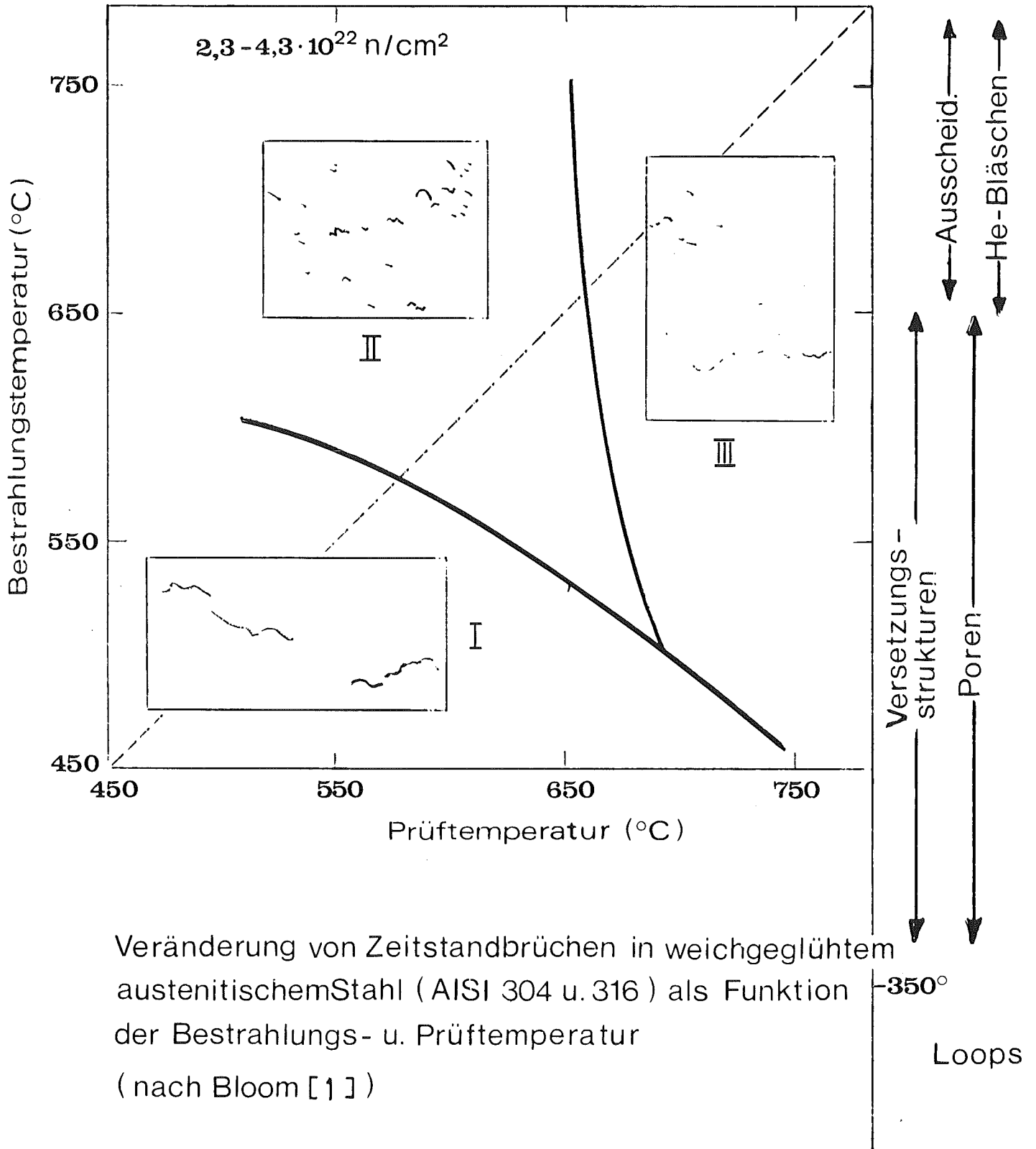
Folge überproportional erhöhter Kriechgeschwindigkeit bezahlt. Bei den praktisch wichtigeren mittleren und niedrigen Beanspruchungen übertrifft Variante TM alle übrigen bisher untersuchten Vorbehandlungsvarianten auch in der Standzeit.

Die angestellten Betrachtungen und die mitgeteilten Kennwerte legen den Schluß nahe, daß es möglich sein sollte, die Legierung 1.4970 in der Zeitstandduktilität und -festigkeit noch weiter zu ertüchtigen. Da schwer zu überschauen ist, wie sich die beabsichtigten Variationen der Gefügestruktur auf das Schwellverhalten auswirken, sind für dessen Verbesserung noch weitere spezifische Maßnahmen vorgesehen, so z.B. die Beeinflussung der Diffusionskoeffizienten und der effektiven Defekterzeugung durch gezielte mischkristallbildende Legierungszusätze. Insgesamt sieht das geplante Optimierungsprogramm daher folgende Parametervariationen vor:

- . Lösungsglühtemperatur
- . Abkühlgeschwindigkeit
- . Thermomechanische Behandlung
- . Chemische Modifikation (Bor, Kohlenstoff, Titan und im Austenit substitutionell lösliche Elemente)

Neben der Optimierung des 1.4970 sind im Legierungsentwicklungsprogramm des PSB noch weitere Vorhaben vorgesehen. Die Grundzüge der Planung sind bereits anläßlich des PSB-Statusberichtes 1976 in Utrecht vorgestellt worden [3]. Besonderes Interesse beanspruchen hier ferritische Legierungen, nachdem vornehmlich durch die Arbeiten von Böhm und Hauck [4] nachgewiesen worden ist, daß die raumzentrierte Matrix offenbar günstigere Voraussetzungen zur Bekämpfung der Hochtemperaturversprödung bietet als der Austenit. Zudem ist vermutlich die Schwellneigung der Ferrite geringer. Weitere Fortschritte sind inzwischen durch Arbeiten von CEN Mol erzielt worden [5, 6].

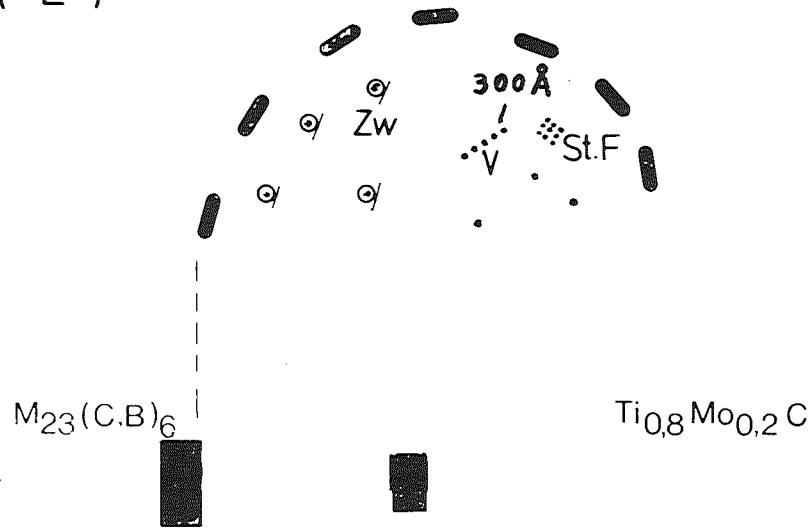
- [1] E.E. Bloom; Europ. Conf. Irrad. Embrittl. and Creep in Fuel Cladding and Core Components, London 1972
- [2] J.E. Harries; Grain Boundaries as vacancy sources during the growth of creep voids and gas bubbles, J. Nucl. Mat. 59, 1976, 303-306.
- [3] K. Ehrlich, W. Dietz; in Statusbericht des Projektes Schneller Brüter 1976 (Sonderdruck aus Atoomenergie 18, 1976, 189-194).
- [4] H. Böhm, H. Hauck; J. Nucl. Mat. 21, 1967, 112 und 29, 1969, 184.
- [5] J.P. Breyer, J.M. Diez, V. Leroy, J.J. Huet, L. Habraken (1973) unveröffentlicht
- [6] Ph. van Asbroeck et al.; European Conference on Irradiation Behavior of Fuel Cladding and Core Component Materials, Karlsruhe 1974, 165-168.



Veränderung von Zeitstandbrüchen in weichgeglühtem austenitischem Stahl (AISI 304 u. 316) als Funktion der Bestrahlungs- u. Prüftemperatur (nach Bloom [1])

(a) Lösungsgeglüht

("L")



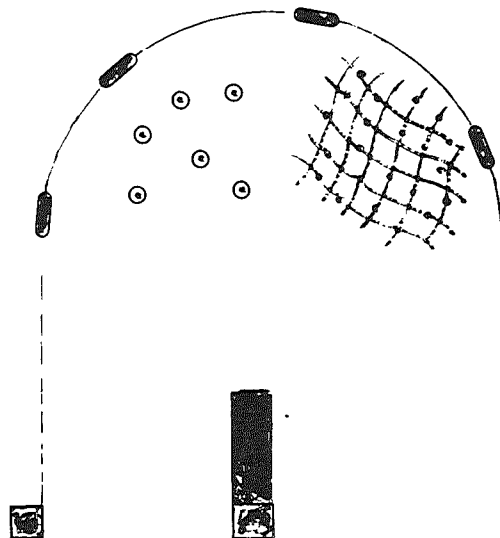
Ausscheidungsverhalten eines unterstabilisierten 1.4970 .

Unterschiedliche Vorbehandlungen (a,b,c) + Kriechbeanspruchung bei 700°C .

- 93 -

(b) Lösungsgeglüht + Kaltverformt + angelassen (800°C)

("MT")



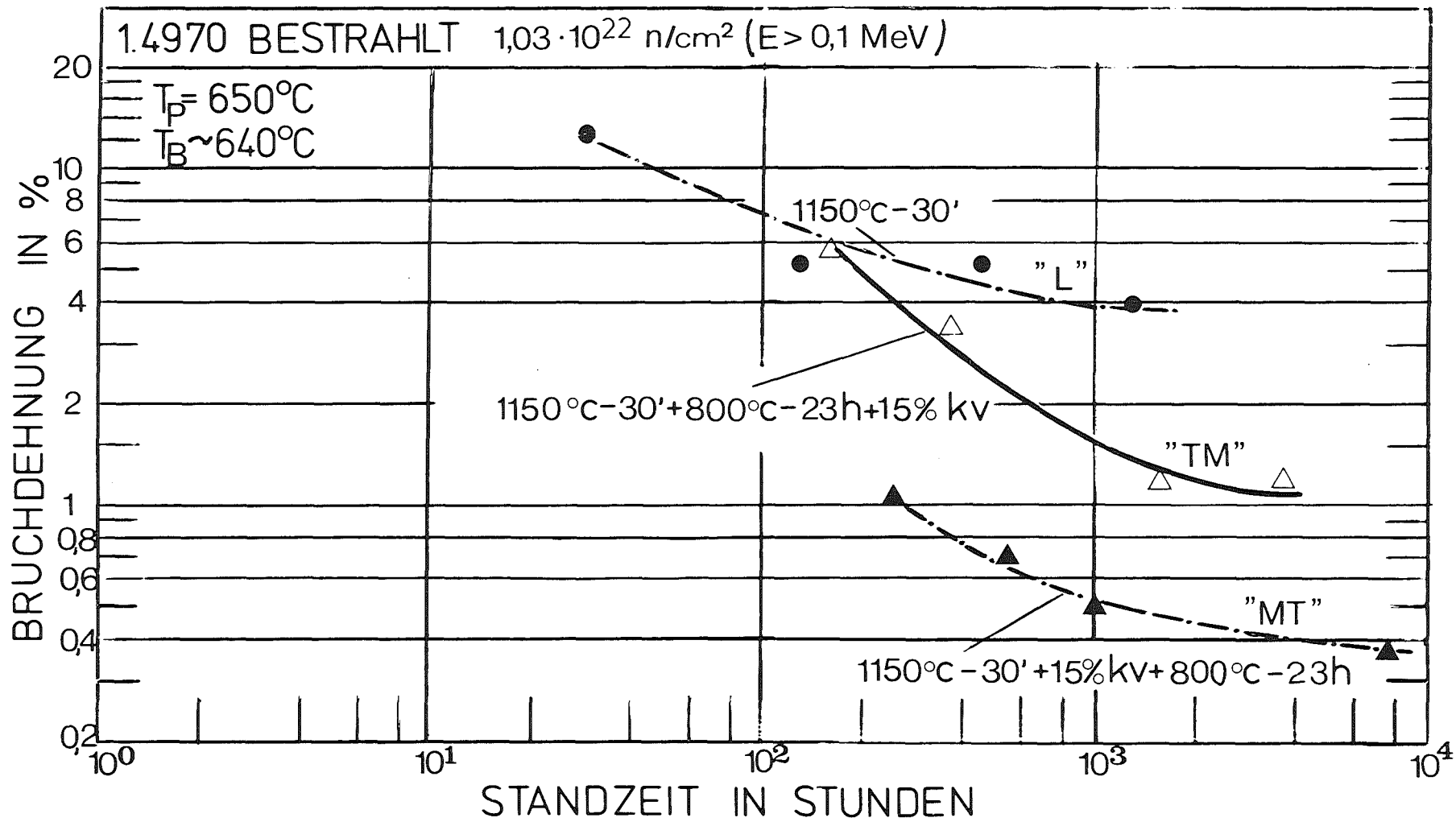
(c) Lösungsgeglüht + angelassen + Kaltverformt

("TM")



- 94 -

BILD 2



BRUCHDEHNUNG VON 1.4970 NACH BESTRAHLUNG BEI 640°C
 (nach C.Wassilew, M.Schirra, Reaktortagung 1974, Berlin, 344-347)

Herstellungstechnologie für Brüter-Brennelemente
P.Funke, ALKEM GMBH - Hanau

1. Überblick über die Technologie-Entwicklung

In der Bundesrepublik Deutschland begann die Entwicklung einer Herstellungstechnologie für Plutonium enthaltende Brennstoffe, insbesondere der Brüter-Brennstoffe, im Jahre 1963 mit der Gründung der Fa. ALKEM. Dazu einige Zahlen in der nächsten Tabelle.

Tabelle 1. Pu-Dursatz^{cn} und Anzahl gefertigter Brennstäbe seit Gründung der ALKEM.

Jahr	Pu/a /kg7	Σ Pu /kg7	Anzahl BS SBR / LWR	Fabrikations- Fläche /m ² 7
1965	1	1	1	500
1970	5	450	81/788	800
1975	172	1200	1402/5967	1500
1980*	820	4300	23000/25700	2300

* Planzahl

Wie ersichtlich, wurden die meisten BS im Rahmen des von der Bundesregierung geförderten Pu-Rückführungsprogramms in LWR's eingesetzt. Die dabei entwickelte Technologie kommt jedoch in vollem Umfang auch der Brüter-Brennelement-Fertigung zugute.

2. Besonderheiten des SB-Oxid-Brennstabes.

2.1 Einzelheiten zur Brennstoffherstellung

Ein prinzipielles Fertigungsschema zeigt Abb. 1; wesentliches Charakteristikum ist, daß ALKEM von UO₂ und PuO₂ ausgeht. Gegenüber der Koppräzipitation hat dies, neben Kostenvorteilen, den technologischen Vorteil flexibler gegenüber wechselnden Verhältnissen (Pu-Markt, Anreicherungsspezifikation, Ausbringung) zu sein.

Den niederdichten, nachsinterstabilen Brennstoff hat ALKEM bei der Brennstabfertigung für die KNK unter Verwendung eines speziell hergestellten, wenig sinteraktiven UO_2 -Pulvers (Peroxidgefälltes UO_2) gefertigt. Da dieses Pulver nicht als Standard-Pulver gleichbleibender Qualität großtechnisch hergestellt werden wird, hat sich ALKEM für die SNR-300-Fertigung für das als Standard-Pulver hergestellte UO_2 ex AUC (Ammonium-Uranyl-Carbonat) entschieden.

Dieses Pulver sintert, als Brennstoff für LWR's, zu hohen Dichten; für niedrige Dichten setzt ALKEM durch vorhergehendes Sintern desaktiviertes und aufbereitetes Pulver sowie, als Porenbildner, AUC (Vorprodukt des UO_2 ex AUC) zu. Diese Pulvermischung, mit PuO_2 -Zusatz, hat hervorragende Verarbeitungseigenschaften (geschlossene Porosität, Porengröße einstellbar, enge Sinterdichtestreuung).

Für die Einhaltung der Spezifikation des linearen Gewichts bzw. Pu/cm ist es notwendig, bei verfahrenstechnisch bedingten Streubreiten der einzelnen Spezifikationspunkte, die Nominalwerte von Dichte, Durchmesser und $Pu/U+Pu$ als Mittelwerte aufs genaueste einzuhalten. Während sich ALKEM bei der Fertigung für KNK noch die Wahl zwischen Meßsintern und Schleifen der Pellets im Einzelfall vorbehalten wollte, fiel für die Fertigung SNR-300 die Entscheidung auf Grund der Erfahrungen bei KNK für das Schleifen der Pellets, damit gleich wie bei der LWR-Fertigung.

Der hohe Plutoniumgehalt der SB-Brennstoffe bringt, unter anderem, vor allem Probleme hinsichtlich der notwendigen Strahlenschutzmaßnahmen; die Auswertung der Unterlagen zeigt, daß die integrierte Jahresdosis 1974 (mit nahezu ausschließlicher LWR-Fertigung) ~ 50 manrem beträgt gegenüber der des Jahres 1975 (mit ca. 75% Anlagenkapazität SBR-BS-Fertigung) mit 90 manrem. ALKEM verfügt wahrscheinlich weltweit über die größte Erfahrung mit der Verarbeitung von LWR-Plutonium (hoher $Pu-241$ -Gehalt).

Im Zusammenhang mit dem hohen Pu-Gehalt steht die Unterstöchiometrie des Mischoxides, da nur Pu zu einer Wertigkeit < 4 reduzierbar ist. Pu (III) ist aber an Luft oder feuchten Atmosphären thermodynamisch nicht stabil und wird langsam wieder zu Pu (IV) oxidiert. Im wesentlichen entsteht dadurch ein Kostenproblem, da es zwar relativ einfach ist durch Sintern ein Produkt definierter Unterstöchiometrie herzustellen, jedoch nahezu unmöglich die O/M-Drift nach dem Sintern, ohne eine völlige Neukonzeption der Fertigungsanlage, zu beherrschen.

2.2 Einzelheiten zur Brennstabfertigung

Während der Fertigung der KNK-Brennstäbe zeigte es sich, daß die Auswahl des Werkstoffes für die Hülle ohne Berücksichtigung der fertigungstechnischen Erfordernisse erfolgt war; der Werkstoff erwies sich als extrem rißanfällig, vor allem im Zünd- und Endpunkt der Schweißung.

Bei ALKEM wurde eine elegante Umgehung der Problematik dadurch gefunden, daß die kritischen Punkte auf das Vollmaterial des Endstopfens gelegt wurden. Dort spielen Risse keine Rolle mehr; gleichzeitig zeigte sich, daß Verunreinigungen (Festkontamination) in einer Art Zonenschmelzen bis in den Auslauf mitgeführt werden. Auf dem Endstopfen ist eine abrasive Dekontamination ohne weiteres möglich.

Ein großer Teil der gefertigten Brennstäbe mußte aufgrund von Überschreitungen der zulässigen Durchbiegung zum Ausschuß erklärt werden; die Ursache liegt in der hohen Empfindlichkeit der dünnwandigen Hüllrohre. Bei den noch längeren Brennstäben des SNR-300 wird das Problem noch akuter. Selbstverständlich läßt es sich durch entsprechende, aufwendige Handhabungseinrichtungen lösen;

Jeder Brennstab enthält eine Brennstoff- und je eine obere und untere Brutstoffsäule. Werden die beiden Pellettypen nicht per System absolut sicher getrennt voneinander gehalten und bei der Fertigung auch getrennt verarbeitet, kann es, wie die Praxis gezeigt hat, zu Verwechslungen kommen.

3. Herstellung der SNR-300-Brennstäbe

Während die im vorhergehenden erläuterten Erfahrungen im wesentlichen bei der Fertigung der Brennstäbe für die KNK erhalten wurden, gibt es derzeit noch keine Fertigungserfahrung für die Brennstäbe des SNR-300. Gerade aufgrund der vielfältigen und nicht immer erfreulichen Erfahrungen, verbunden mit einem darauf aufbauenden SNR-300 bezogenen F+E-Programm, glaubt ALKEM jedoch mit einer gewissen Sicherheit die Fertigung für den SNR-300 aufnehmen zu können.

4. Schwerpunkte der weiteren Entwicklung für den Oxidbrennstab.

- Vereinfachung der Spezifikation: höhere Brennstoffdichte, damit einfaches Verfahren ohne porenbildende Zusätze, gleichzeitig Verbesserung des Brennstoffverhaltens mit Blick auf O/M-Drift und H_2O/H_2 -Adsorption; Entkoppelung der Spezifikationspunkte lineares Gewicht, Pu/cm, Dichte und Säulengewicht durch Beschränkung auf die essentiellen Spezifikationspunkte; Anpassung der Toleranzen an die fertigungstechnischen Möglichkeiten (auf der Basis der Erfahrungen aus der SNR-300 Erst-Core-Fertigung); Anpassung der O/M-Spezifikation an die sich im Brennstab einstellende, axiale O/M-Verteilungskurve; Vereinfachung der Pelletform (kein Dishing); Aufweitung der BS-Spezifikation im Blick auf Durchbiegung, Oberflächenqualität und Nachbehandlung entsprechend allgemeinem Know-how-Stand und fertigungstechnischen Möglichkeiten.
- Vereinfachung des Herstellverfahrens
Anlaß zu einer Weiterentwicklung wird neben Argumenten aus dem Brennstoffkreislauf (Löslichkeit von heterogenem Mischoxid, das noch nicht den Zielabbrand erreicht oder überhaupt nicht bestrahlt wurde) die zunehmende Dosisbelastung durch LWR-Pu neben abnehmenden, vom Gesetzgeber zugelassenen Dosiswerten sein.

Da das jetzige Verfahren einen hohen Prüf- und Qualitätssicherungsaufwand erfordert, muß ein robusteres, inhärent sicheres, besser mechanisierbares bis automatisierbares (jedoch Problem der Wartung) Verfahren gefunden werden; Verfahren meint in diesem Zusammenhang Brennstoff-, Stab- und Elementherstellung, wobei der Pelletbrennstoff weiterhin im Vordergrund stehen wird.

5. Fertigungsverfahren für kabadischen Brennstoff

Das von Nukem/ALKEM entwickelte Fertigungsschema zeigt Abb. 2. Es lehnt sich in den wesentlichen Grundzügen an das Oxid-Verfahren an, d.h. Pelletbrennstoff, getrennte UC und PuC-Herstellung, Vermischen der beiden Pulver. Die Anzahl der einzelnen Verfahrensschritte ist größer, da zusätzlich die Karbidherstellung aus den Oxiden mittels Karboreduktion dazukommt.

Seit 1970 wurden in einer kleinen Laboranlage (Kapazität 50 kg/a) Brennstoffe und Brennstäbe für Bestrahlungsexperimente des PSB hergestellt (vergl. Tabelle 2).

Aus der bisherigen Erfahrung ergaben sich für die weitere Technologie-Entwicklung folgende Schwerpunkte:

Verringerung der Pu-Verluste durch Verdampfung bei der Karboreduktion des PuO_2 ;

Kenntnis und Beherrschung der Prozeßparameter für die reproduzierbare Herstellung eines MC_2 -freien, Sauerstoff- und Stickstoffarmen Misch-Karbids; Rückführung und/oder Aufarbeitung von Ausschußmaterial; Maschinen- und Verfahrensentwicklung für die Herstellung größerer Mengen (5-10 t/a); sichere Beherrschung der mit der Brennbarkeit des Karbids zusammenhängenden Probleme (Inertgasbetrieb, Verhalten bei Lufteinbrüchen, sonstigen Störfällen).

Um hier, ausgehend von der Laboranlage, den nächsten Schritt zu tun, hat ALKEM, unterstützt durch die Planung des PSB, eine größere Fertigungsanlage (Technikum, Jahreskapazität 400 kg) aufgebaut. Die Anlage ist derzeit im UO_2 -Probetrieb und wird, wenn die behördliche Genehmigung vorliegt, den UC-Probetrieb aufnehmen.

Tab. 2 Übersicht über bei ALKEM gefertigte Brennstäbe

1. Brennstäbe für LWR

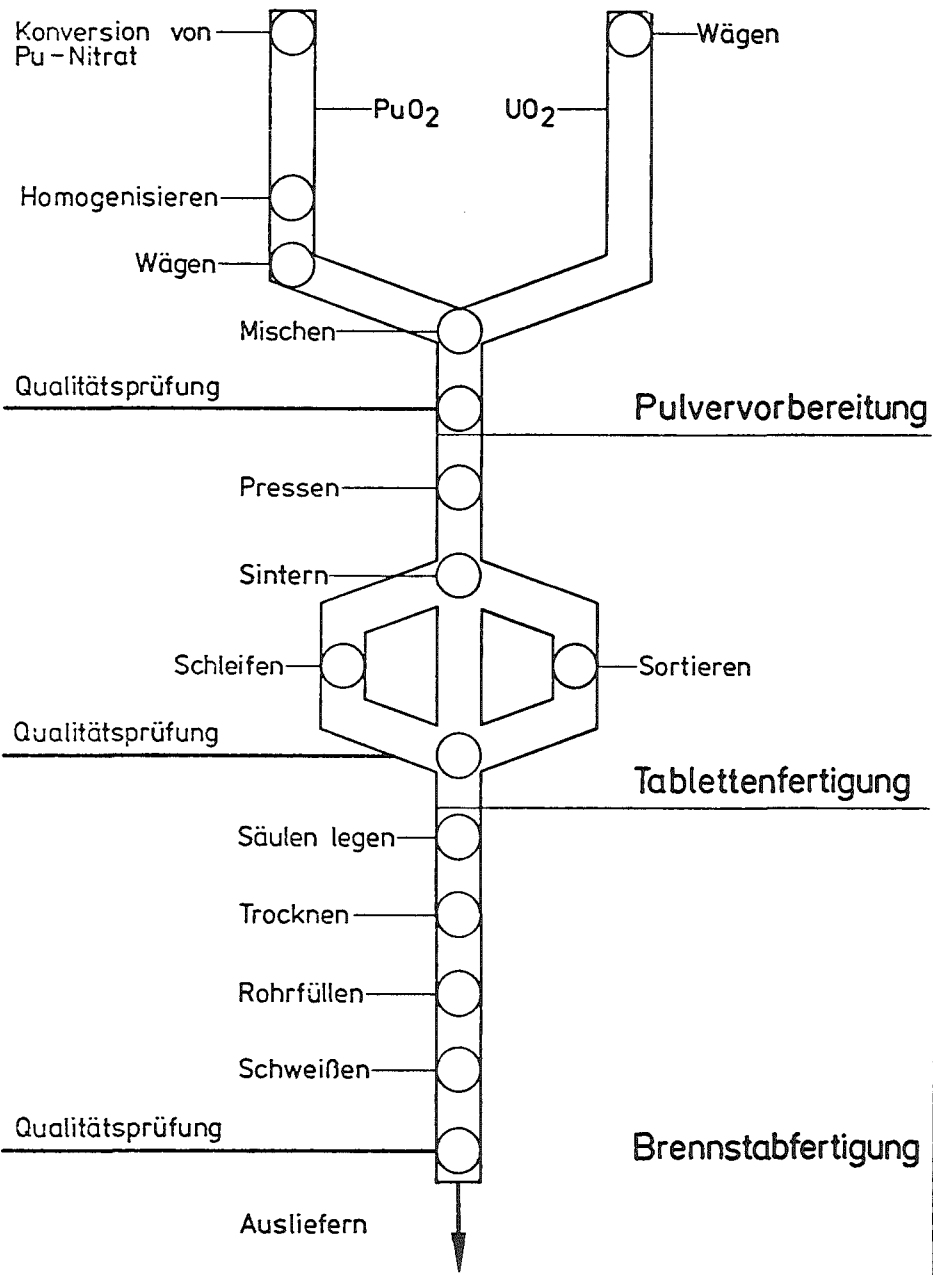
Auftrag- geber	Reaktor	Anzahl Brennstäbe	Anzahl B-Elemente	(U + Pu) [kg]	Pu [kg]
UNC	Dresden	110	10	280	11
Enel	Garigliano	48	4	150	1.6
Framatome	SENA	416	2	570	3.1
GfK	MZFR	296	8	390	2
VAK	VAK	594	56	745	23
KWU	KWO	5940	33	9075	322
KWU	KRB	2240	80	10000	288
		10998	193	19210	678.6

2. Brennstäbe für SBR, Oxid

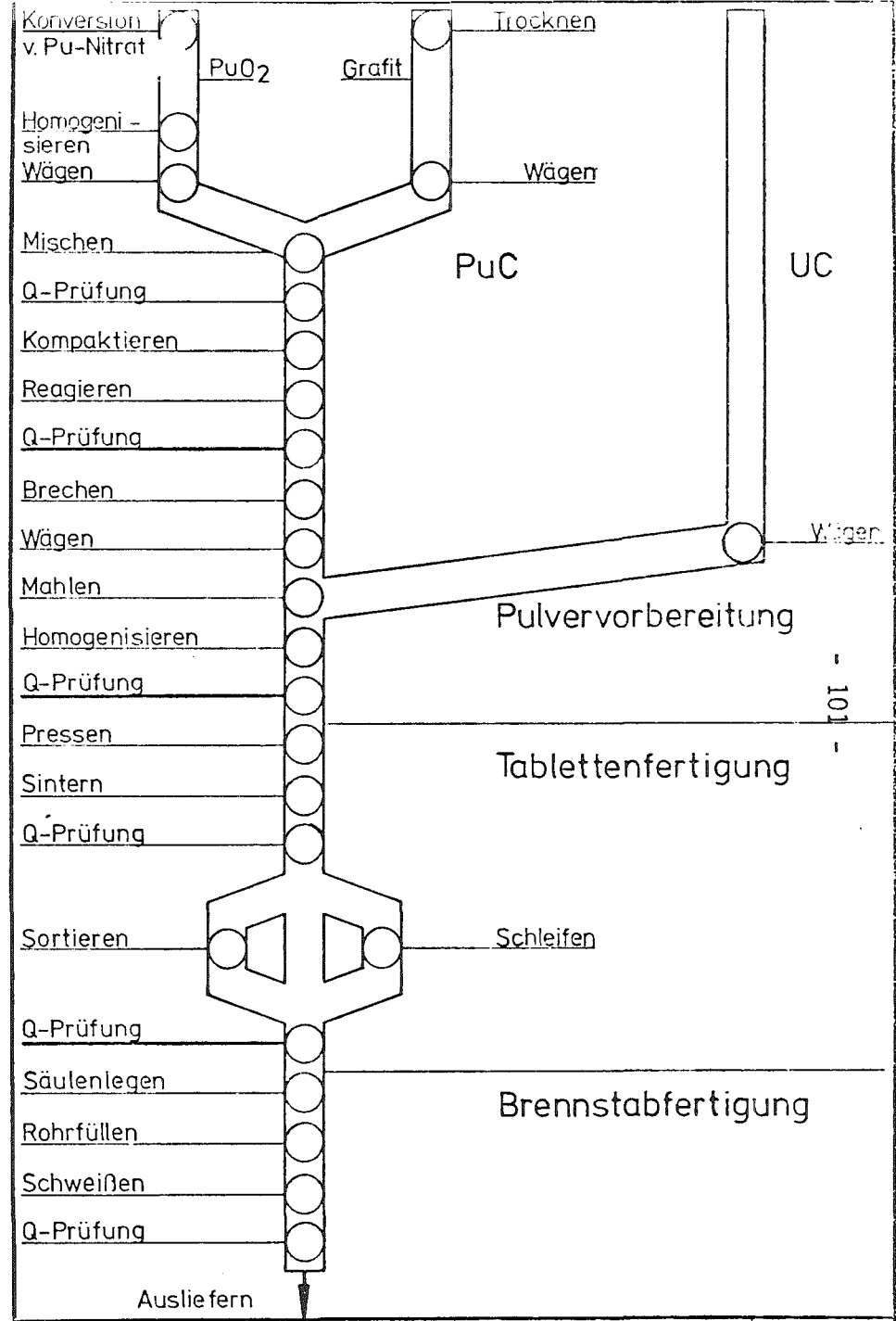
Auftrag- geber	Reaktor	Anzahl Brennstäbe	Anzahl B-Elemente	U+Pu [kg]	Pu [kg]
GfK	SNEAK	1350	Schachteln	1870	416
GfK	DFR	72	2	6	2
GfK	Rapsodie	51	2	7	2
GfK	BR-2	13		2	0,5
GfK	KNK	1990	10	190	60
	Σ	2126		2075	480.5

3. Brennstäbe für SBR, Karbid

Auftrag- geber	Reaktor	Anzahl Brennstäbe	Bemerkung	U+Pu [kg]	Pu [kg]
GfK	DFR	14 + 17	14 He-Bindung 17 Na-Bindung	15	3
GfK	BR-2	5 + 7	5 He-Bindung 7 Na-Bindung	6	1.1
GfK	FR-2	4	4 He-Bindung	1	0.2
	Σ	47		22	4.3



ALKEM Plutonium-Oxid-Verarbeitung Abb. 1



ALKEM Plutonium-Karbid-Verarbeitung Abb. 2

Auslegung von Karbid-Stäben

H. Steiner

Institut für Material- und Festkörperforschung
Kernforschungszentrum Karlsruhe

1. Einleitung

Die Modelltheorie ist für den Karbid-Stab bei weitem noch nicht so entwickelt wie für den Oxid-Stab. Bei der Konzeptwahl und Auslegung muß man sich also in erster Linie auf das empirische Material aus Bestrahlungsexperimenten stützen. Bei der Wertung und Extrapolation experimenteller Ergebnisse sind Modellrechnungen aber durchaus von Nutzen.

Eine hervorstechende Eigenschaft karbidischer Brennstoffe ist die sehr gute Wärmeleitfähigkeit; sie ist um ca. einen Faktor 8 besser als die der Oxide. Gegenüber einem Oxid-Stab kann also die Stabileistung kräftig gesteigert werden. Eine vollständige Ausschöpfung des Brennstoffpotentials scheidet aber an Randbedingungen durch die Hülle.

2. Thermische Auslegung

Zur Aufnahme des Brennstoffschwellens muß freies Volumen im Stab verfügbar sein, z.B. in Form eines Spalts zwischen Brennstoff und Hülle oder in Form von Poren oder in Form eines Zentrallochs. Der Spalt stellt bei den vorgesehenen großen Stabileistungen und Spaltweiten eine hohe Wärmebarriere dar. In Abb. 1 ist die radiale Temperaturverteilung eines He-gebundenen Stabs mit dem eines Oxid-Stabs verglichen. Trotz der um einen Faktor zwei höheren Stabileistung ist der Temperaturabfall in der Karbid-Tablette klein; er liegt bei ca. 400°C. Zur Berechnung des Wärmedurchgangs wurde ein Modell verwendet, das eine konzentrisch liegende Tablette betrachtet und auf einer Arbeit von Ross und Stoute /1/ beruht. Dieses Modell ist sehr konservativ - wie man von Untersuchungen an LWR-Stäben her weiß /2/ -, da es die Verbesserung des Wärmedurchgangs durch Rißeffekte nicht berücksichtigt. Wenn man eine Kontaktflächenfunktion entsprechend dem Modell FRAP-3 /3/ ansetzt und für die Spaltleitfähigkeit im Kontaktfall experimentelle Werte nimmt (1 bis 2 W/cm² °C), dann kommt man auf Wärmedurchgangszahlen von 0,5 bis 0,8 W/cm² °C für eine gerissene Tablette. Man muß aber im Auge behalten, daß das Rißbild einer Karbid-Tablette von dem einer Oxid-Tablette verschieden ist.

Experimentelle Bestimmungen des Wärmedurchgangs /4,5,6/ bestätigen die Bedeutung des Aufreißens für die Spaltleitfähigkeit. Sie zeigen auch, daß man für mittlere Spalte (400 μ m diametral) schon nach wenigen Tagen mit Wärmedurchgangszahlen von $1 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{C}$ rechnen kann /4/. Die Wärmedurchgangszahl ist eine Funktion der Stableistung. Nach /4/ kann man für den Stab des KNK-II-Karbid-Bündels bei ca. 650 W/cm mit einem h_{gap} von $0,4 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{C}$ beim Anfahren rechnen. Dies ist zu vergleichen mit einem Wert von 0,33, den man nach dem theoretischen Modell berechnet. Am Rande sei noch bemerkt, daß für Fertigungsspalte von ca. 400 μ m eine Stableistung von 1500 W/cm beim Anfahren eine gewisse Auslegungsgrenze darstellt, da nach Versuchen in USA /7/ hier ein Schmelzen des Brennstoffs einsetzt. Dies würde einer Wärmedurchgangszahl von ca. $0,6 \text{ W/cm}^2 \text{ }^\circ\text{C}$ entsprechen.

Bei Karbid-Stäben hat man nun die Möglichkeit, die Gas-Bindung durch Natrium zu ersetzen. Natrium hat sehr gute Wärmeleitungseigenschaften, wodurch der Temperatursprung im Spalt sehr klein wird (ca. 10°C). Aus thermischen Gründen kann man also den Spalt fast beliebig groß machen. Die Probleme des Brennstoffschwellens sind damit aber nicht vollständig gelöst, da es durch Ansammlung von Spaltgas unter Tabletten-Stoßstellen zu einem teilweisen Verlust der Na-Bindung mit einer Überhitzung des Brennstoffs kommen kann. Auch können kleine Tablettenabplatzungen in den Spalt oder auch in Risse fallen, was zu Hüllschäden führen kann. Der Einsatz von "Linern", das sind perforierte Stützhülsen, dürfte diese Probleme entschärfen.

Die folgenden Ausführungen beziehen sich durchweg auf das He-gebundene Konzept.

3. Schwellen des Brennstoffs

Aus verschiedenen Bestrahlungsexperimenten hat man die Erfahrung gewonnen, daß sich bei kleinen Fertigungsspalten und mittleren bis hohen Tabletten-dichten hohe Abbrände nicht erreichen lassen, ohne daß es zu großen Hüllverformungen oder auch Stabdefekten kommt. In Abb. 2 sind die max. Hülldehnungen der GfK-Bestrahlungsexperimente Mol 11 K2 /8/ und Vg 6A, 6C gegen den Abbrand aufgetragen. Bei Spaltbreiten bis zu 90 μ m diametral lassen sich nach diesen Experimenten nur Abbrände bis ca. 50 MWd/kgM erreichen. Bei Spaltbreiten von 140 μ m ist die Situation schon günstiger. Will man also zu höheren Abbränden kommen, dann muß man größere Spalte vorsehen. Bei dieser Beurteilung ist aber zu berücksichtigen, daß die oben zitierten Experimente Bestrahlungen im epithermischen bzw. thermischen Fluß darstellen.

Darüberhinaus waren die Stäbe einem relativ harten zyklischen Betrieb unterworfen. Es ist zu erwarten, daß im schnellen Fluß bei stationärem Betrieb die mechanischen Hüllverformungen beträchtlich kleiner sind.

Wie sich Brennstäbe mit kleinem Fertigungsspalt und sehr niedriger Tabletten-dichte (z.B. 75 % TD) verhalten würden, kann zur Zeit nicht beurteilt werden, da noch keine Bestrahlungserfahrungen vorliegen. Möglicherweise lassen sich auch mit einem solchen Konzept relativ hohe Abbrände erreichen.

Bei großen Fertigungsspalten muß man zu Beginn der Bestrahlung mit hohen Brennstofftemperaturen rechnen. Hier stellt sich nun die Frage nach dem Brennstoffschwellen, insbesondere bei so hohen Temperaturen.

In Abb. 3 sind "integrale", also über den Abbrand gemittelte, Schwellraten in Abhängigkeit von der maximalen Zentraltemperatur zu sehen. Es existiert keine ausgeprägte Abhängigkeit von der Temperatur. Hohe Temperaturen zu Beginn der Bestrahlung scheinen also keinen großen Effekt auf das Gesamtschwellen des Brennstoffs zu haben. Für detaillierte Aussagen - wie über den Zeitpunkt des Spaltschließens und das Einsetzen der mechanischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle - sind die "integralen" Schwellraten nicht aussagekräftig genug. Was man braucht, sind die Werte für das "freie" Schwellen, das ist die unbehinderte geometrische Veränderung der Brennstofftablette, bevor es zum Hüllkontakt kommt.

Durch neutronografische Vermessung des Spalts und gleichzeitiger Messung der Zentraltemperatur konnte nach /4/ das "freie" Schwellen bestimmt werden. Bei 2000°C wurde ein Wert von 160 % /% FIMA gefunden. Wie ist ein solcher Wert mit integralen Schwellraten zwischen 2 und 3 % zu vereinbaren?

Zum einen ist schon aus der Art der Messung evident, daß das geometrische Schwellen gemessen wurde. Die Volumenvergrößerung durch das Aufreißen der Tabletten ist also mit im Schwellen enthalten. Das Aufreißen führt in einer sehr kurzen Zeitspannung, und zwar in ein paar Stunden, zu einer beträchtlichen Volumenzunahme. Bezieht man diese auf 1 % FIMA, entsprechend etwa 1000 h Vollast bei $\chi = 800 \text{ W/cm}$, dann sind Werte von 160 % durchaus plausibel. Durch die Verbesserung des Wärmedurchgangs sinkt die Brennstofftemperatur sehr schnell auf ca. 1500°C /4/, die zugehörigen Schwellraten liegen dann in vom Oxid her gewohnten Größenordnungen /9/.

Bei freien Schwellraten dieser Größe schließt sich der Spalt sehr schnell und zwar nach ca. 2 % FIMA, fast unabhängig von der Fertigungsspaltbreite. Niedrige "integrale" Schwellraten sind dann nur zu erklären mit ziemlich kleinen "behinderten" Schwellraten, worunter man die geometrische Veränderung

des Brennstoffs unter der Rückwirkung durch eine feste Hüllwand versteht. Das in Rissen und Poren vorhandene Leervolumen kann also bis zu einem gewissen Grad dem Schwellen relativ leicht verfügbar gemacht werden. Man kann sich vorstellen, daß dieser Prozeß in mehreren Stufen abläuft. Niederdichter bis mitteldichter Brennstoff (77 - 91 % TD) hat anscheinend eine weit bessere Leervolumenverfügbarkeit als hochdichter Brennstoff (> 95 % TD) /10/. Dies dürfte damit zusammenhängen, daß das Kriechvermögen mit der Porosität zunimmt. Danach ist ein Konzept mit hochdichtem Brennstoff und großer Spaltbreite nicht optimal.

4. Mechanische Wechselwirkung

Bei stationärem Betrieb wird sich im mechanischen System Brennstoff/Hülle ein gewisser Schwellendruck einstellen, der bestimmt wird durch die Kriechgeschwindigkeit der Hülle, dem Schwellverhalten von Hülle und Brennstoff und der Fähigkeit des letzteren, in Leervolumen zu kriechen und zu fließen. Die Kriecheigenschaften des Brennstoffs bedingen nun das gänzlich verschiedene Verhalten von Oxid- und Karbid-Stäben im stationären Betrieb.

Bekanntlich sind die bestrahlungsinduzierten Kriechraten im Karbid um ca. einen Faktor 8 - 10 schlechter als die im Oxid /11/. Nach /12/ und /13/ liegt dies in der besseren Wärmeableitung aus den Spaltfragment-Bahnen begründet, was wiederum eine Konsequenz der guten Wärmeleitfähigkeit des Karbids ist. Im Kontaktfall ist auch im Karbid-Stab die Brennstoffrandtemperatur niedrig ($800 - 900^{\circ}\text{C}$). Entsprechend dem kleinen Temperaturgradienten im Brennstoff und entsprechend der Tatsache, daß bis ca. $1300 - 1400^{\circ}\text{K}$ der bestrahlungsinduzierte Anteil beim Kriechen dominiert, ist also ein großer Teil des Brennstoffquerschnitts beim Karbid kalt und sehr kriechfest. Es muß sich also ein wesentlich höherer Schwellendruck als beim Oxid einstellen; entsprechend dem Verhältnis der Kriechraten dürfte der Unterschied eine Größenordnung betragen. Aus gemessenen Zuwächsen von Kriechverformungen in der Hülle kann man abschätzen, daß der Kontaktdruck bei ca. 100 - 200 bar liegt. In Karbid-Stäben muß man also auch bei stationärem Betrieb mit nennenswerten Kriechverformungen der Hülle infolge des Festkörperdrucks durch Brennstoffschwellen rechnen.

Bekanntlich stellt zyklischer Leistungsbetrieb eine der wesentlichen Ursachen von Hüllverformungen bei Oxid-Stäben dar. Aufgrund des wesentlich kleineren Temperaturgradienten im Brennstoff kann ein Karbid-Stab in diesem Punkt ein günstigeres Verhalten zeigen. Dafür spricht auch das Rißverhalten. Eine experimentelle Bestätigung dieser Vermutungen steht aber noch aus.

Aus Zusammenstellungen von Bestrahlungsergebnissen kann man sehen, daß die Hüllverformungen umso kleiner sind, je kleiner die Schmierdichte ist /14/. Daneben sollte aber auch eine sehr kriechfeste Hülle günstig sein. Leider lassen sich die bisher verwendeten Hüllmaterialien nur sehr schwer vergleichen, da die übrigen Einflußgrößen z.T. deutlich verschieden waren. Auf jeden Fall scheinen aber gemäß amerikanischer Schadensstatistiken /10/ Hüllen mit kleiner Wandstärke ($t < 0,45$ mm) weit anfälliger für Defekte zu sein als solche mit größerer Wandstärke ($t \geq 0,5$ mm). Ein Brennstabkonzept mit dicker und kriechfester Hülle und niedriger Schmier- und Pelletdichte stellt also im Sinne der Verlässlichkeit und im Sinne kleiner Hülldehnungen die beste Lösung dar.

5. Karbidspezifische Auswahl des Hüllwerkstoffs

Drei Gesichtspunkte werden bei der Auswahl des Hüllmaterials entscheidend sein. Zum einen muß man eine hohe Schwellresistenz und hohe Kriechfestigkeit fordern und zum anderen sollte der Hüllwerkstoff auch unter Bestrahlung noch ausreichend duktil sein. Wegen der unvermeidlichen Versprödung der Hülle bei Temperaturen über 600°C (Hochtemperaturversprödung) und wegen des über längere Zeit wirkenden Festkörperdrucks muß man der Frage der Duktilität die höchste Priorität einräumen. Falls man sich für den Werkstoff 1.4970 entscheidet, dann scheint aufgrund der vorliegenden Ergebnisse an Flachproben der Behandlungszustand:

lg + ausgel. + kv

der günstigste zu sein. Damit - oder mit einem noch mehr karbidspezifisch optimierten Behandlungszustand - wird ein Abbrandziel von maximal nominal 10 % FIMA erreichbar sein.

Daneben kommen noch die von amerikanischer Seite verwendeten Werkstoffe AISI 316 und Inconel 800 grundsätzlich in Betracht.

Literatur:

- /1/ A.N. Ross, R.L. Stoute, AECL-1522 (1962)
- /2/ P.E. MacDonald, J.M. Broughton (1976) unveröffentlicht
- /3/ P.E. MacDonald, J.M. Broughton (1975) unveröffentlicht
- /4/ H. Mikailoff, Bull. d'Inf. Scient. et Techn. 196 (1974) 19
- /5/ P. Weimar, H. Fiedler, KFK 1919 (1974)
- /6/ H. Plitz (1972) unveröffentlicht
- /7/ M.H. Montgomery, et al., GU-5294 (1973)
- /8/ D. Freund, H. Elbel, H. Steiner, KFK 2268 (1976)
- /9/ D. Brucklacher, W. Dienst, H. Zimmermann, Beitrag zum KFK-Bericht 1999
(1974)
- /10/ T.W. Latimer, et al. (1976)
- /11/ D.J. Clough, AERE-R 7772 (1974)
- /12/ D. Brucklacher, Beitrag zur Int.Conf. on Phys. Met. of Reactor Fuel
Elements, Berkeley (1973)
- /13/ D. Brucklacher, W. Dienst, F. Thümmeler, KFK-Bericht 817 (1968)

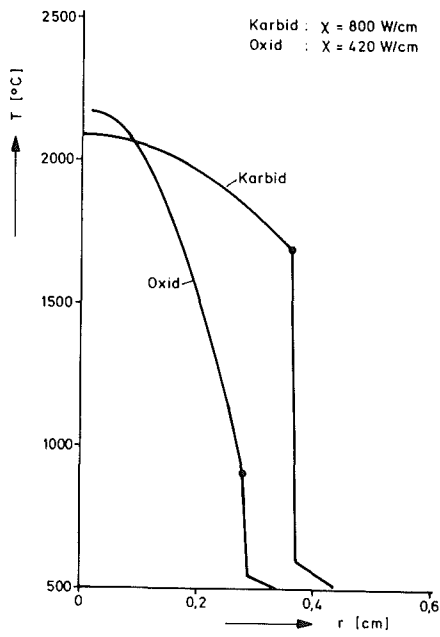


Abb.1: Radiale Temperaturverteilung im Brennstab bei He-Bindung

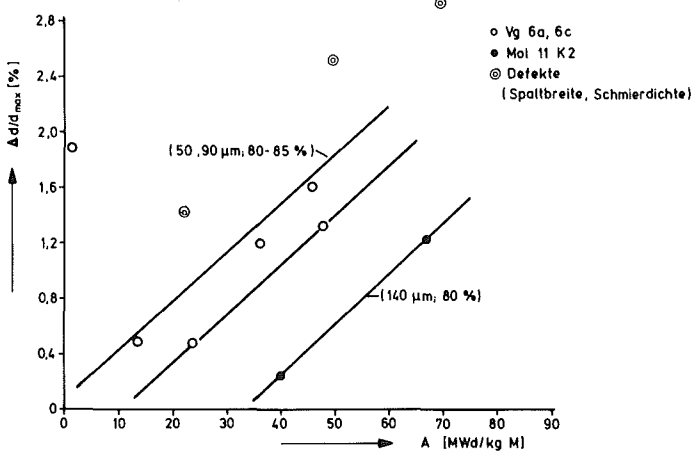


Abb.2: Maximale Hülldehnungen von gasgebundenen Karbidstäben mit kleinem Fertigungsspalt als Funktion des Abbrands

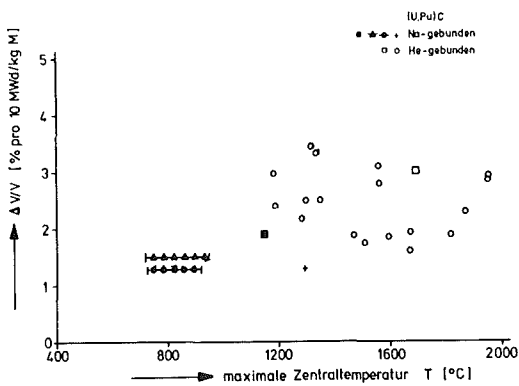


Abb. 3: Schwellen von U(Pu)C als Funktion der maximalen Zentraltemperatur

Das Karbid-Brennelement für die KNK II-Nachladung

E. Bojarsky

Kernforschungszentrum Karlsruhe
Institut für Material- und Festkörperforschung

1. Einführung

Nachdem durch eine größere Zahl von Bestrahlungsexperimenten mit Brennstoffproben, Einzelstäben und Kleinbündeln eine gute Kenntnisbasis bezüglich des Bestrahlungsverhaltens karbidischer Brennstäbe geschaffen worden ist, sollen nun komplette Karbid-Brennelemente im schnellen Neutronenfluß getestet werden. Dafür sind zwei Positionen in der Testzone der KNK II für die erste Core-Nachladung vorgesehen. Die Projektarbeiten werden vorwiegend im "Arbeitskreis Kernkomponenten" (Vorsitz Dr. Kummerer) des Kernforschungszentrums Karlsruhe durchgeführt, wobei die Firma Interatom mit sehr wertvollen Beiträgen mitwirkt. Im Mai 1975 ist eine Vorstudie abgeschlossen worden. Konstruktion und Spezifikation der Brennstäbe sowie des kompletten Brennelementes sind jetzt nahezu fertiggestellt. Die Arbeiten für den Auslegungsbericht sind so weit gediehen, daß auch diese Genehmigungsunterlage demnächst vorgelegt werden kann.

2. Hauptdaten und Aufbau des Karbidbrennelements

In der folgenden Tabelle sind einige Daten zur Geometrie des Bündelquerschnitts zusammengestellt:

Brennstabdurchmesser	[mm]	8,5
Anzahl der Brennstäbe		121
Innenschlüsselweite des Hüllkastens	[mm]	118,9
Eckradius des Hüllkastens	[mm]	23
Stabmittenabstand	[mm]	10,35
Stabmittenabstand / Stabdurchmesser		1,22
Anzahl der Strukturstäbe (Eckposition)		6

Aus Gründen der Wirtschaftlichkeit wurde angestrebt, möglichst die gleiche Art von Bauelementen für das Karbidtestelement zu verwenden, die für die Oxidelemente entwickelt wurden. Deshalb unterscheiden sich die Brennelemente bei den vorgegebenen Randbedingungen der KNK II kaum in ihrem äußeren Aufbau. Es sind funkenero-

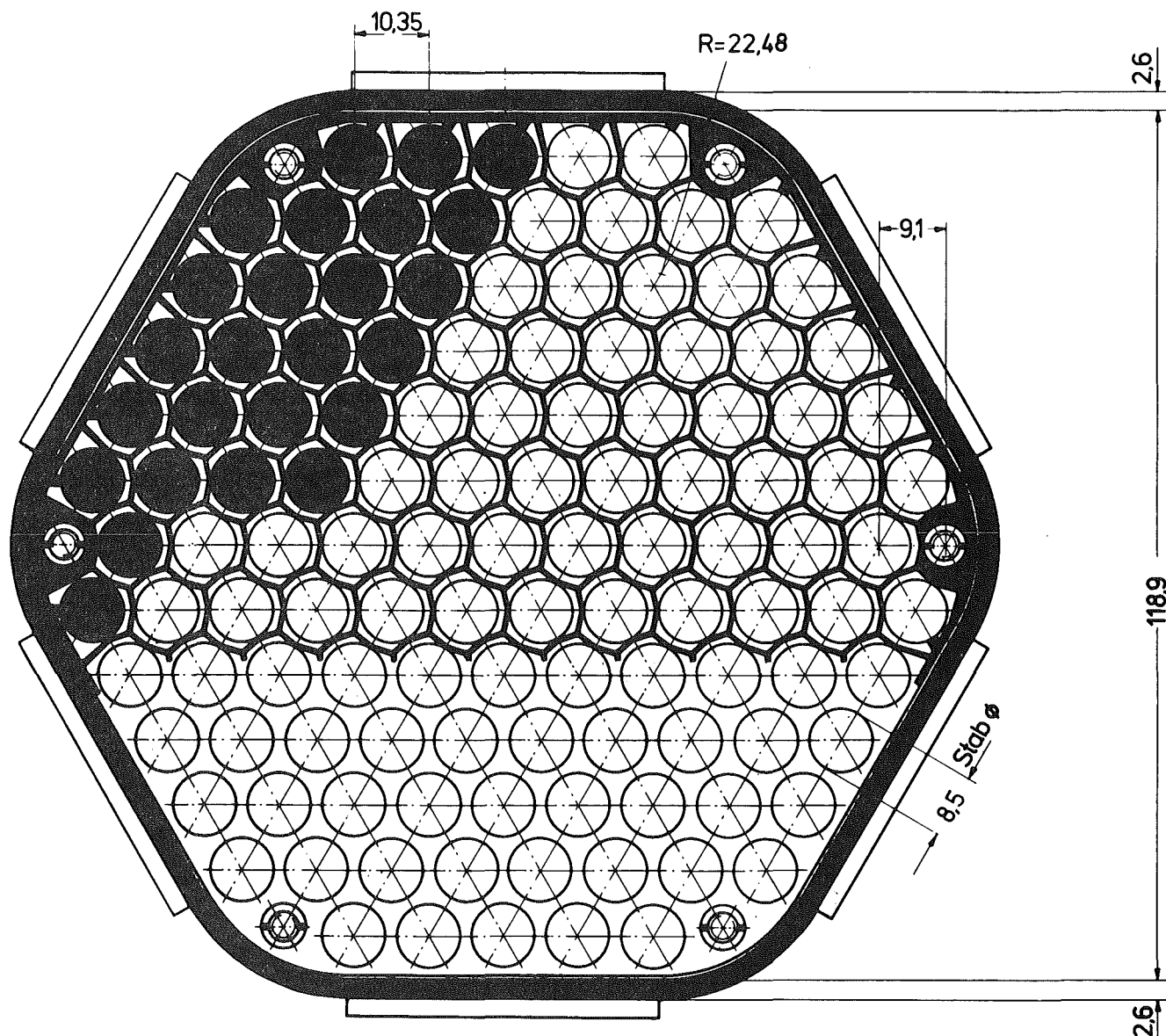


Bild:

Maßstabgerechte Darstellung des Karbidelement-Querschnitts

dierte wabenförmige Gitterabstandshalter vorgesehen, die thermohydraulische Vorteile bieten. Sieben dieser Abstandshalter bilden zusammen mit sechs Strukturstäben in den Eckpositionen das Bündelskelett. Seitlich hat das ganze Bündel im Sechskant-Hüllkasten etwas freies Spiel, das wegen der Maßtoleranzen, der unterschiedlichen thermischen Dehnungen und des Materialschwellens erforderlich ist.

Die Brennstoffsäulenlänge ist 600 mm. Die Brutstoffzonen sind unten 200 und oben 160 mm lang. Nach unten hin schließen sich 467 mm Spaltgasplenum an. Die Gesamtlänge der Brennstäbe ist etwa 1,54 m und des Karbidbrennelements mit Fuß- und Kopfteil etwa 2,25 m.

Die Lage der Abstandshalter auf den Strukturstäben wird durch kurze aufgeheftete Befestigungshülsen fixiert. Die langen Zwischenhülsen auf den Strukturstäben haben dadurch keine tragende Funktion. Sie dienen nur als Füllkörper in den wenig beheizten Eckkanälen. Es ist vorgesehen, einen Teil dieser Zwischenhülsen als Material-Bestrahlungsproben einzusetzen.

3. Bemerkungen zur Thermohydraulik

In der folgenden Tabelle werden einige Werte des KNK II-Karbidelements mit denen eines Oxidelements vom Typ Mark II verglichen, das die gleiche Anzahl von Brennstäben bei 7,6 mm Stabdurchmesser in einem SNR 300 Hüllrohrkasten aufweist.

		KNK II-Karbid Ø 8,5 mm	Oxid (Mk II) Ø 7,6 mm
Stablängenleistung max. nom.	[W/cm]	800	450
Staboberflächenleistung max. nom.	[W/cm ²]	300	188
Brennelement-Leistung	[MW]	4,15	2,5
Natriumdurchsatz / BE	[kg/s]	16,5	9
BE-Druckverlust	[bar]	1,49	1,30

Der Druckverlust des Karbid-Testelementes ist vergleichsweise hoch. Ein Grund dafür ist die Verwendung des normalen KNK II-Mischkopfes, dessen Druckverlustanteil bei dem großen Natriumdurchsatz des Karbidelementes ca. 0,45 bar beträgt. Durch eine günstigere Gestaltung - etwa wie für den SNR 300 - ließen sich ca. 0,2 bar einsparen. Der Druckverlust des Stabbündels allein entspricht jedoch mit ca. 0,83 bar ziemlich genau dem eines Oxidstabbündels mit 7,6 mm Stabdurchmesser im SNR 300-Hüllkasten.

Bei der detaillierten Durchrechnung der thermohydraulischen Verhältnisse stellen sich einige Besonderheiten des Karbidelementes dieser Bauart heraus. Der Einfluß der Randkanäle ist z. B. stärker als im Oxidelement; d. h. der größere Natriumdurchsatz durch die einzelnen Unterkanäle führt dazu, daß die azimuthalen Temperaturunterschiede bei den Rand- und Eckstäben größer ausfallen. Außer den Spannungen in den Brennstab-Hüllrohren werden damit und wegen der größeren Steifigkeit der Stäbe auch die Rückstellkräfte größer, die von den Abstandshaltern gegen die Verbiegung der Stäbe aufzubringen sind. Ungünstig - besonders bezüglich der Spannungen im Sechskant-Hüllkasten - wirkt sich auch der relativ steile radiale Flußgradient als starke Schiefplast aus, was wohl eine Besonderheit des KNK II-Cores ist.

KTG - Tagung 1976 - Karlsruhe

DIE WIEDERAUFARBEITUNG VON SCHNELLBRÜTER-BRENNELEMENTEN

W. Ochsenfeld, F. Baumgärtner, H. Schmieder
Kernforschungszentrum, Karlsruhe
Institut für Heiße Chemie

1960 begannen die Arbeiten zur Wiederaufarbeitung von Schnellbrüter-Brennstoffen im Institut für Heiße Chemie im Rahmen des Projektes Schneller Brüter in verschiedenen Richtungen. Wie in anderen Ländern wurden zu dieser Zeit auch neue Verfahren, wie Verflüchtigung und Salzschnmelzen untersucht. 1964/65 setzte sich in Karlsruhe die Überzeugung durch, daß nur das wäßrige Extraktionsverfahren für die Wiederaufarbeitung von SBR-Brennelementen Realisierungschancen hat. Für die nichtwäßrigen Verfahren bestanden zu geringe technische Erfolgsaussichten. Andererseits war es klar, und dies ist heute nicht anders, daß die LWR-Brennelemente in absehbarer Zukunft nach dem Purex-Verfahren durch Extraktion mit Tributylphosphat (TBP) aufgearbeitet werden. Dies führte 1965 zur Einstellung der Arbeiten an den anderen Verfahren in Karlsruhe.

Von 1967 bis 1973 verfolgten die Gesellschaft für Kernforschung (GfK) und die Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen (GWK) ein gemeinsames Entwicklungsprogramm Brennstoffaufarbeitung (EBA). Ziel dieser Zusammenarbeit war, durch gemeinsame Forschungs- und Entwicklungsarbeiten die Voraussetzungen zu schaffen, um Elemente des SNR-300 (9 t UO_2/PuO_2 pro Jahr) in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) mit einem weiterentwickelten Purex-Prozeß zu verarbeiten. Vorausgegangen war dem eine gemeinsame Studie der GfK-GWK (2) über die Adaptierbarkeit der WAK für die Aufarbeitung von SNR-Elementen. Die wichtigsten brüterrelevanten Teilvorhaben im Entwicklungsprogramm, die sich bis in Pilot-Maßstab erstreckten, waren BRAUSE (Brüter-Aufschluß-Stufe) das Head-end betreffend und PUDER (Plutonium-Durchsatz-Erhöhung) zur Lösung des erhöhten Plutonium-Durchsatzes. 1969 wurde eine Projektstudie für den Bau einer Head-End-Zelle an der WAK für SNR-Brennstoffe (BRAUSE) begonnen (3). Wegen der vordringlichen Arbeiten für die Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff wurde 1974 das Projekt Wiederaufarbeitung (PWA) gegründet und die Arbeiten für die Schnellbrüter-Brennstoffe reduziert bzw. zurückgestellt.

1. Unterschiede zwischen oxidischen SBR- und LWR-Elementen

Bei der Wiederaufarbeitung von Schnellbrüter Brennelementen stellt sich als erste Frage die Anwendbarkeit des PUREX-Prozesses. In chemischer Hinsicht sind die Unterschiede zwischen den oxidischen Brennelementen des Cores von SBR und fortgeschrittenen LWR-Elementen nicht grundsätzlicher (1), sondern nur gradueller Art. Der Abbrand des Cores ist um den Faktor von ca. 3, die Zerfallswärme um den Faktor 4 und der Plutoniumgehalt um den Faktor 20 höher als der von LWR-Brennelementen. Durch gleichzeitige Aufarbeitung von Core- und Blanketelementen können die Unterschiede verkleinert und die Wiederaufarbeitungsprobleme beider Brennstoffarten angenähert werden. Der Vergleich zwischen gemischtem Core-Blanket und LWR-Brennstoff zeigt (Tab. 1) einen wesentlichen Unterschied zwischen beiden nur noch im Plutoniumgehalt, und zwar um den Faktor 10.

Tab. 1 Vergleich von SBR und LWR-Brennstoffen

	SBR Core + axial Blanket + 1/2 radial Blanket	LWR	Faktor
Pu %	10	1	10
Abbrand % (Spaltprodukte %)	3,5	3-4	1
Thermische Lstg. (W/kg) nach 150 d. Kühlzeit	28	20	14

Die Entwicklungsaufgaben, die sich aus dem hohen Plutoniumgehalt der Schnellbrüter-Brennstoffe ergeben, sind im Folgenden zusammengefaßt:

1. Vollständige Auflösung des PuO₂-Anteils
2. Koextraktion des Pu mit U.
3. Pu/U-Trennung
4. Extraktive Pu-Reinigung, Konzentrierung des Pu
5. Oxidation des Pu (III)
6. Kritikalitätssicherheit

2. Den hohen Pu-Gehalt betreffende Entwicklungen

2.1 Brennstoffauflösung

Auflöseversuche an unbestrahlten, wärmebehandelten Mischoxiden und an bestrahlten Mischkristallen von UO_2/PuO_2 wurden durchgeführt. Bei unbehandelten Mischoxiden bleibt das PuO_2 auch in konzentrierter Salpetersäure unlöslich zurück. Bei einer Temperatur ab $1600\text{ }^{\circ}\text{C}$ bilden sich aus Mischoxiden bereits nach 4 Stunden lösliche Mischkristalle. Diese Mischkristalle sind in kochender Salpetersäure rückstandsfrei löslich (4). Auflöseversuche an 2,7 kg durch Kopräzipitation hergestellten UO_2/PuO_2 Brennstoffproben aus Dounreay mit 50 bzw. 61 MWd/kg Abbrand und 15% PuO_2 wurden in der Laboranlage MILLI (Abb. 2) 1973 durchgeführt. Der Brennstoff wurde in 8 molarer HNO_3 in 2 bis 3 Stunden vollständig gelöst. Der Rückstand von 0,3 bis 0,7% enthält im wesentlichen Spaltprodukte und Korrosionsprodukte in abnehmender Menge in der Reihenfolge Mo, Ru, Fe, Ni, Te, Rh, Pd, Sn, Zr. Die Rückstände enthielten 0,5 - 3,8% Pu und 0,5 - 20% U. Dies entspricht einem Anteil des gesamten Plutoniums und Urans im Brennstoff von nur 0,003 - 0,08%. Das Verhältnis Pu : U in der Lösung war während des ganzen Auflösevorgangs konstant, d.h. es fand keine bevorzugte Auflösung des leichter löslichen Urans statt.

Nach beendeter Auflösung wurden einzelne ausgelaugte Hüllenstücke auf Pu und Uran analysiert. In der Hülle wurde 0,02 bis 0,04% des Plutoniums bzw. des Urans des Brennstoffes gefunden (5).

2.2 Koextraktion von Pu/U

Die Extraktionsbedingungen von Pu neben Uran mußten zuerst ermittelt werden. Dazu wurden Verteilungskoeffizienten mit 20% und 30% TBP/⁺Alkan bestimmt und empirische Funktionen für deren Berechnung erstellt (6). Mit deren Hilfe ist die Gegenstromextraktion berechenbar. Weiterhin wurde die Kinetik des Transfers von Uran und Plutonium in und aus dem Extraktionsmittel, TBP mit n-Dodekan verdünnt, untersucht (7). Der Transfer von Pu (IV) in das Extraktionsmittel ist erheblich langsamer und aus TBP/Dodekan schneller als der von U (VI). Uran, im Überschuß vorhanden, verdrängt das Plutonium. Um eine vollständige Extraktion des Plutoniums zu erhalten, ist eine Sättigung des zur Extraktion benützten 30% TBP/Dodekan von 80% nicht zu überschreiten. Durch höhere Urankonzentrationen wird das Plutonium aus der organischen Phase in die wäßrige zurückgedrängt (8). Die Folge ist ein Anstieg der Plutoniumkonzentration im Extraktor, eventuell zu überkritischen Konzentrationen. Weiterhin können bei nicht ausreichender Stufenzahl

⁺Tributylphosphat

des Extraktors Plutoniumverluste im wäßrigen Abfall auftreten.

Eine möglichst hohe Sättigung des organischen Extraktionsmittels ist demgegenüber hauptsächlich aus zwei Gründen erwünscht. Die Dekontaminationsfaktoren für die Spaltprodukte werden besser. Weiterhin wird die Bildung von Niederschlägen von Spaltprodukten mit Zersetzungsprodukten des Extraktionsmittels TBP zurückgedrängt.

2.3 Pu/U-Trennung

Im konventionellen Purex-Verfahren wird die Trennung des Plutoniums von Uran durch Zugabe reduzierender Chemikalien (Fe(II), U(IV), H_2NOH) erreicht. Dabei ist ein 2-10-facher stöchiometrischer Überschuß an Reduktionsmittel erforderlich. Im Falle des U(IV) bedeutet dies bei einem 10% Pu-Gehalt des SBR-Brennstoffes eine Erhöhung der Uranmenge um 50%. Außerdem zeigte sich, was inzwischen weltweit bestätigt wird, daß die Reduktion mit U(IV) sehr empfindlich ist und es leicht zum Umkippen der Reaktion und zu unerwünschter Anhäufung von Plutonium im Extraktor kommen könnte.

Um diesen Schwierigkeiten aus dem Wege zu gehen, wurde im Institut für Heiße Chemie ein neues Verfahren zur Pu/U-Trennung mittels Elektrolyse (9) entwickelt.

Ein elektrolytischer Mischabsetzer, MILLI-EMMA (Abb. 3) und eine elektrolytische Extraktionskolonne wurden entwickelt und über lange Zeiten getestet. Das Gehäuse der MILLI-EMMA ist aus Reintitan und dient gleichzeitig als Kathode. In den Absetzkammern sind die Anodenzellen aus Isolatormaterial versenkt untergebracht. Wehre verhindern den Zufluß der organischen Lösung in den Anodenraum. Als Anode wurde platinisiertes Tantal verwendet.

Die erreichten Trennergebnisse (10) liegen über den mit chemischen Reduktionsmitteln erzielbaren Werten (Tab. 2). Der Vorteil der Methode ist evident. In jeder Stufe des Extraktors ist der Strom für die Reduktion regelbar, dadurch können Instabilitäten im System vermieden werden, die zu hohen lokalen Plutoniumkonzentrationen und schlechten Trennfaktoren führen können. In SBR-Brennstoffproben aus Dounreay wurde das Pu nach diesem Verfahren in der Versuchsanlage MILLI erfolgreich getrennt. Auch für die Pu/U-Trennung bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennelementen halten wir dieses Verfahren heute für das günstigste.

Eine elektrolytische Extraktionskolonne mit 200 kg Uran Tagesdurchsatz ist mit Uran erfolgreich getestet worden (Abb. 4). Als Kathode dienen

Siebbleche und die zusätzlich radial angeordneten zylindrischen Flächen aus Titan. Den Anodenraum bildet ein konzentrisch eingesetztes Rohr aus Isoliermaterial. Als Anode wird platinisiertes Tantal-Maschengeflecht verwendet. Über Bohrungen im Zentralrohr im Bereich der Anoden wird die elektrische Verbindung hergestellt.

2.4 Extraktive Pu-Reinigung und -Konzentrierung im 2. und 3. Zyklus

Die elektrolytische Reduktion des Plutoniums kann auch mit guten Erfolgsaussichten im 2. und 3. Plutonium-Reinigungszyklus angewendet werden. Reduktions-Chemikalien werden bisher in diesen Zyklen verwendet, um höhere Plutoniumkonzentrationen der Produkte zu erreichen.

Die Elektrolyse bei der Plutonium-Rückextraktion vermeidet eine nochmalige Verunreinigung der Produkte durch Reduktionsschemikalien und liefert Produkte mit 2- bis 3-facher Plutoniumkonzentration. Die Prozeßvolumina werden vermindert, Plutoniumverdampfer zwischen den Zyklen - die nicht problemlos sind - können erspart werden. Plutoniumverluste durch das Radialyseprodukt des TBP, Dibutylphosphat, können reduziert werden. Ein Schema der Reduktion in einem Mischabsetzer und die erreichten experimentellen Ergebnisse wie Produktkonzentrationen, Pu-Verluste, Stromausbeuten (11) zeigt Tab. 3.

2.5 Die elektrolytische Pu(III)-Oxidation

Nach jeder reduktiven Pu-Trennung oder Rückextraktion muß das Pu(III) zum extrahierbaren Pu(IV) oxidiert werden. Vorher muß das Hydrazin, das zur Verhinderung der unerwünschten Pu(III)-Oxidation bei der Reduktion zugegeben wird, zerstört werden. Konventionell geschieht die Zerstörung und Oxidation mit Nitrit, NO_2 oder N_2O_4 . Günstiger erscheint die elektrolytische Oxidation, die mit Erfolg bei uns durchgeführt wird (12). Ein Schema einer Oxidations-Zelle für kleine Durchsätze zeigt Abb. 5.

Im unteren Teil der Zelle mit geringeren Elektrodenflächen und kurzen Verweilzeiten wird das Hydrazin zu Stickstoff zersetzt. Die Pu(III)-Oxidation verläuft deutlich langsamer und erfolgt vornehmlich im oberen Teil der Zelle. Als Anodenmaterial werden platinisierte Tantalbleche, als Kathodenmaterial die Behälterwand aus Titan, verwendet.

2.6 Kritikalitätssicherheit

Infolge der hohen Pu-Konzentration der SBR-Brennstoffe wird das Kritikalitätsrisiko bei der Auslegung einer Anlage eine entscheidende Rolle spielen. Unsere Aktivitäten gingen in drei Richtungen:

1. Auslegung und Test von konzentrations sichereren Fließschematas. Da es sich um "verdünnte" Lösungen handelt, werden dabei die Volumendurchsätze groß.
2. Verhalten des gelösten homogenen Neutronenabsorbers Gadolinium bei der Extraktion.
3. Einführung des Hafniums als heterogenes Neutronengift (13). Die Korrosionsbeständigkeit von Hafnium in salpetersauren Lösungen ist groß. Die Verarbeitungstechnologie für Hf ist bekannt. Hf ist auf dem Markt in großen Mengen verfügbar.

3. Den hohen Abbrand betreffende Entwicklungen

Die entscheidende Frage zur Anwendbarkeit des Purex-Verfahrens betraf die Auswirkungen der Radiolyse des Extraktionsmittels im ersten, hochaktiven Zyklus. Schon bei der Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff mit etwa 18000 MWd/t Abbrand war es in der WAK zu Bildung von schlammigen Niederschlägen (Crud) gekommen. Für die Aufarbeitung der höher abgebrannten Brennstoffe stellte sich daher die Aufgabe, den Purex-Prozeß so zu optimieren, daß keine derartigen Betriebsstörungen eintreten.

Wir wollen hier nur auf zwei wesentliche Entwicklungsaufgaben, die sich aus dem hohen Abbrand ergeben, eingehen.

3.1 Überwindung der Extraktionsstörung durch Radiolyse

Für Versuche mit hochabgebrannten Schnellbrüter-Brennstoffen wurde nach der Entscheidung für den Purex-Prozeß 1965 die Laboranlage MILLI mit einem Tagesdurchsatz von 1 kg/d errichtet (Abb. 2). Sie ist seit 1971 in hochaktivem Betrieb. In ihr wurden Erfahrungen für die Wiederaufarbeitung hochabgebrannter Brennelemente an SBR-Bestrahlungsproben aus Dounreay sowie LWR-Brennstoffen (max. 37 MWd/kg) von KWO gewonnen.

Versuche mit dem Brennstoff aus Dounreay (Abb. 1) wurden bei zwei verschiedenen Bedingungen durchgeführt, und dabei wurde gefunden (5, 14), daß

1. bei sehr niedriger Uran-Plutonium-Beladung des 30% TBP/Alkan (52 g/l entsprechend 40% Sättigung des TBP) es zu Niederschlagsbildung kam, die nach 30 Stunden zu Verstopfungen und Unterbrechung des Versuchs führte, und

2. bei hoher Uran-Plutonium-Beladung der organischen Phase im 1. Extraktor (HA) (110 g U+Pu/l, entsprechend ca. 85% Sättigung des TBP) und 3 bis 4 molarer HNO_3 in der wäßrigen Phase der Versuch ohne Störungen zu Ende geführt werden konnte.

Die wichtigsten Aussagen, die in der Anlage für Schnellbrüter-Brennstoffe in dem ersten hochaktiven Extraktionszyklus gewonnen wurden, sind:

- Das Purex-Verfahren ist für die Wiederaufarbeitung hochaktiver Brennstoffe nach Adaption anwendbar.
- Die Bildung von Niederschlägen kann durch chemische Maßnahmen zurückgedrängt werden, nämlich durch eine Erhöhung der Uranbeladung des TBP bei gleichzeitiger Anhebung der HNO_3 -Konzentration auf 3-4 molar im HA-Extraktor.
- Die Plutoniumverluste können dabei niedrig gehalten werden.
- Die Dekontaminationsfaktoren für Spaltprodukte sind bei der hohen Beladung des TBP sehr gut.

Für die Routineanwendung in einer großtechnischen Wiederaufbereitungsanlage erscheint eine Beladung von 85% des TBP zu hoch, weil Schwankungen der Flüsse oder der Speiselösung zu Instabilitäten führen kann und ein hoher Kontrollaufwand erforderlich wäre. Deshalb wurde in späteren Milli-Kampagnen mit LWR-Brennstoffen von hohem Abbrand (bis zu 37 000 MWd/t) und kurzer Kühlzeit (bis herab zu 240 Tagen) wiederholt ein Fließschema getestet, bei dem im HA-Extraktor 75% U+Pu-Beladung des TBP und eine HNO_3 -Konzentration von 3 bis 4 Mol/l aufrechterhalten wurden. Diese Bedingungen sind auch für den Routinebetrieb im kommerziellen Maßstab ohne besonderen Aufwand einhaltbar.

Die Milli-Kampagnen wurden bei einer Dauer von bis zu 10 Tagen gleichfalls ohne Betriebsstörung, bei sehr guten Dekontaminationsfaktoren (DF, γ -gesamt = 10^4) und niedrigen Verlusten im wässrigen Abfall-HAW (0,1% Pu) mit LWR-Brennstoffen durchgeführt und haben die Brauchbarkeit dieses Fließschemas bestätigt.

3.2 Verminderung der Radiolyse durch kurze Kontaktzeiten

Der erhöhten Radiolyse bei der SBR-Aufarbeitung kann durch Verkürzen der Kontaktzeit bei der Extraktion entgegengewirkt werden.

Ein Zentrifugalextraktor mit 12,5 cm \varnothing wurde konstruiert und in einer hintereinandergeschalteten 12-stufigen Anordnung in inaktivem Dauerbetrieb er-

probt. Ein maximaler Gesamtdurchsatz von 650 l/h wurde erreicht (15). Das entspricht einem Brennstoffdurchsatz von 1 t/d.

Die Vorteile der Zentrifugalextraktoren sind in Tab. 4 zusammengefaßt.

Tab. 4: Vorteile der Zentrifugalextraktoren

1. Chemische und fluiddynamische Vorteile

- a) Kontaktzeiten gering (proport. Radiolyse)

Mischabsetzer: Pulskolonne: Zentrifugalextr.

25:10:1

- b) Stoffübergangsoberfläche groß (Tropfendurchmesser $\sim 10\mu$)

- c) Rückvermischung keine

- d) Fehlphasenanteil gering

- e) Stufenwirksamkeit prakt. 100%

2. Betriebliche Vorteile

- a) Apparatvolumen klein, Durchsatz groß

- b) An- und Abfahren der Anlage schnell

- c) Geometrische Kritikalitätssicherheit bei hohem Durchsatz.
-

Abschließen möchten wir mit der Feststellung, daß die Arbeiten zur Aufarbeitung von Schnellbrüter-Brennstoffen im Institut für Heiße Chemie die Grundlage für den schnellen Start der Arbeiten für LWR-Brennstoffe waren. Die Arbeiten für die Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoffen im Rahmen des Projektes Wiederaufarbeitung (PWA) bringen viele nützliche Ergebnisse und Entwicklungen für die später wieder einsetzenden Arbeiten zur Wiederaufarbeitung von Schnellbrüter-Brennelementen. Die Arbeiten für SBR-Brennstoffe müßten sich aus derzeitiger Sicht auf folgende Themen konzentrieren:

1. Transport und Zerlegen der Brennelemente.
2. Lösbarkeit von bestrahlten mechanisch gemischten PuO_2/UO_2 Brennstoffen in Salpetersäure. Untersuchung der unlöslichen Rückstände.
3. Auflöser und Klärzentrifuge im industriellen Maßstab.
4. Störungen der Extraktion (Niederschlagsbildung, Pu-Verluste) infolge des hohen Abbrandes, der Pu-Konzentration und der Dauer der Kühlzeit.
5. Minimalisierung der Abfallmengen durch elektrolytische, salzfreie Methoden.
6. Rezyklierbarkeit von Lösungen im Aufarbeitungsprozess.

7. Weiterentwicklung der Extraktionsapparate von Kolonnen und Zentrifugal-exraktoren.
8. Kritikalitätskonzept einer Anlage.
9. Störfallbetrachtungen.

Literatur:

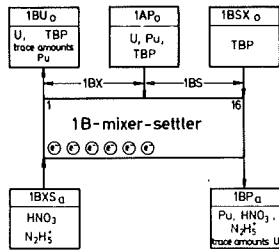
- 1.) Ochsenfeld W., Brennelemente für LWR, HTR, SNR, GSB
KTG-Tagung Jülich 12-13 Nov. 1974,
S. 281 - 293.
- 2.) Hoffmann, W., Diefenbacher W.,
KFK-Bericht Ext. 9/67-1 (1967)
- 3.) Boecker, H.J. (1970) unveröffentlicht
- 4.) Bähr W., Dippel Th.,
KFK-Bericht, 673, EUR 3704 d (1967)
- 5.) Ochsenfeld W., Baumgärtner F., Bleyl H.J., Ertel D.,
Koch G., Warnecke E.,
KFK-Bericht, 2396 (1976)
- 6.) Ochsenfeld W., Baumgärtel G., Schmieder H.,
Solvent Extraction Research, Edit. by
A.S. Kertes and Y. Marcus, Wiley & Sons,
Inc., 1969, 373-381.
- 7.) Baumgärtner F., Finsterwalder L.,
Journal of Physical Chemistry, 74, 1
(1970) 108
- 8.) Ochsenfeld W., Schmieder H., Theiss St.,
KFK-Bericht 911, EUR 4167 d (1970)

- 9.) Baumgärtner F., Schwind E., Schlosser P.,
Deutsches Patent Nr. OS 1905519
(6.8.1970)
- 10.) Schmieder H., Baumgärtner F., Goldacker H.,
Hausberger H.,
KFK-Bericht 2082 (1974)
- 11.) Schmieder H., Baumgärtner F., Goldacker H.,
Hausberger H., Warnecke E.
Internat. Sofr.Extraction Conf.,
Lyon, 1974, Proc. Vol. 3,
S. 1997-2018)
- 12.) Baumgärtner F., Schmieder H., Goldacker H.,
Warnecke,
Reaktortagung Mannheim 1977
- 13.) Warnecke E., Comper W., Pöttschke M.,
Reaktortagung Düsseldorf, 1976
Tagungsberichte / S. 506-509
- 14.) Ochsenfeld W. et al.
PSB-Vierteljahresberichte:
KFK-Bericht 1273/4 (1973)
1274/1 (1974)
1274/2 (1974)
- 15.) Roth B.,
KFK-Bericht 862 (1968)

Tab.2: Typical results of U/Pu-separations in a 16-stage electrolytic countercurrent mixer-settler

Experiment no.	TBP [wt %]	Flow [km ² /h]	Feed 1AP ₀		1BXS _a		U-product 1BU ₀		Pu-product 1BP _a		total current [A]	current efficiency [%]*	U- [IV] in settling-chamber No.1 [g/l]†		
			U [g/l]	.Pu [g/l]	HNO ₃ [M/l]	1AP ₀ 1BXS _a [g/l]	U [g/l]	Pu [g/l]	DF _{Pu}	Pu [g/l]				U [g/l]	DF _U
7	20	750	68	3,77	0,5	6	49	0,0005 -0,001	2000- 5000	19	<0,13	2800	1,68	19	3,9
11	20	750	49,1	4,99	0,4	5	41	0,0013 -0,0025	1700- 3200	~21	<0,13	1900	2,08	20	3,5
30	30	750	73,7	0,46	0,20	7,1	61	0,0004 -0,0009	430- 480	~3	~1,5	1000	0,54	7	10,5
33	30	375	79,5	0,57	0,20	7,5	69	0,0002 -0,0003	1600- 2400	3,7	~1,5	800	0,49	5	16,6

* the current efficiency is only referred to Plutonium

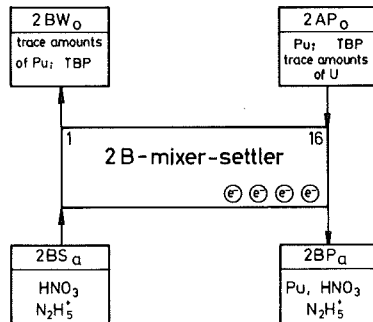


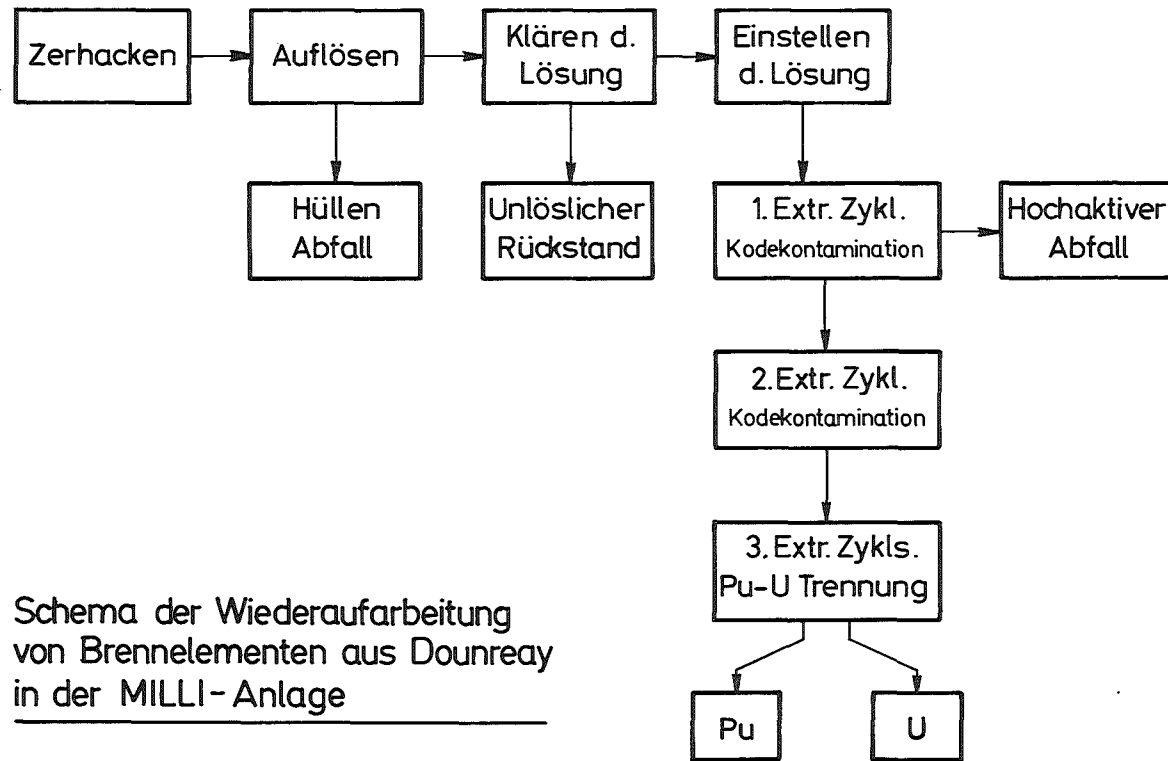
Reductive Pu-reextraction in a 16 stage electrolytic countercurrent mixer-settler

Tab.3

Experiment no.	2BP _a			2AP ₀	2BW ₀			HDBP [mg/l]	total current [A]	current efficiency [%]*
	Pu [g/l]	U [g/l]	HNO ₃ [M/l]	2BP _a	Pu [g/l]	Pu-loss [%]	U [g/l]			
18	10	0,3	0,5	1	0,00075	0,0015	1,5	80	0,73	31
28	12,5	<0,1	0,4	1	0,33	0,25	<0,1	170	1,2	20
37	48	0,6	0,6	3,5	0,003	0,02	2,9	70	1,2	22
38	40	1,3	0,5	2,5	0,0008	0,005	2,5	400	0,84	43

* the current efficiency is related to Plutonium only





Schema der Wiederaufarbeitung von Brennelementen aus Dounreay in der MILLI-Anlage

Abb. 1

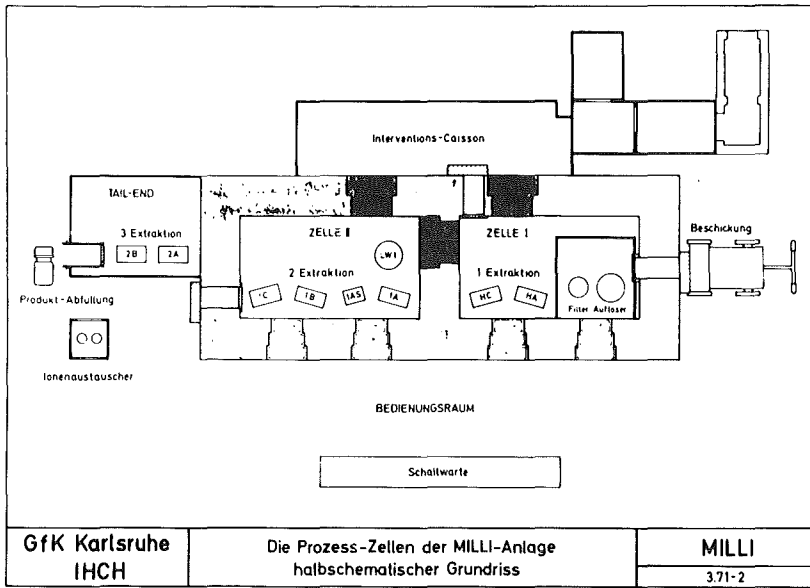
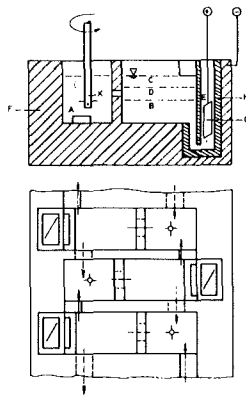
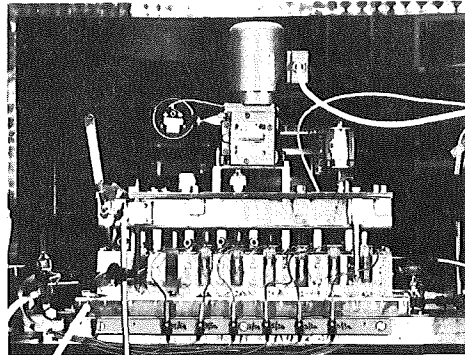


Abb. 2



Mixer-Settler in MILLI-Scale

- | | |
|-------------------|-----------------|
| A = Mixer Chamber | E = Anodic Cell |
| B = Aq Phase | F = Ti-Casing |
| C = Org Phase | G = Anode |
| D = Interface | H = Insulator |
| --- Aq Phase | K = Stirrer |
| --- Org Phase | |

Abb. 3

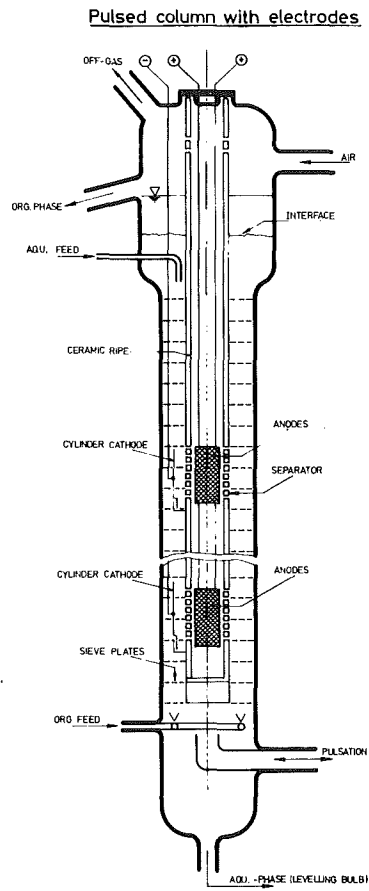
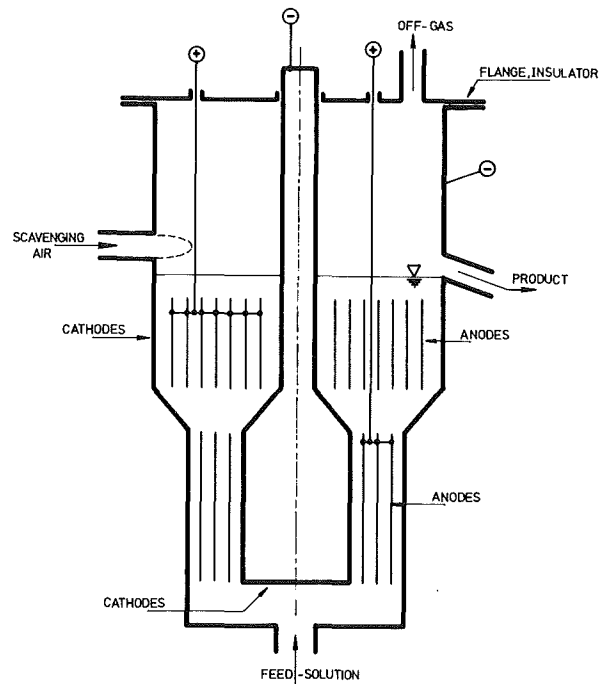


Abb. 4



Schematic view of the oxidation cell

Abb. 5