

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

April 1977

KFK 2451

Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Schneller Brüter

**Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung
der Na-gebundenen (U, Pu)C-Brennstäbe der
Versuchsgruppe Mol 15**

H. Steiner, D. Freund, O. Jacobi, P. Weimar



**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 2451

Institut für Material- und Festkörperforschung

Projekt Schneller Brüter

Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der Na-gebundenen
(U,Pu)C-Brennstäbe der Versuchsgruppe Mol 15

H. Steiner

D. Freund

O. Jacobi

P. Weimar

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

K u r z f a s s u n g

Im Rahmen des Karbid-Bestrahlungsprogramms des Projektes Schneller Brüter wird auch das Na-Bindungskonzept in einer Reihe von Bestrahlungsexperimenten erprobt. Neben den Bündelexperimenten im DFR (DFR 330/1 und 3) sind dies die Kapselbestrahlungen im FR2 (Vg 6E) und BR2 (Mol 15). Das Experiment Mol 15 umfaßte 4 Kurzprüflinge, die in einer Kupferkreuzkapsel im thermischen Fluß des BR2 bestrahlt wurden. Während der Pu-Anteil (25 %) in allen 4 Prüflingen derselbe war, wurde der M_2C_3 -Gehalt unterschiedlich spezifiziert. Hinsichtlich Brennstoffschwellen und Aufkarburierung der Hülle konnte kein signifikanter Einfluß des M_2C_3 -Gehalts festgestellt werden.

Bei Stableistungen von maximal 1150 W/cm und Hülltemperaturen von maximal 500°C wurden Abbrände von knapp 9 % FIMA erreicht, ohne daß es zu Stabdefekten kam. Die Hüllverformungen blieben dabei ausgesprochen klein (0,3 % max.). Das Hüllmaterial war aus dem Werkstoff 1.4970.

Die Brennstoffstruktur ist gekennzeichnet durch eine hochporöse Zone im Innern, an die sich eine schmale hochdichte Zone anschließt. Bei drei Prüflingen wurden Andeutungen eines Zentralkanals gefunden. Zusammen mit der anomalen Größe der Blasen deutet dies auf eine Überhitzung des Brennstoffs nach Ausfall der Na-Bindung im Laufe der Bestrahlung hin.

A b s t r a c t

Layout, design and post irradiation examination of Na-bonded fuel pins of the test group Mol 15

Under the carbide irradiation program performed within the Fast Breeder Project also the sodium bonding concept is being tested in a number of irradiation experiments. They include the capsule irradiations in FR2 (Vg 6E) and BR2 (Mol 15) in addition to the bundle experiments carried out in DFR (DFR 330/1 and 3).

In the Mol 15 experiment four short samples had been placed in a copper cross capsule and irradiated in the thermal flux of BR2. The Pu-fractions (25 %) were identical for all four specimens, but the M_2C_3 -contents were different according to the specifications. No significant influence of the M_2C_3 -content was observed on fuel swelling and carburization of the cladding.

With rod powers of max. 1150 W/cm and cladding temperatures of max. 500°C burnups of nearly 9 % fima were obtained which did not entail rod defects. The deformations of claddings remained especially small (0,3 % at the maximum). The cladding was made of the material 1.4970.

The fuel structure is characterized by a high porosity zone in the interior followed by a narrow high density zone. On three specimens indications were found of a central void. This and the anomalous size of the bubbles suggest fuel superheating after partial blanketing of the sodium bonding in the course of irradiation.

<u>Inhalt:</u>	<u>Seite:</u>
1. Einleitung	1
2. Aufgabe und Ziel des Experiments	3
3. Auslegung	3
3.1 Auslegungsdaten	3
3.2 Thermische Auslegung	5
3.3 Mechanische Auslegung	6
4. Spezifikationen	7
4.1 Brennstoff	7
4.2 Hülle	8
4.3 Brennstab	9
5. Herstellung	10
5.1 Brennstoff-Typ M_2C_3	10
5.2 Brennstoff-Typ MC	12
5.3 Hüllrohre, Endstopfen und Strukturteile	13
5.4 Zusammenbau	14
5.5 Natriumbindung und deren Prüfung	14
5.6 Abnahme	16
6. Bestrahlungseinrichtung	16
7. Ablauf der Bestrahlung	17
7.1 Reaktorzyklen und Neutronenfluß	17
7.2 Temperatur und Stableistung	17
7.3 Thermische Abbrandberechnung	19
8. Zerstörungsfreie Nachuntersuchung	22
8.1 Äußere Vermessung	22
8.2 Durchleuchtung	23
8.3 Gamma-Profile und -Spektren	23

<u>Inhalt</u>	<u>Seite</u>
9. Zerstörende Nachuntersuchung	24
9.1 Spaltgasbestimmung	24
9.2 Keramografie	27
9.3 Radiochemische Abbrandbestimmung	29
10. Diskussion über das Brennstoffschwellen, die Porenmorphologie und die Pu-Umverteilung	30
11. Zusammenfassung und Schlußfolgerung	37
Literatur	39
Nomenklatur	42
Anhang I Abb. u. Diagramme 1 - 32	
Anhang II Dokumentation der zerstörungsfreien und zerstörenden Nachuntersuchung	

1. Einleitung

Die Untersuchung des Verhaltens unterschiedlicher Brennstabkonzepte unter Bestrahlung bis zu hohen Abbränden ist Aufgabe des Karbidbestrahlungsprogrammes des Projektes Schneller Brüter /1/. Die verschiedenen Bestrahlungsexperimente sollen Aussagen zum Schwellverhalten des Brennstoffs, zur Spaltgasfreisetzung sowie zum Verhalten der He- und Na-Bindung liefern.

Das Experiment Mol 15 beinhaltet die Bestrahlung von 4 Brennstabprüflingen mit UC/PuC-Brennstoff verschiedener M_2C_3 -Anteile unter Na-Bindung. Um das Entwicklungspotential von Brennstoffvarianten untereinander beurteilen zu können, bedarf es vergleichbarer Bestrahlungsergebnisse, die optimal in sogenannten "integrierten" Experimenten realisiert werden können: In einer Bestrahlungskapsel werden 4 Kurzstäbe unter praktisch gleichen Bestrahlungsbedingungen getestet. Um hohe Abbrände in einem vergleichsweise kurzen Zeitraum zu erreichen, werden Brennstäbe mit einem kleinen Brennstabdurchmesser von 5,6 mm eingesetzt. In dem vorliegenden Bericht wird eine detaillierte Beschreibung dieses Experiments gegeben. Neben einer Darstellung der Auslegung und Spezifikation wird die Herstellung der Prüflinge, der Bestrahlungsablauf sowie die zerstörungsfreie und zerstörende Nachuntersuchung dokumentiert. Zum Schluß wird das Brennstoffschwellen, die aufgetretene Brennstoffstruktur und die Pu-Umverteilung im Vergleich mit bisherigen Bestrahlungserfahrungen diskutiert.

Diese Zusammenstellung basiert auf einer Vielzahl von internen Notizen und Mitteilungen.

In der folgenden Übersicht sind der Zeitablauf des Experiments und die für die einzelnen Schritte verantwortlichen Stellen und Personen angegeben.

Zeitraum	Teilarbeit	Institution/Hauptbeiteiligter
1972	Vorüberlegung	IAR / Gerken
1972/73	Auslegung und Spezifikation	IMF / Freund PSB / Mühling
1972/74	Beschaffung der Bestrahlungseinrichtung und technische Betreuung	IMF / Heckert
1972/73	Herstellung Brennstoff Brennstab	Alkem AERE / Harwell IMF / Jacobi
1973/74	Organisation der Bestrahlung und Betreuung	IMF / Freund
1973/74	Bestrahlung im BR2	AG Mol / Van den Boorn
1974/75	Organisation der Nachuntersuchung und Betreuung	IMF / Weimar
1974/75	Zerstörungsfreie Nachuntersuchung	RB/Z / Scheeder, Enderlein
1975	Spaltgasuntersuchung	RB/Z / Schweigel
1975	Keramografie	RB/Z / Pejsa
1975/76	Abbrandbestimmung	IRCh / Wertebach
1976	Modelltheoretische Untersuchung	IMF / Steiner
1975/76	Zusammenfassung und Dokumentation	IMF / Weimar, Steiner Jacobi, Freund Bauer

2. Aufgabe und Ziel des Experiments

Die Bestrahlung von Brennstabprüflingen mit Mischkarbid-Brennstoffen verschiedener M_2C_3 -Anteile unter der Bezeichnung Mol 15 soll Aussagen über das Schwellverhalten dieser Brennstoffvarianten liefern. Weiterhin soll die Bestrahlung Probleme der Verträglichkeit zwischen dem Mischkarbid und der Edelstahlhülle bei Natrium-Bindung aufdecken /2/.

In einer Kupferkreuz-Kapsel (s.Kap.6) sollen 4 Kurzstäbe übereinander angeordnet bis zu Abbränden von ca. 80 MWd/kgM unter somit nahezu identischen Bedingungen bestrahlt werden. Die zwei Brennstoffvarianten sind Mischkarbid mit jeweils 10 bzw. 80 % M_2C_3 . Die Bestrahlung soll im thermischen Fluß durchgeführt werden, womit bei einem Pu-Anteil von 25 % und Natururan nur Pu-Spaltungen vorkommen.

Das Ziel dieses Experiments liegt in der Beantwortung der folgenden Fragen:

- Welche geometrischen Veränderungen erleiden die Brennstäbe?
- Welche Rückschlüsse lassen sich auf die freien und eventuell behinderten (d.h. bei mechanischer Wechselwirkung mit der Hülle) Schwellraten der verschiedenen Brennstoffe machen?
- Welche Strukturänderungen erleiden die Brennstoffe?
- Zeigen die Brennstoffvarianten unterschiedliches Spaltproduktverhalten (Spaltgasfreisetzung, Spaltproduktentmischung)?
- Wird die Hülle durch chemische Angriffe beansprucht und ist hier ein Einfluß der Na-Bindung erkenntlich?

3. Auslegung

3.1 Auslegungsdaten

Die zum Einsatz kommenden (U,Pu)C-Brennstofftabletten sind durch die für die Auslegungsrechnungen benötigten Daten folgendermaßen bestimmt:

- | | |
|------------------------|--|
| - Pu-Anteil Pu/U+Pu | 25 % Gew. % |
| - U-235-Anreicherung | U_{nat} |
| - theoret. Dichte | 13,63 g/cm ³ für (U,Pu)C mit 10 % M_2C_3
12,82 g/cm ³ für (U,Pu)C mit 80 % M_2C_3 |
| - Tablettendichte | 93 % theoret. Dichte für beide Varianten |
| - Tablettendurchmesser | 4,47 mm für (U,Pu)C mit 10 % M_2C_3
4,64 mm für (U,Pu)C mit 80 % M_2C_3 . |

Zum Zeitpunkt der Vorüberlegungen zu diesem Experiment wurden für den MC-Brennstoff freie Schwellraten von etwa 3,3 v/o/% A, für den M_2C_3 -Brennstoff solche von 2,4 v/o/% A zugrundegelegt, so daß für den angestrebten Abbrand von ca. 8 % Schmierdichten von 74 % TD für den MC-Brennstoff und 80 % für den M_2C_3 -Brennstoff gefordert wurden.

Die Hülle besteht aus austenitischem Edelstahl der Werkstoff Nr. 1.4988 mit folgenden Abmessungen:

- Außendurchmesser 5,6 mm
- Wandstärke 0,3 mm.

Am oberen und unteren Ende der Brennstoffsäule wird eine Rh-Scheibe zur Abschirmung des axialen Flußanteils angebracht.

Die Brennstäbe besitzen folgende Längeneinteilung (Abb. 1):

- oberer Endstopfen 11 mm
- Spaltgasraum 24 mm
- Rh-Scheibe mit Führungsstück 3 mm
- Brennstoffsäule 40 mm
- Rh-Scheibe 1 mm
- unterer Endstopfen 14 mm

- Gesamtlänge 93 mm

Die Radialspalte zwischen Brennstoff und Hülle betragen 265 μm (MC) bzw. 180 μm (M_2C_3).

Die Bestrahlung findet im thermischen Fluß statt. Die Nominalstabelleistung wird auf 1050 W/cm festgelegt. Bei der verwendeten Kupferkreuz-Bestrahlungskapsel vom Typ Mol 13 /3, 4/ sind bei diesen Stableistungen Hülloberflächentemperaturen von etwa 470°C zu erwarten. Die Kapselcharakteristik bezüglich der Abhängigkeit zwischen Hülloberflächentemperatur und Stableistung ist in Kap. 6 aufgeführt. Bei der Stableistung von 1050 W/cm beträgt die Bestrahlungsdauer bis zu einem Abbrand von 80 MWd/kgM etwa 3600 h Vollastbetrieb.

3.2 Thermische Auslegung

Das Experiment Mol 15 fand im thermischen Fluß statt. Mit Hilfe des Rechenprogramms MERKUR /5/ wurde die Flußabsenkung für eine repräsentative Stableistung von $\chi = 900$ W/cm berechnet (siehe Abb. 2). In guter Näherung läßt sich also die Wärmequellendichteverteilung folgendermaßen ansetzen:

$$S = S_0 + S_1 \cdot r^2 \quad (1)$$

Der Temperaturabfall im Brennstoff berechnet sich nach:

$$\int_{T(r_i)}^{T(r_a)} \lambda_f dT = - \int_0^{r_a} \frac{1}{r'} \int_0^{r'} r'' S(r'') dr'' dr' \quad (2)$$

Gleichung (1) in (2) eingesetzt, führt zu:

$$\bar{\lambda}_f \cdot \Delta T = \frac{\chi}{4\pi} \cdot \frac{1}{2} \frac{3\phi(r_i) + \phi(r_a)}{\phi(r_i) + \phi(r_a)} = f \cdot \frac{\chi}{4\pi}$$

Die Temperatursprünge in der Hülle und im Natriumspalt berechnen sich nach:

$$\Delta T_H = \frac{\chi}{2\pi\lambda_H} \cdot \ln \frac{r_{Ha}}{r_{Hi}}$$

und

$$\Delta T_{Na} = \frac{\chi}{2\pi\lambda_{Na}} \cdot \ln \frac{r_{Hi}}{r_a}$$

Aufgrund der guten Wärmeleitfähigkeit des Natriums ist der Temperatursprung im Spalt sehr klein, er liegt in der Gegend von 10 - 40 °C.

In Abb. 3 sind die für die thermische Auslegung relevanten Temperaturen im Brennstab als Funktion der linearen Stableistung χ aufgetragen. Die Funktion $T_{Ha}(\chi)$ ist dabei durch den Kapselaufbau festgelegt. Die Werte wurden aus /4/ übernommen. Die Temperaturen im Brennstoff bleiben niedrig; der Schmelzpunkt des Brennstoffs wird auch bei hohen Stableistungen nicht annähernd erreicht. Die im Laufe des Abbrands erfolgende Verkleinerung des Spalts zwischen Hülle und Brennstoff aufgrund von Schwellen des letzteren führt zu einer leichten Absenkung der Brennstofftemperaturen.

Dies alles gilt unter der Voraussetzung, daß die Na-Bindung intakt bleibt. Durch ein Ansammeln von Spaltgasen an überstehenden Kanten von Brennstofftabletten kann es zu einem teilweisen Verlust der Na-Bindung kommen, was zu einer starken Temperaturerhöhung im Brennstoff führt. Mit den vorliegenden Rechenprogrammen ist es allerdings nicht möglich, diesen Effekt zu berechnen.

3.3 Mechanische Auslegung

In Abb.4 sind die nach SATURN 1k gerechneten radialen Verteilungen der Hüllspannungen bei Vollast (1050 W/cm) aufgetragen. Aufgrund des relativ großen Temperaturabfalls von ca. 95 °C in der Hülle werden an den Rändern Werte von ca. 22 - 23 kp/mm² erreicht, womit man also in den Bereich der Streckgrenze kommt. Die Überschreitung der Streckgrenze in einem engen Bereich an der Außenwand ist unbedenklich /6/. Bei Abschalten des Wärmestroms tritt allerdings die plastisch abgebaute Spannung mit umgekehrtem Vorzeichen wieder auf. Bei einer geringen Zahl thermischer Zyklen (ca. 10) dürfte es aber noch nicht zum Ermüdungsbruch kommen.

Aufgrund des niedrigen Temperaturniveaus im Brennstoff, ist das Schwellen des Brennstoffs durch Bildung von Spaltgasblasen bis zu einem gewissen kritischen Abbrand hin unbedeutend, so daß die gesamte Schwellrate klein bleibt. Man erwartet Schwellraten von ca. 1,4 - 2,0 %/10MWd/kg Me /7/. Welche physikalischen Mechanismen für die Bildung und das Wachstum der Spaltgasblasen letztlich verantwortlich sind, ist im Moment noch ungeklärt.

Bei einer Nominalleistung von 1050 W/cm liegt die mittlere Temperatur im Brennstoff bei ca. 800°C. Nach /8/ sollte also der kritische Abbrand bei ca. 7 - 9 % FIMA liegen, womit das Abbrandziel von 80 MWd/kgMe also in jedem Fall erreicht werden sollte, ohne daß es zum Schließen des Spalts kommt.

4. Spezifikationen

4.1 Brennstoff /9, 10/

- Material:	$(U_{0,75}, Pu_{0,25})C$		$(U_{0,75}, Pu_{0,25})_2 C_3$
- Pu-Gehalt:	$Pu/U+Pu$	=	$0,25 \pm 0,01$
- U-Anreicherung:			U_{nat}
- Pu-Isotopenzusammensetzung:			Gehalt an spaltbarem Pu > 91 %
- Brennstoff-Form:			Tabletten
	mit Fase, ungeschliffen		ohne Fase, geschliffen
- Tablettendurchmesser:	$4,47 \pm 0,03$ mm		$4,64 \pm 0,01$ mm
- Tablettenhöhe:			$5,7 \pm 0,5$ mm
- Orthogonalität:			< 0,05 mm, Abweichung der Stirnfläche
- Oberflächengüte:			Risse: < 0,1 mm breit < 0,5 mm tief
			Abplatzungen: < 0,2 mm tief < 25 % Tablettenumfang
- Theoretische Dichte:	$13,63 \text{ g/cm}^3$		$12,82 \text{ g/cm}^3$
- Tablettendichte:	90 ± 1 % TD		$93 \pm 1,5$ % TD
- Kohlenstoffgehalt:	$4,65 + 0,05$ $- 0,10$		nicht spezifiziert
- O- und N-Gehalt:	O+N < 5000 ppm		O+N < 2000 ppm
- Kohlenstoffäquivalent:	$C + \frac{12}{14} N + \frac{12}{16} O$		Angabe des erreichten Wertes im Endprodukt als Summe von C, O, N
- U-, Pu-Metall:			unterhalb der Nachweisgrenze
- M_2C_3 -Gehalt:	< 10 %		> 80 %
- MC_2 -Gehalt:			unterhalb der Nachweisgrenze (metallografischer Nachweis)
- Freier Kohlenstoff:			unterhalb der Analysengenauigkeit von 500 ppm
- Metallische Verunreinigungen:			≤ 3000 ppm (als Summe der angegebenen Verunreinigungen)

Die maximal zulässigen Konzentrationen der einzelnen Elemente dürfen die folgenden Werte (in ppm) nicht überschreiten

Ag: 20	Ni: 500	Zn: 100
Al: 500	Mg: 50	Zr: 100
B: 2	Mo: 200	
Be: 10	Mn: 200	
Ca: 100	Na: 100	
Cd: 1	Pb: 200	
Co: 200	Si: 800	
Cr: 300	Sn: 10	
Cu: 100	V: 100	
Fe: 2000	W: 200	

Seltene Erden: < 1 (Nachweis an einem Element)

- Cl-, F-Gehalt: je < 30 ppm
- Boräquivalent: < 5 ppm

4.2 Hülle

- Material: X8CrNiMoVNb 1613, Werkstoff-Nr. 1.4988
- Chemische Zusammensetzung: (Gew.%)

Cr: 15,5 - 17,5	V: 0,6 - 0,85
Ni: 12,5 - 14,5	Nb,Ta: 10xC < X < 10xC+0,4
C: 0,10	S: < 0,3
Si: 0,3 - 0,6	P: < 0,045
Mn: 1,0 - 1,5	B: < 20 ppm
Mo: 1,1 - 1,5	N: < 0,1
	Fe: Rest
- Außendurchmesser: 5,6 ± 0,03 mm
- Innendurchmesser: 5,0 ± 0,03 mm
- Wandstärke: 0,3 ± 0,03 mm
- Geradheit: 1 : 1500
- Ovalität: innerhalb der Außendurchmessertoleranz
- Zustand: Kaltverformung < 5 %
lösungsgeglüht 1050 °C/5 min.
abgeschreckt unter Schutzgas
- Korngröße: ASTM-Micro Korngröße Nr. 7,
entspr. ASTM-E 112 - 63
- Fehler: < 0,02 mm in der Wandstärke

- Einschlüsse: $< 0,02 \text{ mm}$ oder $< 10^{-3} \text{ mm}^2$
- Rauigkeit: $< 0,002 \text{ mm}$ (R_t), innere und äußere Oberfläche
- Eindrücke: $< 0,005 \text{ mm}$ tief
- Risse: nicht zulässig
- Oberflächenbeschaffenheit: Die innere und äußere Oberfläche muß frei von Anlauffarben, Öl, Schmutz, Metallspänen u.ä. sein.

4.3 Brennstab /11/

- Konstruktion: Identisch für alle Prüflinge mit Ausnahme der Tablettendurchmesser und -dichten für die einzelnen Brennstoffvariationen (s. Abb. 1)
- Stabbezeichnung: am unteren Endstopfen
- Anordnung in der Kapsel:
 - oben: Stab-Nr. 15/9 (M_2C_3)
 - " 15/2 (MC)
 - " 15/5 (M_2C_3)
 - unten: " 15/6 (MC)
- Brennstoffsäulenlänge: $40 \pm 1 \text{ mm}$
- Stablänge: $93 \pm 1 \text{ mm}$
- Axiale Flußabschirmung: Rhodium-Scheibe $4,8 \text{ } \varnothing \times 1 \text{ mm}$
(Die Rhodiumscheibe am oberen Säulende ist in einem Führungsstück, Material 1.4988, $4,9 \text{ } \varnothing \times 3 \text{ mm}$, befestigt)
- Endstopfen: Material 1.4988
- Natrium-Bindung: Material: Reinst-Natrium
Chemische Zusammensetzung:
 - K $< 150 \text{ ppm}$
 - O_2, C, Cl, F (jedes Element) $< 30 \text{ ppm}$
 - N_2, S, P, Ca (jedes Element) $< 10 \text{ ppm}$
 - Mg, Ba, Fe, Ni, Al, Cu, Si
(jedes Element) $< 5 \text{ ppm}$
 - Boräquivalent $< 5 \text{ ppm}$
 - O_2 in der Bindung $< 100 \text{ ppm}$
 - Na-Spiegel $< 5 \text{ mm}$ über oberer (Rh+SS)-Scheibe

- Bindungsfehler: Oberfläche $< 5 \text{ mm}^2$
Volumen $< 10 \%$ der
Hülloberfläche
je 10 mm Bindungslänge
- Füllgas: 99,995 He, 20 ppm H₂O
1 at
> 90 % He, Rest Ar nach Verschweißen
 - Schweißnaht: max. Durchmesser: Stabdurchmesser +
0,125 mm; frei von Blasen, Poren und
Einschlüssen.
Axiale Abweichung $< 0,1 \text{ mm}$
 - He-Lecktest: $< 10^{-8}$ Torr-liter/sec He
 - Na-Lecktest: kein Leck zulässig (Phenolphthalein-Test)
 - Stabdurchbiegung: $< 1/1500$
 - Kontamination: Feste Kontamination: ≤ 30 α -Zerfälle/min
cm² (Mittelwert über Staboberfläche)
Wischbare Kontamination: Nulleffekt
 - Stabbegleitkarte: Für jeden Prüfling sind Stabbegleitkarten
zu erstellen, in welchen sämtliche Meß-
und Prüfergebnisse aufgeführt werden.

5. Herstellung /12/

Der Brennstoff M₂C₃ (Prüfling Nr. 5 und Nr. 9) wurde im Europäischen Institut für Transurane, Karlsruhe, und der Brennstoff MC (Prüfling Nr. 2 und Nr. 6) bei der Firma ALKEM, Hanau, hergestellt. Die wesentlichen Herstellungsdaten sind in der Tabelle 1 enthalten.

5.1 Brennstoff-Typ M₂C₃ /13/

Für die Herstellung des M₂C₃-Brennstoffes wurde eine Mischung aus 78 w/o U₃O₈ und 22 w/o PuO₂ hergestellt und anschließend mit 14,07 w/o Kohlenstoff gemischt und zu Tabletten verpreßt. Die Reaktionssinterung wurde unter Vakuum bei 850°C/1h und danach bei 1400 ... 1500°C/3h und 1550°C/2h durchgeführt. Das Reaktionsprodukt bestand aus 40 % M₂C₃ und 60 % MC. Die chemische Zusammensetzung dieses Reaktionsproduktes enthielt u.a. 7,03 w/o C_{ges} (theoretischer Wert für M₂C₃), 0,3 w/o O und 0,8 w/o C_{frei}. Eine zusätzliche Wärmebehandlung bei 1450°C/4h verringerte den Kohlenstoffgehalt auf 0,5 w/o. Dieses Produkt wurde in einer Kugelmühle gemahlen, dann zu Tabletten gepreßt und gesintert.

Tabelle 1: Prüflingsdaten Mol 15⁺)

Stabbezeichnung	15/2	15/6	15/5	15/9
<u>Hülle</u> ⁺⁺⁾				
Außendurchmesser (mm)		5,595 (6,000)		
Wanddicke (mm)		0,304 (0,300)		
Innendurchmesser (mm)		4,992 (5,000)		
<u>Brennstofftablette</u>				
Typ	MC	MC	M ₂ C ₃	M ₂ C ₃
M ₂ C ₃ -Gehalt (%)	9 (<10)	9 (<10)	72 (>80)	72 (>80)
Pu-Gehalt (%)	23,27	23,27	25,07	25,07
ECC-Gehalt (%)	5,01	5,01	6,82	6,82
Durchmesser (mm)	4,46 (4,47)	4,46 (4,47)	4,635 (4,64)	4,635 (4,64)
Höhe (mm)	5,70 (5,70)	5,70 (5,70)	5,60 (5,70)	5,59 (5,70)
Gewicht (g)	1,13	1,13	1,12	1,12
Dichte (g/cm ³)	12,76	12,76 1	11,86	11,84
Dichte in % TD	93,6 (90 ₊ 1)	93,6 (90 ₊ 1)	92,5 (93 ₊ 1,5)	92,4 (93 ₊ 1,5)
<u>Brennstab</u>				
Brennstoffgewicht (g)	7,91	7,94	7,84	7,82
Pu-Gewicht (g)	1,841	1,848	1,966	1,961
Diametralspalt (μm)	0,532 (0,530)	0,532 (0,530)	0,357 (0,360)	0,357 (0,360)
Schmierdichte (%TD)	74,7	74,7	79,7	79,7
Stablänge (total) (mm)	93,26 (93)	93,32 (93)	93,34 (93)	93,2 (93)
Brennstoffsäulenlänge (mm)	39,90	39,94	39,18	39,14

+) gemessene Mittelwerte aus den Angaben von ALKEM bzw. TUI,
 () Spezifikationswerte

++) IMF/LB-Prüfungsprotokoll 128, Rohr Nr. K 1034 und K 1038

Theoretische Dichten:

(U_{0,75}, Pu_{0,25}) C = 13,63 g/cm³

(U_{0,75}, Pu_{0,25})₂ C₃ = 12,82 g/cm³

Es entstand ein Reaktionsprodukt mit einem M_2C_3 -Gehalt von ca. 9 %. Dieser Wert wurde sowohl aus dem ECC-Gehalt als auch aus dem keramografischen Schliffbild (Abb.6) ermittelt. Die Tablettendichte betrug 93,5 %.

Das Gewicht von Tabletten und Säule sowie deren Abmessung ist in Tabelle 1 enthalten.

Es ergaben sich folgende Analysenwerte (w/o):

U = 71,45	Pu/U+Pu = 0,2457
Pu = 23,27	(ECC = 5,01 %)
C = 4,61	
$C_{\text{frei}} = 0,105$	
N = 0,168	
O = 0,364	

Verunreinigungen(ppm):

Al \leq 20	Fe = 25	Cr = 15
Cd = 1,5	B = 0,2	V = 5
Si \leq 10	W \leq 100	Cl \leq 10
Mn \leq 10	Zn \leq 10	F = 2
Pb = 10	Mo = 20	
Na \leq 10	Ni = 75	

5.3 Hüllrohre, Endstopfen und Strukturteile

Als Hüllmaterial wurden Rohre aus Werkstoff Nr. 1.4988 (X8CrNiMoVNb 16 13), Charge 25116 mit der Abmessung 5,6 \varnothing 0,3 (mm) der Firma Mannesmann verwendet. Aus der gesamten Rohrlieferung wurden die Hüllrohre mit den geringsten Abweichungen von den spezifizierten Nominalwerten ausgesucht. Die minimalen und maximalen Werte für Wandstärke, Innen- und Außendurchmesser gehen aus der Tabelle 1 hervor.

Chemische Analyse (w/o):

C = 0,05	S = 0,005	N = 0,090
Si = 0,58	Cr = 16,30	V = 0,77
Mn = 1,33	Ni = 13,65	
P = 0,020	Mo = 1,42	

Für die Endstopfen und das Führungsstück wurde ebenfalls der Werkstoff 1.4988, VDM-Schmelze Nr. 71514, verwendet.

Die Hüllrohre, Endstopfen und Strukturteile wurden im IMF bearbeitet bzw. hergestellt und geprüft.

5.4 Zusammenbau

Sämtliche Einzelteile, inklusive Brennstoff, wurden der UKAEA in Harwell/England, beigelegt. Dort wurde der untere Endstopfen eingesetzt und verschweißt, die Schweißnaht geprüft und das einseitig verschweißte Hüllrohr gefüllt. Bei Raumtemperatur wurde die untere Rhodiumscheibe, das Natriumpellet (ca. 0,23 g, Länge ca. 12 mm), die Brennstoffsäule und dann die obere Rhodiumscheibe mit Führungsstück eingefüllt. Abschließend wurde der obere Endstopfen eingesetzt und verschweißt. Abb. 7 zeigt die Durchleuchtung der ungebundenen Stäbe. Man erkennt, daß bei Stab 2 das obere Rhodiumplättchen nicht auf der Tabletensäule liegt und daß sich bei Stab 5 das untere Rhodiumplättchen beim Einfüllvorgang gedreht hat. Lediglich Stab 6 weist bereits nach dem Einfüllvorgang und dem Verschweißen des oberen Endstopfens einen einwandfreien Aufbau, d.h. keine sichtbaren Abstände zwischen dem eingefüllten Na-Pellet, Brennstoff und Rhodiumplättchen, auf.

5.5 Natriumbindung und deren Prüfung

Das Natriumpellet wurde bei 500 bzw. 615°C aufgeschmolzen, wobei gleichzeitig der Stab mit einer Frequenz von 20 oder 30 Hz und einer Amplitude von 2 und 5 mm vibriert wurde. Dieser Vorgang mußte z.T. bis zu zehnmal wiederholt werden, um eine fehlerfreie Natriumbindung zu erzielen, wobei deren Porenfreiheit jedesmal geprüft wurde.

Durch diese mechanische und thermische Beanspruchung der Stäbe läßt sich auch der innere Aufbau der Stäbe nach der Na-Bindung erklären (Abb. 8). Bei jedem Stab liegt die obere Rhodiumscheibe mit ihrem Führungsstück nicht auf der oberen Tablette. Die Röntgendurchleuchtung (Abb. 8) von Stab 9 läßt sogar erkennen, daß sich die Rhodiumscheibe aus dem Führungsstück gelöst hat. Ebenso erkennt man hier Brennstoffpartikel, die auf dem Natriumspiegel schwimmen. Wegen des Vibriierens des senkrecht stehenden Stabs haben dabei die Tabletten, deren Stirnflächen nicht exakt planparallel waren, die Lage minimaler potentieller Energie eingenommen. Das führte zu der exzentrischen Lage der Tabletten im Brennstab.

Dieser Zustand wurde durch das erstarrende Natrium fixiert und bis zur ersten thermischen Beanspruchung in Mol beibehalten. Die Prüfung der Natriumbindung wurde mit einer punktförmigen Wirbelstromsonde ausgeführt. Dabei bewegte sich diese Sonde axial zum langsam rotierenden Brennstab. Die Steigung der daraus resultierenden Prüfspirale betrug etwa 0,1 mm pro Umdrehung. Die mit einer Frequenz von 10 ... 50 kHz gespeiste Sonde erzeugte in der Natriumschicht elektrische Wirbelströme, die auf die Impedanz, d.h. auf den komplexen, elektrischen Widerstand der Sonde zurückwirken. Diese Rückwirkung war ein Maß für die Änderung der Natriumschichtdicke. Die Änderung des Widerstandes wurde mit einer Brückenschaltung in eine elektrische Spannung umgewandelt, verstärkt und registriert. Mit einem besonderen Schreibsystem erfolgte die Darstellung der Abwicklung des Brennstabumfangs über die Stablänge (Scan).

Zur Einstellung der Empfindlichkeit diente ein Hüllrohr, in das eine Kupferhülse gepreßt war. Diese Kupferhülse hatte etwa die gleiche Stärke wie die Natriumschicht und besaß über Länge und Umfang verteilt, kleine, radiale Bohrungen, die Poren in der Natriumbindung simulierten. In Abb. 9 ist oben die Wirbelstromprüfung dieses Testrohres dargestellt.

Wegen des in Harwell verwendeten Diskriminators ergab sich jeweils nach ca. 33 % Amplitudenänderung des Prüfsignals eine Intensitätsänderung am Registriergerät von schwarz auf weiß, wodurch Linien gleicher Bindungsqualität entstanden. Aus der Bindungsprüfung mit Wirbelstrom (Abb. 9) erkennt man, daß keine Poren im Natrium vorhanden waren, und daß die Schichtdicke im Bereich jeder Tablette über den Stabumfang unterschiedlich war. Dieser Effekt, der auf die exzentrische Lage der einzelnen Tabletten im Brennstab zurückzuführen ist, läßt sich besonders beim Vergleich der Wirbelstromaufnahme des Stabs 6 mit der der anderen Stäbe erkennen. In den Aufnahmen für Stab 2, 5 u. 9 wurden die Positionen der Tabletten besonders gekennzeichnet, wobei alle Tabletten jeweils alternativ, mit Ausnahme Stab 5/Tablette 7, von unten nach oben exzentrisch versetzt sind, was auch aus der Röntgendurchleuchtung (Abb. 8) hervorgeht. Bei dem Stab 6 (Abb. 9) wurde im Verhältnis zu den anderen Stäben zufällig eine annähernd über den Umfang konstante Natrium-Schichtdicke erzielt. Lediglich über die Stablänge sind Unterschiede zu bemerken, die sich bei der Wirbelstromprüfung als horizontale, weiße Streifen bemerkbar machen.

5.6 Abnahme

Die Abnahme der Prüflinge erfolgte in Harwell durch die GfK/15/.

Dabei wurde u.a. folgendes festgestellt:

- Bei den Stäben 2, 5 und 6 war der axiale Mittenversatz der Endstopfen geringfügig größer als spezifiziert.
- Durch die thermische und mechanische Behandlung während der Na-Bindungsprozedur lagen die oberen Rhodiumscheiben mit ihren Führungsstücken 1...3 mm über der Tablettensäule. Eine Beschädigung von Hüllrohr oder Brennstoff konnte nicht beobachtet werden (Abb. 8).
- Der Stab 5 wies kleine Kratzer am unteren Ende auf.

Der gesamte Stabaufbau ist aus der Röntgenaufnahme (Abb.8) zu erkennen. Bemerkenswert ist hier der stufenförmige Versatz der Brennstofftabletten, hervorgerufen durch die mechanische und thermische Behandlung.

6. Bestrahlungseinrichtung

Die vier Prüflinge sind in einer mit NaK gefüllten Kupferkapsel von kreuzförmigem Querschnitt übereinander angeordnet und zwar sind sie über Muffenkupplung fest miteinander verbunden. Eine schematische Darstellung der Kapsel im Längs- und Querschnitt findet man in den Abb. 10 und 11.

Aus Korrosionsgründen ist die Kupferkapsel innen mit einer Ni-Schicht überzogen. Das Kupferkreuz sitzt im äußeren Kapselträgerrohr (INOX) und ist mit diesem an den zwei Endstopfen verschweißt. In die Flügel des Kupferkreuzes sind Aussparungen eingefräst, in denen sich die Thermoelemente befinden. Die axiale Lage der Thermoelemente, die Form und Anordnung der Aussparungen für die TE-Meßstellen und die TE-Führungen gehen aus Abb.10 hervor. Die geradzahligen Schnitte beziehen sich auf die TE-Meßstelle und die ungeradzahligen auf die Art der TE-Führungen. Wie aus den Schnitten 2,4,6 und 8 hervorgeht, sind die Thermoelemente immer paarweise angeordnet und zwar auf derselben axialen Höhe. Während die Prüflinge 6, 2 und 9 nur mit jeweils einem TE-Paar bestückt sind, befinden sich auf der Höhe des Prüflings 5 vier TE-Paare, die in völlig symmetrischer Weise auf gleicher Höhe auf den vier Flügeln des Kupferkreuzes angeordnet sind. Man kann aus den Unterschieden der T-Messungen dieser TE-Paare auf die Größe der Meßgenauigkeit bei allen Prüflingen schließen. Es sei noch bemerkt, daß die Kapsel mit einem Druck von 2 at He beaufschlagt wurde und keine Druckregelung hatte.

7. Ablauf der Bestrahlung

7.1 Reaktorzyklen und Neutronenfluß

Die Bestrahlung der vier Prüflinge begann am 26.11.73 im Zyklus 10/73 und endete mit dem Ausbau am 26.9.74 nach dem Zyklus 8/74.

Die Positionierung der Kapsel in den einzelnen Zyklen ist in Tabelle 2 neben der Zyklusdauer, Fluß- und Dosisangaben aufgeführt. Abb. 12 zeigt die Positionskarte des BR2-Cores. Die Positionen, die von der Kapsel im Laufe der Bestrahlung besetzt waren, sind schraffiert.

Der thermische Fluß in den einzelnen Bestrahlungspositionen war durchweg um ca. einen Faktor 10 größer als der schnelle Fluß. Leider gibt es für die entsprechenden Zyklen und Bestrahlungspositionen - so weit bekannt - keine Werte für die axialen Flußverteilungen, so daß auch kein Vergleich zwischen axialer Leistungs- und Flußverteilung durchgeführt werden kann.

Als Maß für die Verteilung der Spaltungen und damit auch des Flusses in den letzten Zyklen, wird der axiale Zr/Nb 95 γ -scan angesehen. Derselbe ist zusammen mit der Abbrandverteilung über der originalen Kapselgeometrie in Abb.17 aufgetragen (siehe 9.3).

7.2 Temperatur und Stableistung

Wie schon im vorhergehenden Kapitel näher beschrieben, ist die bei der Bestrahlung von Mol 15 verwendete Kupferkreuz-Kapsel auf der Höhe der Prüflinge mit einer Reihe von TE-Paaren ausgestattet. Gemessen werden die Temperaturdifferenzen zwischen den beiden Thermoelementen eines Paares. Jeder Temperaturdifferenz ΔT ist eine bestimmte Stableistung eindeutig zugeordnet; den genauen Wert kann man aus der Kapselcharakteristik ermitteln (siehe Abb. 13). Aus den Kurven $T_{Hi} = f_1(\chi)$ und $T_{Ha} = f_2(\chi)$ der Abb. 13 kann man die Werte für die Hüllinnen- bzw. Hüllaußentemperatur ablesen.

Die hauptsächlichen Schwierigkeiten bei der verwendeten Kupferkreuzkapsel liegen in der Zentrierung des Kupferkreuzes im äußeren Kapselrohr. Bei schlechter Zentrierung fließen über die vier Flügel des Kupferkreuzes verschieden große Wärmemengen ab. Dies führt zu unterschiedlichen Werten für ΔT auf den vier Flügeln. Die Mittelwerte der vier ΔT 's sollte aber ein brauchbares Maß für die Stableistung sein.

Tabelle 2: Bestrahlungsablauf von Mol 15/1

Zyklus Nr.	Zeitraum von bis	Dauer (d Vollast >80% N _{nom})	Kanal	therm. Φ $\cdot 10^{14}$ (n/cm ² sec)	schneller Φ $\cdot 10^{13}$ (n/cm ² sec)	Φ_f / Φ_{th}	Dosis $\times 10^{20}$ (n/cm ²)
10/73	16.11. - 13.12.73	14,6	K 49	1,69	3,19	0,189	2,80
11/73	13.12. - 14. 1.74	24,8	K 11	2,03	3,84	0,189	4,96
1/74	14. 1. - 13. 2.74	22,6	K349	2,14	4,04	0,189	4,80
2/74	13. 2. - 15. 3.74	20,5	K 11	2,03	3,84	0,189	3,90
3/74	15. 3. - 11. 4.74	4,0	H 23	2,37	4,48	0,189	0,90
4/74	11. 4. - 11. 5.74	21,1	K311	2,24	1,52	0,068	3,60
5/74	11. 5. - 27. 6.74	18,7	H337	1,95	3,69	0,189	2,97
6/74	27. 6 - 26. 7.74	17,9	H323	2,80	3,25	0,116	5,01
7/74	26. 7. - 2. 9.74	25,1	H323	2,80	3,25	0,116	6,04
8/74	2. 9. - 26. 9.74	14,9	H323	2,80	3,25	0,116	3,70

Bekanntlich ist der Prüfling 5 mit vier TE-Paaren bestückt. Aus den Messungen dieser vier TE-Paare kann man also die Meßgenauigkeit abschätzen. Aus den beiden Zyklen 10/73 und 11/73 wurden repräsentative Meßwerte von ΔT herausgegriffen und in der Abb.11 azimutal aufgetragen. Danach weichen die Werte ΔT im Zyklus 10/73 um ca. + 8 % bis -12 % vom Mittelwert ab und im Zyklus 11/73 um + 9 % bis -19 %. Ganz grob läßt sich sagen, daß die Werte für die Stableistung bei den Prüflingen 2, 6 und 9 nur auf ± 10 % genau sind. Beim Prüfling 5 ist die Genauigkeit naturgemäß weit besser, da die vier ΔT ausgemittelt wurden.

In der Tabelle 3 sind die über den Zyklus gemittelten Hüllaußentemperaturen und Stableistungen der vier Prüflinge zusammengestellt sowie die maximalen Stableistungen in den verschiedenen Zyklen. Die jeweiligen Werte des Prüfling 5 sind schon Mittelwerte aus den Messungen der vier Thermoelement-Paare. Wie man aus Tabelle 3 ersieht, liegt das Stableistungsmaximum bei den Prüflingen 5 und 6.

7.3 Thermische Abbrandberechnung

Die Bestimmung des thermischen Abbrands der Prüflinge erfolgt über die aus den Thermoelement-Meßwerten ΔT gemäß der Kapselcharakteristik gewonnenen Stableistungen nach der Formel:

$$A = \frac{1}{m \cdot f} \sum \bar{\chi}_i t_i \cdot 10^{-3} \text{ (MWd/kgM)}$$

mit f = Umrechnungsfaktor Schwermetall/Brennstoff
 l = Brennstofflänge (cm)
 m = Brennstoffgewicht (g)
 $\bar{\chi}_i$ = mittlere Stableistung (W/cm) im i.Zyklus
 t_i = Bestrahlungszeit (d) (Vollstäquivalent)
im i.Zyklus

Der so definierte Abbrand ist also auf das Schwermetall- und nicht auf das Brennstoffgewicht bezogen. In der Tabelle 4 sind die aus den Meßwerten berechneten Abbrände der einzelnen Zyklen zusammengestellt und aufsummiert. Die zugehörigen mittleren Stableistungen sind in Abb.15 aufgetragen.

Tabelle 3 : Hüllaußentemperaturen und Stableistungen in den Bestrahlungszyklen

	mittl. Hüllaußentemp. T_{Ha} (°C)				max. Stableistung χ (W/cm)				mittl. Stableistung χ (W/cm)			
	6	5	2	9	6	5	2	9	6	5	2	9
Prüfling	6	5	2	9	6	5	2	9	6	5	2	9
Zyklus												
10/73	300	315	318	276	693	853	747	634	632	670	679	576
11/73	495	487	454	350	1157	1183	1072	842	1117	1097	1013	761
1/74	397	393	380	316	933	949	869	912	878	866	833	676
2/74	487	490	478	384	1141	1194	1098	890	1099	1102	1073	839
3/74	397	405	398	320	1039	1146	1093	954	877	897	886	686
4/74	384	390	389	300	864	917	869	672	844	860	846	649
4A/74	395	396	479	314	938	960	906	714	873	878	855	668
5/74	482	487	474	382	1130	1162	1130	938	1085	1097	1064	836
6A/74	411	425	425	352	949	1008	981	789	914	944	944	765
6B/74	477	465	470	380	1120	1146	1087	1104	1077	1084	1057	833
7/74	470	472	457	364	1098	1135	1072	842	1051	1056	1022	792
7A/74	444	438	420	335	1077	1082	991	757	990	976	932	720
8/74	434	439	433	349	1013	1066	1029	853	963	978	961	759

Tabelle 4: Mittlerer Abbrand (MWD/kg/M)

Prüfling Zyklus Nr.	6	5	2	9
10/73	4,78	5,26	5,14	4,52
11/73	14,07	14,62	13,01	10,15
1/74	10,23	10,52	9,75	8,22
2/74	11,62	12,15	11,39	9,25
3/74	1,81	1,92	1,83	1,47
4/74	0,22	0,24	0,22	0,11
4/74A	9,27	9,72	9,13	7,37
5/74	10,46	11,03	10,31	8,40
6/74A	1,22	1,32	1,27	0,99
6/74B	8,49	7,75	8,38	6,78
7/74	6,28	6,58	6,13	4,87
7/74A	6,89	7,09	6,52	5,20
8/74A	7,40	7,84	7,41	6,08
Gesamt	92,98	96,04	90,47	73,40

Die berechneten Abbrandwerte stimmen mit den radiochemisch bestimmten, wenn man von Prüfling 2 absieht, bis auf etwa 10 % überein (siehe 9.3). Dies ist zu erwarten aufgrund der Unsicherheiten in der Leistungsbestimmung (siehe 9.3). Bemerkenswert ist allerdings, daß, im Gegensatz zu früheren Kapselbestrahlungen, die gerechneten Werte über den experimentell bestimmten liegen.

8. Zerstörungsfreie Nachuntersuchung

8.1 Äußere Vermessung

Diese vier Stäbe wurden vor und nach der Bestrahlung vermessen. Die Durchmesser wurden mittels Wendelschrieben bestimmt. Letzteres geschieht auf einer Meßbank, wobei ein induktiver Wegaufnehmer den rotierenden Stab abfährt. Die Meßwerte werden hierbei kontinuierlich aufgezeichnet. In Abb. 16 wird die Durchmesserabweichung über der Stablänge wiedergegeben. Auffallend ist das unterschiedliche Verhalten im Bereich der Brennstoffsäule. Die bei Stab 2 gefundene starke Aufweitung im oberen Brennstoff-Bereich deckt sich mit dem in der Keramografie (s. Kap. 9) gefundenen stark trichterförmigen Porositätsverlauf im oberen Brennstoffteil. Die lokale Aufweitung der Hülle - trotz des großen Radialspaltes - kann nur durch mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle erklärt werden.

Die Tabelle 5 gibt die axiale Verlängerung der Brennstoffsäulen der 4 Prüflinge wieder. Generell sind diese Werte im Vergleich mit Oxidbestrahlungen vergleichbarer Prüflingslänge sehr hoch. Auffallend ist der relativ niedrige Wert von Prüfling 2, der allerdings eine starke radiale Aufweitung im oberen Brennstoffbereich zeigt.

Tabelle 5: Axiale und radiale Veränderung der Brennstoff-Säulengeometrie

Prüfling	ΔD_{\max} (%)	ΔL (%)
9	0,25	11,02
2	0,35	4,21
5	0,25	7,36
6	0,27	9,02

8.2 Durchleuchtung

Die Brennstäbe wurden bereits in Mol am BR2 nach der Bestrahlung neutronografiert. In Abb. 17 wird die Aufnahme wiedergegeben. Man erkennt die 4 Prüflinge in der sog. Mol-13-Kapsel (s.a. Kap. 6). Nur bei Stab 2 sind hier axiale Risse erkennbar. In Karlsruhe wurden die Stäbe nochmals mittels eines BETATRONS (19 MeV) durchstrahlt. Die 4 Aufnahmen sind im Anhang II zu finden. Infolge der geometrischen Anordnung (Quelle-Objekt-Film) sind die Aufnahmen ca. 2-fach vergrößert. Hier ist die Aussagekraft gegenüber den Neutronografien wesentlich gesteigert. Man erkennt nun auch bei den Stäben 5, 6 und 9 interne Unregelmäßigkeiten im Brennstoff wie Tablettenstöße und Risse.

8.3 Gamma-Profile und -Spektren

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

Als Detektor diente hierzu ein Halbleiterkristall (GeLi) mit nachgeschaltetem Multikanal-Analysator. Profile und Spektren wurden mit einem schlitzförmigen Kollimator mit den Maßen 0,5 mm x 20 mm x 700 mm durch die Abschirmwand der Heißen Zellen aufgenommen.

Die Untersuchung wurde mit der Aufnahme eines integralen γ -Profils über der Stablänge begonnen. An bestimmten Stellen im axialen Verlauf dieses Profils, welche sich meist als Unregelmäßigkeiten auszeichnen, wurden nun die Stellen markiert, an denen γ -Spektren aufgenommen werden sollten. Anhand dieser Spektren werden dann die Nuklide (Energiebereiche) ausgewählt, von denen noch weitere Profile aufgenommen werden sollen.

Zu den Profilen, die an allen Prüflingen gemessen wurden, zählte auch das Zr/Nb-95-Profil. Vom Spalt-Zirkon ist bekannt, daß es sich in Oxidbrennstoff unter den hier betrachteten Bestrahlungsbedingungen nicht an- oder abgereichert. Somit kann das Zr/Nb-95-Profil in besonderem Maße als Brennstoff-Indikator zur Ermittlung von Brennstoffverlagerungen herangezogen werden. Bei kurzen Bestrahlungszeiten ist dem Profil auch der axiale Stableistungsverlauf zu entnehmen. Je nach Abklingdauer wurden weitere Nuklid-Profile zur Bestimmung der Spaltproduktwanderung vermessen. Es war dies insbesondere das Profil für Cs/Ba-137.

In den Abb. 18 - 21 werden diese Profile wiedergegeben.

In Abbildung 17 wird das Zr/Nb-Profil maßstäblich in Relation zur Position des Prüflings in der Bestrahlungskapsel gezeigt. Man kann so recht gut den Verlauf des Flußprofils im Bestrahlungskanal konstruieren. Miteingezeichnet sind die radiochemisch ermittelten Abbrandwerte (s.a. Kap. 9.3).

9. Zerstörende Nachuntersuchung

9.1 Spaltgasbestimmung

Bei der experimentellen Spaltgasbestimmung werden routinemäßig folgende Messungen /16/ ausgeführt:

Bestimmung

- der freien Spaltgasmenge V_F
- des freien Volumens innerhalb der Hülle
- der Spaltgasmenge in geschlossenen Poren V_P
- der im Brennstoff gelösten Spaltgasmenge V_G

Zu diesem Zweck wird das Gasplenum des Prüflings zuerst radial abgebohrt und das freie Spaltgas abgezogen mit anschließender Heliumspülung. Die Zusammensetzung des Spaltgases wird radio-gaschromatografisch ermittelt, wobei die Menge an Xe, Kr quantitativ bestimmt wird. Hierauf folgt eine manometrische Messung des freien Volumens (Hohlräume, offene Poren) innerhalb der Brennstabhülle.

Für die weiteren Spaltgasbestimmungen (Anteile in geschlossener Porosität bzw. im Brennstoffgitter gelöst) werden bei der Aufteilung des Prüflings zwei Brennstoffproben von insgesamt etwa 3 g Gewicht bereitgestellt. Jede Probe wird zuerst in einer gasdichten Kugelmühle aus Edelstahl ca. 2 Stunden gemahlen, wobei eine Partikelgröße von weniger als $1\ \mu\text{m}$ erreicht wird. Das hierbei freigesetzte "Porensplaltgas" umfaßt alles Gas, das sich in geschlossener Porosität mit Porengrößen $\geq 1\ \mu\text{m}$ befand. Nach der gaschromatischen Bestimmung dieses Anteils wird die gemahlene Brennstoffprobe schließlich in HNO_3 aufgelöst. Dabei wird sowohl der im Brennstoff gelöste Anteil, das "Gittersplaltgas", und der in den kleinen Poren ($<1\ \mu\text{m}$) enthaltene Anteil bestimmt.

In den nachfolgenden 3 Tabellen (6, 7, 8) werden sowohl die gemessenen Werte als auch ein berechneter Gesamtwert gegeben.

In Tabelle 6a sind die spezifischen Spaltgasvolumina für Poren- und Gittersplaltgas aufgeführt.

Wie bei dem Experiment Mol 11 /19/ gezeigt wurde, weisen die Spaltgasbestimmungen darauf hin, daß innerhalb gewisser Schwankungen Sättigungswerte bei den Gittersplaltgasen nicht überschritten werden, während der Gehalt an Porensplaltgas abbrandabhängig ist.

Bei dem Experiment Mol 11 steigt das Porensplaltgas auf Werte von $110\ \text{mm}^3/\text{g}$ für Krypton und $705\ \text{mm}^3/\text{g}$ für Xenon an; das Gittersplaltgas erreicht $40\ \text{mm}^3/\text{g}$ für Kr bzw. $250\ \text{mm}^3/\text{g}$ für Xe für Abbrände zwischen 35 und 67 MWd/kgM.

Der Vergleich mit den Werten in Tabelle 6 zeigt einen wesentlich höheren Xe-Anteil im Porensplaltgas bei Mol 15 (etwa um den Faktor 2), wohingegen die Gittersplaltgasanteile von Xe vergleichbar sind. Der Kr-Anteil im Gitter ist ungefähr viermal kleiner als bei Mol 11.

Der Anteil des Porensplattgases ist bei Mol 15 etwa doppelt so hoch wie bei Mol 11, die deutlich unterschiedliche Porosität ist für den hohen Anteil verantwortlich. Das hohe Xe/Kr-Verhältnis von etwa 16 ist auf die überwiegende Pu-Splattung zurückzuführen. (Bei Mol 11 mit hoher U-235-Anreicherung liegt dieser Wert bei 6).

Tabelle 6 : Freies Splattgas (V_F)

Prüfling Nr.	Abbrand ⁺⁺⁺⁺ (Mwd/kgM)	Freies Splattgas V_F (mm ³)			Xe/Kr Verhältnis
		Krypton	Xenon	Gesamt	
9	74,68	142	2158	2300	15,9
2	73,50 (87)	-	-	-	-
5	86,93	334	5272	5606	15,8
6	82,03	116	1857	1973	16,0

Tabelle 6a: Spezifische Splattgasvolumina

Prüfling Nr.	Porensplattgas (mm ³ /g)		Gittersplattgas (mm ³ /g)	
	Krypton	Xenon	Krypton	Xenon
9	86	1487	< 7	< 23
2	89	1486	7	165
5	88	1591	9	175
6	67	1220	15	238

Tabelle 7: Gebundenes Spaltgas ($V_P + V_G$)

Prüfl. Nr.	Abbrand ⁺⁺⁺⁺ (MWd/kgM)	Porensplattgas (mm^3) V_P			Gittersplattgas (mm^3) V_G			Xe/Kr-Verhältnis	
		Krypton	Xenon	Gesamt	Krypton	Xenon	Gesamt	Poren	Gitter
9	74,68	688	11618	12286	-	-	-	17,40	-
2	73,50 (87)	705	11755	12460	58	1309	1357	16,70	22,8
5	86,93	691	12461	13152	71	1373	1444	18,03	19,3
6	82,03	529	9684	10213	120	1887	2007	18,30	15,8

Tabelle 8: Spaltgas (gesamt)

Prüfling Nr.	Abbrand ⁺⁺⁺⁺ (MWd/kgM)	V_{gas} (mm^3)		Release ⁺⁺ (%)
		gemessen	gerechnet	
9	74,68	15986 ⁺	14837	14,38
2	73,50 (90,5)	16827 ⁺	17494	-
5	86,93	20202	17321	27,75
6	82,03	14193	16559	13,90

⁺ = V_F bzw. V_G -Anteile geschätzt

⁺⁺ = Es wurden die höheren, gemessenen Werte zugrundegelegt

⁺⁺⁺ = 0,3 Gasatome/Spaltung

⁺⁺⁺⁺ = Abbrand aus radiochem. Bestimmung

Pu-239-Spaltung thermisch: 1 at % $\hat{=}$ 9,800 MWd/kgM

9.2 Keramografie

Folgende Gesichtspunkte wurden bei der Keramografie der Prüflinge berücksichtigt:

1. Brennstabdaten (innerer Aufbau, Brennstoffspezifikation)
2. Bestrahlungsdaten (Stableistungsverlauf entlang der Stabachse)
3. Ergebnisse der zerstörungsfreien Nachuntersuchung.

Äußeres Erscheinungsbild des Prüflings. Innere Stabstruktur (Durchleuchtung), γ -Spektrometrie (Spaltnuklid-Verteilung und gegebenenfalls Verlagerung).

Es wurden sowohl Längs- als auch Querschliffe ausgeführt: Querschliffe möglichst in Stabmitte, Längsschliffe an den Stabenden zur Dokumentation der dort auftretenden anomalen Porositätsverteilung (s. Durchleuchtung).

Für die Dokumentation einer Schliffebene wurde folgendes Schema verwendet:

Aufnahmetyp (Anhang II)	Vergrößerung	Bearbeitung der Schliffebene a) poliert, b) geätzt
1. Längsschliffe	ca. 10 x	a) und b)
2. Total-Aufnahme	ca. 14 x	a)
3. Panomama "	ca. 60 x	a)
4. Detail-Aufnahme	100, 200, 500x	a) und b)

Darüberhinaus wurden an den Querschliffen folgende Daten ermittelt: Verlauf der Mikrohärte über die Hüllwand-Stärke (Effekt der Aufkohlung). Wie schon in Kap. 4 dargelegt wurde, kamen zwei Brennstoffvariationen zum Einsatz:

- a) MC + wenig M_2C_3 (<20 v/o)
- b) M_2C_3 + " MC (<20 v/o)

Diese Variation wurde wie folgt im Versuchseinsatz durchgeführt:

	<u>Prüfling</u>	<u>Zusammensetzung</u>
oben	9	b)
	2	a)
	5	b)
unten	6	a)

Abb. 22 zeigt den Verlauf der Hüllinnentemperatur für alle Zyklen. Wie aus den Abbildungen 23-26 hervorgeht, ergibt sich kein konsistentes Bild. Die erwartete hohe Aufkohlung der Hülle für die Prüflinge mit großem M_2C_3 -Inventar bleibt aus. Es wäre hier eine genaue Kenntnis der Hülltemperatur in Höhe des jeweiligen Querschliffs wünschenswert. Wie in Kapitel 6 beschrieben wurde, geschieht die Temperaturvermessung des Prüflings über ein sogen. Kupferkreuz, das nur einen Wert pro Prüfling für die Hülloberflächentemperatur liefert.

9.3 Radiochemische Abbrandbestimmung

Es wurde von jedem Prüfling jeweils eine Probe entnommen, die für eine chemische Abbrand-Bestimmung reserviert blieb. Die Proben wurden in HNO_3 aufgelöst. Der Abbrand-Monitor (Ce^{148} , Cs^{137} und Nd^{148}) wurde durch die hier üblichen Standard-Techniken bestimmt. Beim Cs^{137} muß allerdings bemerkt werden, daß dieses Spaltnuklid nicht "ortsstabil" ist, Eine Abbrandanalyse ist hier daher mit Vorsicht zu wichten.

Die beiden anderen Spaltmonitore Nd-148 (und alle Nd-Isotope 143, 144, 145, 146, 148 und 150: 19,7 % Spalt-Ausbeute) wurden durch Massenspektrometrie und Ce^{144} durch γ -Spektrometrie bestimmt. Die Gesamtheit der schweren Atome (U+Pu) nach Bestrahlung wurde durch Röntgen-Fluoreszenz-Spektrometrie bestimmt /17/.

Der Abbrand berechnet sich dann wie folgt:

$$(\%) \quad a = 100 \frac{M/y}{H+M/y}$$

M = Anzahl der Atome des Spalt-Produkt-Monitors

y = Spalt-Ausbeute (%)

H = Anzahl der verbliebenen schweren Atome.

Die nach den einzelnen Spalt-Monitoren bestimmten Abbrände werden dann noch gewichtet und der Mittelwert bestimmt. In folgender Tabelle werden diese gewichteten Mittelwerte angegeben. Die Umrechnung in MWd/kgM erfolgt dann nach

$$1 \text{ at } \% \hat{=} 9,80 \text{ MWd/kgM.}$$

Tabelle 9: Radiochemisch bestimmte Abbrände

Prüfling	Abbrand (%)	Abbrand (MWd/kgM)
9	7,62	74,68
2	7,50 ^{+))}	73,50 ^{+))}
5	8,87	86,93
6	8,37	82,03

^{+))} unsicherer Wert, da starke axiale Entmischungen

10. Diskussion über das Brennstoffschwellen, die Porenmorphologie und die Pu-Umverteilung

Eine Analyse des Bestrahlungsexperiments Mol 15 wird in erster Linie zu klären haben, ob die Na-Bindung bis zur Entladung intaktgeblieben ist, denn ein Versagen der Na-Bindung hat schwerwiegende Konsequenzen für den Prüfling sowohl was die thermische Belastung des Brennstoffs als auch dessen Schwellverhalten anbetrifft.

Unter der Annahme, daß die Na-Bindung intakt bleibt, wurde mit SATURN 1k die Lebensgeschichte des Prüflings 6 nachgerechnet. Der Verlauf von Stableistung und Zentraltemperatur ist in Abb. 27 aufgetragen. Danach überschreiten also während der ganzen Betriebszeit die Brennstofftemperaturen die 1100°C Grenze nicht wesentlich. Das gleiche läßt sich auch für die anderen drei Prüflinge feststellen. In Abb. 28 ist der Vollständigkeit halber die radiale Temperaturverteilung im Brennstoff aufgetragen und zwar einmal für den Zyklus mit maximaler Stableistung und zum anderen für den letzten Zyklus.

Zur Klärung der Frage, ob die berechneten Temperaturverteilungen mit den in den 4 Prüflingen von Mol 15 beobachteten Blasengrößen und der Morphologie vereinbaren ist, werden wir uns auf die Ergebnisse von Paris /18/ stützen. Bei Untersuchungen an im DFR bestrahlten Stäben mit Mischkarbid-Brennstoff wurde gefunden, daß die Natur und Größe der Spaltgasblasen von Temperatur und Abbrand abhängig ist, und zwar wachsen die Spaltgasblasen mit der Temperatur und dem Abbrand. Bei 1100°C und 7,1 % FIMA wurden typische Blasen von ca. $1\ \mu\text{m}$ Durchmesser und bei 1250°C und 8,8 % FIMA lag die typische Blasengröße bei ca. $4\ \mu\text{m}$.

Aus Schliffbildern (siehe Anhang II) der Prüflinge 2, 5 und 6 kann man sehen, daß über einen Großteil des Brennstoffquerschnitts typische Blasen in der Größe von $100\ \mu\text{m}$ und mehr auftreten. Nach /18/ liegt die typische Blasengröße bei 1800°C und 6,4 % FIMA bei ca. $50\ \mu\text{m}$. Daraus muß man schließen, daß es zumindest bei den drei Prüflingen 2, 5 und 6 im Laufe der Bestrahlung zu einer starken Überhitzung des Brennstoffs gekommen ist. Die Blasenstruktur im Prüfling 9 ist deutlich verschieden von den drei anderen Prüflingen, und zwar sind die Blasen wesentlich kleiner. Im inneren Bereich des Brennstoffquerschnitts findet man typische Blasen mit einem Durchmesser von ca. $20 - 30\ \mu\text{m}$.

Dieser Wert liegt allerdings noch um eine Größenordnung über den von Paris gefundenen Werten für 1100°C und 7 % FIMA. Deshalb muß auch beim Prüfling 9 eine Überhitzung des Brennstoffs eingetreten sein. Der Abbrand in Prüfling 9 ist um ca. 2 % FIMA kleiner als der der drei anderen Prüflinge. Möglicherweise ist dies der Grund für die unterschiedliche Porenstruktur. In den drei Prüflingen 2, 5 und 6 findet man die Andeutung eines Zentralkanals. Besonders ausgeprägt ist dieses Phänomen an den oberen Enden der Brennstoffsäule. Dies wird auf Flußaufwölbungen zurückgeführt. Beim Einfüllen des Natriums in den Stab wurde das Rhodiumplättchen weggeschwemmt, so daß es seine Funktion bei der Flußabschirmung nicht erfüllen konnte. Bei den bisher durchgeführten Bestrahlungsexperimenten der GfK mit Karbid-Stäben, nämlich den Versuchsgruppen Mol 11-K1 und -K2, Vg 6A und C und DFR 330 wurde ein solcher "Zentralkanal" noch nie gefunden.

Es hat sich im nachhinein gezeigt, daß durch das Ätzen die Porosität etwas verändert wird. Die Änderungen sind jedoch nicht so groß, daß die obigen Betrachtungen revidiert werden müßten.

Nach Paris /18/ wurde die Andeutung eines Zentralkanals bei einer Brennstofftemperatur gefunden, die wahrscheinlich deutlich über 1800°C lag. Diese Aussage ist verträglich mit dem Befund bei den Bestrahlungsexperimenten Mol 11 K1/K2 und Vg 6A, 6C. Aus der modelltheoretischen Analyse der Prüflinge von Mol 11 K1/K2 /19/ folgt, daß in den relevanten Phasen der Bestrahlung die Brennstofftemperatur der Prüflinge unter 1600°C lag. Bei den Prüflingen der Versuchsgruppe Vg 6C wurden die Zentraltemperaturen sogar gemessen. Sie haben 1400°C nicht wesentlich überschritten. Die Prüflinge von Vg 6A waren He-gebunden und mit kleinem Fertigungsspalt ($50\text{ }\mu\text{m}$ diametral). Man kann annehmen, daß die Brennstofftemperaturen in diesen Prüflingen niedrig waren.

Aufgrund des in der Regel kleinen Temperaturgradienten sind die Wanderungsgeschwindigkeiten von Poren und Blasen in karbidischen Brennstoffen im Gegensatz zu oxidischen klein /20/. Ein Wandern von Blasen und Poren ist nach /20/ erst ab einer Temperatur von ca. 1600°C und einem Temperaturgradienten von ca. $700^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ feststellbar. Wegen des extrem kleinen Tablettendurchmessers von 4,5 mm und wegen der teilweise relativ hohen Werte der Stabileistung ($1100\text{ W}/\text{cm}$) sind die Temperaturgradienten im Brennstoff der Prüflinge von Mol 15 um einiges größer als sonst bei Karbid-Stäben üblich.

Es werden Werte von $2000^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ überschritten. Damit liegt man

man aber noch um ca. einen Faktor 2 unter den bei Oxid üblichen Werten. Trotz der relativ hohen Temperaturgradienten dürfte es angesichts der niedrigen Brennstofftemperaturen bei intakter Na-Bindung zu keiner Blasenwanderung gekommen sein.

Karbidische Brennstoffe haben ein sehr gutes Rückhaltevermögen für Spaltgas, insbesondere bei niedrigen Brennstofftemperaturen. Das Spaltgas wird zum Teil im Gitter gelöst und zum Teil sammelt es sich in kleinen Blasen. Kommt es dann zur Überhitzung, dann wird die Bildung großer Blasen begünstigt. Es entsteht eine hochporöse Brennstoffstruktur. Durch Wanderung von Blasen kann der Brennstoff weiter umstrukturiert werden. Eine direkte Evidenz für Blasenwanderung erhält man aus verschiedenen Schlifffbildern der Prüflinge 2, 5 und 6. Im Anschluß an die hochporöse Zone findet man hier öfters eine Zone mit gestreckten Korn- und Blasenformen, was nach /20/ auf Blasenwanderung hindeutet. Diese Zonen sind natürlich in Bereichen, wo sowohl die Temperatur als auch der Temperaturgradient hoch genug sind. Um den Temperaturgradienten in einer hochporösen Zone exakt zu berechnen, müßte man sowohl den funktionalen Zusammenhang zwischen Wärmeleitfähigkeit und Porosität genauer kennen als auch die Verteilung der Wärmequellldichte.

Aus den gemessenen Hülldehnungen und den gemessenen Änderungen der Brennstoffsäulen läßt sich die Brennstoffdichte $\bar{\rho}_1$ zu Ende der Bestrahlung abschätzen. Berücksichtigen muß man dabei noch das Festkörperschwellen, da zu einer Verdichtung des Brennstoffs führt. In der Literatur werden dafür Werte von 0,6 - 0,9 %/ % FIMA angegeben /21/. Andererseits kann man aus an Schlifffen des Prüflings 5 gemessenen Porositätsverteilungen (siehe Abb. 29 und 30) die Brennstoffdichte berechnen. Diese Werte für die mittlere Dichte $\bar{\rho}_2$ unterscheiden sich von den Schätzwerten $\bar{\rho}_1$ um mehr als 6 % TD (siehe nachfolgende Tabelle):

Prüfling	Schnitt	$\bar{\rho}_1$ (%TD)	$\bar{\rho}_2$ (%TD)
5	3	78-82	88-89
5	2	78-82	88

Diese Diskrepanz kann einmal mit axialer Variation der Brennstoffdichte erklärt werden und zum anderen mit der Tatsache, daß sehr kleine Blasen ($d < 4 \mu\text{m}$) in der Messung nicht enthalten sind, da das Auflösungsvermögen begrenzt war. Speziell bei der verdichteten Zone dürfte das letztere entscheidend sein.

Im übrigen wird aber die Brennstoffstruktur von den Porositätsverteilungen sehr gut wiedergegeben. An eine schmale hochporöse Zone am Außenrand der Tablette schließt sich eine etwas breitere verdichtete Zone an ($\rho \sim 95 - 97 \% \text{ TD}$). Im Innern der Tablette nimmt die Porosität stark zu. Es wurden Werte bis zu 45 % gemessen.

In den Prüflingen 2, 5 und 6 ist es zu starken U/Pu-Entmischungen gekommen. Man sieht aus den α -Autoradiographien, daß es zu massiven Pu-Ansammlungen am Außenrand des Brennstoffs gekommen ist; die innere Zone des Brennstoffs weist eine starke Pu-Verarmung aus. Nach /22/ stellt die U/Pu-Entmischung in He-gebundenen Karbid-Stäben bis zu Zentraltemperaturen von 1800°C kein Problem dar, eine Aussage, die durch die Versuchsergebnisse von Mol 11/K1 und K2 bzw. Vg 6A und 6C bestätigt wird. Gesetzt den Fall, die Aussage von /22/ läßt sich auch auf Na-gebundene Stäbe ausdehnen, dann ist die starke U/Pu-Entmischung ein weiterer experimenteller Beweis für eine Überhitzung des Brennstoffs im Laufe des Betriebs. Damit das Pu aber überhaupt massiv nach außen wandern kann, muß ein nach außen bzw. nach den Rissen hin offenes Blasensystem vorhanden sein, wie bei den Prüflingen 2, 5 und 6. Beim Prüfling 9 ist das Blasensystem noch nicht in dem Maße entwickelt, was auch die relativ uniforme Verteilung des Pu erklärt. Aufgrund der kleinen Blasenwanderungsgeschwindigkeiten ist die Bildung eines Zentralkanals ein Langzeitphänomen, ebenso die Bildung eines verbundenen, nach außen hin offenen Blasensystems. Der Abbrand des Prüflings 9 ist um ca. 2 % FIMA kleiner als der der drei übrigen; dies mag der Grund für das unterschiedliche Verhalten dieses Prüflings sein.

Die Vermutung, daß es zu einer Überhitzung des Brennstoffes gekommen ist, wird also durch drei experimentelle Tatsachen gestützt:

1. Anomale Blasengröße und -Morphologie
2. Existenz von Zentralkanälen
3. massive U/Pu-Entmischung

Welche Erklärungen gibt es für eine solche Überhitzung des Brennstoffs? Da ist zum ersten die Frage, ob die Leistung nicht tatsächlich höher lag als von den Thermoelementen gemessen wurde. Dazu ist zu bemerken, daß erst ab Stableistungen von mehr als 1500 W/cm Brennstoffzentraltemperaturen von 1600°C und darüber erreicht werden. Auch wenn man berücksichtigt, daß die Leistungsbestimmung mit

Unsicherheit behaftet ist, scheint es doch unwahrscheinlich, daß so hohe Stableistungen erreicht wurden. Damit bleiben also noch zwei mögliche Ursachen:

1. Verlust der Na-Bindung
2. Kühlungsstörungen in der Kapsel

Eine exakte Berechnung der Brennstofftemperaturen - bei Verlust der Na-Bindung - ist nicht möglich, da man weder die Größe des Restspalts, noch die Gaszusammensetzung im Spalt kennt (bei Eintritt der Überhitzung). Unter der Annahme, daß die Bindung zu 30 % aus He und zu 70 % aus Spaltgas besteht, wurden der Wärmedurchgang und die Brennstoffrandtemperatur als Funktion des "heißen" Restspalts mit dem Programm GAPRS 1 /23/ berechnet. Die Ergebnisse sind in Abb. 31 zu sehen. Berechnet wurde der Wärmedurchgang bei einer konzentrisch liegenden Tablette. Dies erklärt den sehr steilen Anstieg des Wärmedurchgangs mit abnehmender Spaltbreite. Eine Berücksichtigung der realen Rißstruktur würde diesen Anstieg abflachen. Der bei den Rechnungen variierte Parameter dürfte also im Sinne einer "effektiven" mittleren Spaltbreite aufzufassen sein. Wie man aus Abb. 31 ersieht, liegen schon bei kleinen Werten dieses Parameters die Brennstofftemperaturen hoch genug, um die beobachteten Anomalien in der Brennstoffstruktur und Pu-Umverteilung zu erklären. Weiterhin legen diese Modellrechnungen den Schluß nahe, daß nicht die ganze Bindung verloren ging, sondern nur partiell, denn sonst müßte man eigentlich Brennstoffschmelzen erwarten.

Aus den Thermoelement-Schrieben läßt sich keine Kühlungsstörung in der Kapsel erkennen. Allerdings sind die Thermoelement-Paare nicht direkt an der Hülle angebracht, sondern auf den Flügeln des Kupferkreuzes. Wegen der relativ hohen Stableistung und wegen des extrem kleinen Hülldurchmessers müssen Kühlungsstörungen in Erwägung gezogen werden. War aber der Abtransport der Wärme aus der Hülle lokal gestört, dann müssen auch hohe Hülltemperaturen aufgetreten sein. Da aber keine Stabschäden festgestellt wurden, kann dies ausgeschlossen werden.

Viel wahrscheinlicher ist der teilweise Verlust der Na-Bindung im Stab durch freigesetztes Spaltgas. Die Wirkung von Spaltgasblasen in der Na-Bindung auf die Temperaturverteilung wird durch die Größe der Blase bestimmt und zwar durch ihre Ausdehnung in axialer und in Umfangsrichtung /24/. Die Größe der Blase ist aber auch in Relation zur Länge der Tablettensäule und zum Tablettendurchmesser zu setzen. Bei den Prüflingen von Mol 15 waren beide Werte extrem

klein, was den Effekt von Spaltgasblasen in der Bindung sicher akzentuierte. Je größer der Anteil am Tablettenumfang ist, der durch die Blase bedeckt wird, umso stärker ist auch die azimutale Variation im Wärmestrom. Ist die Hälfte des Umfangs bedeckt, dann liegt nach /24/ das Maximum des Wärmestroms um mehr als einen Faktor 2 über dem Wert bei völlig intakter Na-Bindung. Eine Blase in der Bindung führt zu einer exzentrischen Temperaturverteilung im Brennstoff, da die Wärme nicht mehr gleichmäßig abgeleitet wird. Dies hat Asymmetrien im Brennstoffschwellen und damit in der Porenverteilung zur Folge. Solche Asymmetrien sind auf einigen Schliffbildern (siehe Anhang II) deutlich zu sehen.

Nur bei einigen Schliffbildern sind Spuren von Na zu erkennen. Ob das Na beim Zerschneiden der Prüflinge infolge einer lokalen Erhitzung weggelaufen ist oder schon bei Abbrandende an diesen Stellen nicht mehr vorhanden war, kann im nachhinein nicht mehr entschieden werden.

Das Brennstoffschwellen läßt sich aus der Längung des Brennstoffs $(\Delta l/l)_f$ und aus den gemessenen Hülldehnungen $(\frac{\Delta d}{d})_H$ berechnen, gemäß der Gleichung:

$$\frac{\Delta v}{v} = 2 \left(\frac{\Delta d}{d}\right)_f + \left(\frac{\Delta l}{l}\right).$$

Die Größe $(\frac{\Delta d}{d})_f$ kann aus $(\frac{\Delta d}{d})_H$ und der Fertigungsspaltbreite berechnet werden. Da $(\frac{\Delta d}{d})_H$ klein ist, fällt seine axiale Variation nicht ins Gewicht. Aus $\frac{\Delta v}{v}$ und dem Abbrand lassen sich die mittleren Schwellraten berechnen.

In Tabelle sind die interessierenden Größen zusammengestellt. Danach ist - was das Schwellen anbetrifft - kein entscheidender Unterschied zwischen den Prüflingen mit hohem und denen mit niedrigem M_2C_3 -Gehalt festzustellen. Die mittleren Schwellraten liegen deutlich über den in /25/ publizierten Werten für Na-gebundene Stäbe mit mäßigem Abbrand. Dabei ist noch zu bedenken, daß die Schwellraten zu gewissen Zeiten (bei Verlust der Bindung) noch sehr viel höher als die mittleren Schwellraten gewesen sein müssen.

Bemerkenswert sind die geringen Hülldehnungen und die niedrige Gasfreisetzung. Das letztere ist bei den hochporösen Brennstoffstrukturen umso erstaunlicher. Der Gedanke liegt also nahe, daß es erst relativ spät zu einem Verlust der Bindung gekommen sein muß. Wenn man die von amerikanischer Seite /25/ publizierten Werte für Hülldehnungen auf einen Abbrand von 9 %

FIMA linear extrapoliert, dann müßte man mit Hülldehnungen von weit über 1 % rechnen, in deutlichem Gegensatz zum experimentellen Befund. Wie aus den Werten für $\frac{\Delta l}{l}$ zu ersehen ist, hatte der Brennstoff gute Möglichkeiten in axialer Richtung zu schwellen, was natürlich die Hülle entlastet.

Tabelle 10 : Axiales und radiales Schwellen des Brennstoffs

Prüfling	M ₂ C ₃ -Gehalt (%)	($\Delta d/d_f$) (%)	$\Delta l/l$ (%)	$\Delta V/V$ (%)	A (MWd/kgM)	$\frac{\Delta V}{V} / A$ (%/10MWd/kgM)
2	10	10,9	4,2	26,1	90,5	2,9
6	10	10,9	9,0	30,8	93,0	3,3
5	75	7,5	7,4	22,3	96,0	2,3
9	75	7,5	11,0	25,9	73,4	3,5

Aufgrund der Wärmespannungen reißen die Brennstofftabletten schon beim ersten Anfahren auf. Die Bruchstücke können sich nun verkeilen. Dies kann zu lokalen Hüllbelastungen durch Festkörperdruck führen, da dann der Spalt zwischen Hülle und Brennstoff dem Schwellen nicht mehr voll zur Verfügung steht. Ein solcher Wechselwirkungs-Mechanismus ist höchstwahrscheinlich nicht axial-symmetrisch. Es müssen sich also in den Hüllverformungen Ovalitäten zeigen /26/. Für die Prüflinge 9 bis 6 wurden diese aus den Durchmesserschriften über die ganze Länge des Prüflings bestimmt und in der Abb. 32 aufgetragen. Auf der Höhe der Brennstoffsäulen findet man z.T. sehr hohe Werte, verglichen mit dem Plenumsbereich. Man findet ausgeprägte Spitzen in den Verteilungen. Dies zeigt, daß die Wechselwirkung in hohem Maß axial-unsymmetrisch und lokal aufgetreten ist, also höchstwahrscheinlich auf das Verkeilen von Tablettenbruchstücken zurückzuführen ist.

11. Zusammenfassung und Schlußfolgerung

Das Experiment Mol 15 stellt die erste Kapselbestrahlung Na-gebundener Karbidstäbe im Rahmen des Projektes Schneller Brüter dar. Es wurden insgesamt 6 Prüflinge in Harwell hergestellt und mit Na gefüllt. Die Herstellung verlief reibungslos, wobei die Na-Bindung von besonderem Interesse war und daher sehr gründlich geprüft und dokumentiert wurde. Es zeigte sich bei der Herstellung der Bindung, daß durch gezielte Weiterbehandlung eine zunächst schlechte Bindung erheblich verbessert werden kann. Im BR2 in Belgien wurden 4 dieser Prüflinge in einer Kapsel (NaK-Kühlung) im thermischen Fluß bestrahlt. Der erzielte Abbrand lag bei ca. 9 % FIMA. Stabdefekte traten während der Bestrahlung nicht auf. Die ursprünglich spezifizierte Stabileistung von 1500 W/cm ($T_{\text{Hülle}} = 630^{\circ}\text{C}$) wurde aufgrund von Erfahrungen mit dem Experiment DFR 330/1 auf 1000 W/cm begrenzt, wodurch die Hülltemperatur auf 460°C zurückging. Hierdurch wurde die Aussagekraft des Experiments hinsichtlich einer Aufkarburierung der Hüllen etwas eingeschränkt.

Aufgrund der anomalen Brennstoffstruktur - große miteinander verbundene Poren sowie massive Pu-Umverteilung - wird auf eine beträchtliche Überhitzung des Brennstoffs geschlossen, deren Ursache in einem teilweisen Austreiben des Na aus dem Spalt durch die geringe Länge der Tabletten säule und durch den kleinen Stabdurchmesser begünstigt wurde. Das massive Schwellen durch Spaltgasblasen infolge Überhitzung überdeckt auch mögliche Unterschiede im Brennstoffschwellen für MC bzw. M_2C_3 -Brennstoff.

Zusammenfassend können aus dem vorliegenden Bestrahlungsexperiment folgende Antworten auf die gestellten Fragen gegeben werden:

- Die Hüllaufweitungen sind verhältnismäßig gering, lokale Spitzen sind auf mechanische Wechselwirkungen mit Tablettenbruchstücken zurückzuführen.

- Eine Unterscheidung zwischen freien und behinderten Schwellraten ist nicht möglich, da der Kontaktzeitpunkt nicht bestimmt werden konnte. Ein signifikanter Unterschied in den Schwellraten des MC- bzw. M_2C_3 -Brennstoffes wurde nicht festgestellt.
- Die Brennstoffstruktur ist charakterisiert durch eine ausgedehnte hochporöse Zone im Innern der Tabletten, gefolgt von einem schmalen hochdichten Ring, an den sich wiederum eine Zone geringerer Dichte anschließt.
- Die Spaltgasfreisetzung erreicht Werte bis 28 %. Deutliche Pu- und Spaltproduktentmischungen deuten auf überhöhte Brennstofftemperaturen hin, welche sich durch Verlust der Na-Bindung während des Betriebes erklären lassen.
- Außer einer leichten Aufkarburierung ist keine chemische Wechselwirkung erkennbar. Vermutlich infolge der niedrigen Hülltemperatur ist ein Einfluß des hohen M_2C_3 -Gehaltes der einen Brennstoffvariante bei der Aufkarburierung der Hülle nicht nachweisbar.

Schließlich ist festzustellen, daß ein Schluß auf das Verhalten langer, Na-gebundener Stäbe nicht ohne weiteres möglich ist.

Literatur:

- /1/ D. Freund:
Die wesentlichen Brennstab- und Bündelexperimente,
Beitrag XVI im KFK 1999, Sept. 1974
- /2/ A. Gerken:
Grundspezifikation für das Schwell- und Verträglichkeitsexperiment
zum HLB-Brennstoff im BR2, Mol 15 (unveröffentlicht)
- /3/ W. Hebel:
Irradiation of UO_2 - PuO_2 fuel pins in a thermal neutron flux,
Project Mol 13 (unveröffentlicht)
- /4/ P. Dirren:
Irradiation at BR2 of $(U,Pu)C$ und $(U,Pu)_2C_3$ rods for GfK/Karlsruhe
Project Mol 15-1 (unveröffentlicht)
- /5/ L. Steinbock:
Das Brennstab-Auslegungs- und Überwachungssystem MERKUR,
KFK 2163, Sept. 1975
- /6/ D. Smidt:
Reaktortechnik Band 1, S. 177, 1970, Karlsruhe, G. Braun
- /7/ G. Clottes et al.:
Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors, Bruxelles, 2 - 6 July 1973,
Vol. 2, Vienna: IAEA 1974, S. 113
- /8/ H. Blank:
On the Driving Forces for Bubble Growth and Swelling in MX-Type
Fast Breeder Fuels, Journ. of Nucl. Mat. 58, S. 123, 1975
- /9/ D. Freund, G. Mühling:
Brennstoffspezifikation für das Bestrahlungsexperiment Mol 15,
Teil I: MC-Typ (unveröffentlicht)

- /10/ G. Mühling:
Brennstoffspezifikation für das Bestrahlungsexperiment Mol 15,
Teil II: M_2C_3 -Typ, (unveröffentlicht)
- /11/ D. Freund:
Mol 15 - Specification of Sodium Bonded Fuel Pins with Mixed Carbide Fuel,
(unveröffentlicht)
- /12/ O. Jacobi, R. Scherwinsky:
Mol 15 Dokumentation, (unveröffentlicht)
- /13/ K. Richter:
Preparation of $(U,Pu)_2C_3$, (unveröffentlicht)
- /14/ Fertigungsbericht ALKEM (unveröffentlicht)
- /15/ G. Mühling, O. Jacobi:
Abnahme der Na-gebundenen Karbidstäbe für Mol 15 in Harwell
(unveröffentlicht)
- /16/ B. Schweigel:
persönliche Mitteilung
- /17/ A. Wertenbach:
persönliche Mitteilung
- /18/ R. Paris:
Some Observations on the Micro Structures of Mixed Carbide Fuel
Irradiated upto 10 % Burn up of Heavy Atoms, AERE-7804, Aug. 1974
- /19/ D. Freund, H. Elbel, H. Steiner:
Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der UC- und (U,Pu)C-Brenn-
stäbe der Versuchsgruppen Mol-11/K1 und Mol-11/K2, KFK 2268, Juni 1976
- /20/ C. Ronchi, C. Sari:
Swelling Analysis of Highly Rated MX-Type LMFBR Fuels,
Journ. of Nucl.Mat. 58, S. 140, 1975

- /21/ A. Groff:
Contribution à l'étude du dégagement des gaz de fission et du gonflement des combustibles nucléaires de type carbure UC et $(U_{0,8} Pu_{0,2})C$, CEA-R-4742
- /22/ H. Kleykamp:
Mikrosondenuntersuchungen an bestrahlten Carbid-Brennstäben:
Das Bestrahlungsexperiment Mol 11;
Beitrag zur Reaktortagung 1976, Düsseldorf, S. 542
- /23/ H. Steiner:
Entwicklung eines Programms zur Berechnung der Wärmeübergangszahl in Karbid-Stäben mit He-Bindung, (unveröffentlicht)
- /24/ E.H. Novendstern and A.A. Bishop:
Temperature Distribution caused by Gas Bubbles in a Sodium Bonded Fuel Rod, Chem.Eng.Progr.Symp. Series 92, Vol 65, S. 131, 1969
- /25/ T.W. Latimer, et al.:
Postirradiation Results and Evaluation of Sodium-Bonded Uranium-Plutonium Carbide Fuel Elements Irradiated in EBR-II,
Interim Report, LA-6077 MS, Dez. 1975
- /26/ J.F. Kerrisk, et al.:
Cladding Ovalities in Advanced Liquid-Metal Fast Breeder Reactor Elements, Nucl.Techn. Vol. 30, S. 361, Sept. 1976

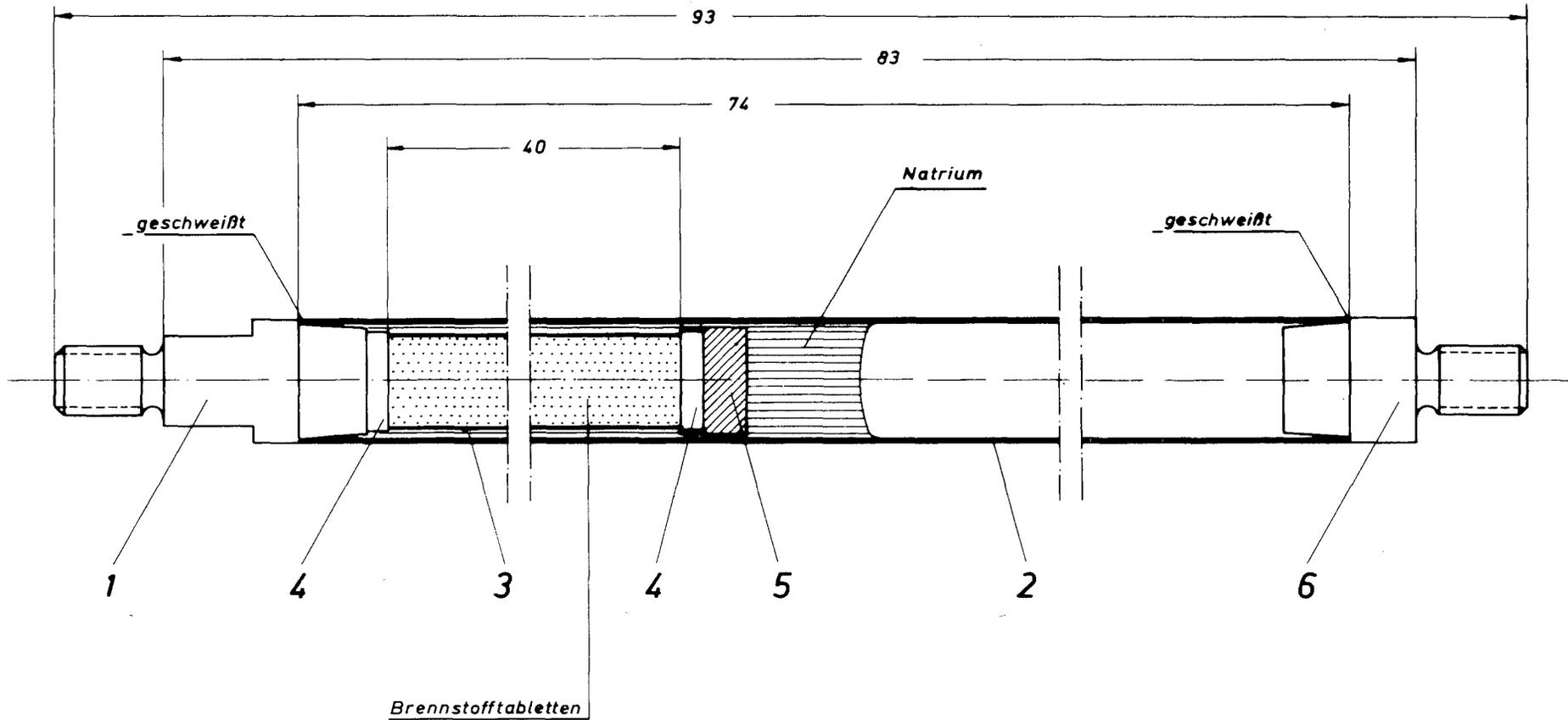
N o m e n k l a t u r

S	=	Wärmequellendichte
ϕ	=	Neutronenfluß
ϕ_{th}	=	thermischer Neutronenfluß
ϕ_f	=	schneller Neutronenfluß
χ	=	lineare Stabileistung
T_{Hi}	=	Hüllinnentemperatur
T_{Ha}	=	Hüllaußentemperatur
λ_H	=	Wärmeleitfähigkeit der Hülle
λ_f	=	Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs
λ_{Na}	=	Wärmeleitfähigkeit des Natriums
r_a	=	Brennstoffaußenradius
r_i	=	Brennstoffinnenradius
r_{Ha}	=	Hüllaußenradius
r_{Hi}	=	Hüllinnenradius
l	=	Länge der Brennstoffsäule
$(\Delta d/d)_f$	=	Zuwachs des Tablettendurchmessers bis zum Abbrandende
$(\Delta d/d)_H$	=	Zuwachs des Hülldurchmessers bis zum Abbrandende
$\bar{\rho}_1$	=	mittlere Brennstoffdichte (geschätzt)
$\bar{\rho}_2$	=	mittlere Brennstoffdichte (aus den gemessenen Porositätsprofilen berechnet)

A N H A N G I

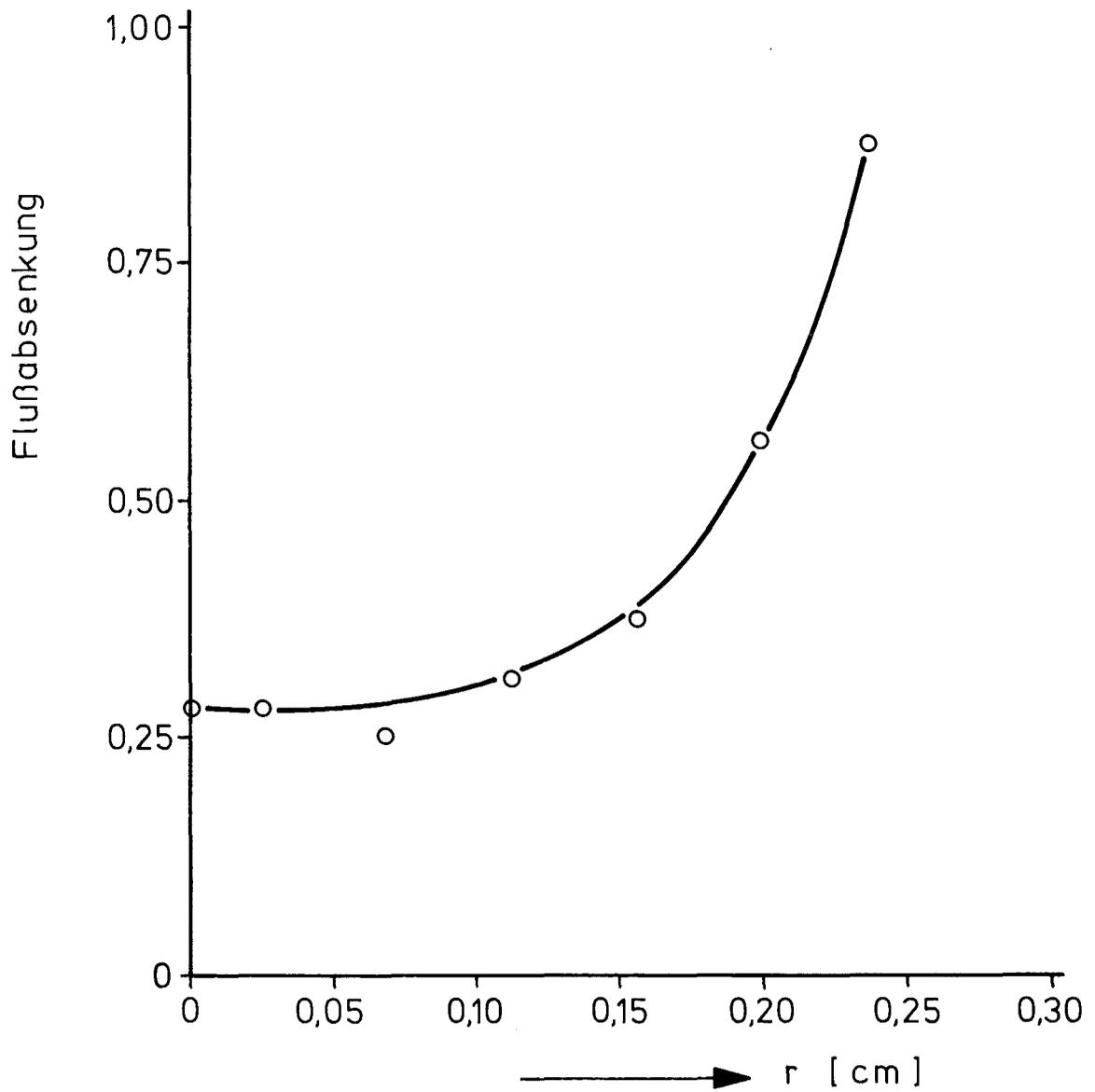
Abbildungen und Diagramme

1 bis 32



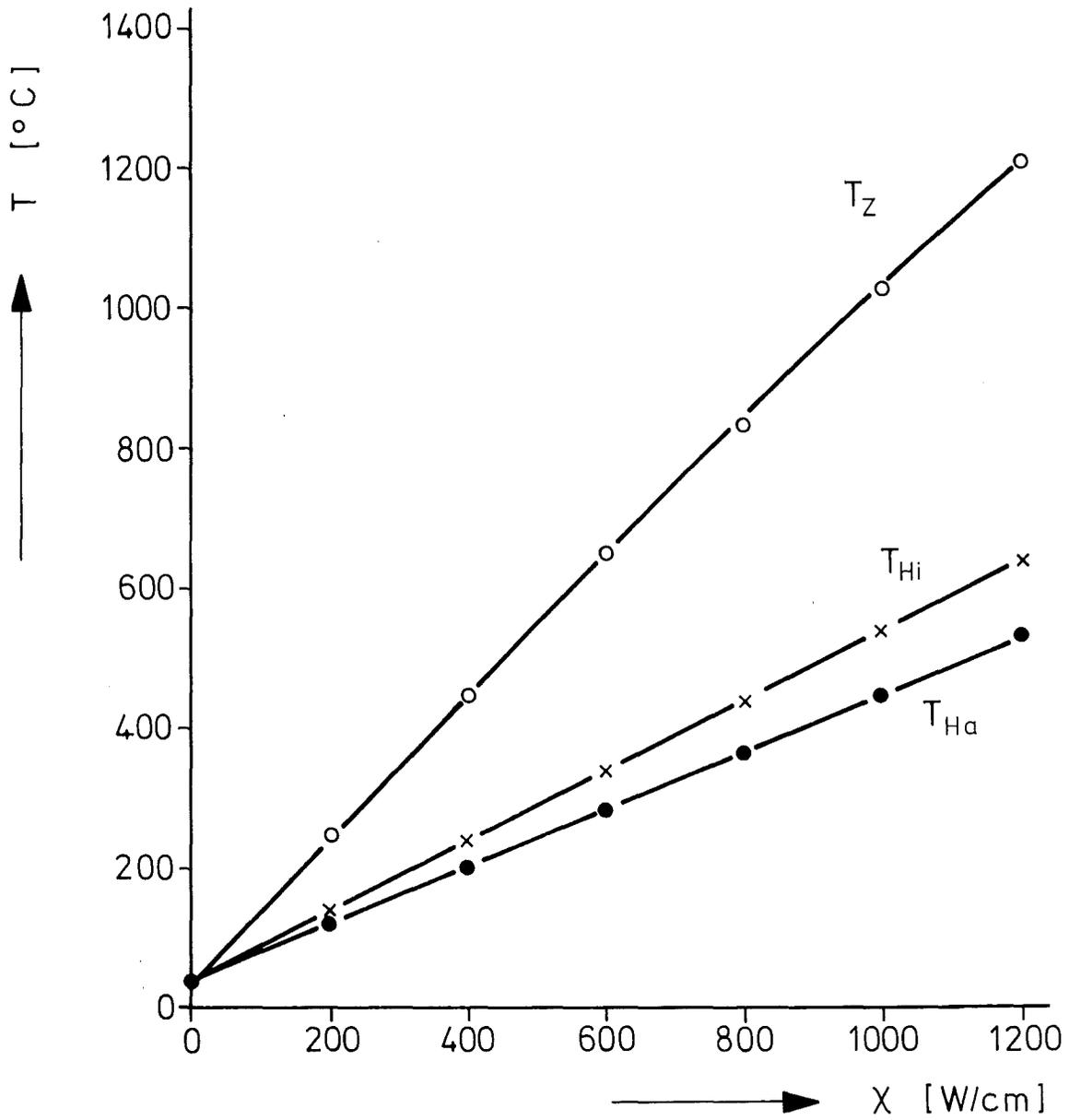
6	1	Oberer - Endstopfen														RBI-IMF-4-2304
5	1	Führungsstück														RBI-IMF-4-2303
4	2	Rhodium - Scheibe														RBI-IMF-4-2302
3	1	Rohr														RBI-IMF-3-2301
2	1	Hüllrohr														RBI-IMF-4-2300
1	1	Unterer - Endstopfen														RBI-IMF-4-2299
Teil	Stück	Benennung					Werkstoff	Abmessung		Zulassung, Nr. Norm					Bemerkung	
Oberflächenzeichen		~	▽	▽▽	▽▽▽	▽▽▽▽	Freimaßtoleranz	Ma 6	Ma 6 bis 20	Ma 20 bis 100	Ma 100 bis 200	Ma 200 bis 500	Ma 500 bis 1000	Ma 1000 bis 2000		
Rauhtiefe max. in µ		1000	40	10	4	1,5		± 0,1	± 0,2	± 0,5	± 0,5	± 0,8	± 1,2			
19 92	Tag	Name		Werkstoff		Gesellschaft für Kernforschung m. b. H. 7500 Karlsruhe Postfach 947					Zugel. Zulag.					
gez.	8. 11	ka									Ersatz für					
gepr.		[Signature]									Ersatz durch					
gez.											Zulassung Nr.					
Maßstab		Benennung				Brennelement MOL 15					Zulassung Nr. RBI-IMF-3-2298					
5:1																

Abb. 1



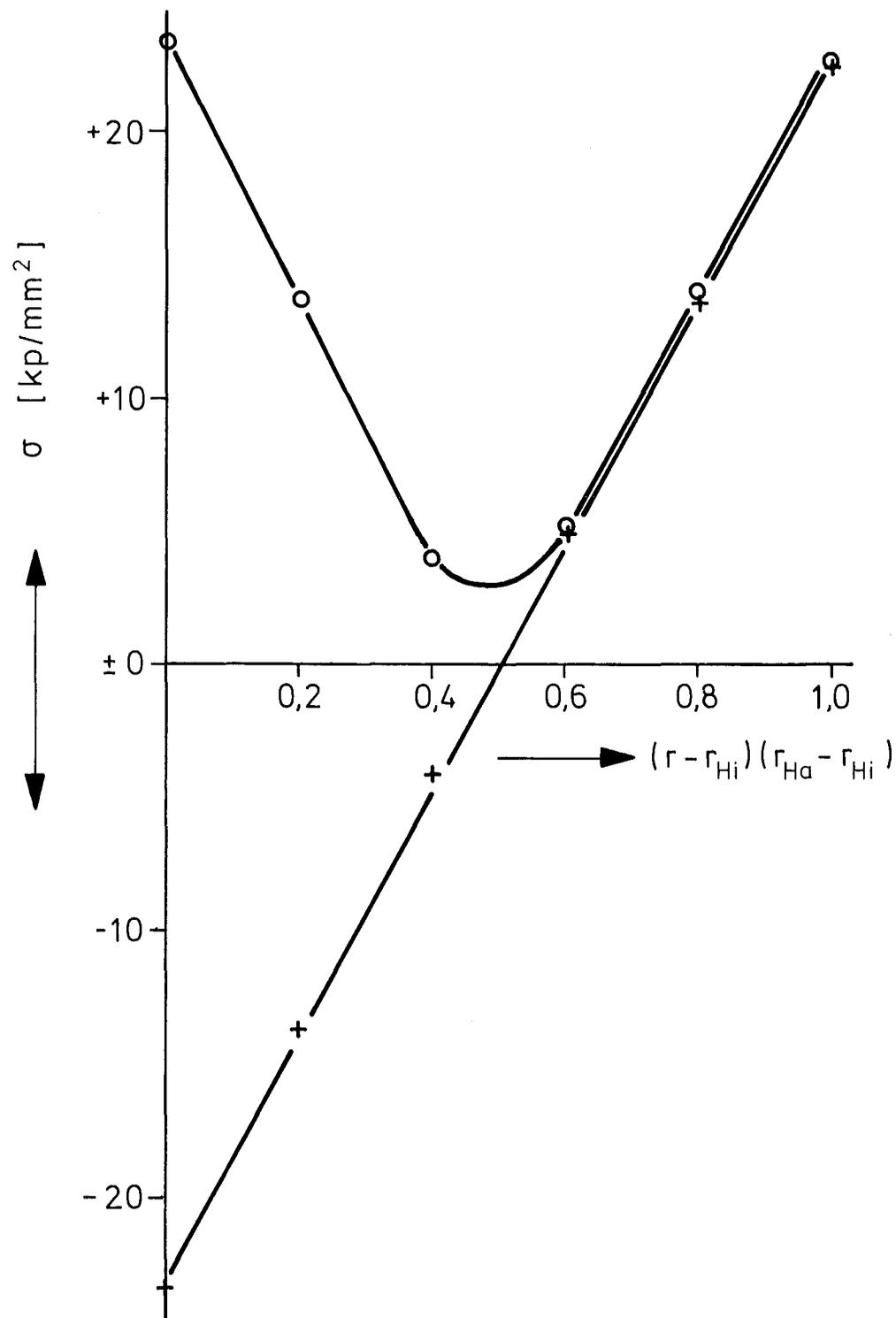
Flußabsenkung bei einer Stab-
leistung von 900 W/cm /5/

Abb. 2



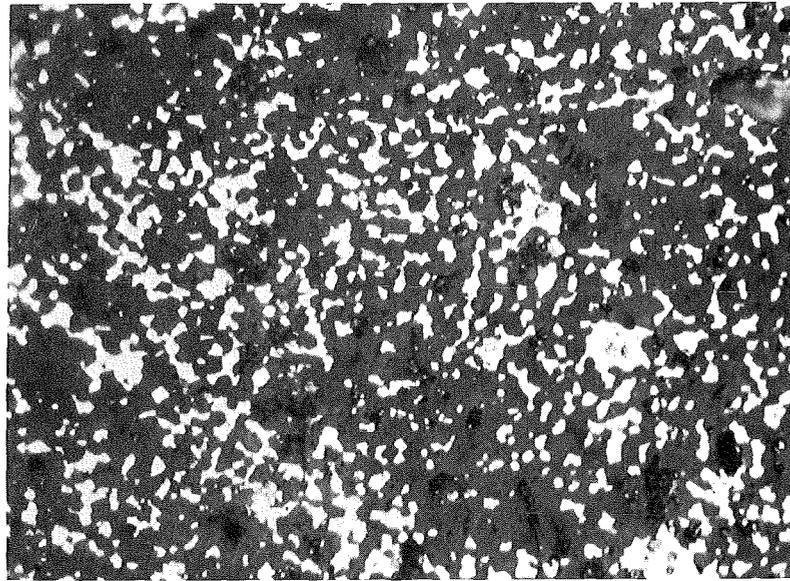
Zentraltemperatur T_Z , Hüllinnen- und Hüllaußentemperatur T_{Hi} , T_{Ha} , als Funktion der Stableistung χ

Abb. 3



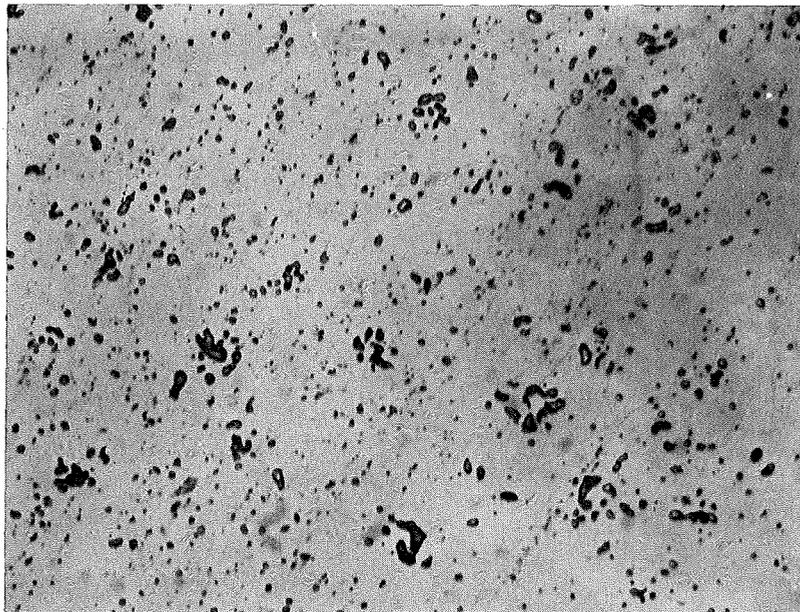
Radiale Verteilungen der Tangential- und Äquivalenzspannung σ_t, σ_{eq} in der Hülle bei Vollast ($\chi = 1050 \text{ W/cm}$)

M_2C_3
dunkel



MC
weiß

500 ×



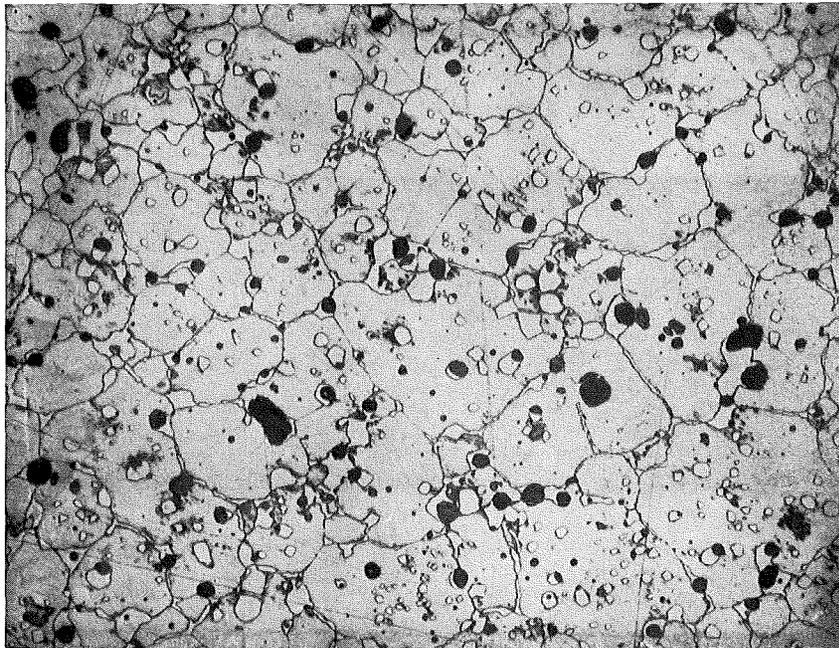
$(U_{0,75}Pu_{0,25})_2C_3$ ungeätzt 500 ×

Keramografie einer $(U,Pu)_2C_3$ Tablette

Abb. 5



Porenstruktur 100 x



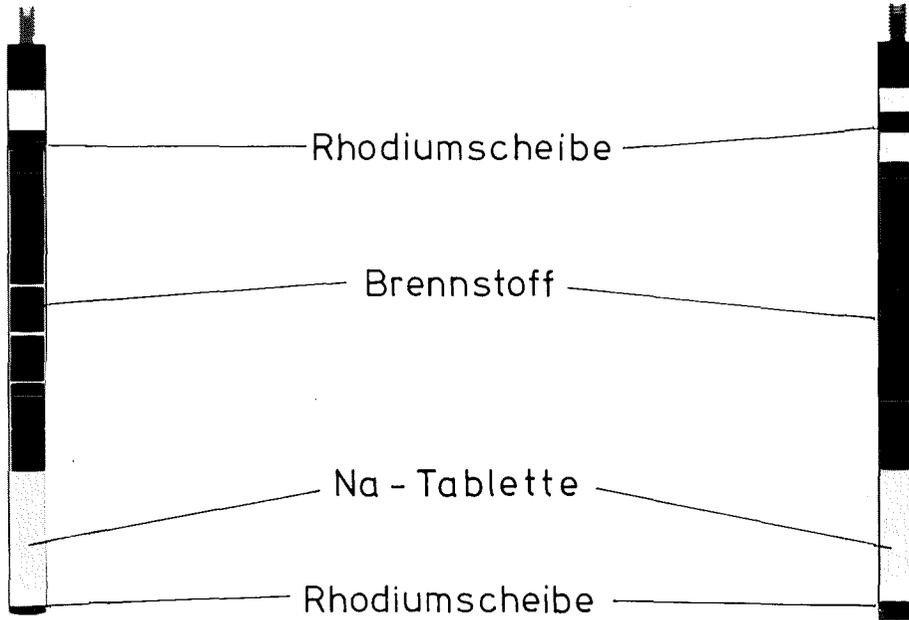
Gefügestruktur geätzt 300 x

Keramografie einer (U,Pu)C Tablette

Abb. 6

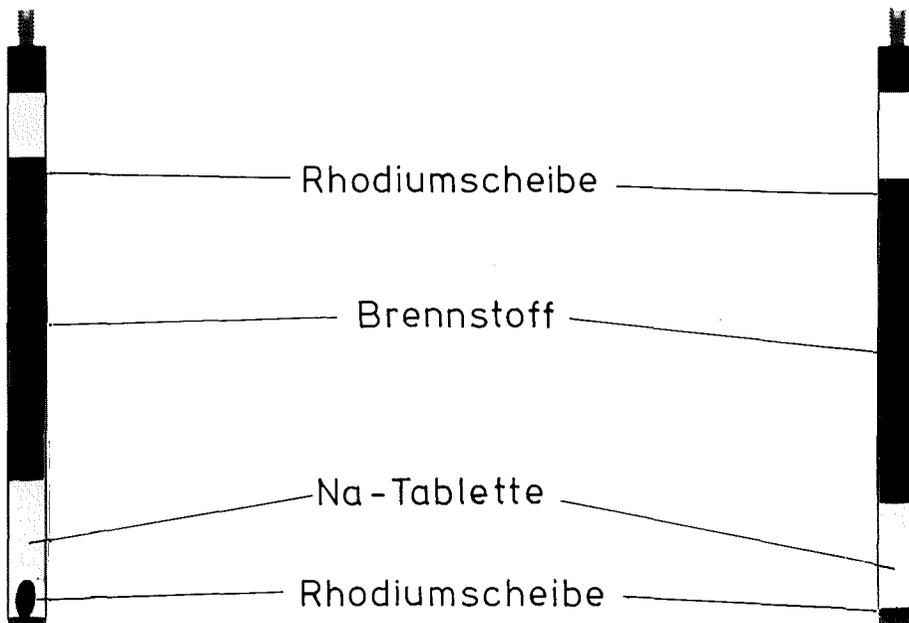
Stab 9

Stab 2



Stab 5

Stab 6

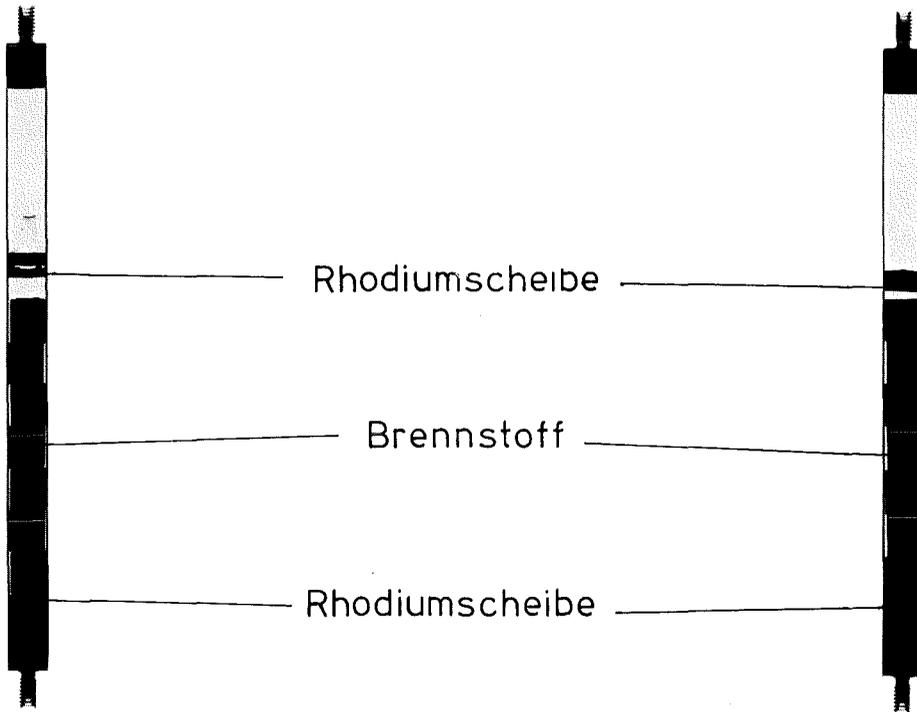


Röntgendurchleuchtung vor der
Na - Bindung

Abb. 7

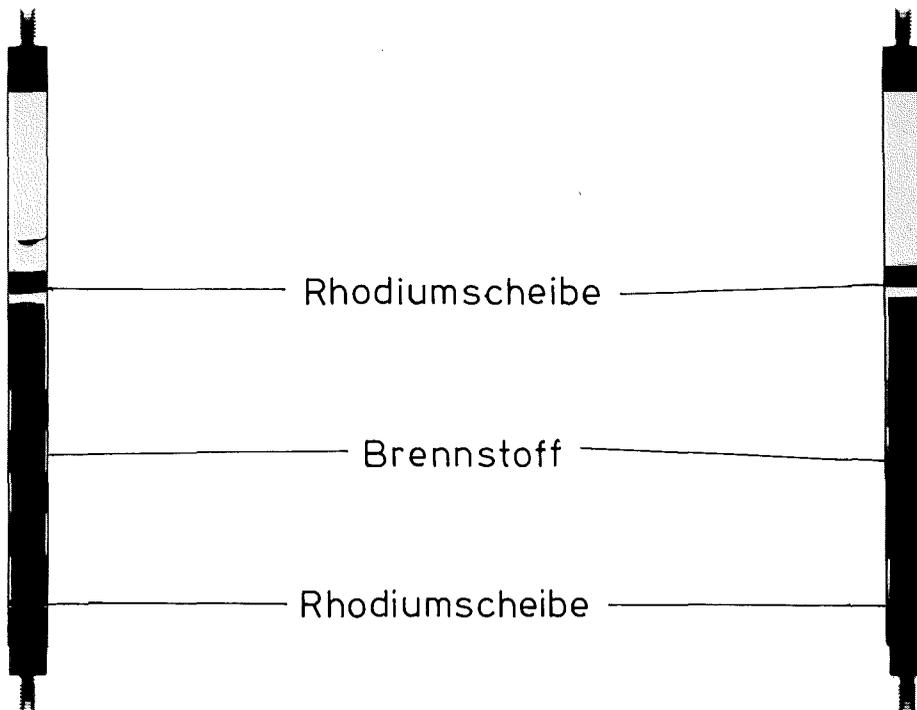
Stab 9

Stab 2



Stab 5

Stab 6



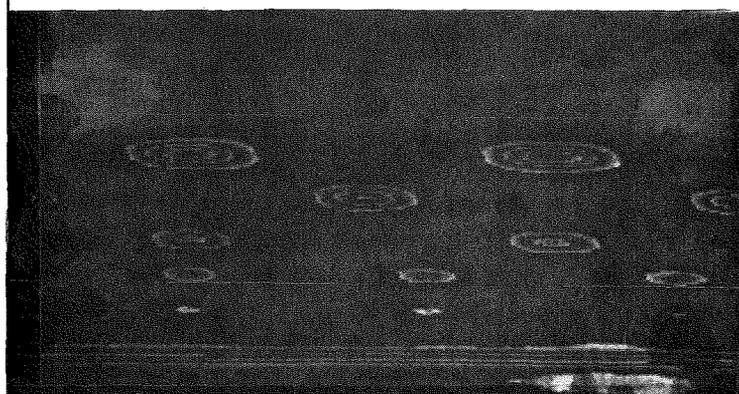
Röntgendurchleuchtung nach der
Na - Bindung

Abb. 8

0° → φ

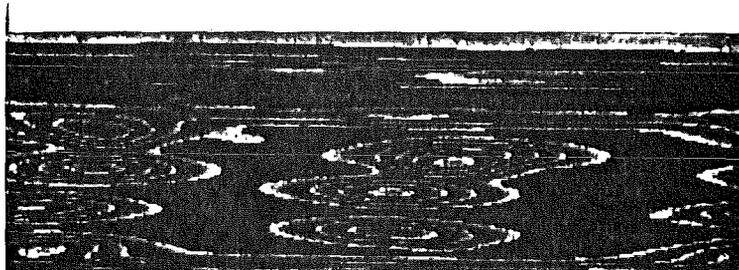
$d \times \pi$

360°



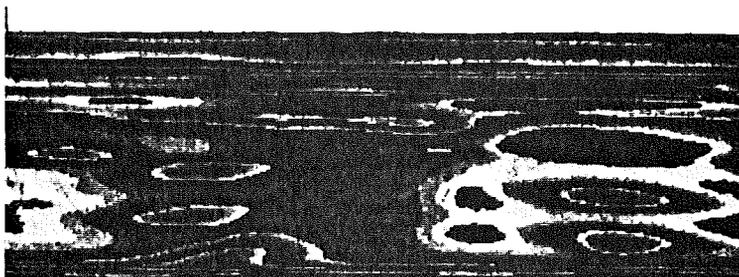
Testrohr

- ← ϕ 3,5 mm
- ← ϕ 3,0 "
- ← ϕ 2,5 "
- ← ϕ 2,0 "
- ← ϕ 1,5 "



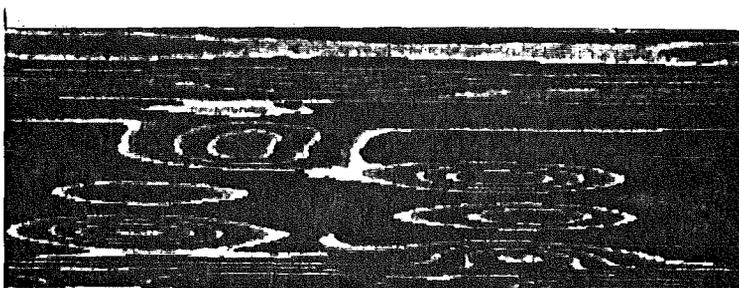
Brennstoff

Stab 9



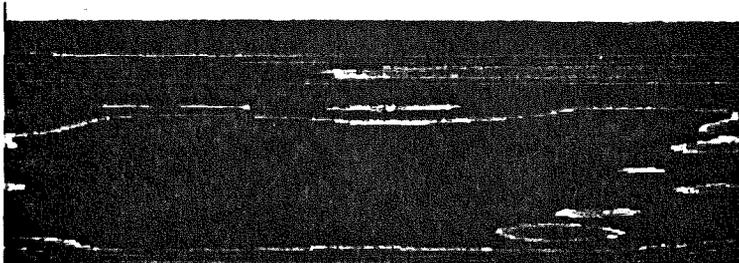
Brennstoff

Stab 2



Brennstoff

Stab 5



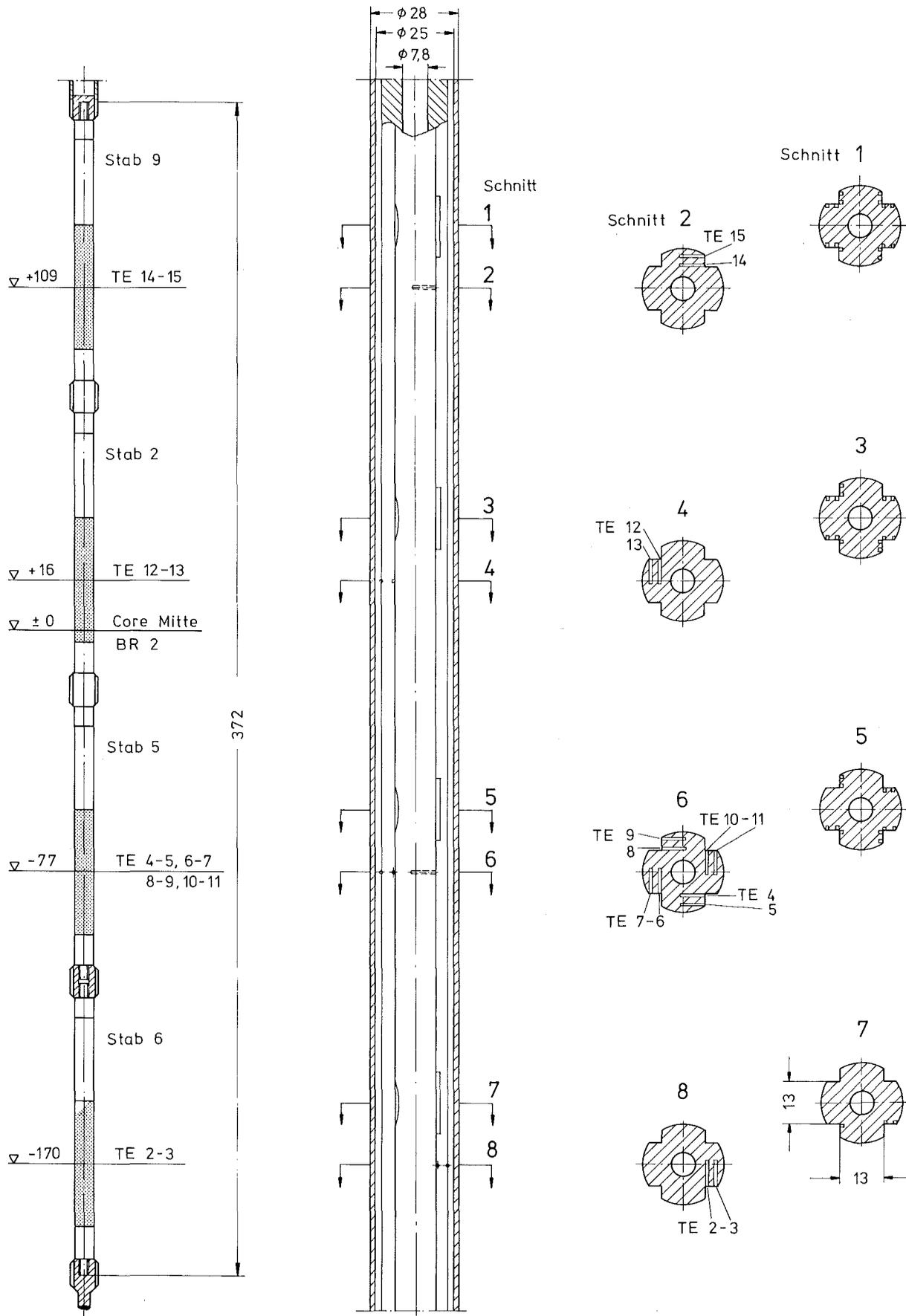
Brennstoff

Stab 6

unten

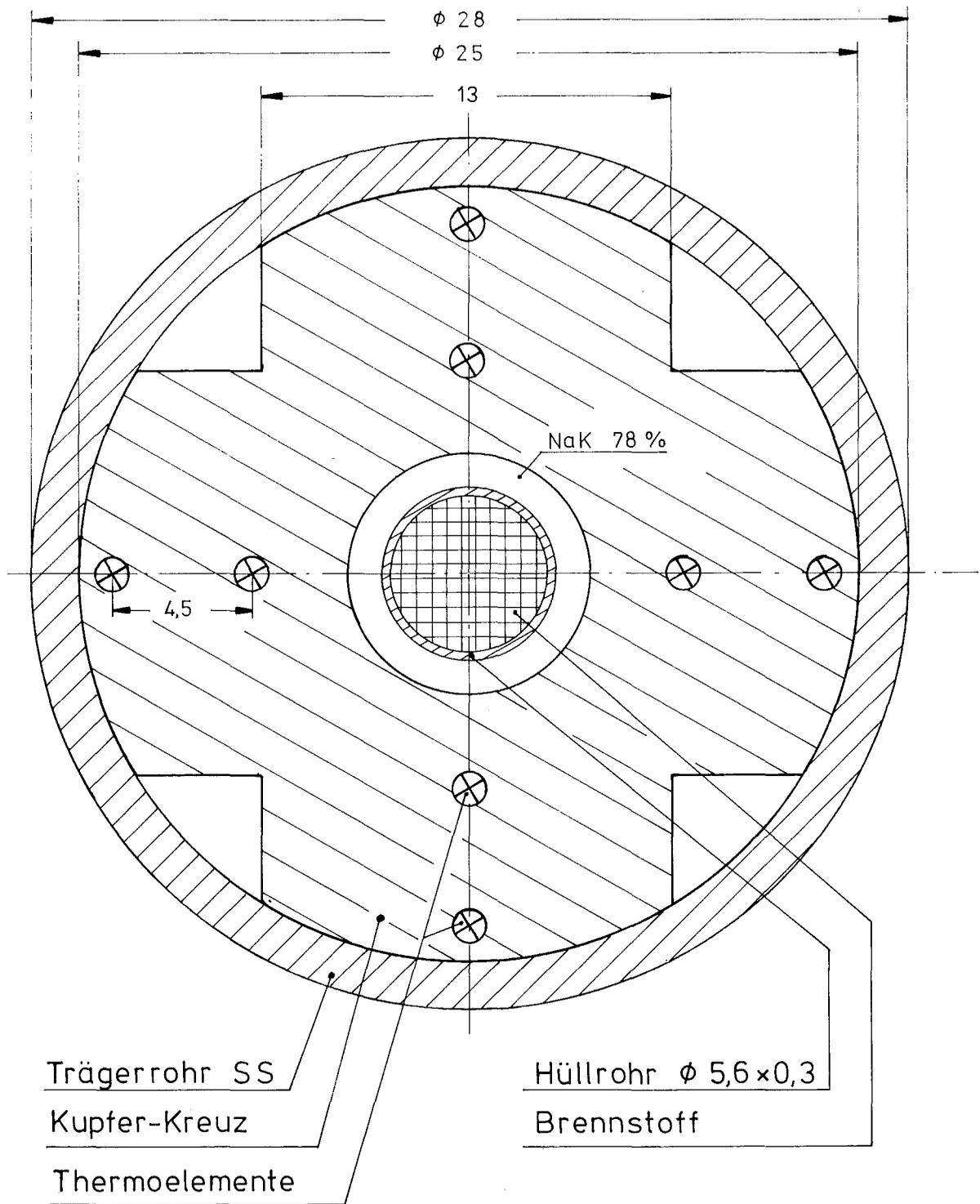
Wirbelstromprüfung nach der
Na - Bindung

Abb. 9



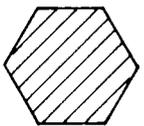
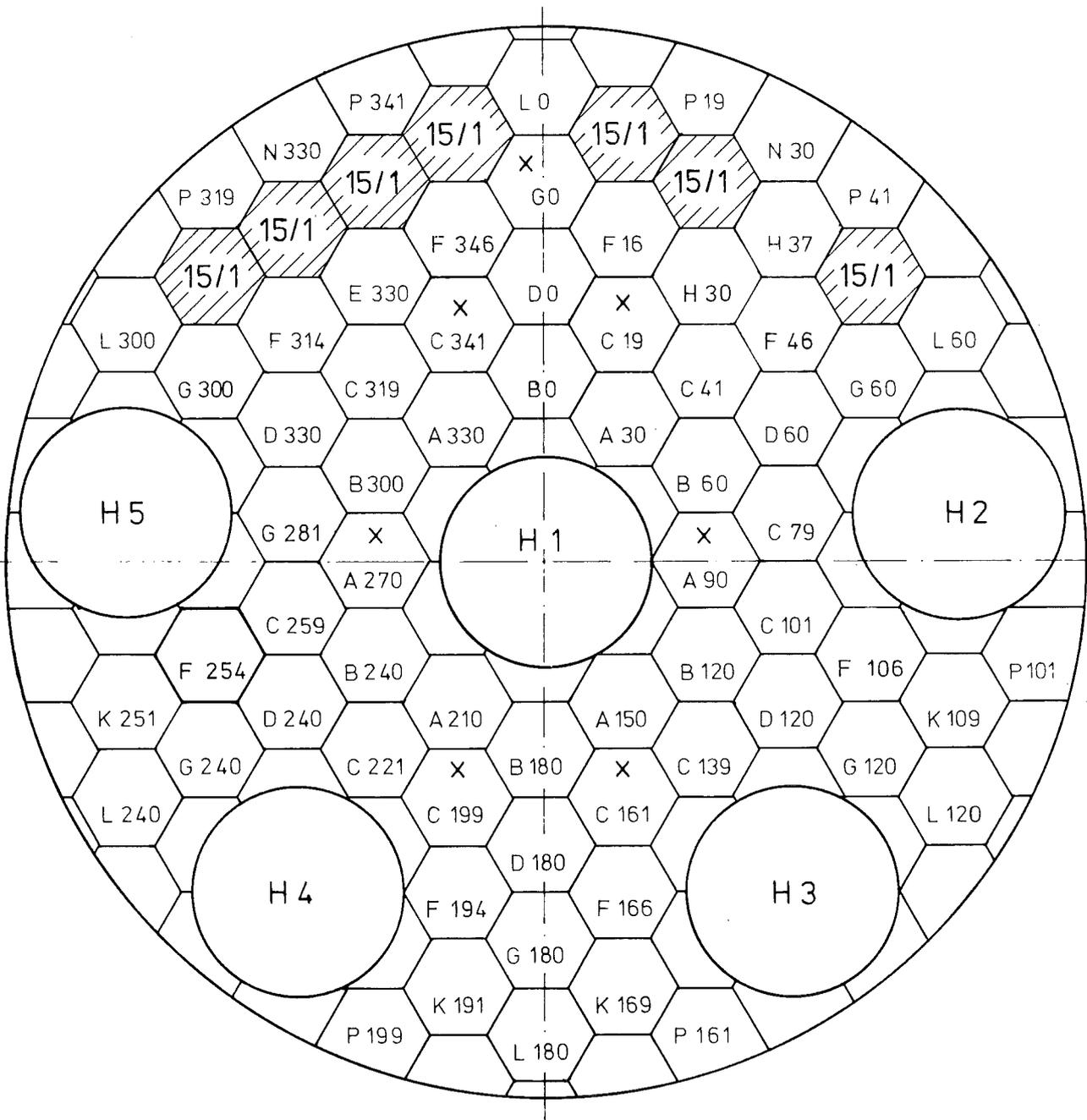
Schematische Darstellung der Kupferkreuz-Kapsel im Längsschnitt mit Instrumentierung

Abb. 10



Schematische Darstellung der Kupferkreuz-Kapsel im Querschnitt

Abb. 11

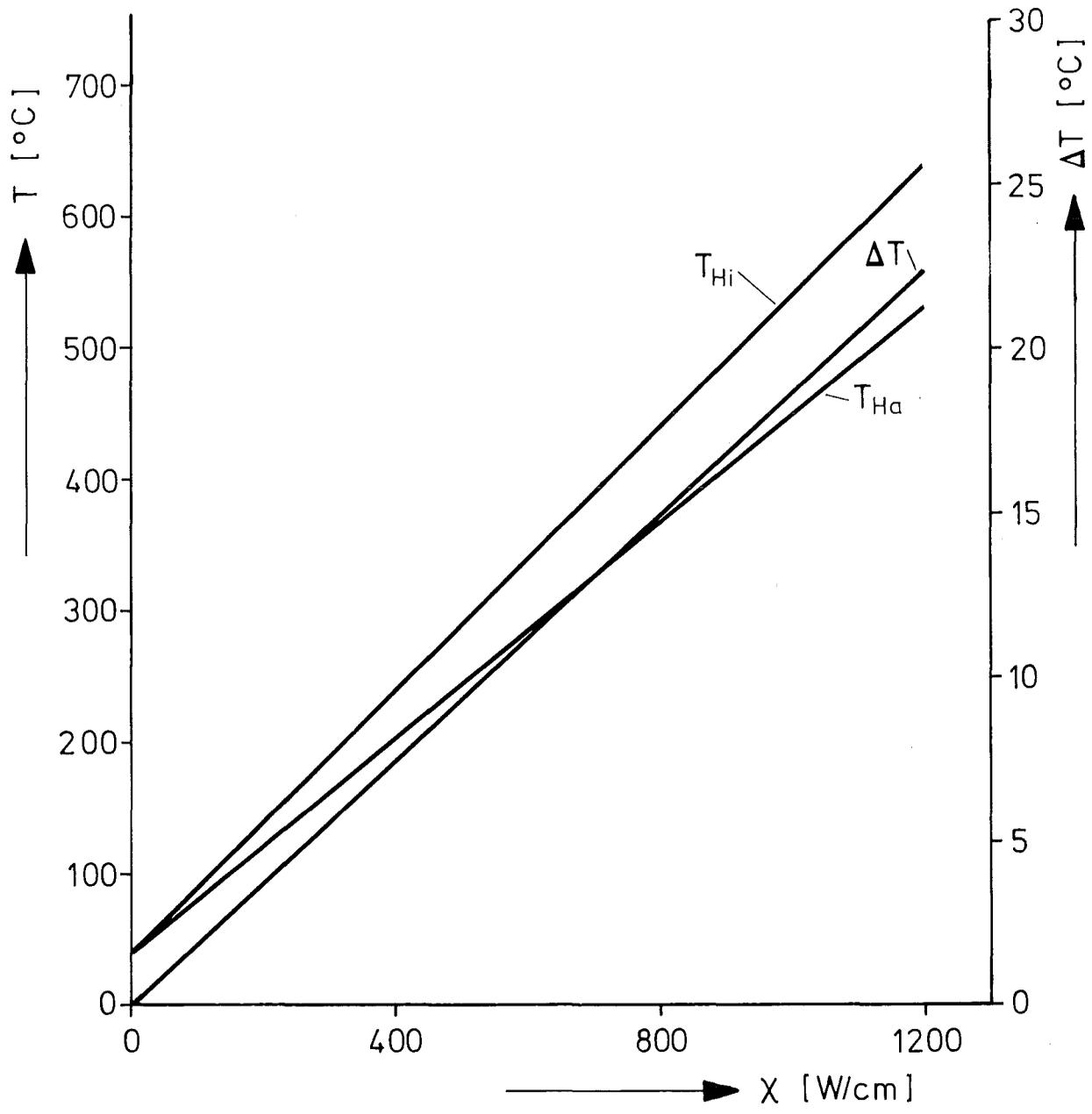


Bestrahlungskanal

x Regelstab

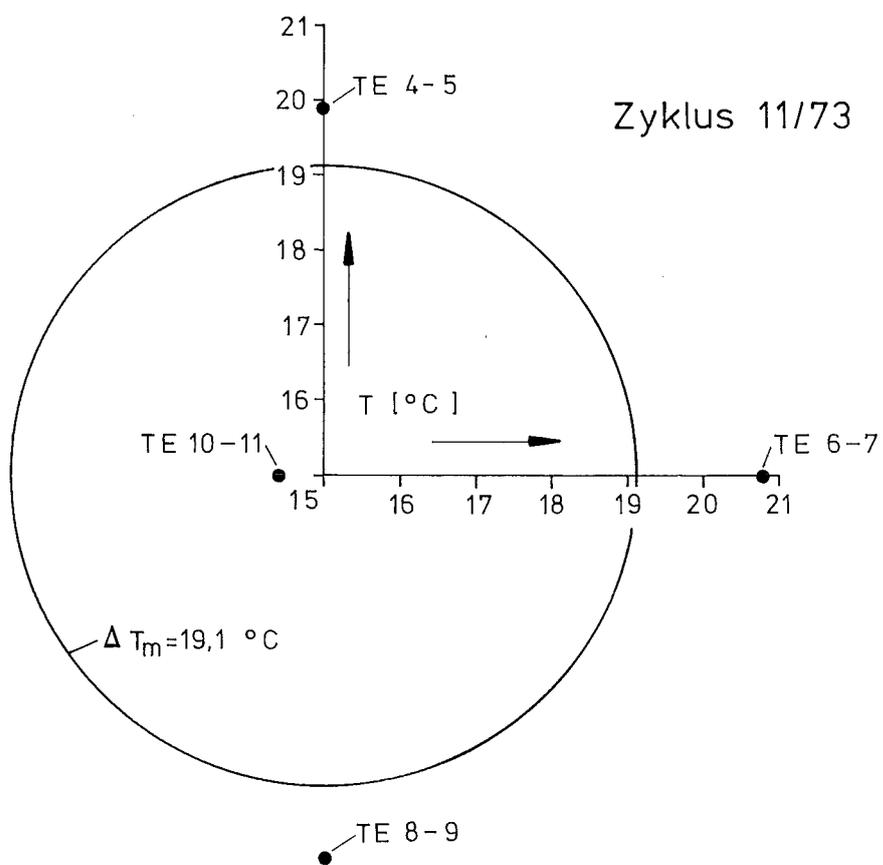
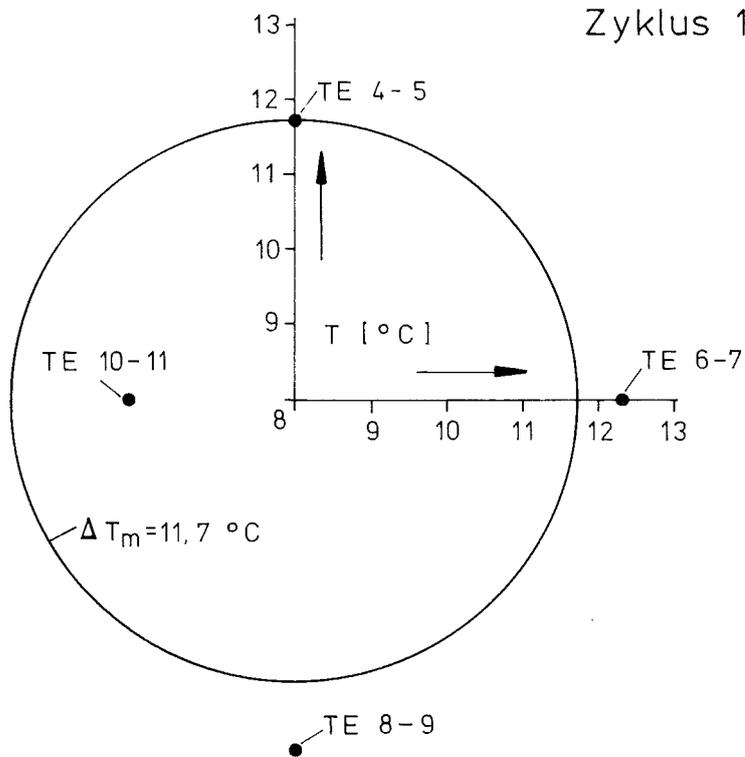
Positionskarte BR 2-Core

Abb. 12



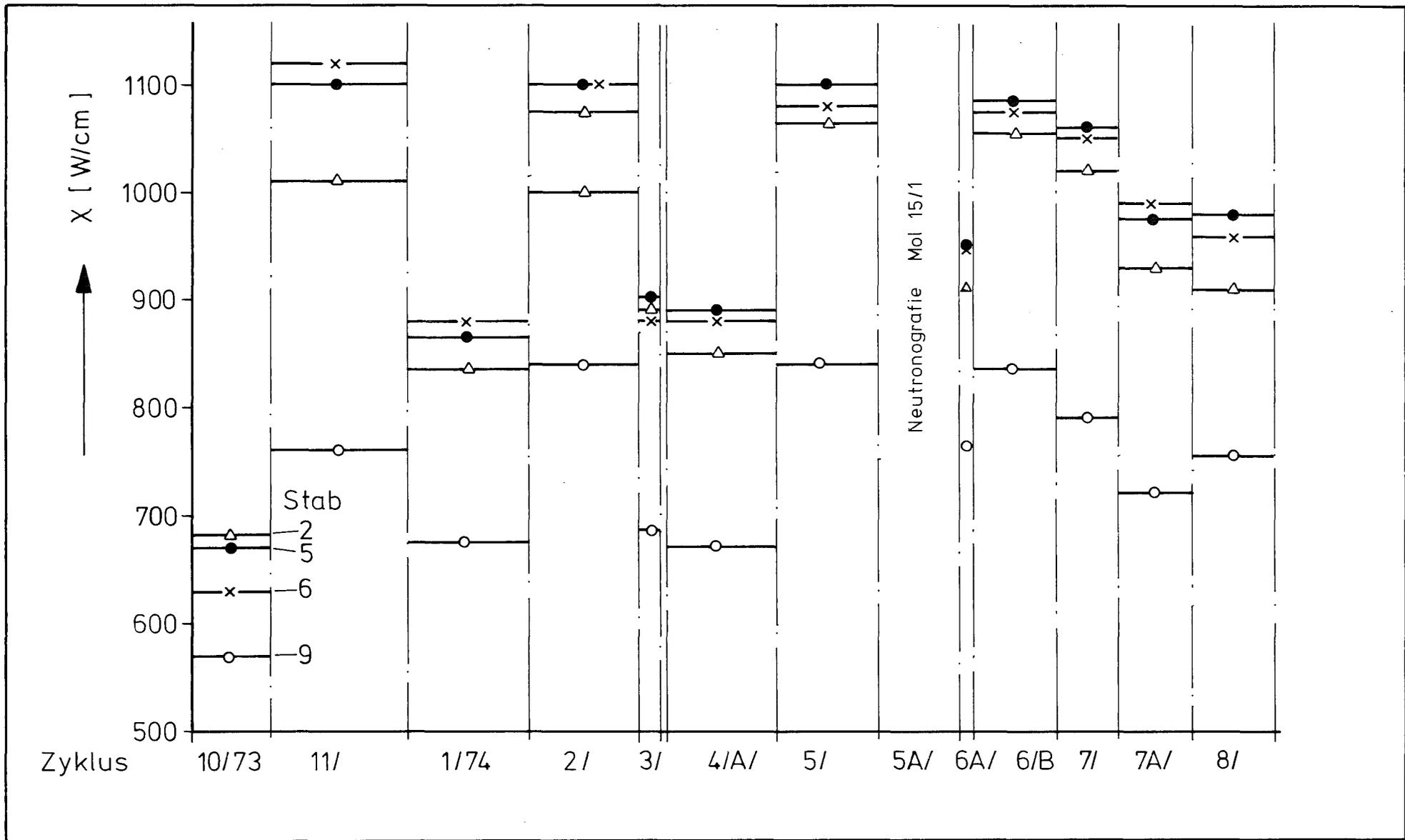
Temperatur - Stabileistungs Charakteristik
 der Kupferkreuz - Kapsel

Abb. 13



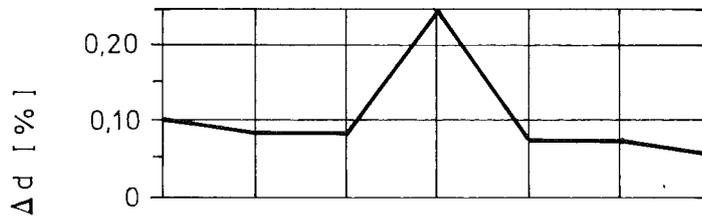
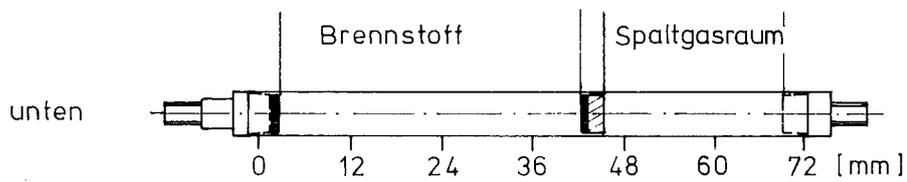
azimutale Temperaturverteilung
(Meßwerte)

Abb. 14

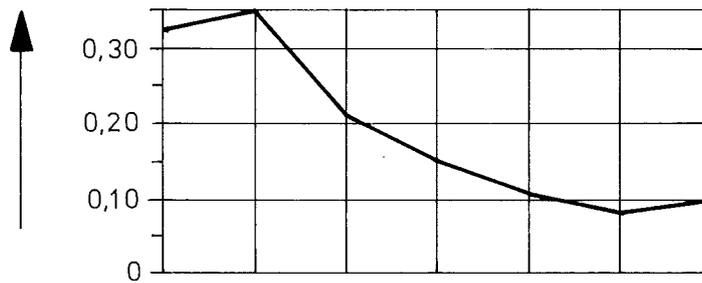


Mittlere Stableistung in den Zyklen

Abb. 15



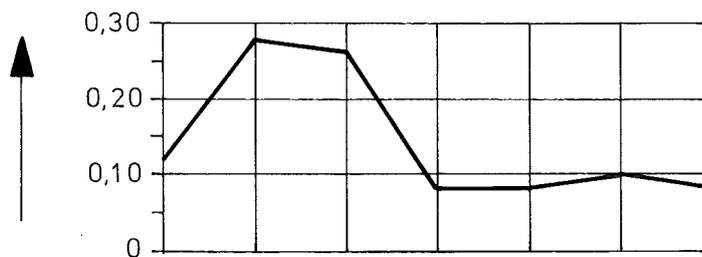
Stab 9



Stab 2



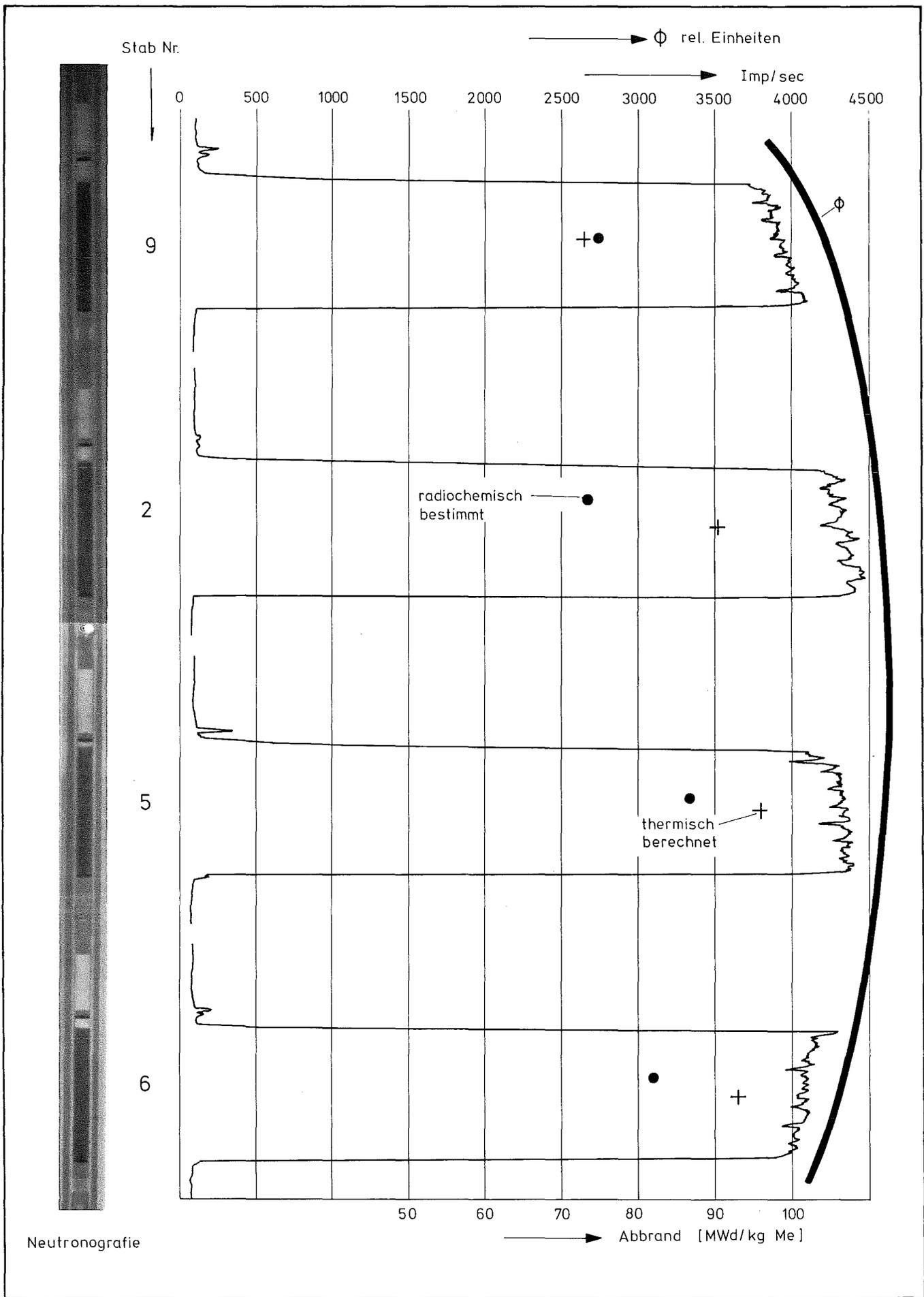
Stab 5



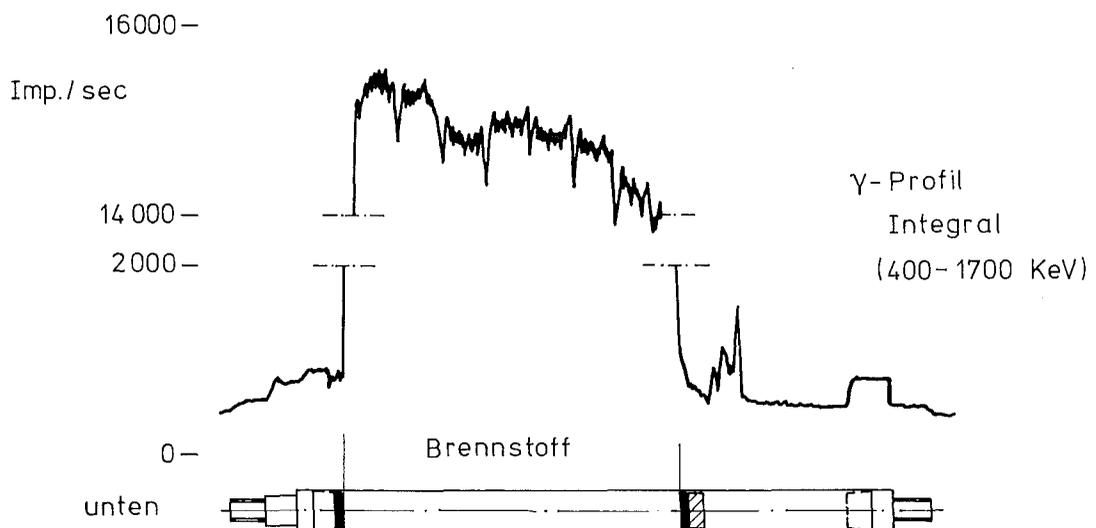
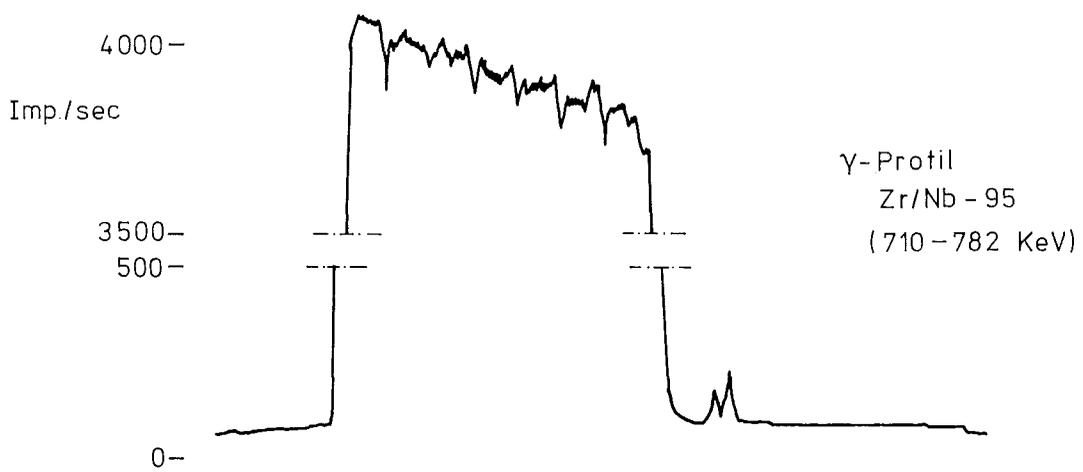
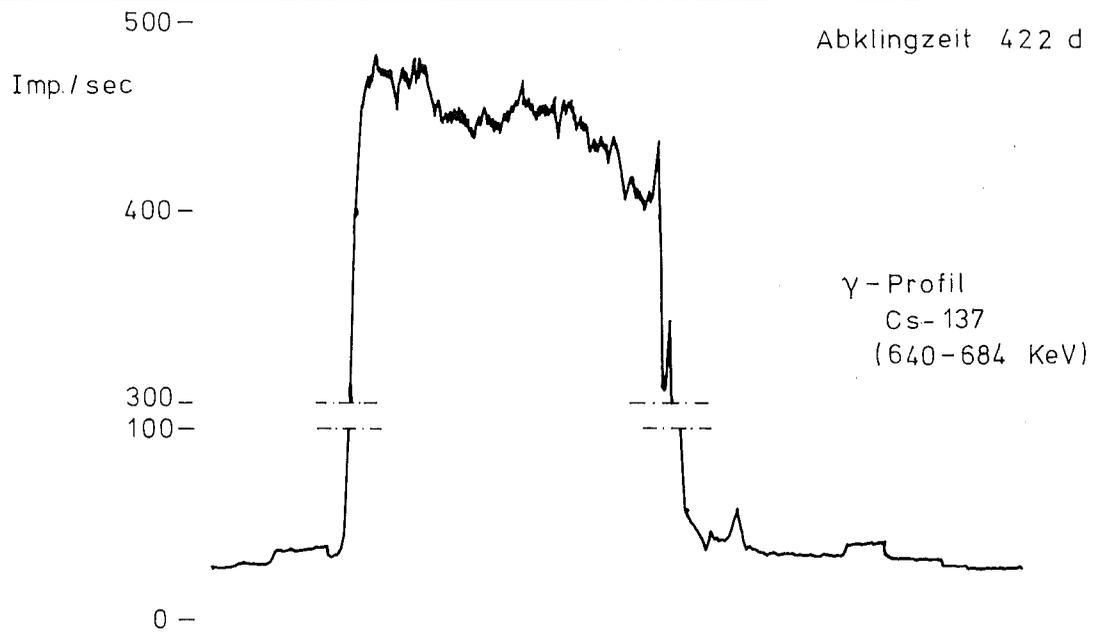
Stab 6

Durchmesser
nach der Bestrahlung

Abb. 16



Zr/Nb -95- γ -Profile, Abbrand und Axialer Flußverlauf



γ-Profile von Stab 9

Abb. 18

Abklingzeit 424 d

500 —
Imp./sec

γ -Profil
Cs-137
(640-684 KeV)

400 —
200 —

100 —

0 —

4500 —
Imp./sec

γ -Profil
Zr/Nb-95
(710-782 KeV)

4000 —

500 —

0 —

16000 —
Imp./sec

γ -Profil
Integral
(400-1700 KeV)

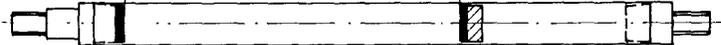
14000 —

2000 —

0 —

unten

Brennstoff



γ -Profile von Stab 2

Abb. 19

Abklingzeit 426 d

500 —
Imp./sec

γ-Profil
Cs-137
(640-684 KeV)

400 —

100 —

0 —

4500 —
Imp./sec

γ-Profil
Zr/Nb-95
(710-782 KeV)

4000 —

500 —

0 —

16000 —
Imp./sec

γ-Profil
Integrales
(400-1700 KeV)

14000 —

4000 —

2000 —

0 —

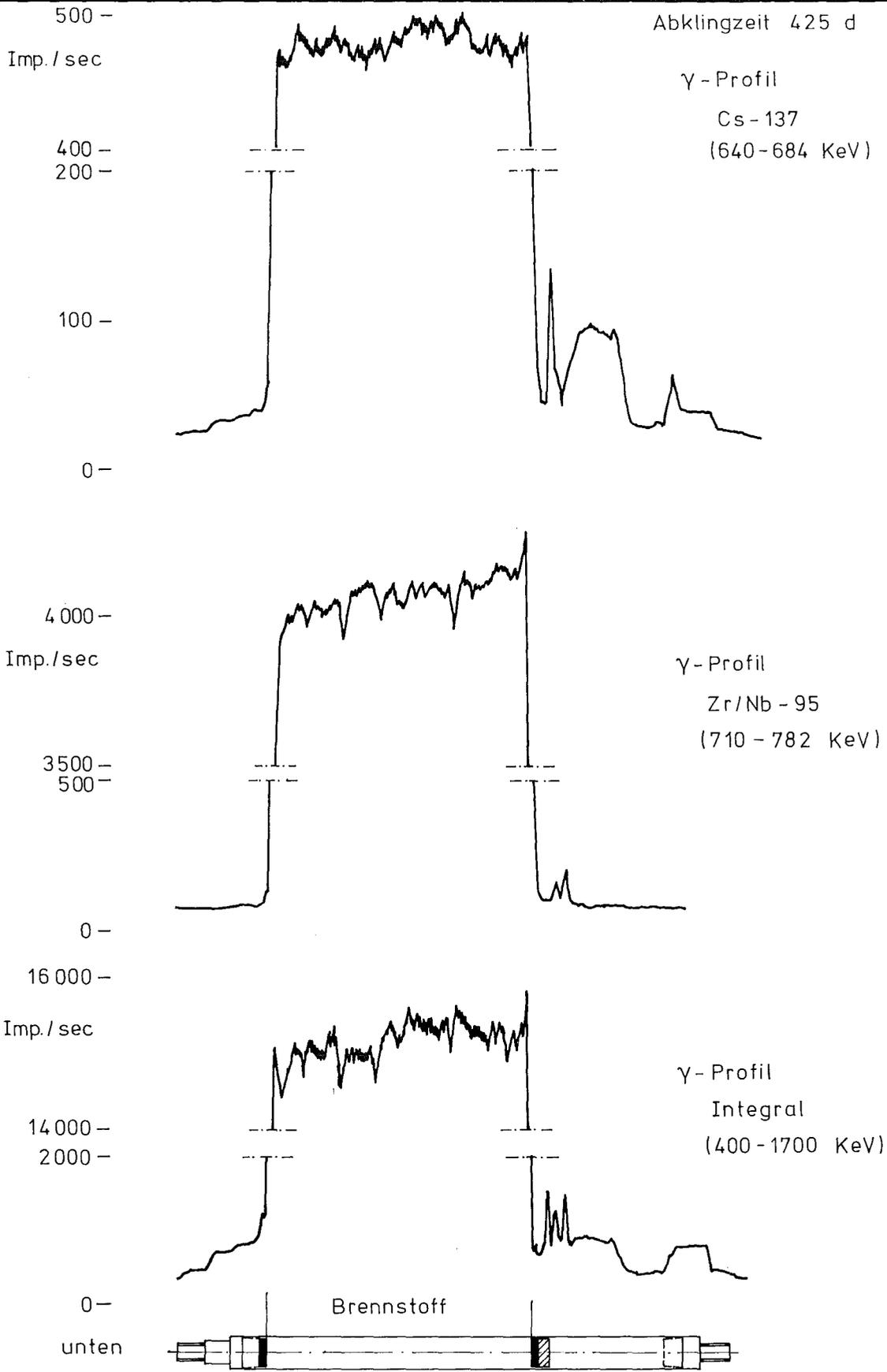
unten

Brennstoff



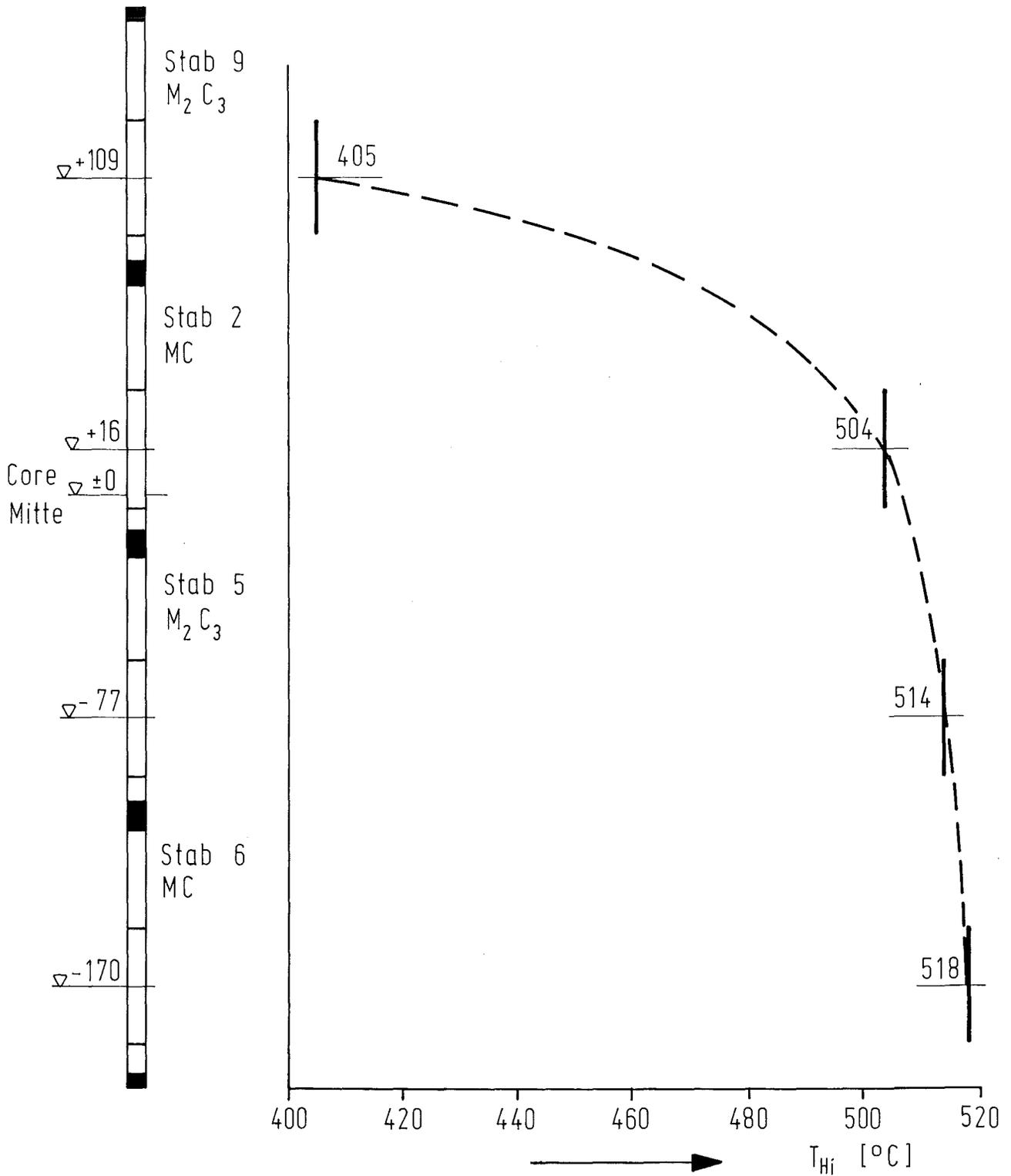
γ-Profile von Stab 5

Abb. 20



γ-Profile von Stab 6

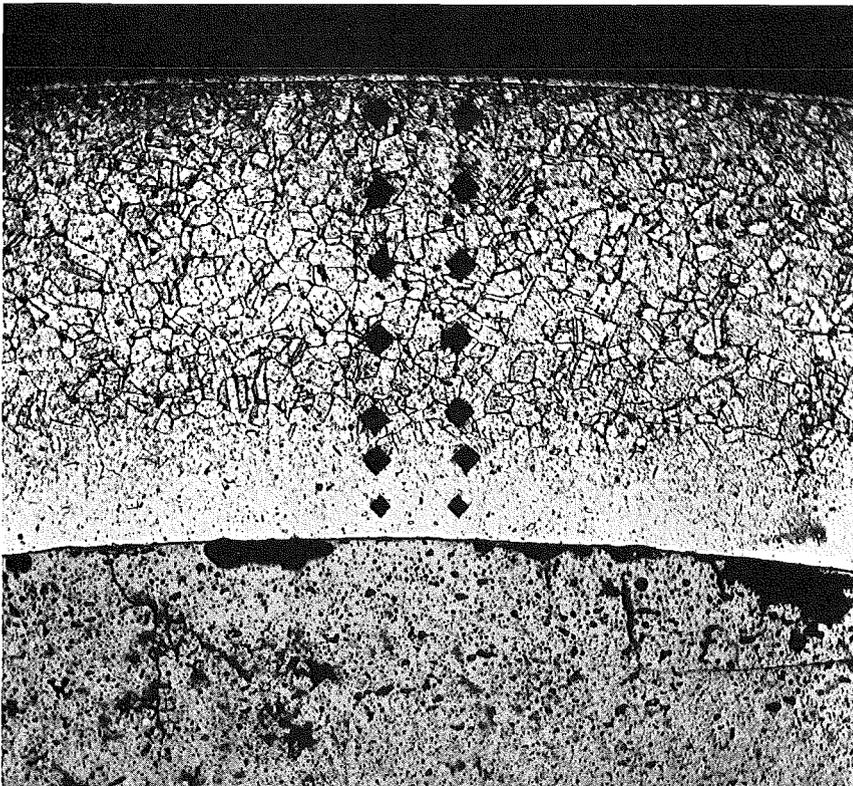
Abb. 21



Mittlere Hüllinnentemperatur
über alle Zyklen gemittelt

Abb. 22

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe Abteilung Reaktorbetrieb	HZ 174 Projekt	Mol 15.1 - 9 Obereinheit	- 3 Untereinheit	Probe
zugehörige Proj. Nr.				
Datum: 15.10.75	Unterschrift: <i>Wiese</i>	Blatt: von:		



$M_{23}C_3, T_{Hi} = 405^{\circ}C$

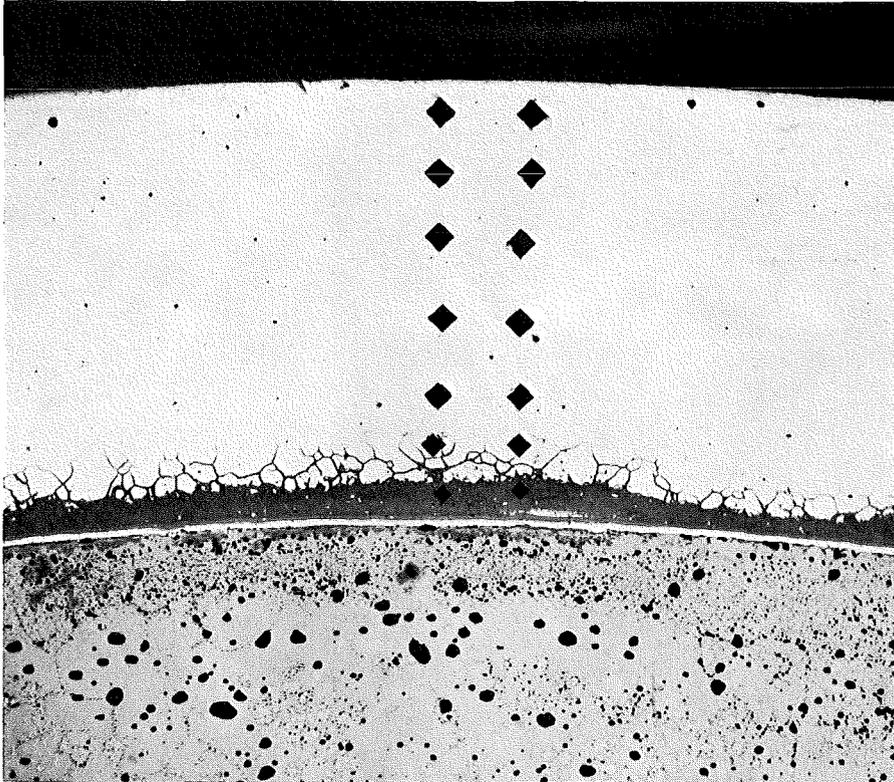
0,1mm

MHV 50, Werkstoff 1.4988

Mittelwert von außen nach innen:

246	kp/mm ²
235	"
237	"
224	"
228	"
257	"
420	"

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe Abteilung Reaktorbetrieb	HZ 174	Mod 15.1 - 2 - 4		
	Projekt	Obereinheit	Untereinheit	Probe
zugehörige Proj. Nr.				
Datum: 15.10.75	Unterschrift: Weiser	Blatt:	von:	



MC, $T_{Hi} = 504 \text{ } ^\circ\text{C}$

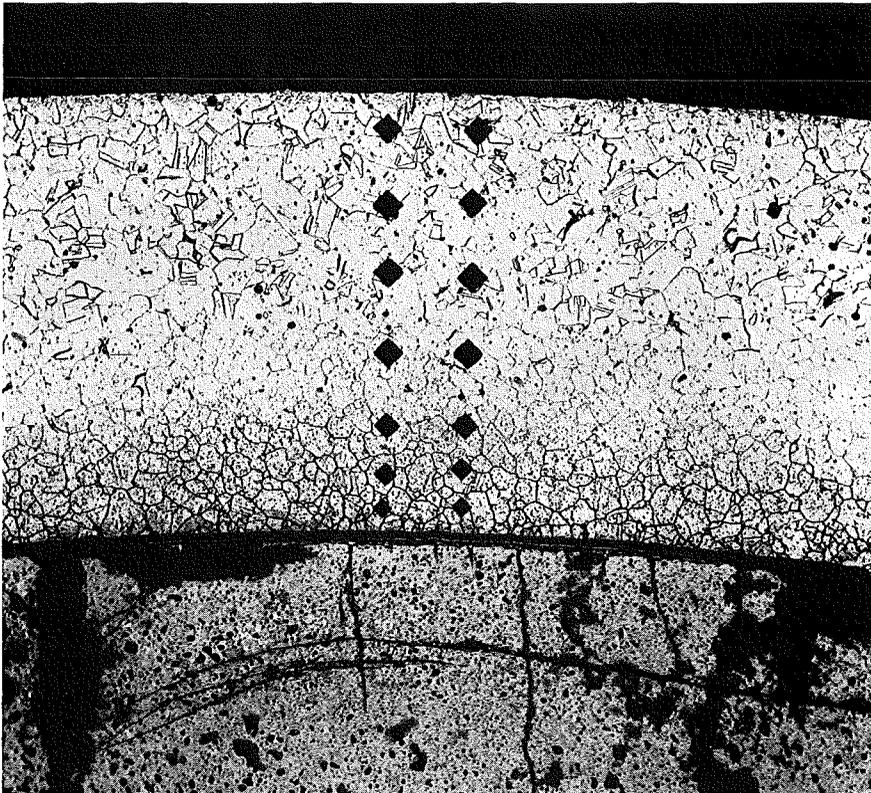
0,1 mm

MHV 50, Werkstoff 1.4988

Mittelwert von außen nach innen	241 kp/mm^2
	242 "
	239 "
	260 "
	285 "
	365 "
	613 "

Abb. 24 Mikrohärtemessung über die Hüllrohrwanddicke

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe Abteilung Reaktorbetrieb	HZ 174	Hol 15.1 - 5 - 3		
	Projekt	Obereinheit	Untereinheit	Probe
zugehörige Proj. Nr.				
Datum: 15.10.75	Unterschrift: Weiser	Blatt:	von:	



M_{2C_3} , $T_{Hi} = 514 \text{ } ^\circ\text{C}$

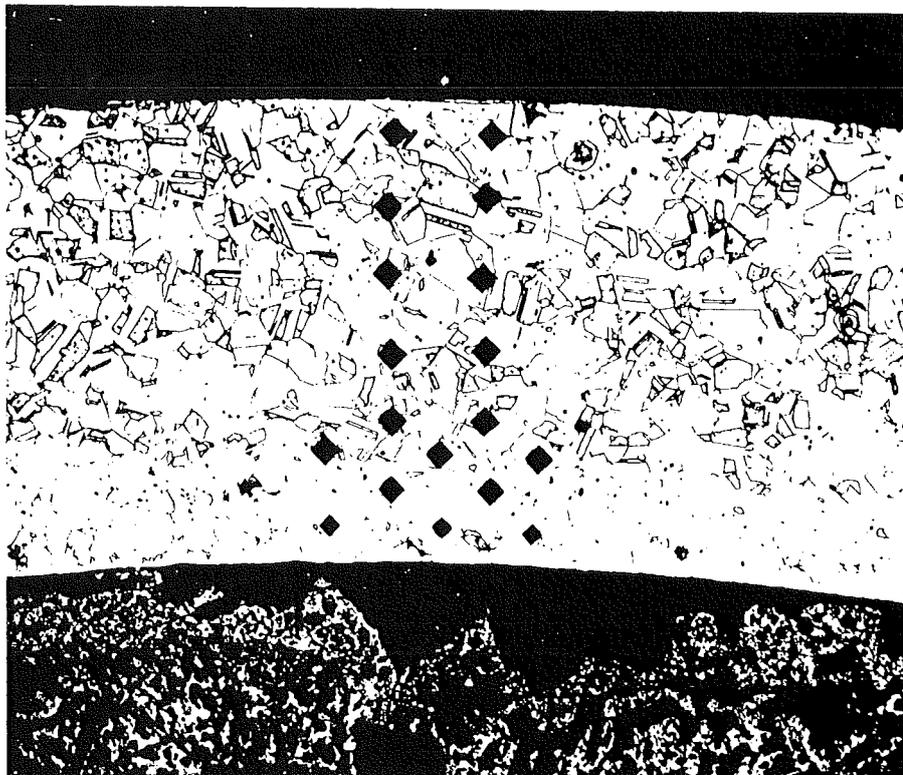
0,1 mm

MHV 50, Werkstoff 1.4988

Mittelwert von außen nach innen	262 kp/mm^2
	245 "
	233 "
	242 "
	351 "
	426 "
	613 "

Abb. 25 Mikrohärtemessung über die Hüllrohrwanddicke

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe Abteilung Reaktorbetrieb	HZ 174 Projekt	406 15.7 Obereinheit	6 Untereinheit	3 Probe
zugehörige Proj. Nr.				
Datum: 30.9.75	Unterschrift: Weiser	Blatt:	von:	



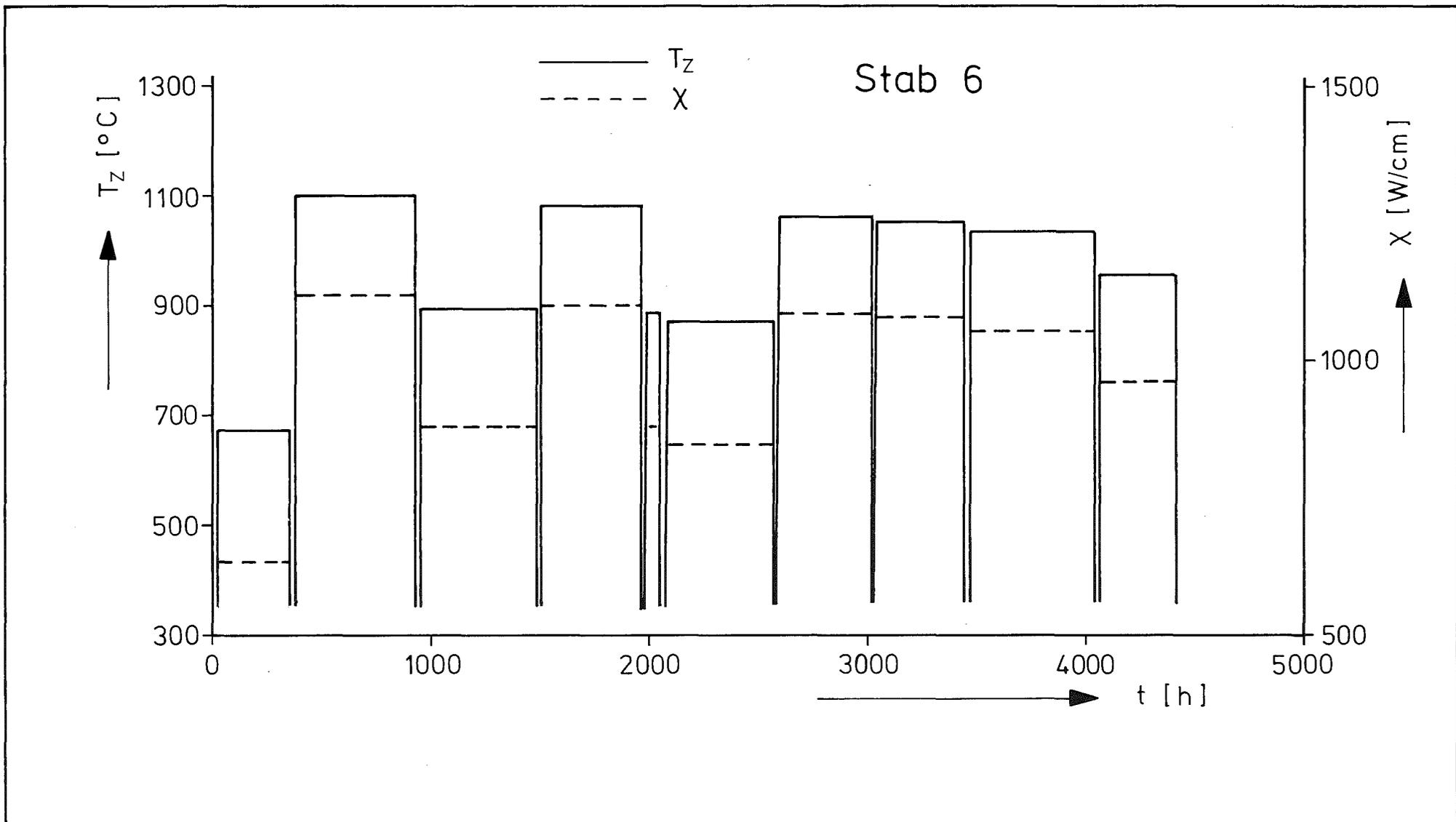
MC, $T_{Hi} = 518 \text{ }^{\circ}\text{C}$

0,1 mm

MHV 50, Werkstoff 1.4988

Mittelwert von außen nach innen	248 kp/mm^2
	241 "
	228 "
	233 "
	240 "
	248 "
	291 "
	462 "

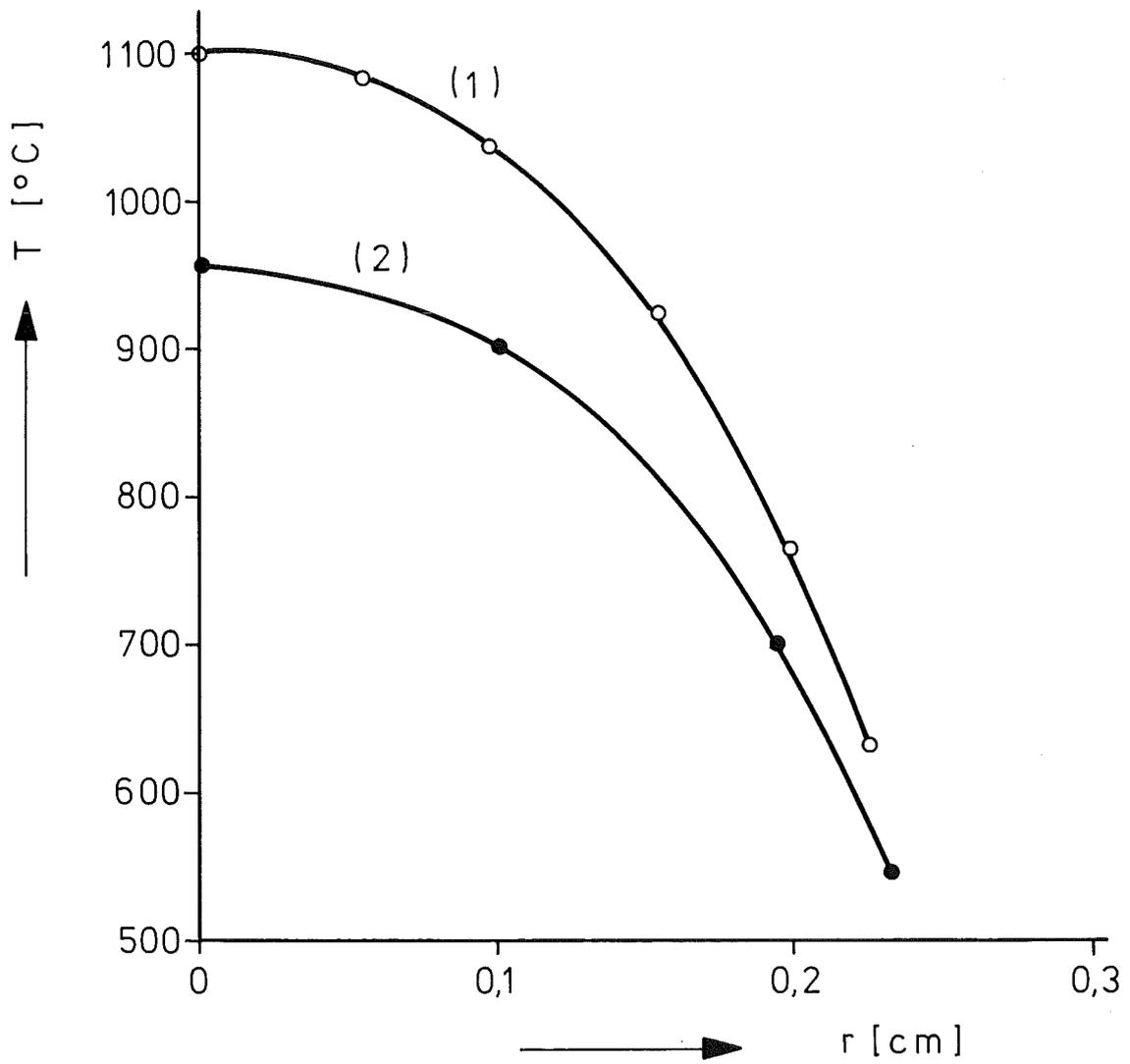
Abb. 26 Mikrohärtemessung über die Hüllrohrwanddicke



Brennstoffzentraltemperatur und Stableistung im Laufe der Bestrahlung

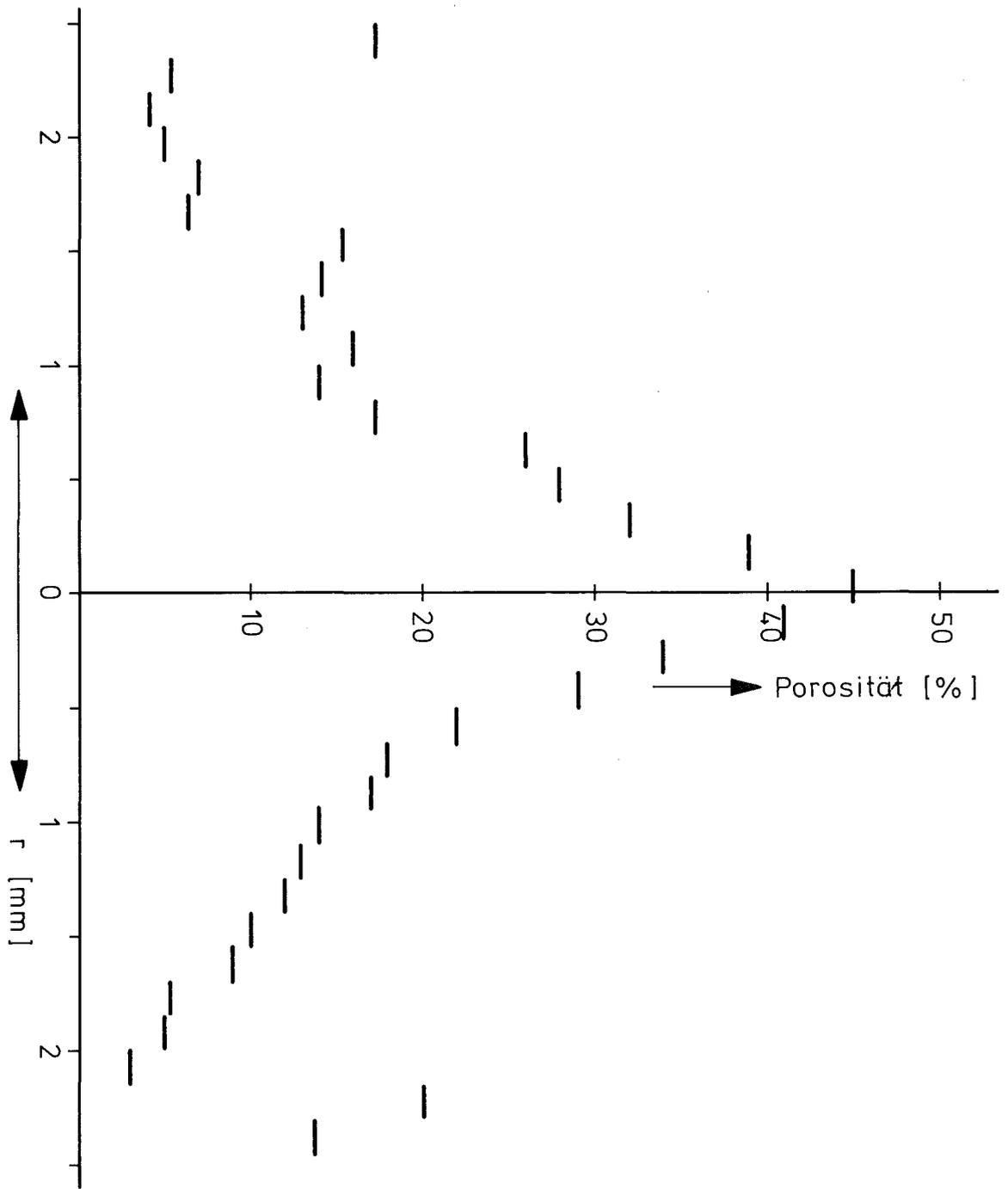
Abb. 27

(1) im Zyklus mit X_{\max}
(2) im letzten Zyklus
Stab 6



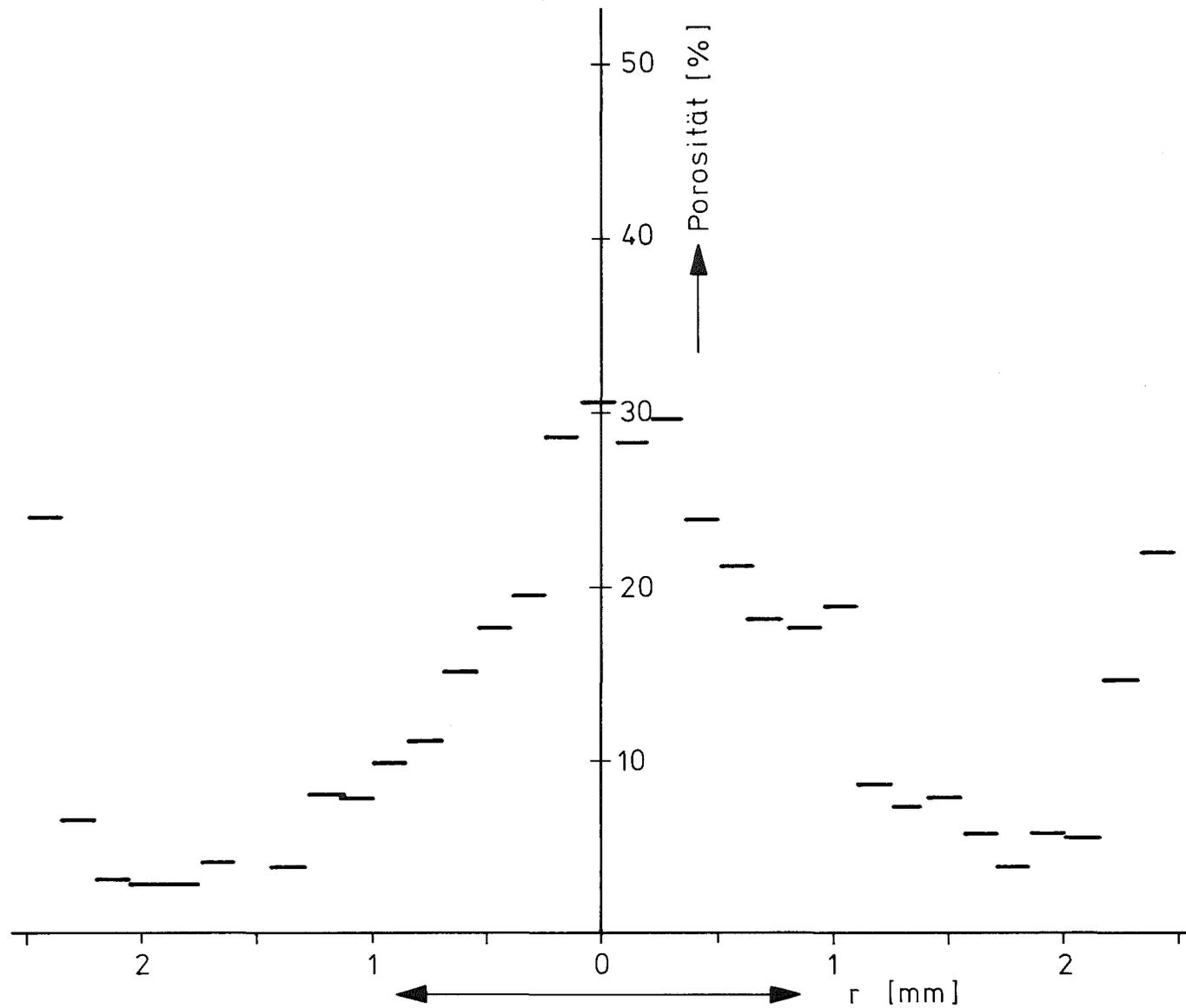
Radiale Temperaturverteilung im
Brennstoff

Abb. 28



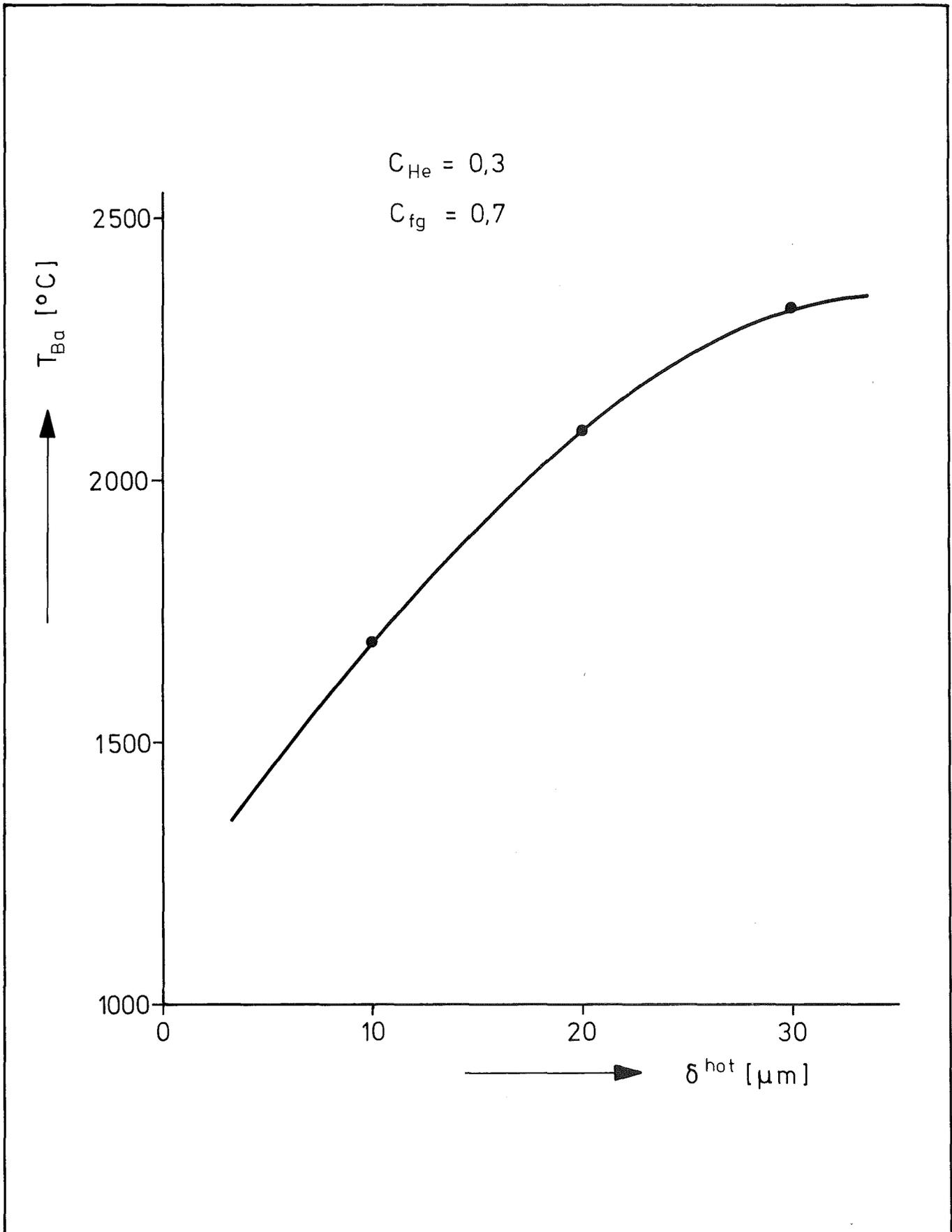
Gemessene Porositätsverteilung des Prüflings 5 (Schnitt 2)

Abb. 29



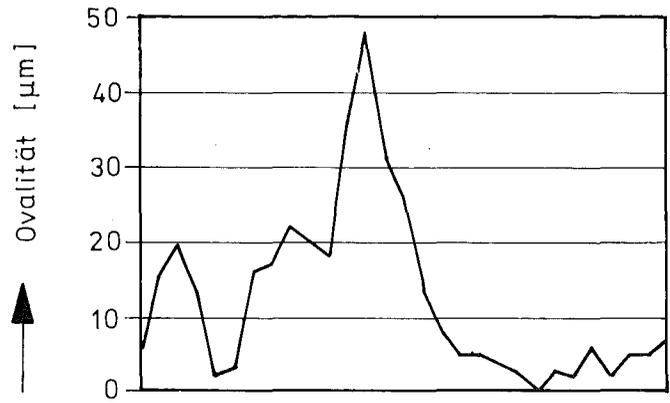
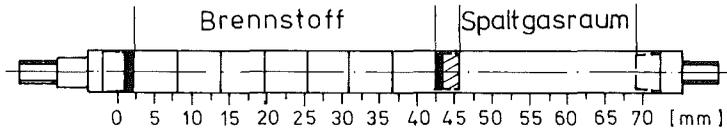
Gemessene Porositätsverteilung des Prüflings 5 (Schnitt 3)

Abb. 30

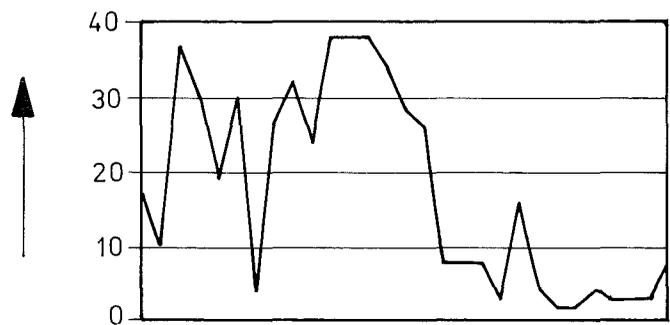


Brennstoffrandtemperatur als Funktion des Heißspalts bei Verlust der Na - Bindung

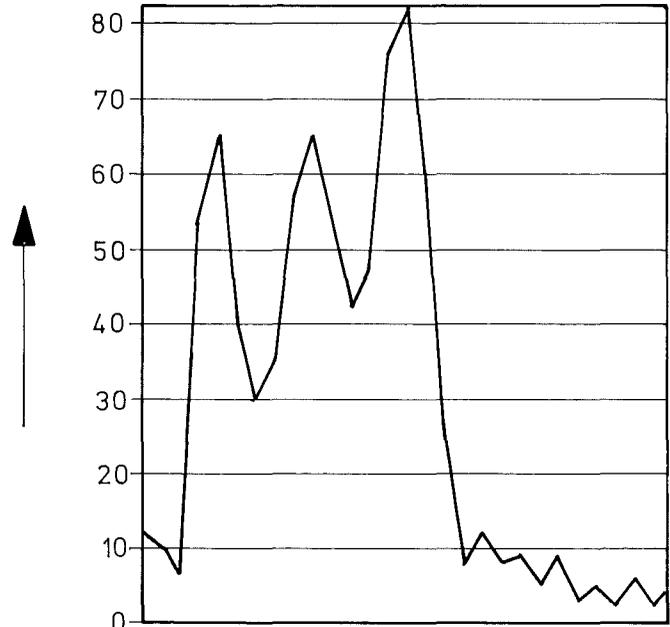
Abb. 31



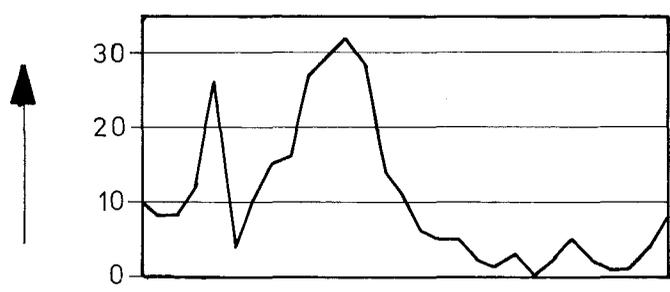
Stab 9



Stab 2



Stab 5



Stab 6

Axiale Verteilung der Ovalität im Hüllrohr

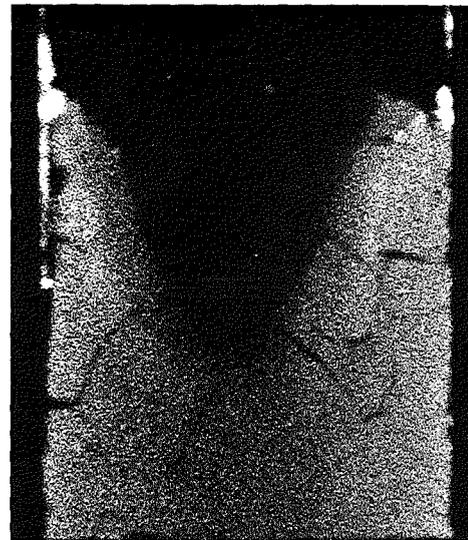
A N H A N G I I

Dokumentation der zerstörungsfreien und zerstörenden
Nachuntersuchung



Schnitt 1

1mm



α (3 sec)

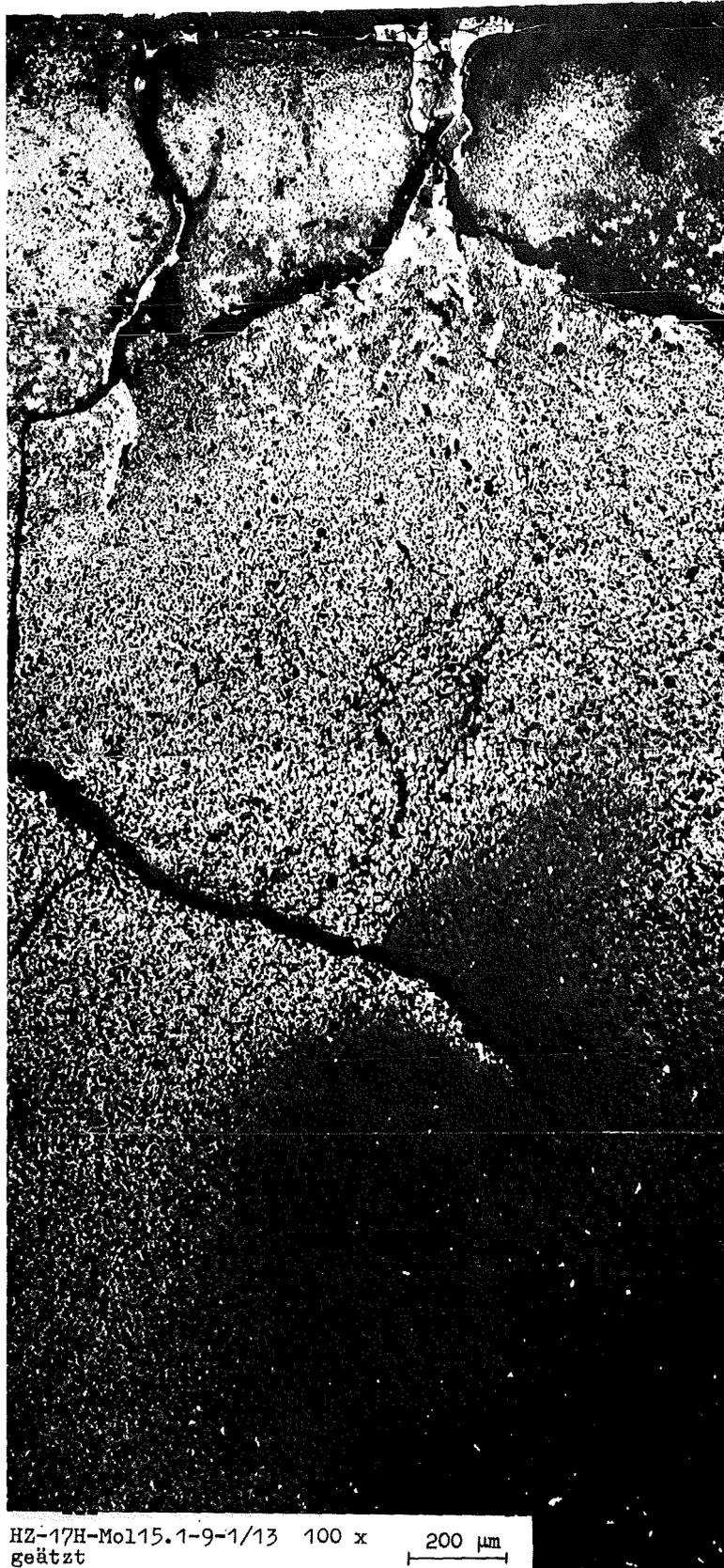


β - γ (15 sec)

Autoradiografie

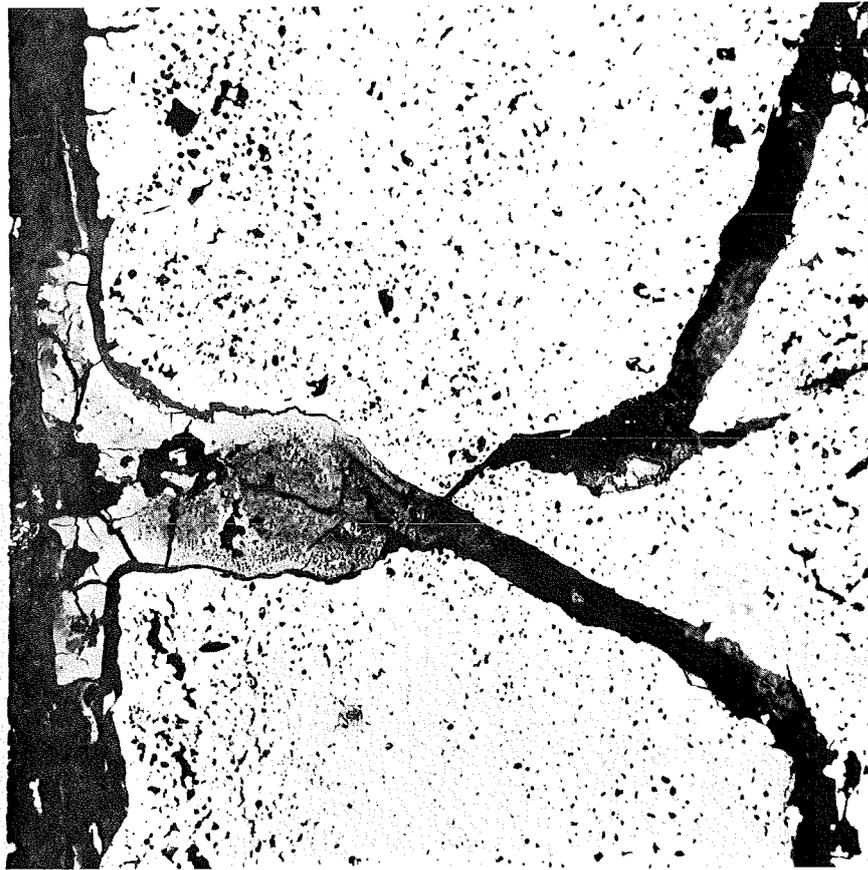
Mol 15/1 Prüfling 9 (U,Pu)₂ C₃

Stab 9 Schnitt 1

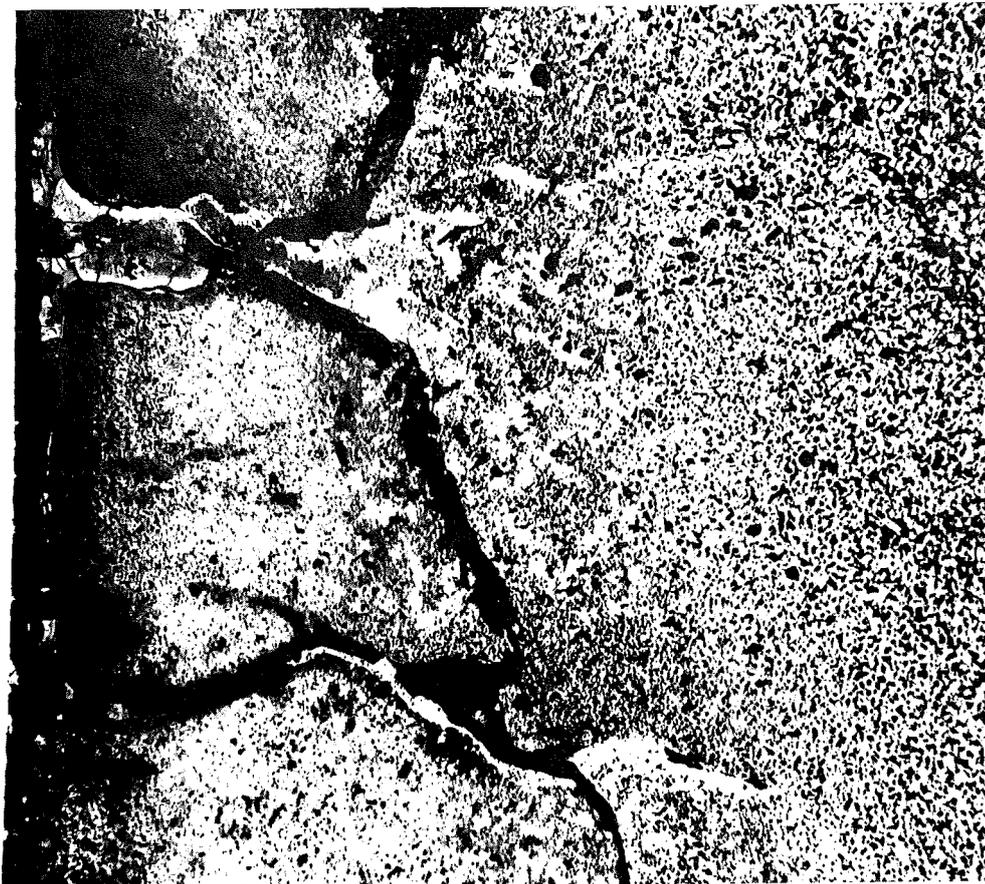


HZ-17H-Mo115.1-9-1/13 100 x 200 μm
geätzt

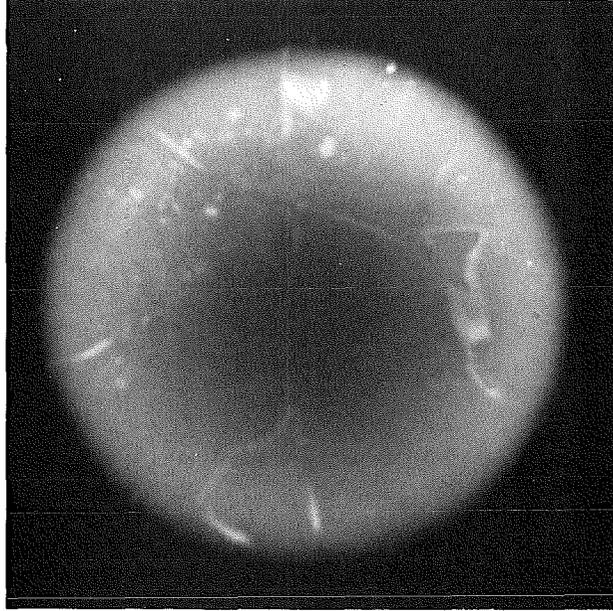
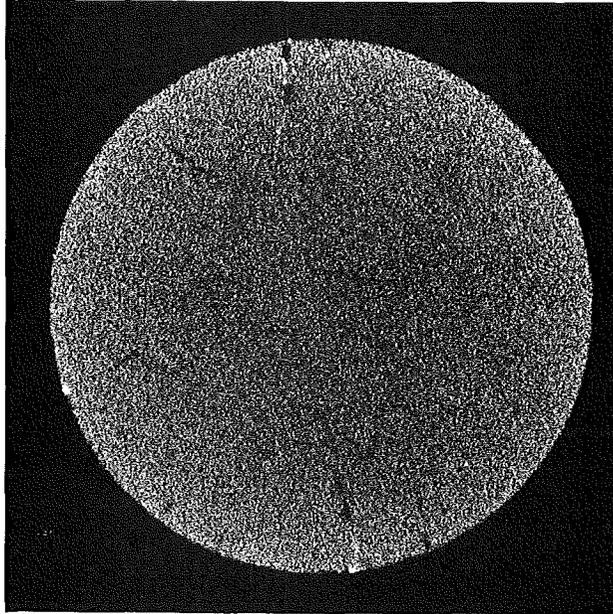
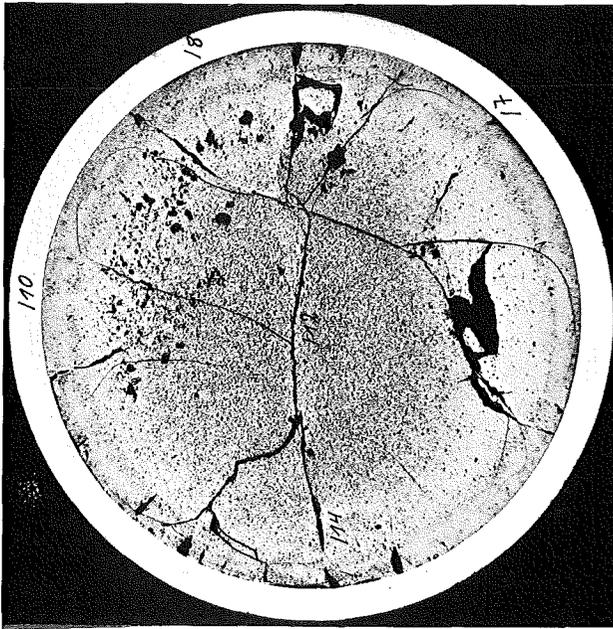
Stab 9 Schnitt 1



HZ-17H-Mo115.1-9-1/8 200x 100 μm



HZ-17H-Mo115.1-9-1/14 100 x 200 μm
geätzt



Schnitt 2

α (3 sec)

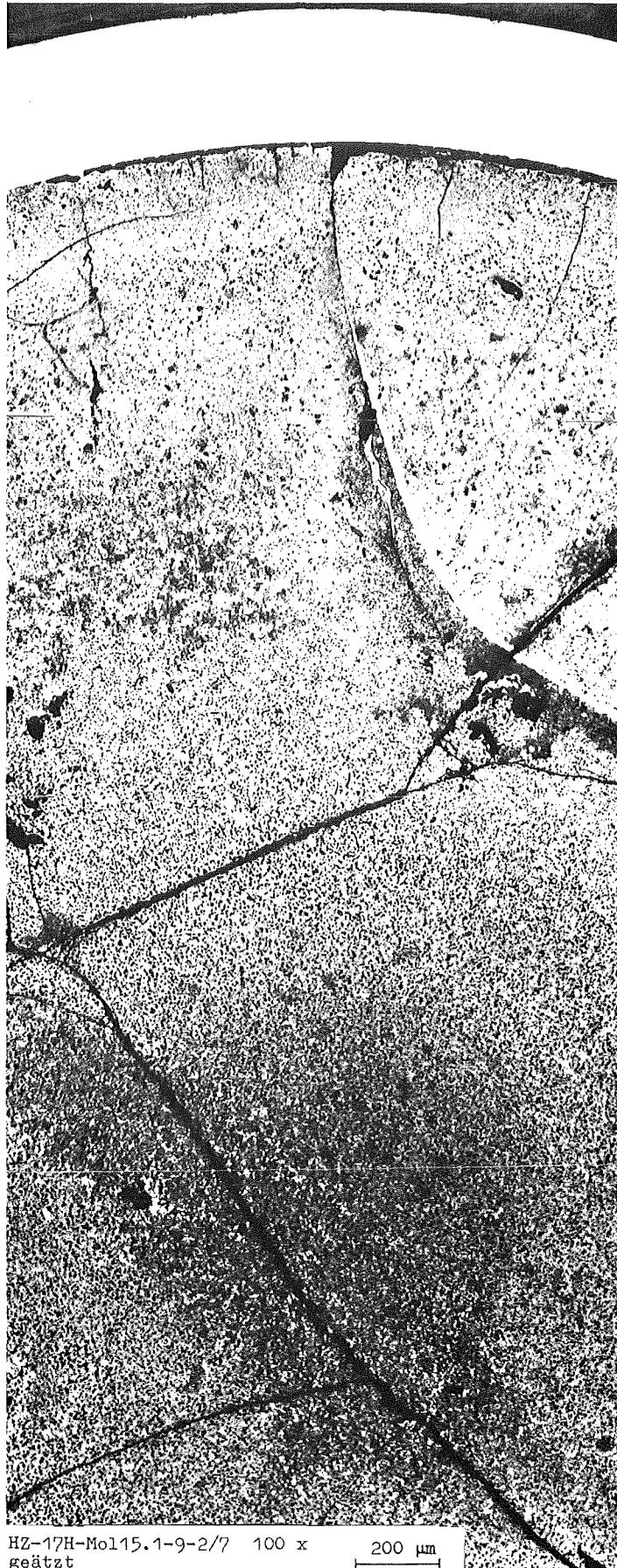
β - γ (15 sec)

Autoradiografie

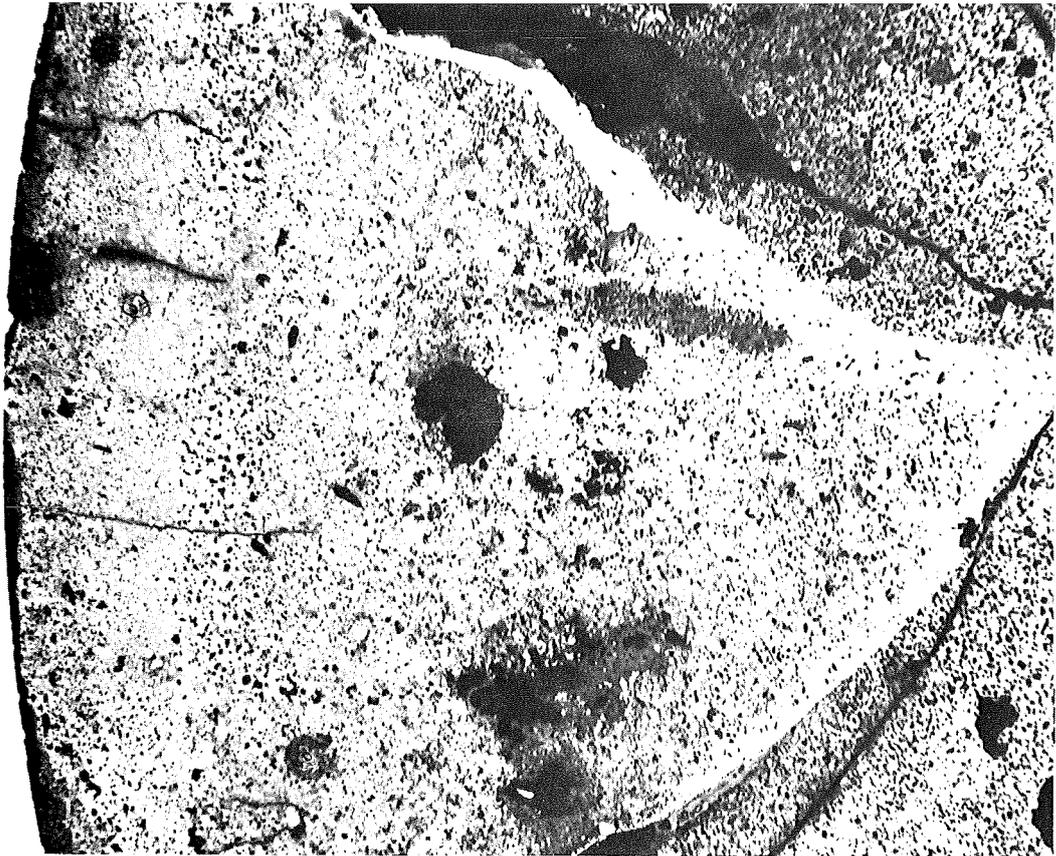
1 mm

Mol 15/1 Prüfling 9 (U,Pu)₂ C₃

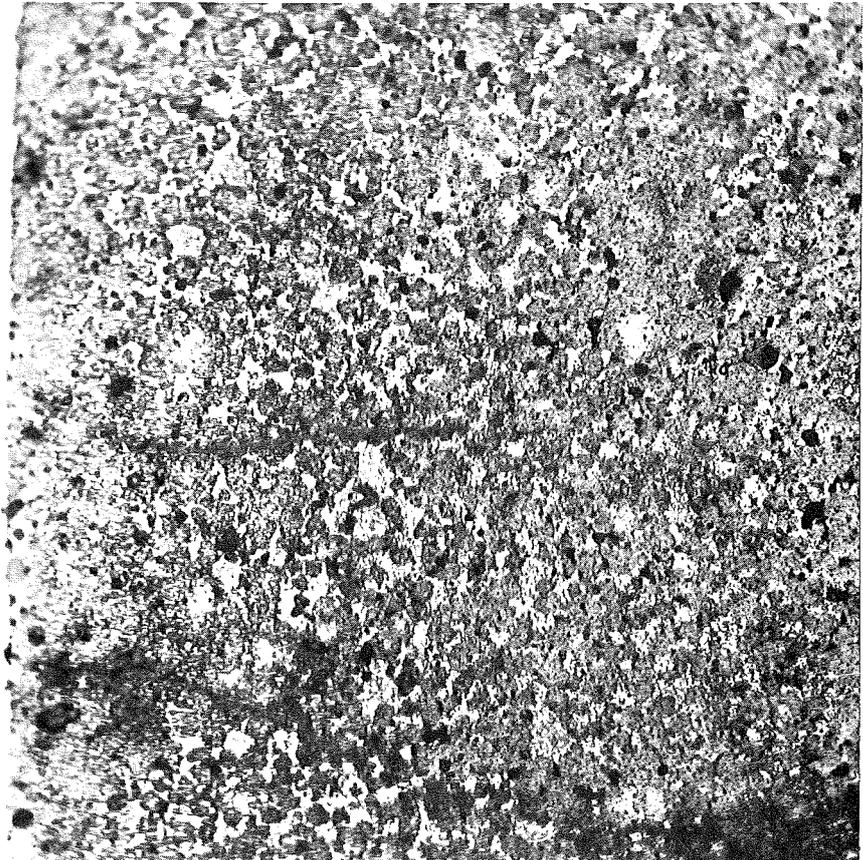
Stab 9 Schnitt 2



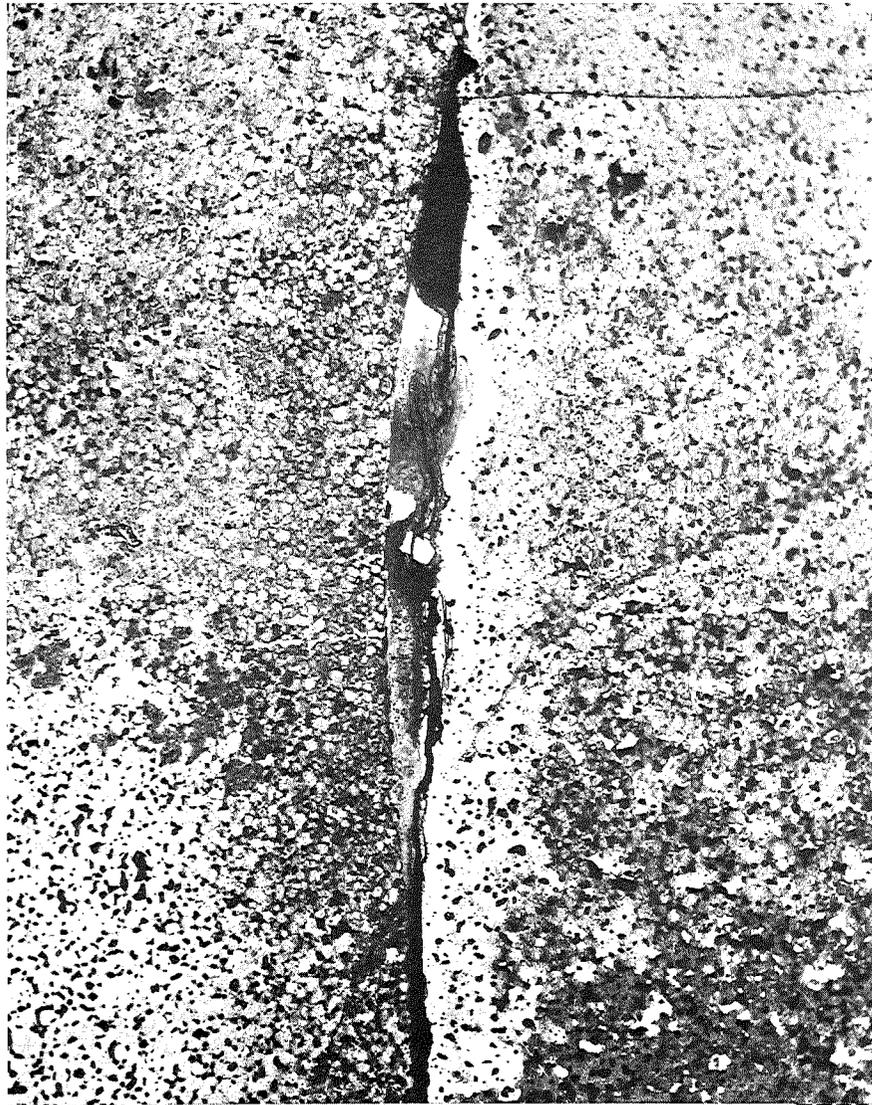
Stab 9 Schnitt 2



HZ-17H-Mo115.1-9-2/8 100 x
geätzt
200 µm

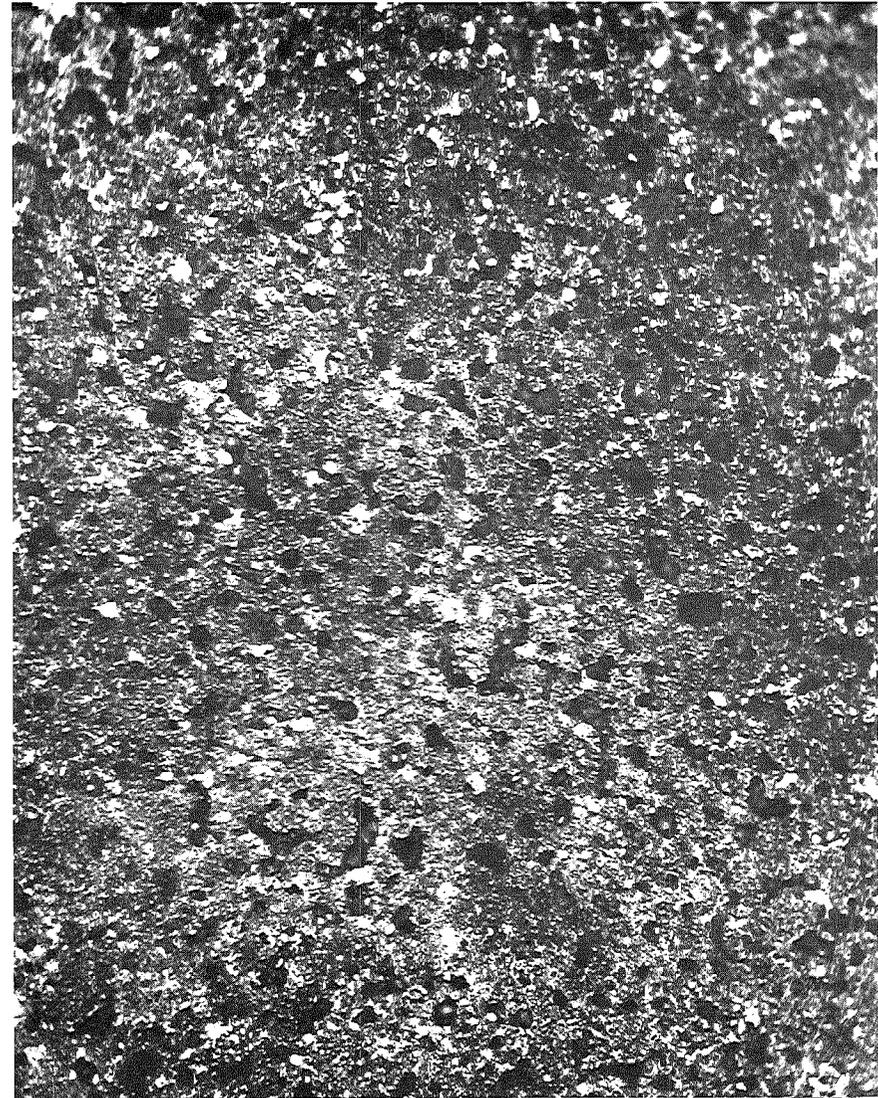


HZ-17H-Mo115.1-9-2/10 500x
geätzt
40 µm



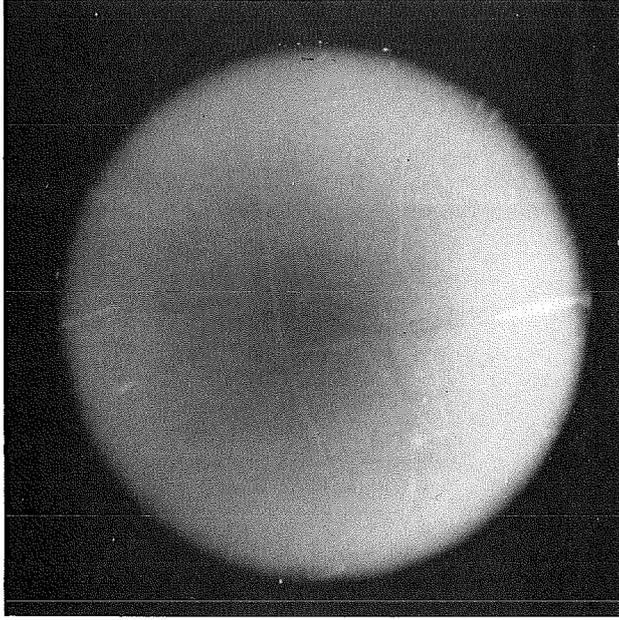
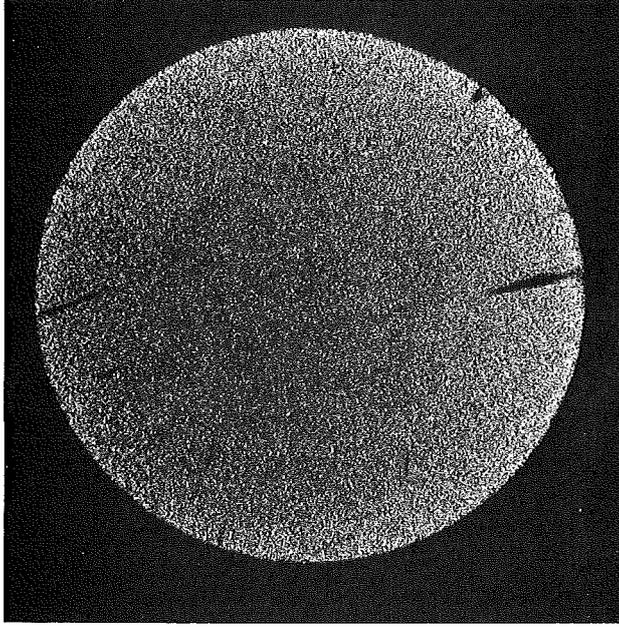
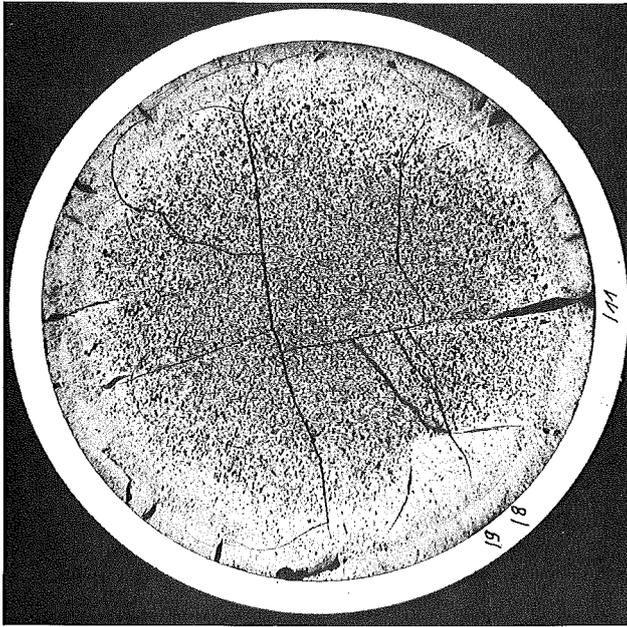
HZ-17H-Mo115.1-9-2/14 200x
geätzt

100 μm



HZ-17H-Mo115.1-9-2/12 500x
geätzt

40 μm



Schnitt 3

α (3 sec)

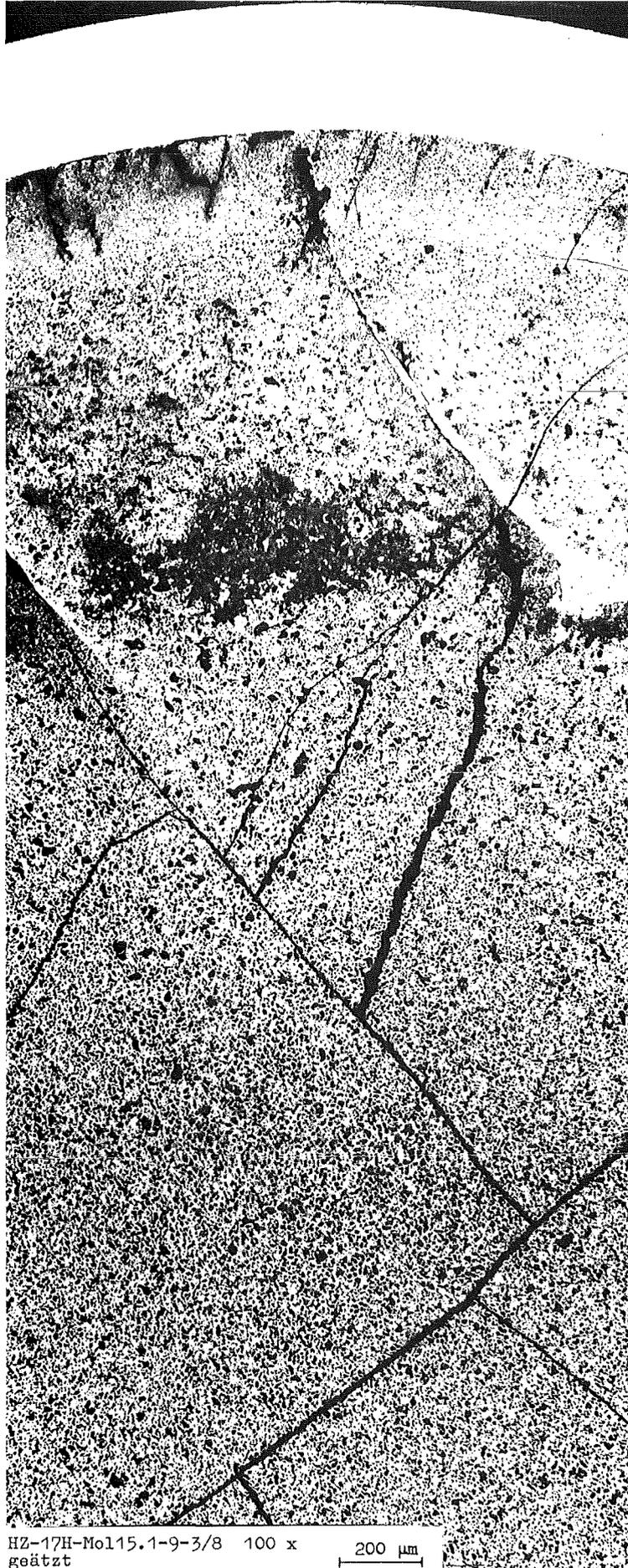
β - γ (15 sec)

Autoradiografie

1 mm

Mol 15/1 Prüfling 9 (U,Pu)₂ C₃

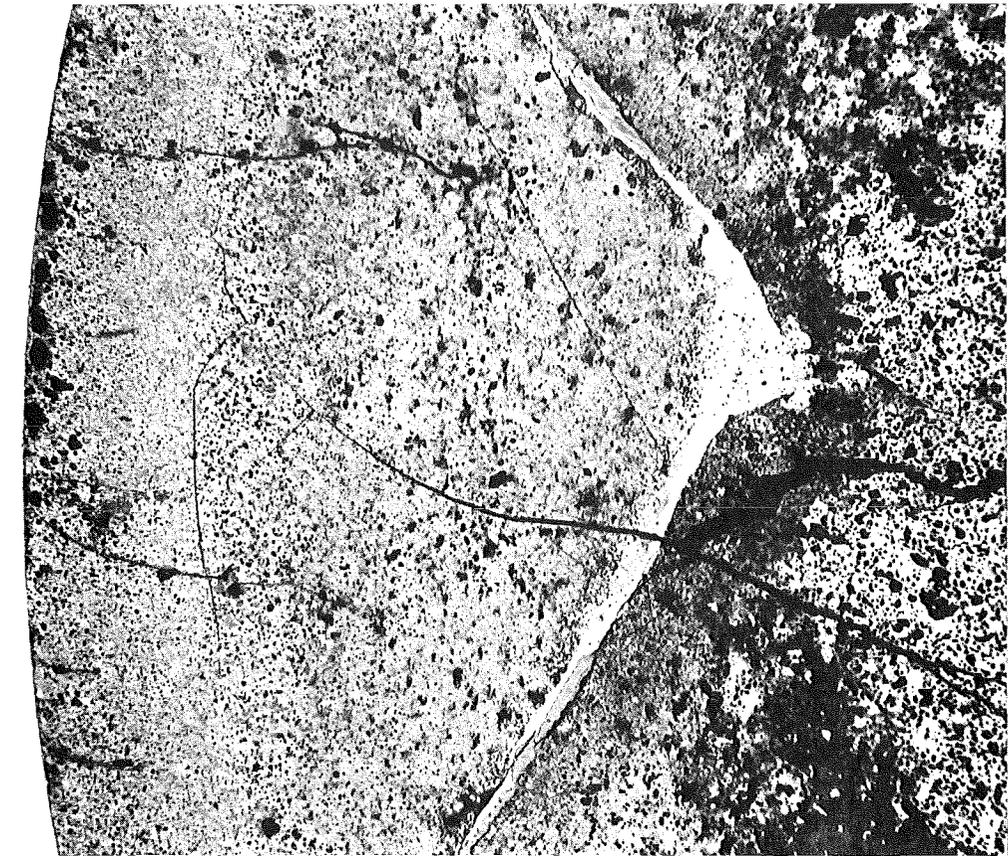
Stab 9 Schnitt 3



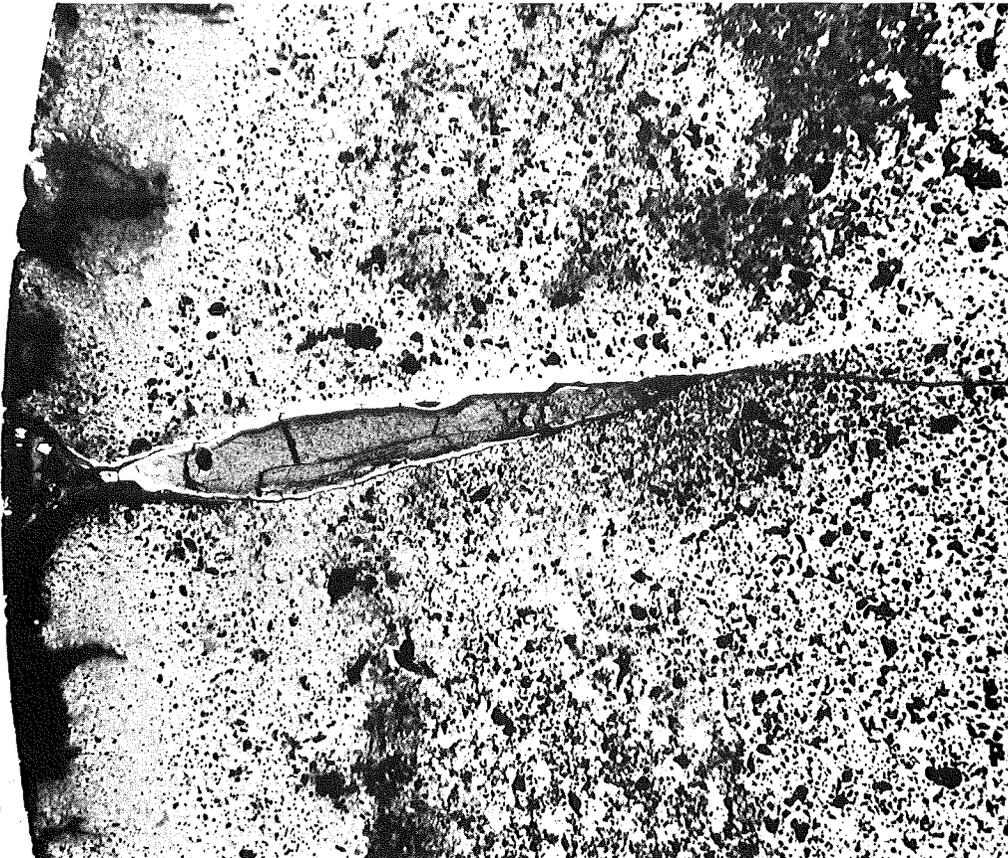
HZ-17H-Mo115.1-9-3/8 100 x
geätzt

200 μm

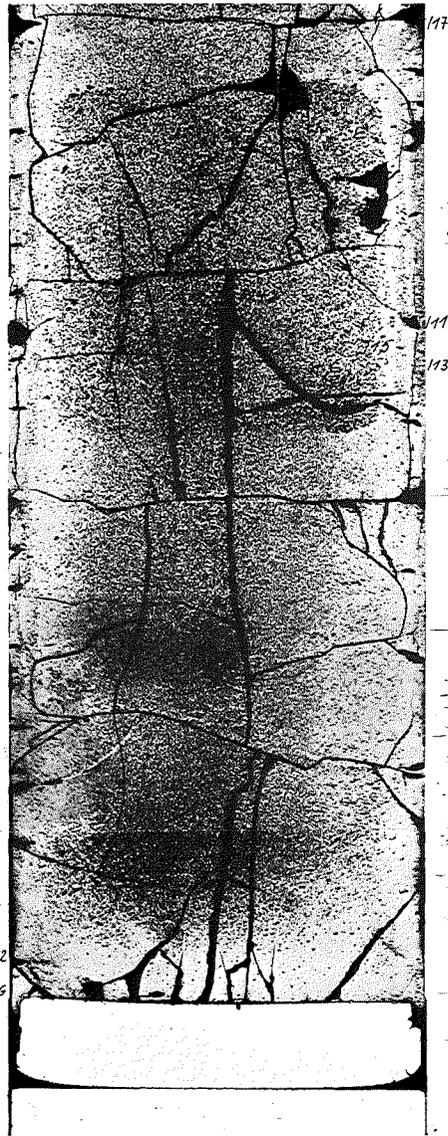
Stab 9 Schnitt 3



HZ-17H-Mo115.1-9-3/9 100 x 200 µm
geätzt

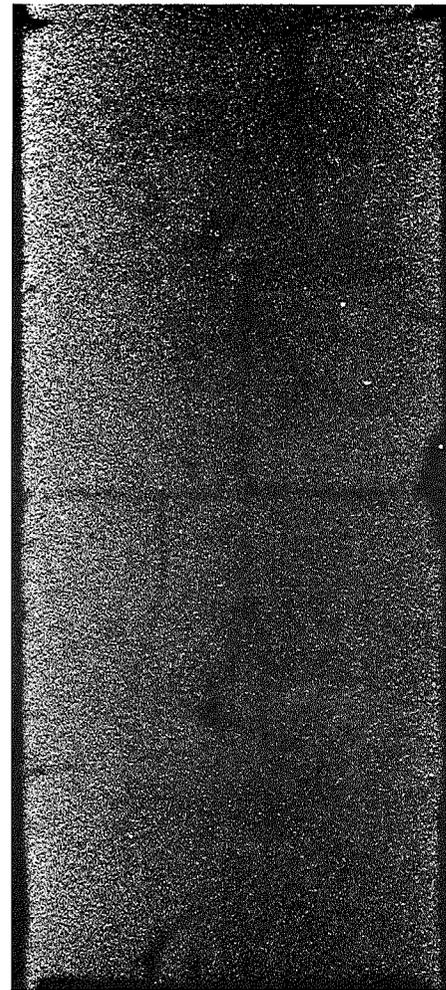


HZ-17H-Mo115.1-9-3/11 100 x 200 µm
geätzt

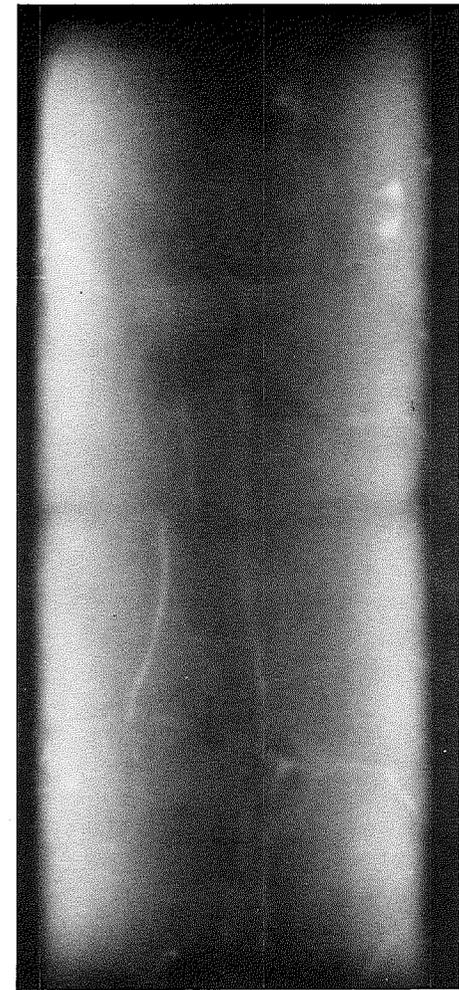


Schnitt 4

1mm



α (3 sec)

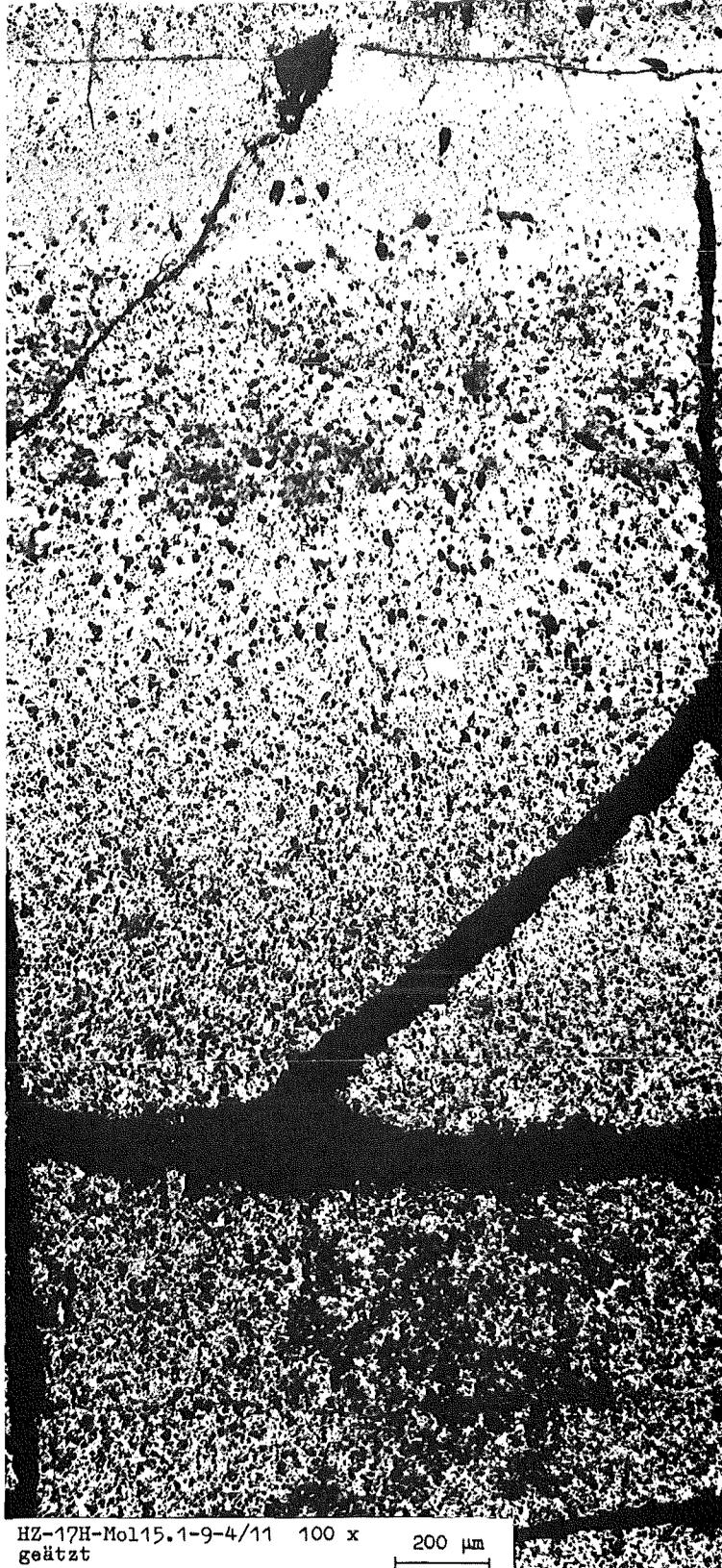


β-γ (15 sec)

Autoradiografie

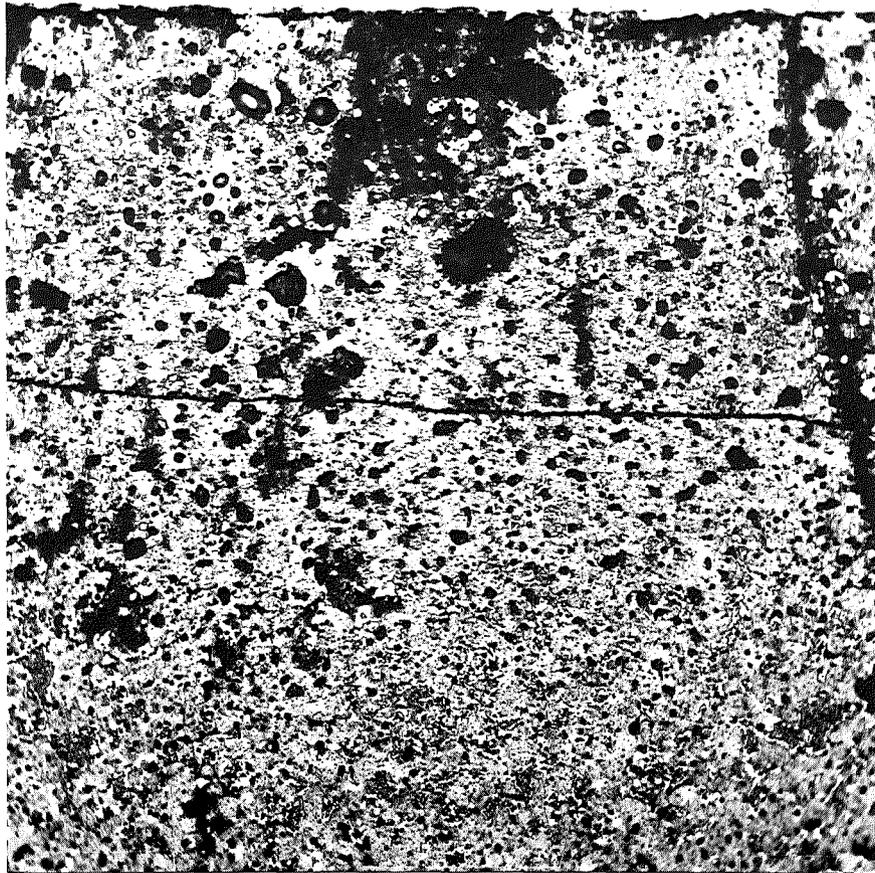
Mol 15/1 Prüfling 9 (U,Pu)₂ C₃

Stab 9 Schnitt 4



HZ-17H-Mol15.1-9-4/11 100 x
geätzt

200 μm



HZ-17H-Mo115.1-9-4/13 500x
geätzt

40 μm



HZ-17H-Mo115.1-9-4/12 100 x
geätzt

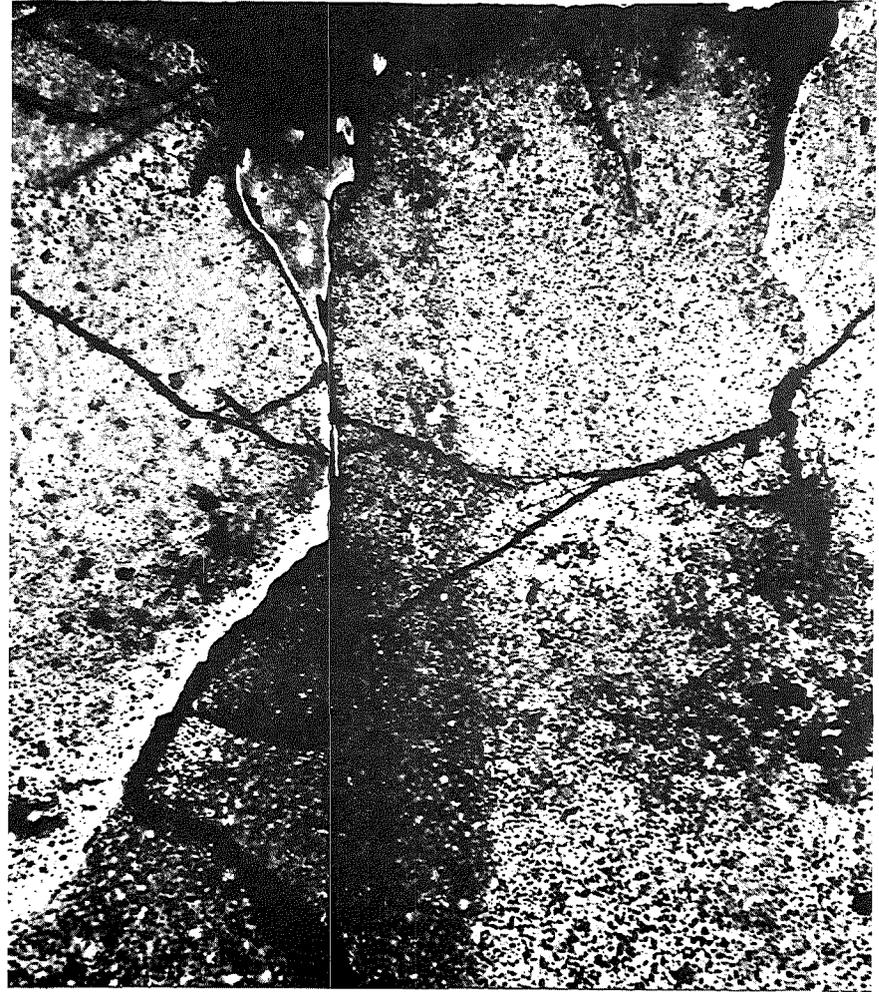
200 μm

Stab 9 Schnitt 4



HZ-17H-Mo115.1-9-4/16 100 x
geätzt

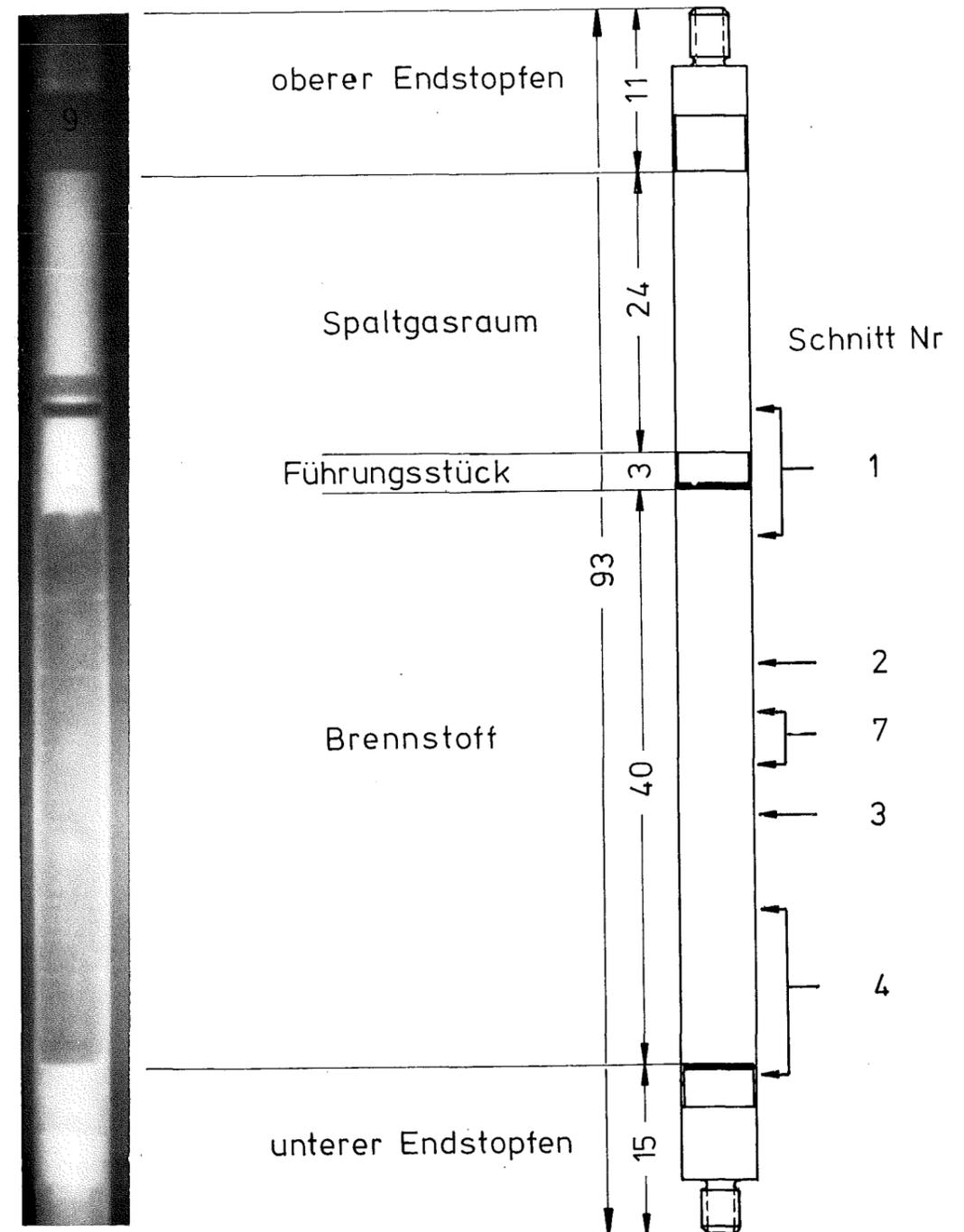
200 μm



HZ-17H-Mo115.1-9-4/17 100 x
geätzt

200 μm

Prüfling 9	
Brennstoff:	
Form	: Tabletten
Zusammensetzung	: $(U, Pu)_2 C_3$
Tablettendichte	: 92,4 % th.D.
Hülle:	
Material	: 1.4988
Aussendurchmesser	: 5,6 mm
Wandstärke	: 0,3 mm
Geometrie:	
Länge des Prüflings	: 93,2 mm
Länge der Brennstoffsäule	: 39,2 mm
Radiale Spaltweite	: 180 μ m
Schmierdichte	: 79,6 % th.D.
Bestrahlung:	
Einrichtung	: Kapsel mit Cu-Kreuz
Dauer in Vollasttagen	: 184,2 d
Ende	: 26.9.74
Rechn. Abbrand	: 73 MWd/kg Me
Stableistung max/mittl.	: 1104/735 W/cm

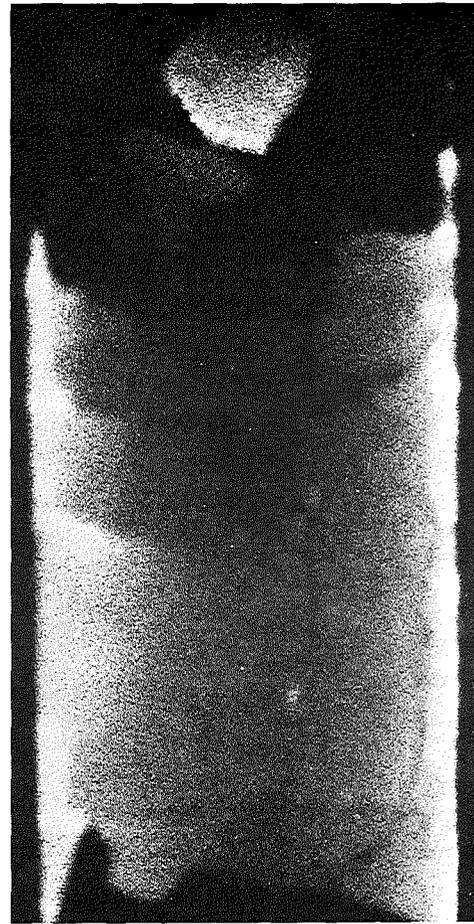


7 = Abbrand / Spaltgasprobe

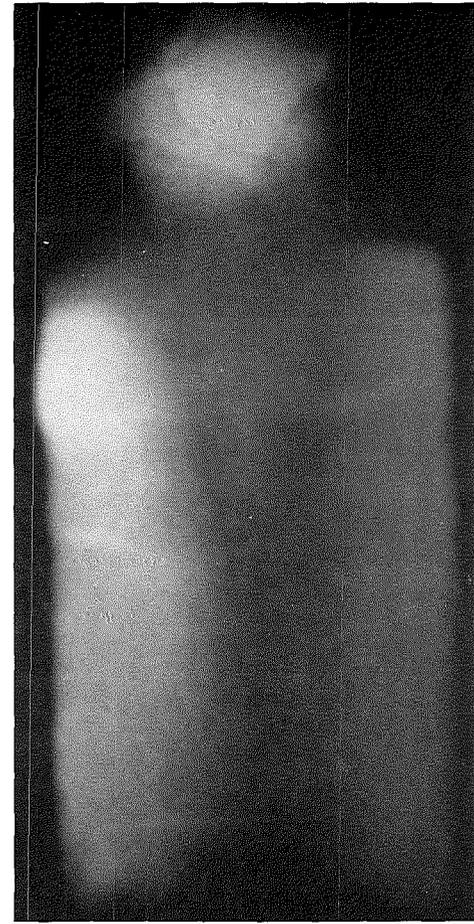


Schnitt 1

1mm



α (2 sec)

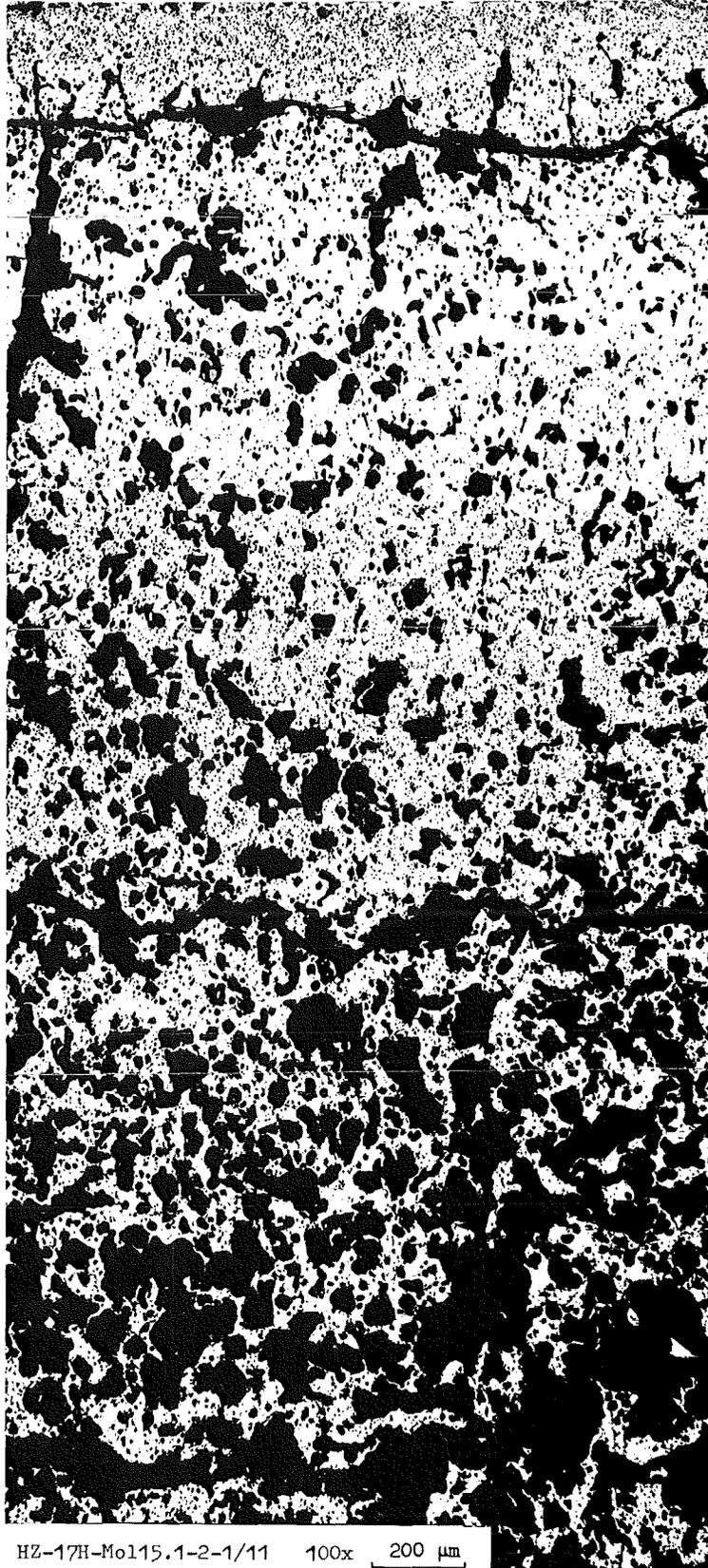


β - γ (8 sec)

Autoradiografie

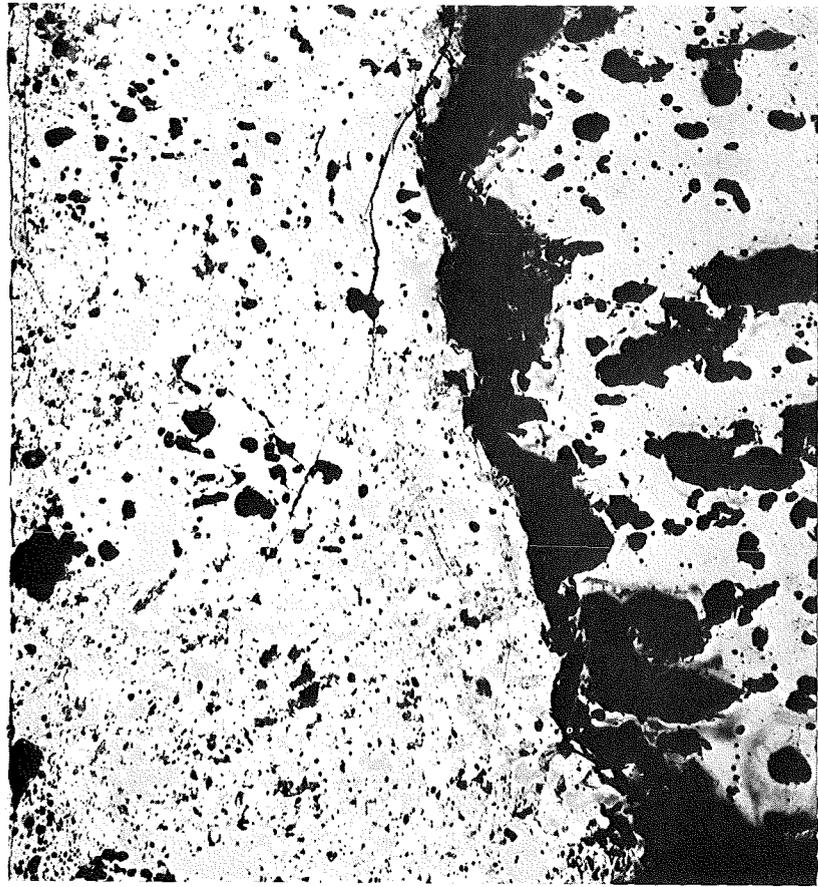
Mol 15/1 Prüfling 2 (U,Pu) C

Stab 2 Schnitt 1

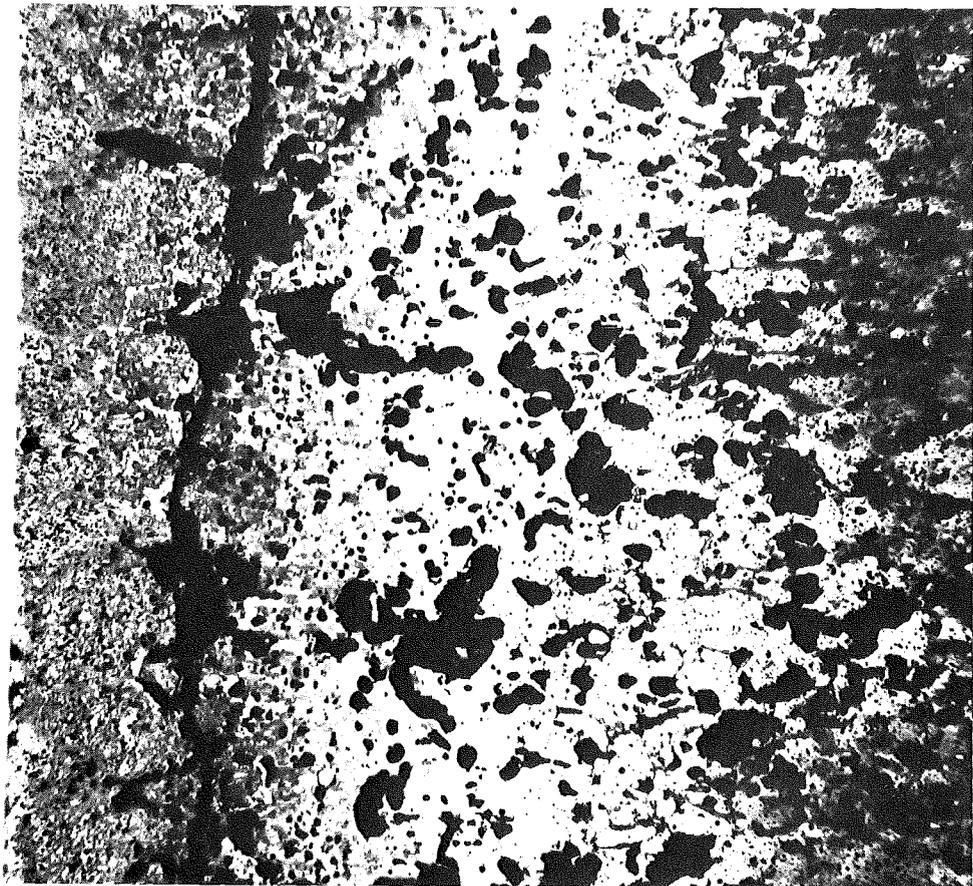


HZ-17H-Mo115.1-2-1/11 100x 200 μm

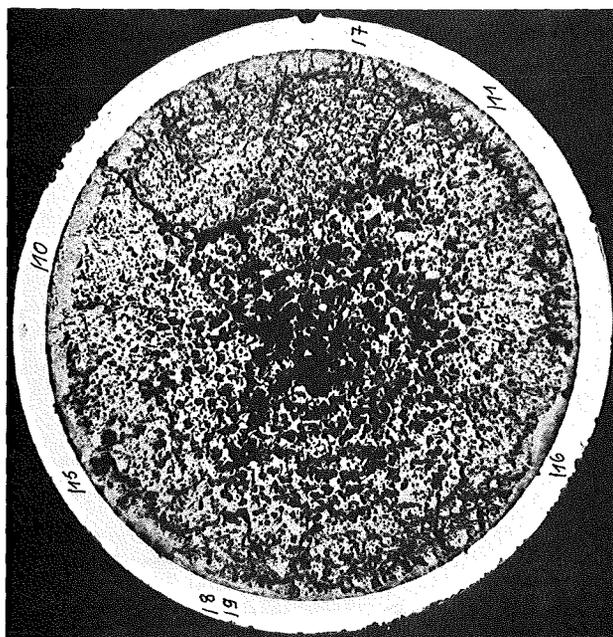
Stab 2 Schnitt 1



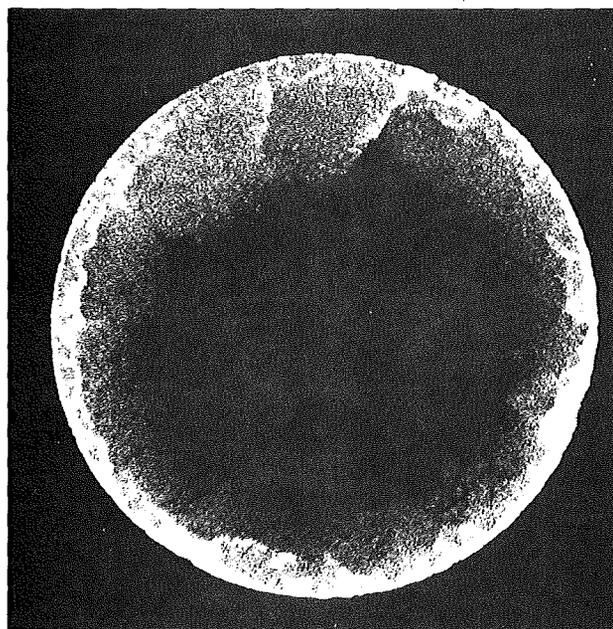
HZ-17H-Mo115.1-2-1/12 200x 100 µm



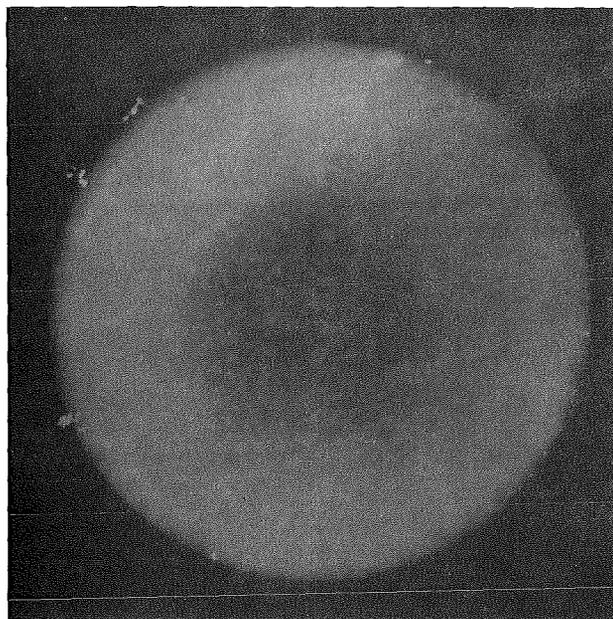
HZ-17H-Mo115.1-2-1/15 100x
geätzt 200 µm



Schnitt 2



α (4 sec)



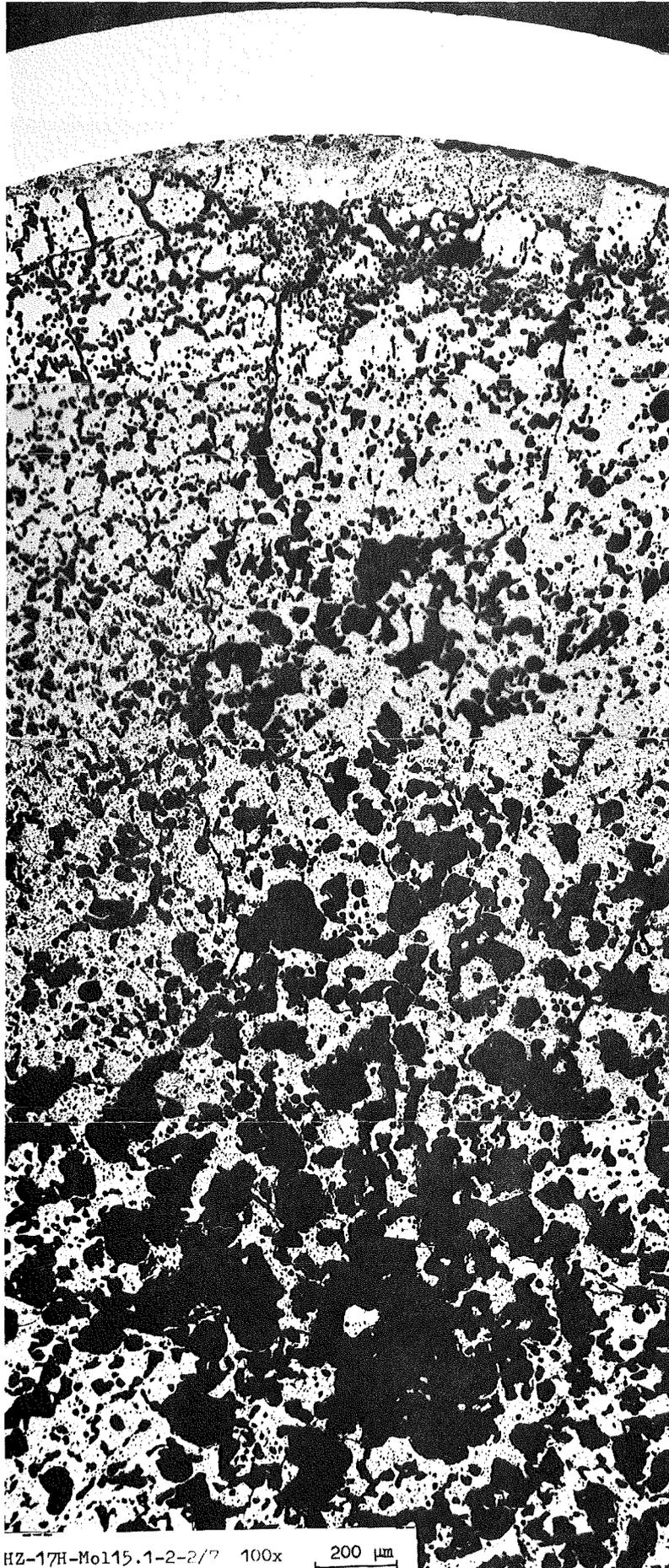
β - γ (12 sec)

Autoradiografie

1 mm

Mol 15/1 Prfling 2 (U,Pu) C

Stab 2 Schnitt 2



HZ-17H-Mo115.1-2-2/7 100x 200 μm

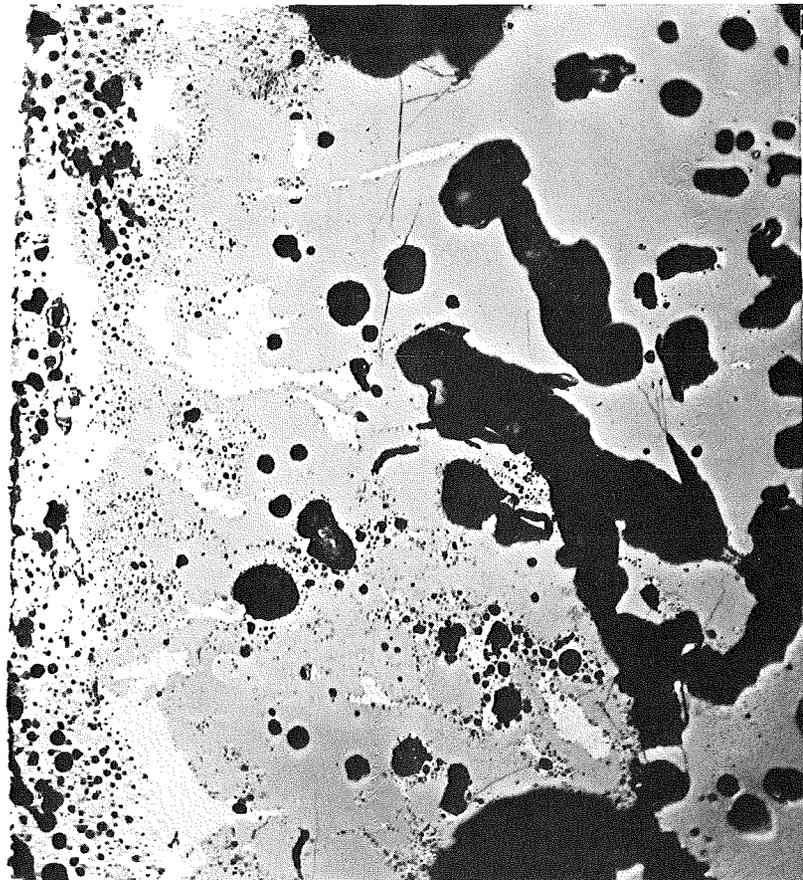
Stab 2 Schnitt 2



100 μm

200x

HZ-17H-Mo115.1-2-2/8

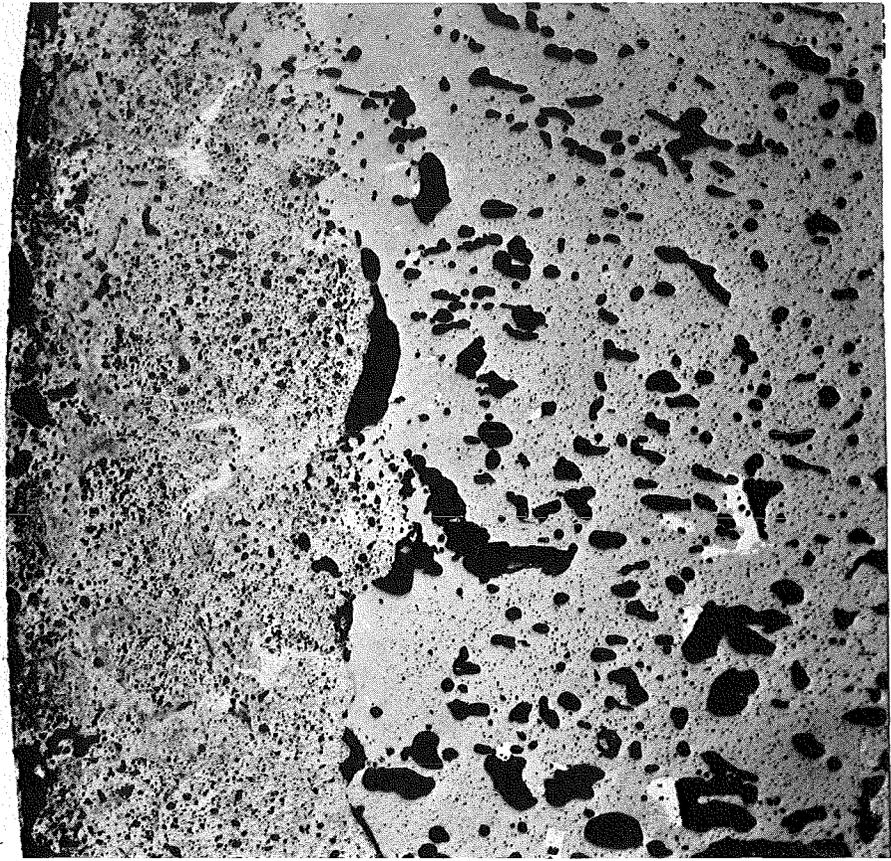


40 μm

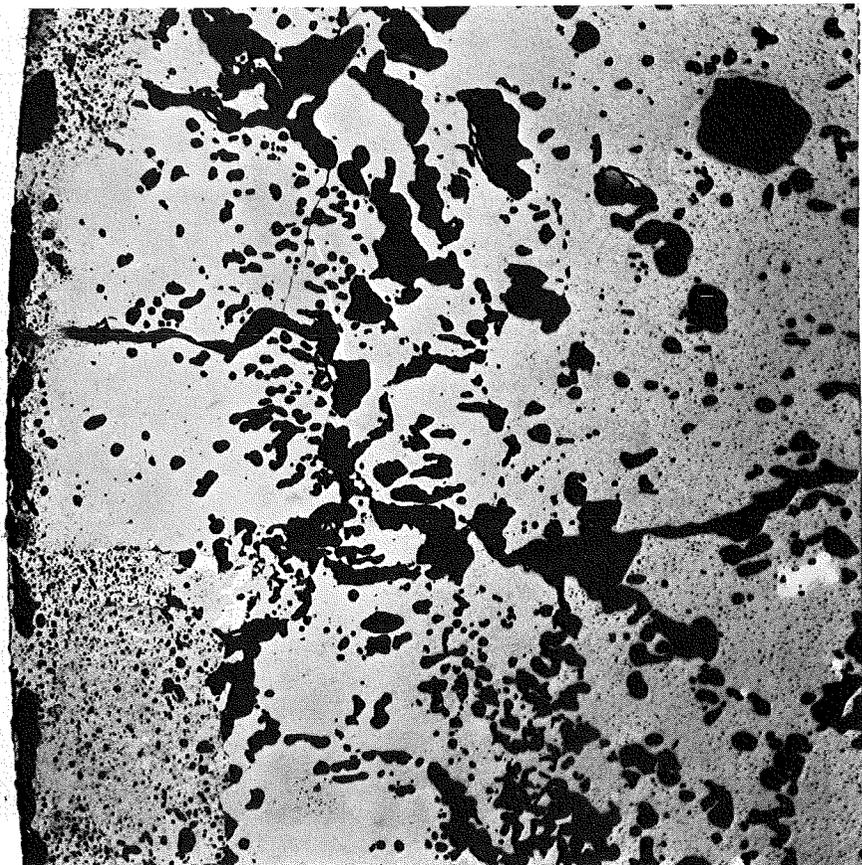
500x

HZ-17H-Mo115.1-2-2/9

Stab 2 Schnitt 2

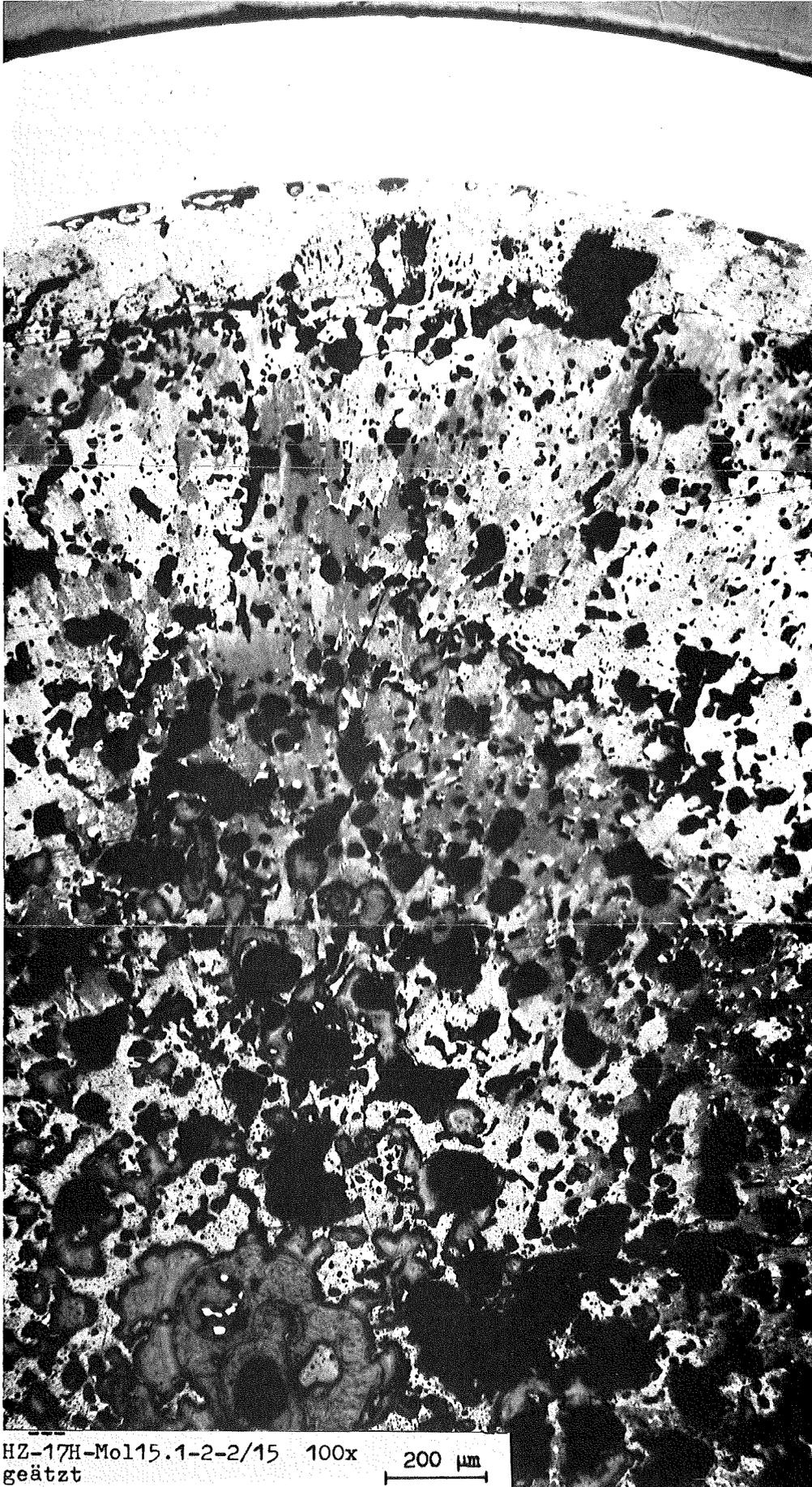


HZ-17H-Mo115.1-2-2/10 200x 100 μm

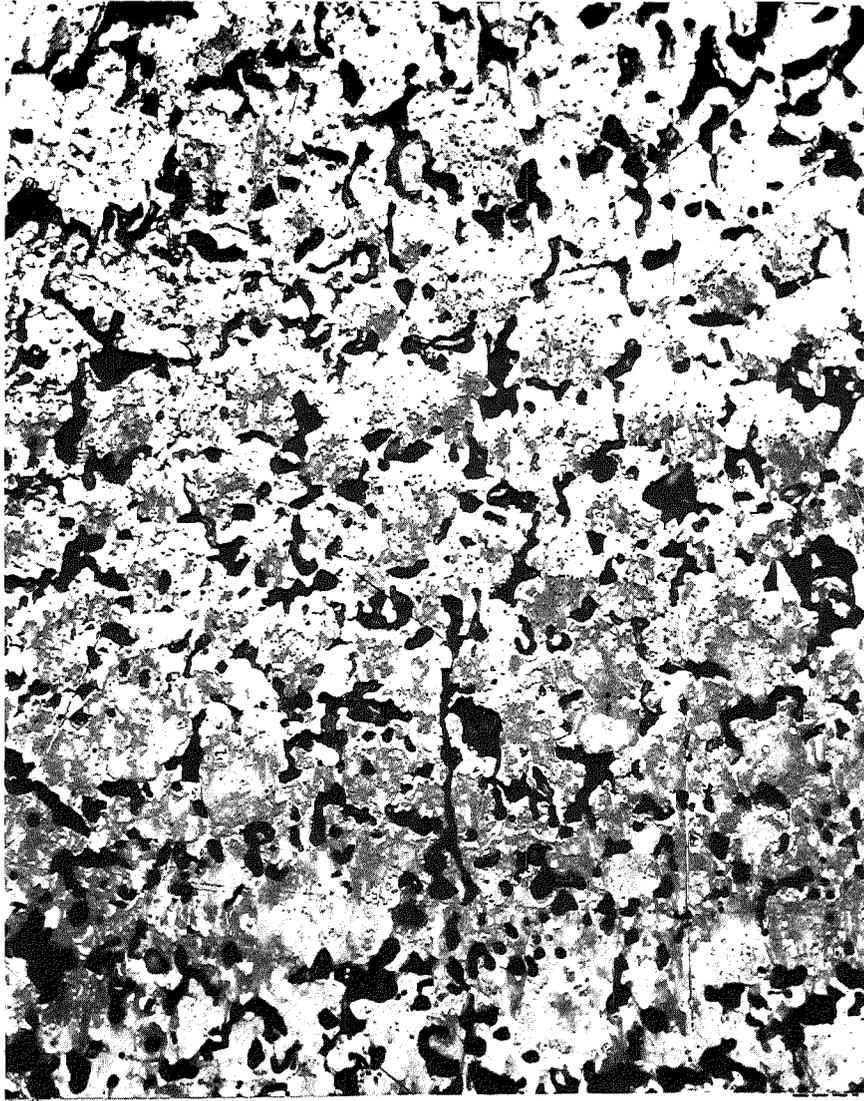


HZ-17H-Mo115.1-2-2/11 200x 100 μm

Stab 2 Schnitt 2



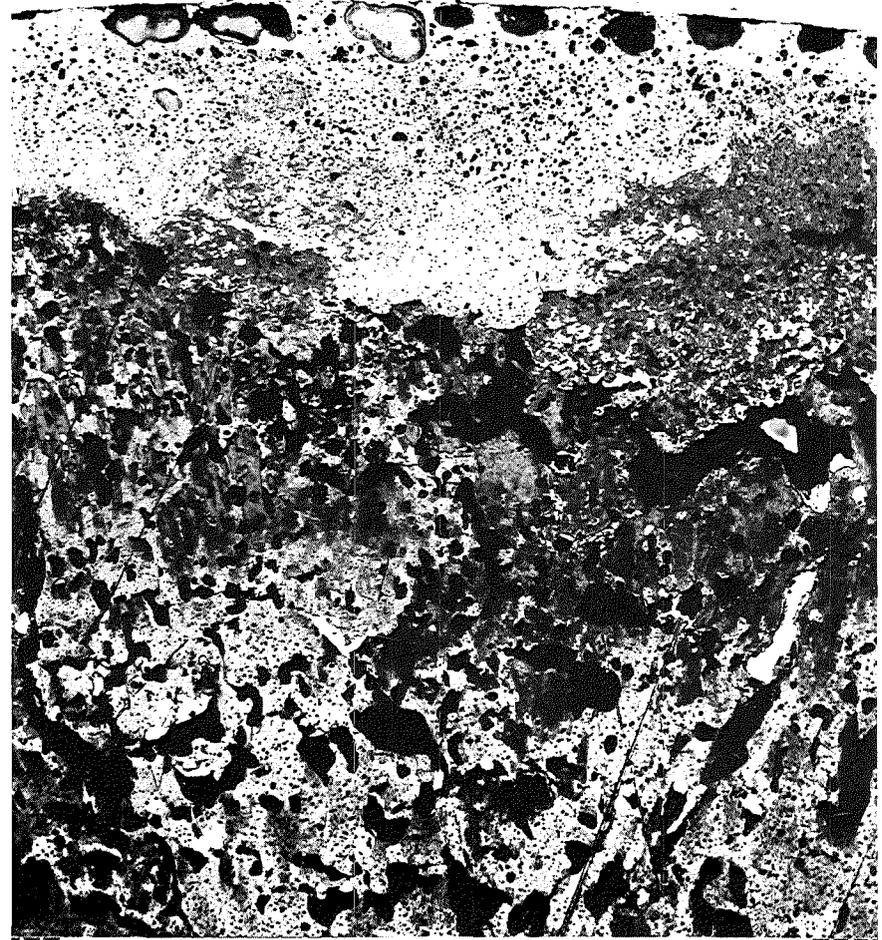
HZ-17H-Mo115.1-2-2/15 100x
geätzt 200 μ m



HZ-17H-Mo115.1-2-2/18
geätzt

200x

100 μm

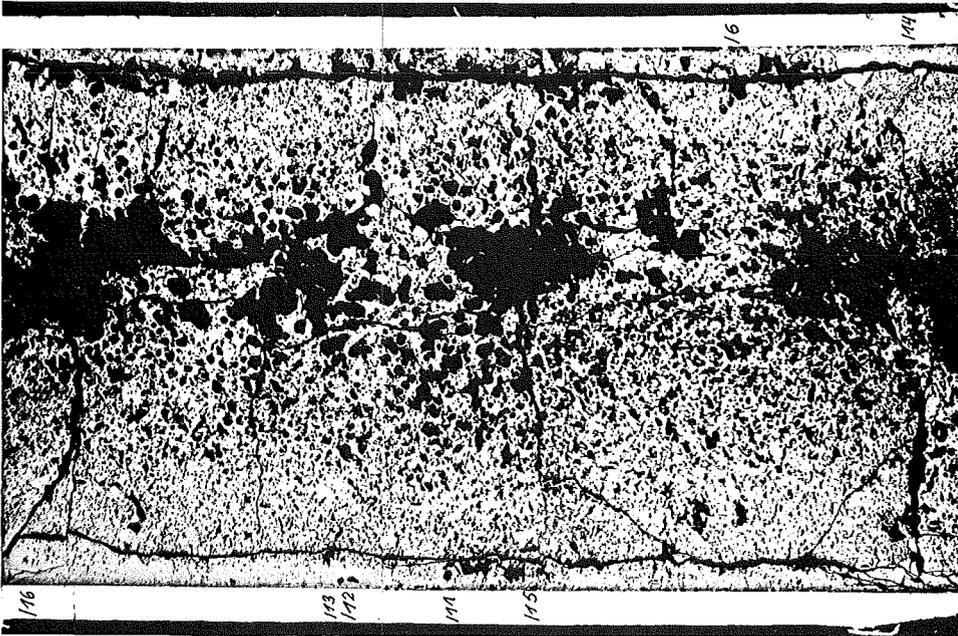


HZ-17H-Mo115.1-2-2/16
geätzt

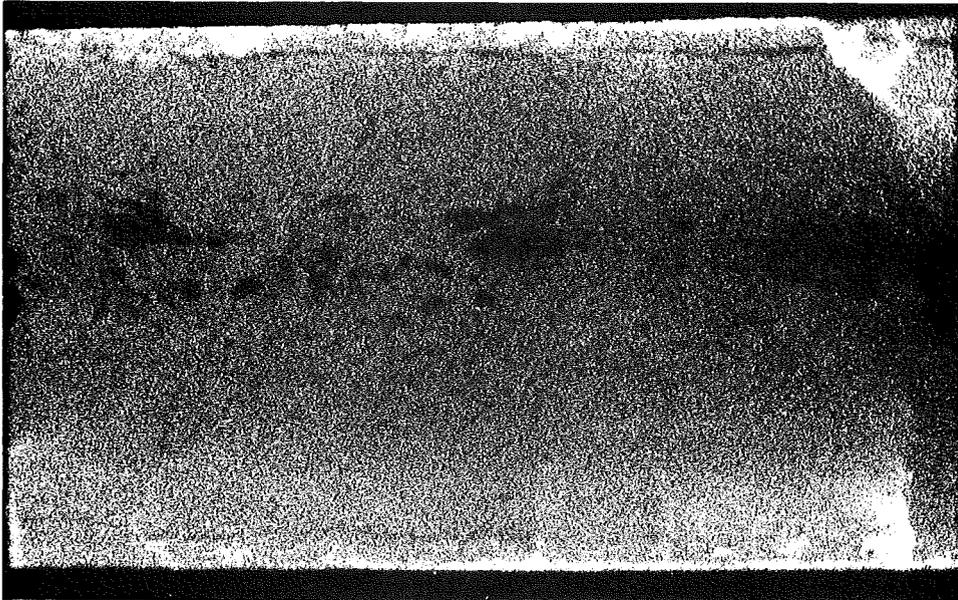
200x

100 μm

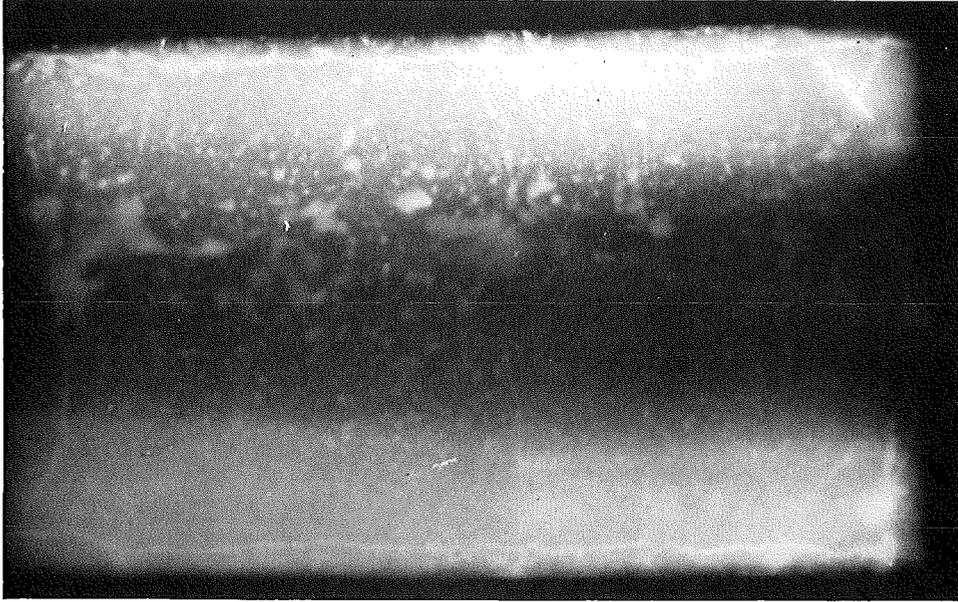
Stab 2 Schnitt 2



Schnitt 3



α (4 sec)



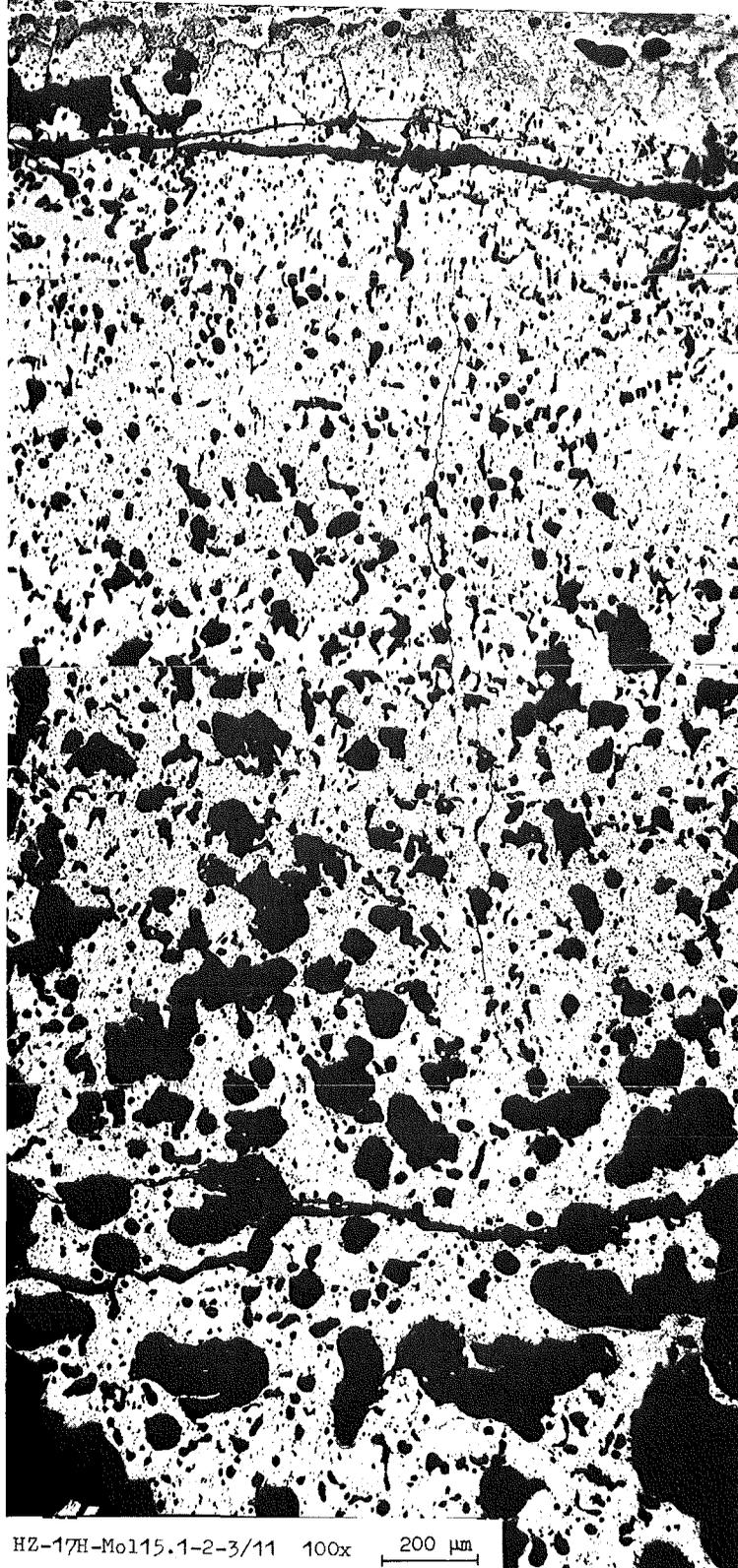
β - γ (8 sec)

1 mm

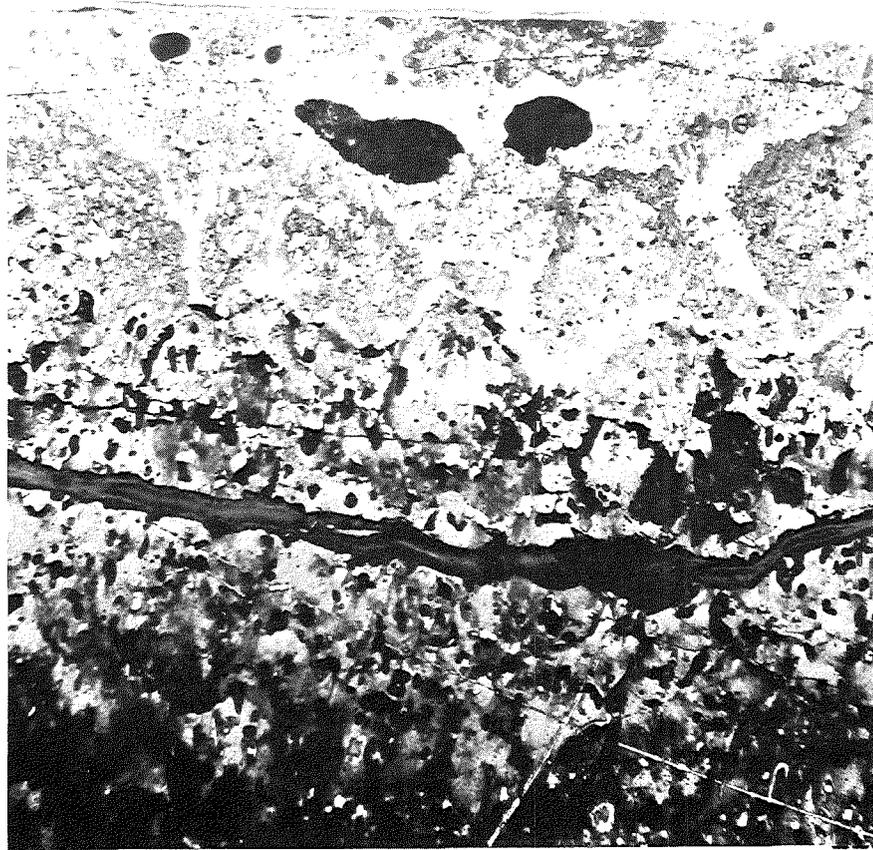
Autoradiografie

Mol 15/1 Prüfling 2 (U,Pu) C

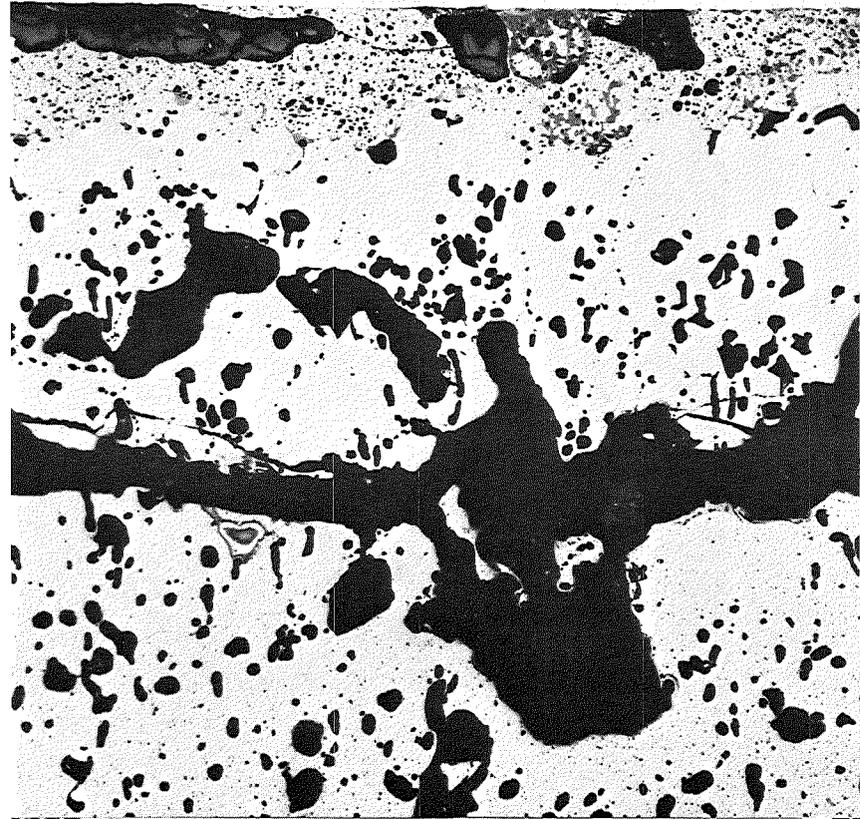
Stab 2 Schnitt 3



HZ-17H-Mo115.1-2-3/11 100x 200 μm

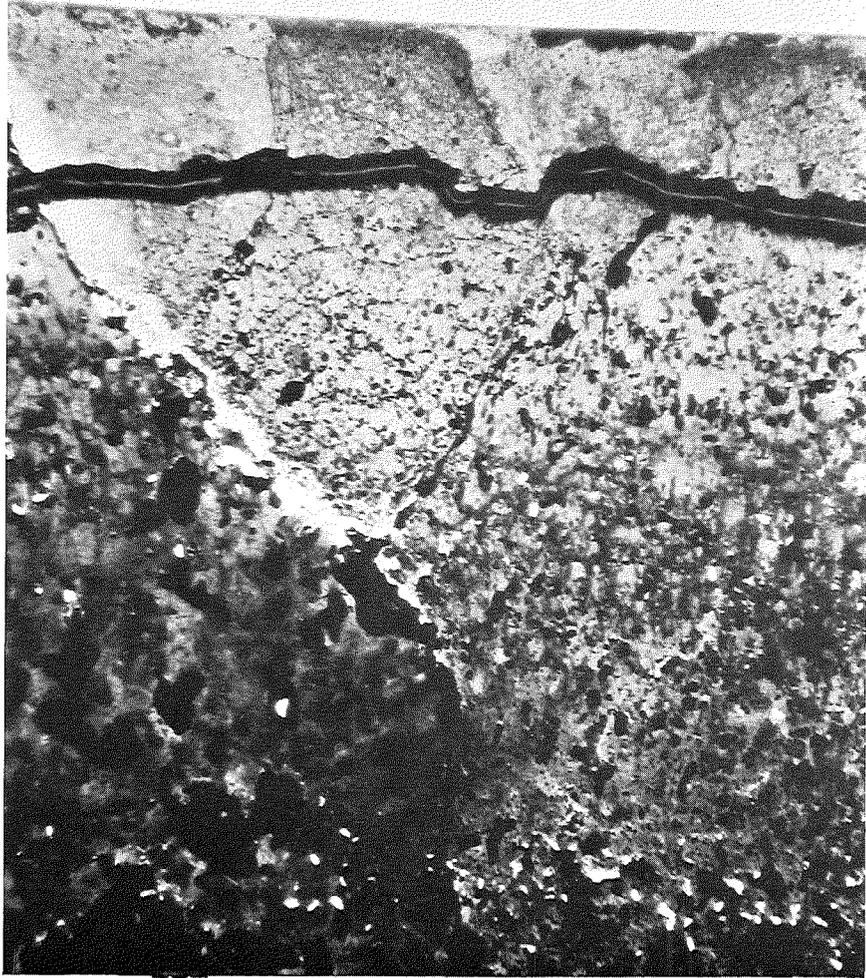


HZ-17H-Mo115.1-2-3/12 200x
geätzt 100 μm

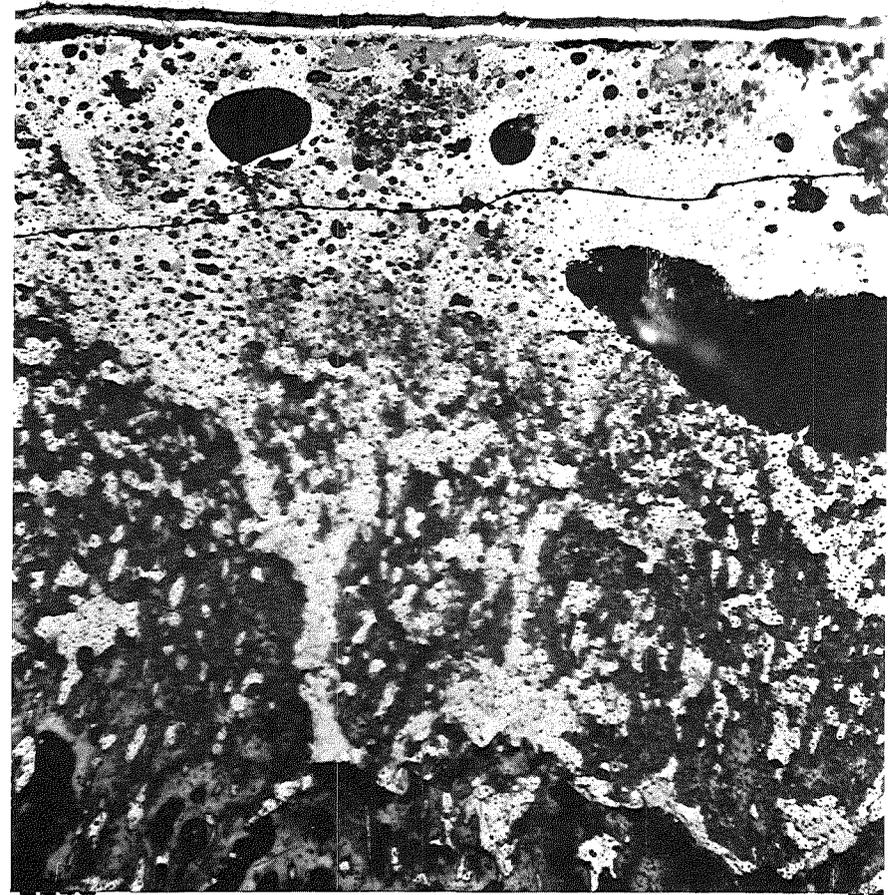


HZ-17H-Mo115.1-2-3/6 200x
100 μm

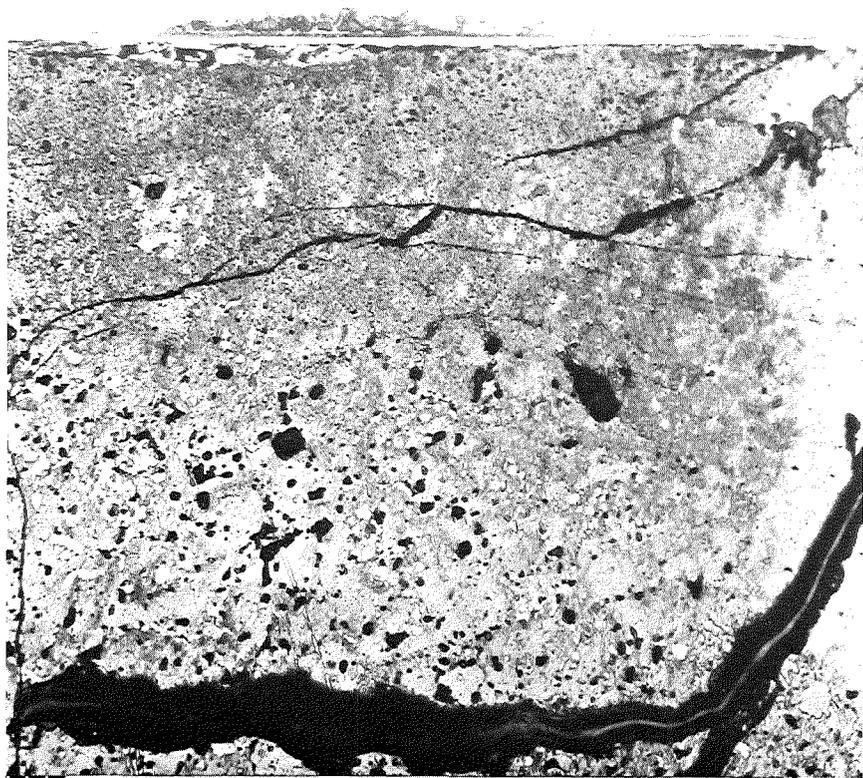
Stab 2 Schnitt 3



HZ-17H-Mo115.1-2-3/14 100x 200 μm
geätzt



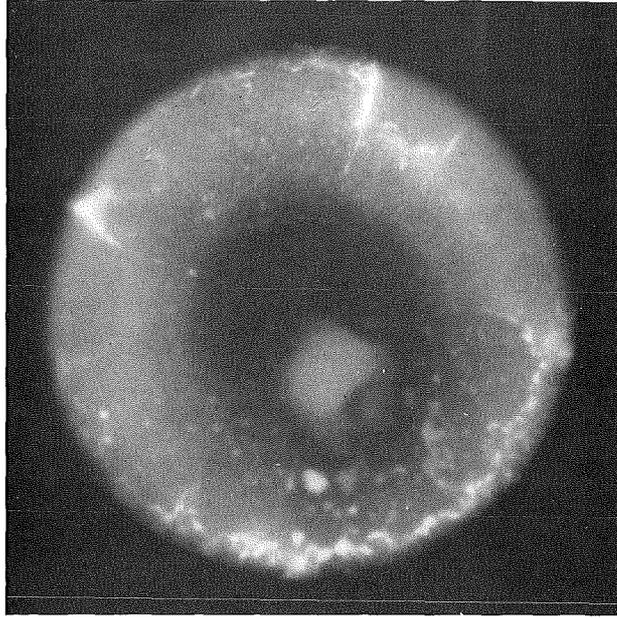
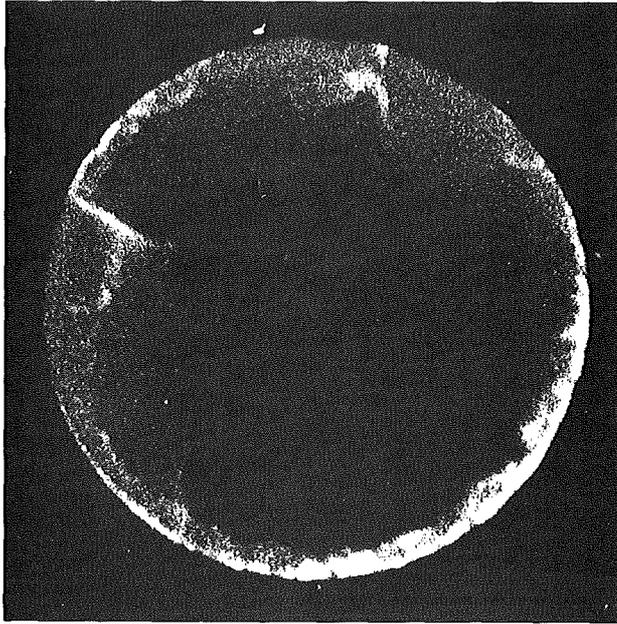
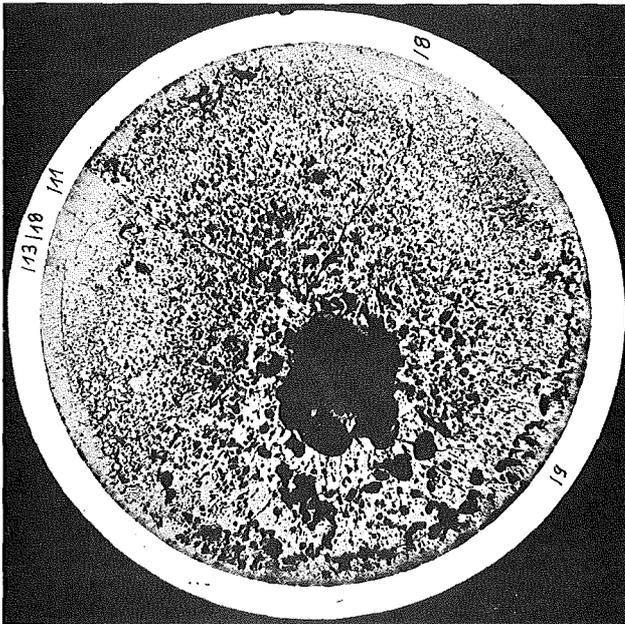
HZ-17H-Mo115.1-2-3/13 500 x 40 μm
geätzt



HZ-17H-Mo15.1-2-3/16 200x
geätzt 100 μm



HZ-17H-Mo15.1-2-3/15 100x
geätzt 200 μm



Schnitt 4

α (4 sec)

β - γ (8 sec)

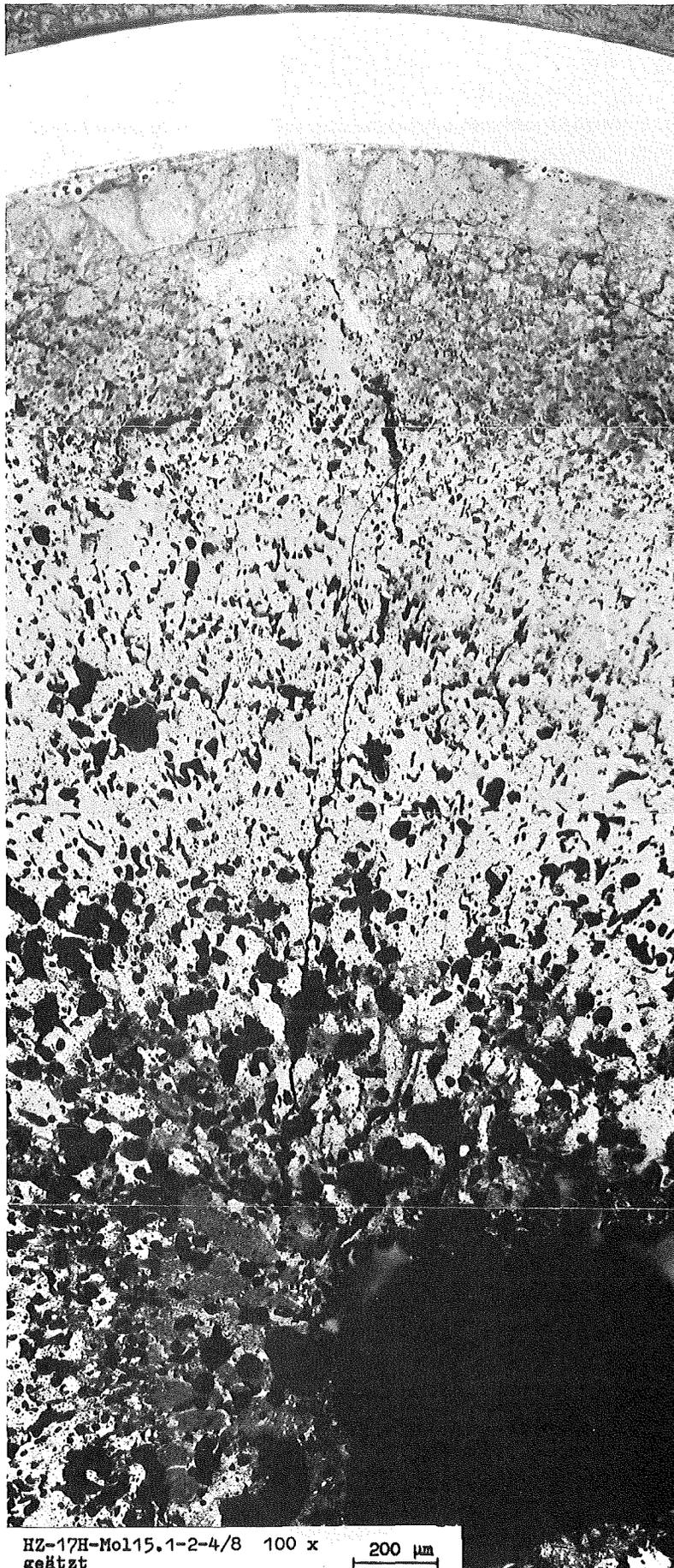
Autoradiografie

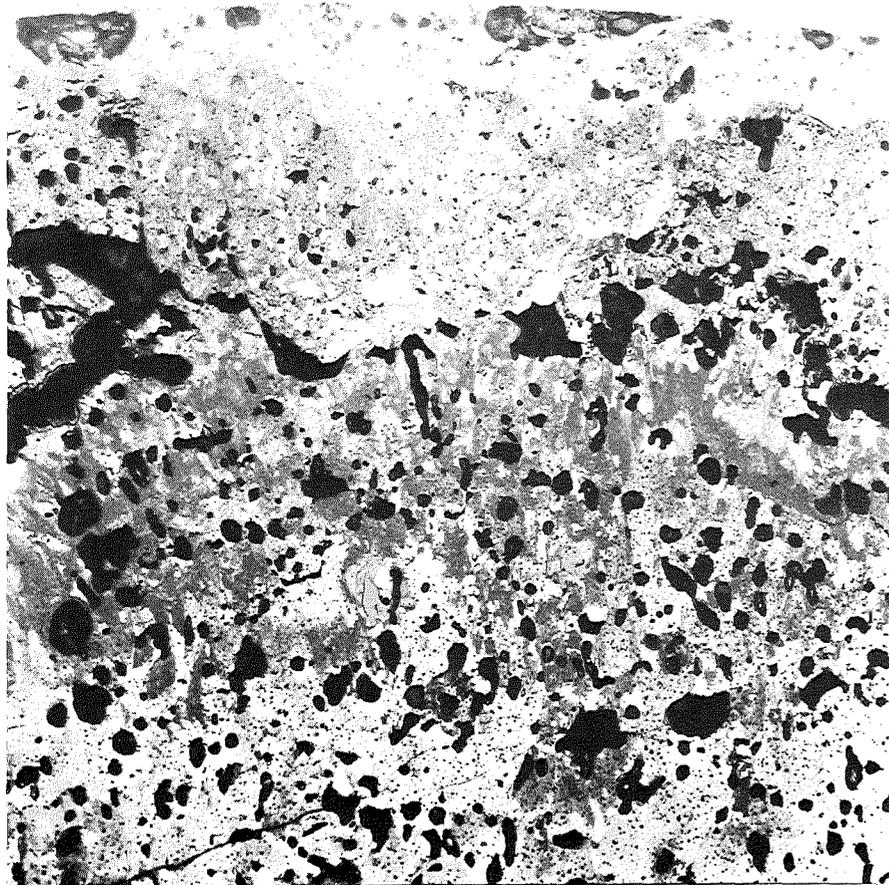
1 mm

Mol 15/1 Prüfling 2 (U,Pu) C

- II/34 -

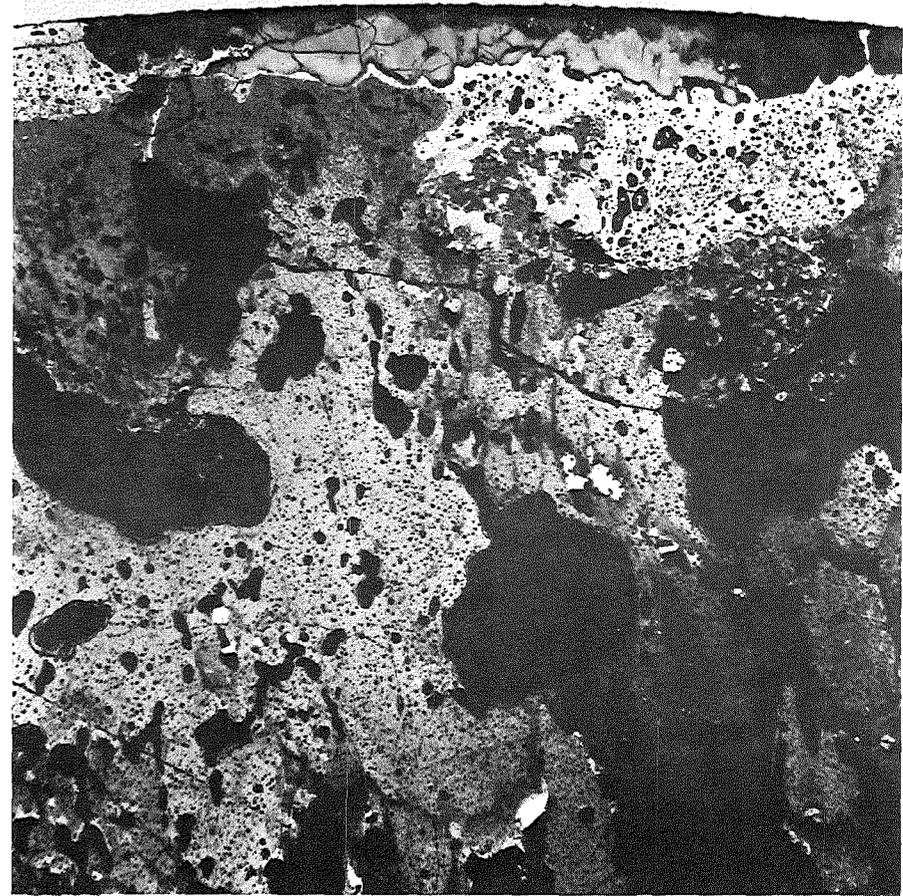
Stab 2 Schnitt 4





HZ-17H-Mo115.1-2-4/11
geätzt 200x

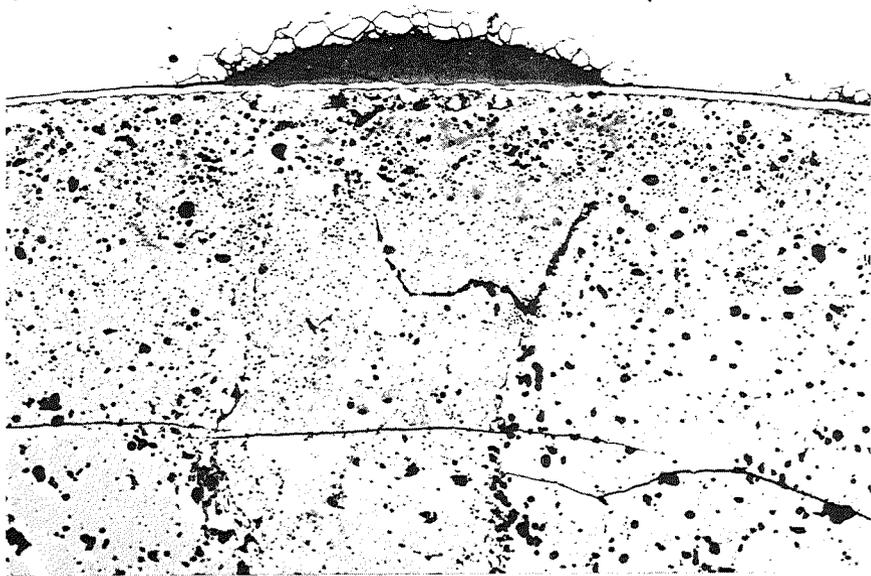
100 μm



HZ-17H-Mo115.1-2-4/9
geätzt 200x

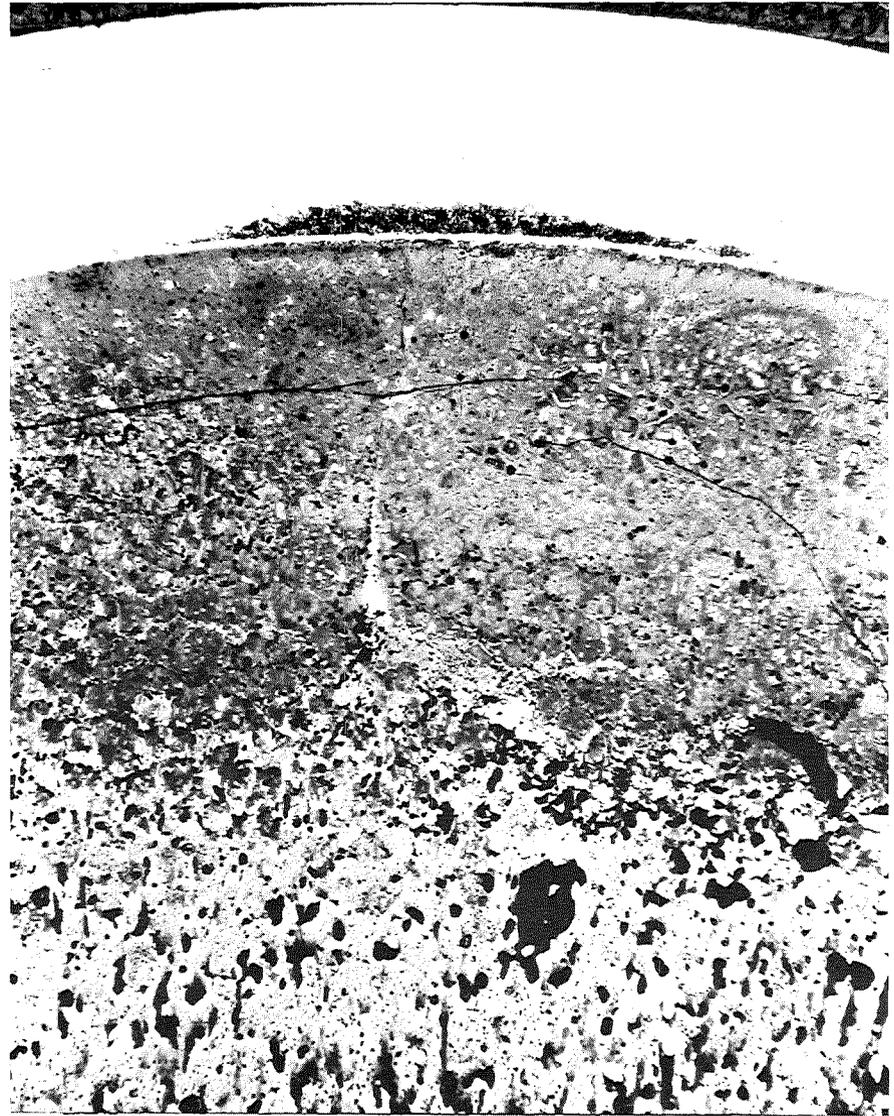
100 μm

Stab 2 Schnitt 4



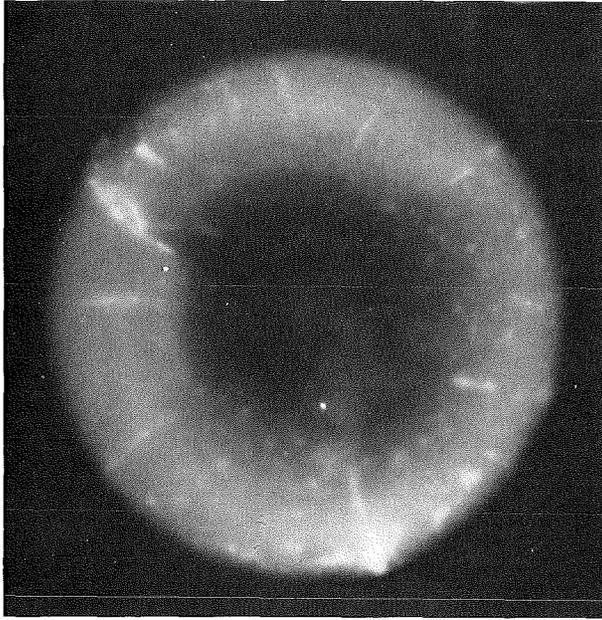
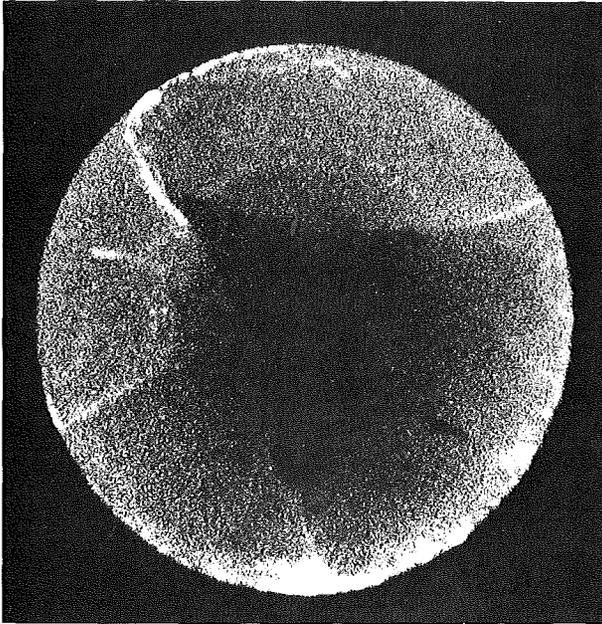
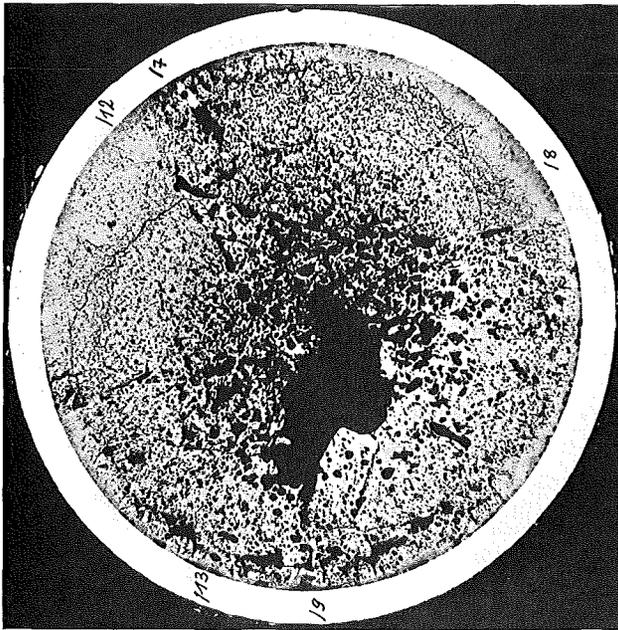
HZ-17H-Mo115.1-2-4/18 200x
geätzt

100 μ m



HZ-17H-Mo115.1-2-4/13 100 x
geätzt

200 μ m



Schnitt 5

α (4 sec)

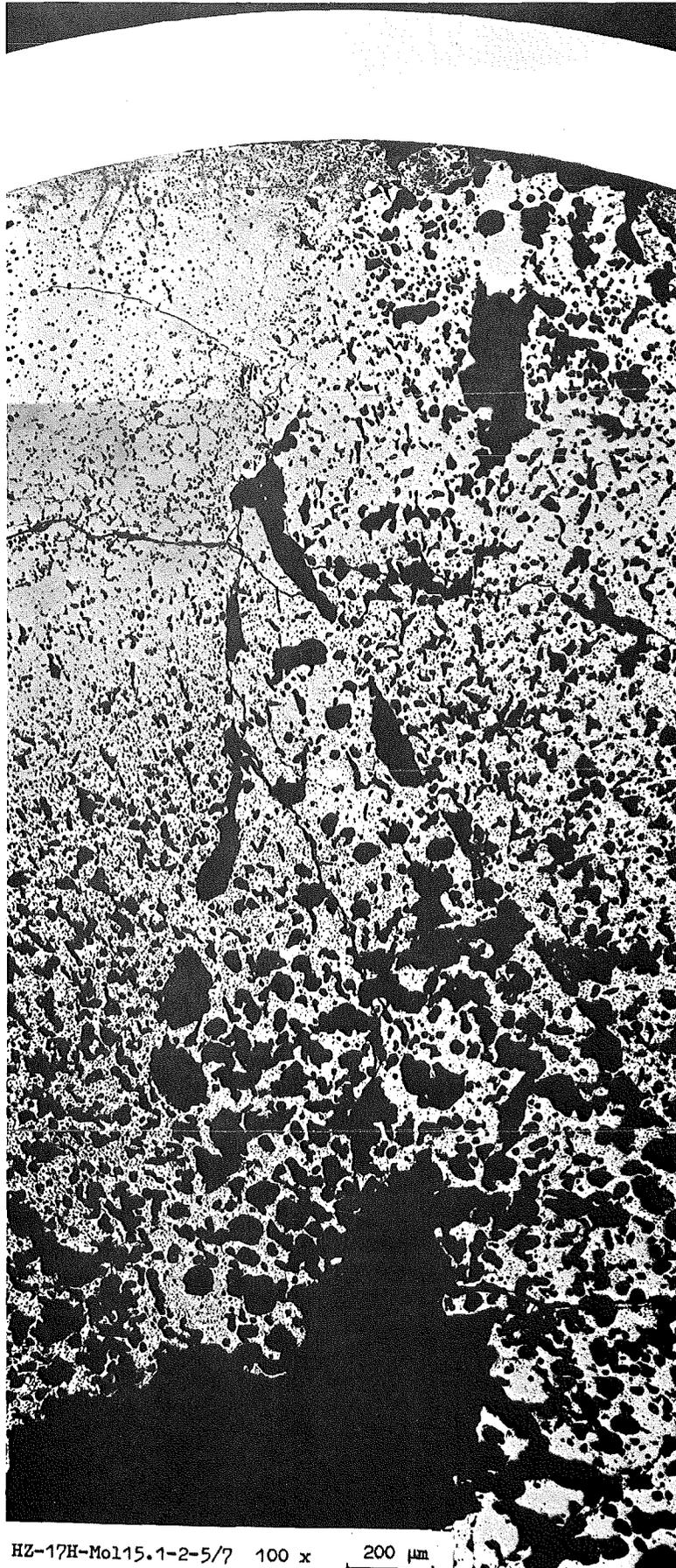
β - γ (12 sec)

Autoradiografie

1 mm

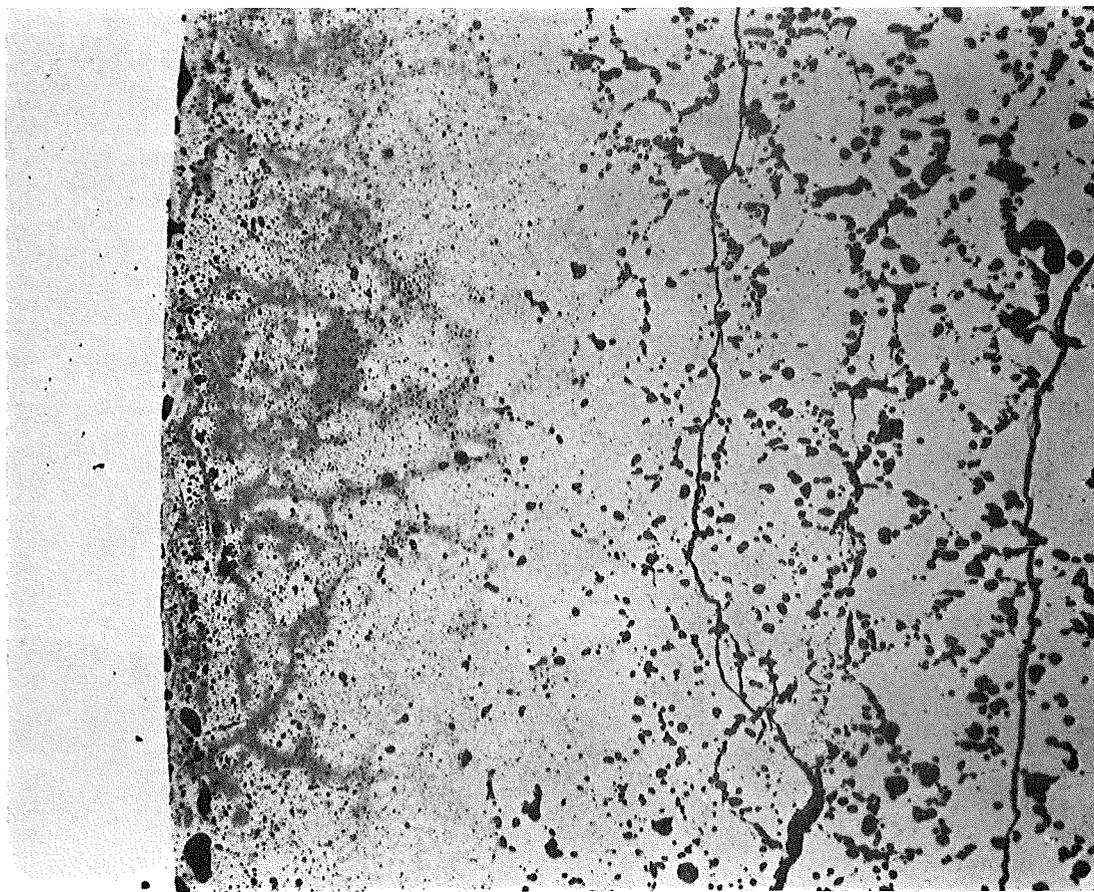
Mol 15/1 Prüfung 2 (U,Pu) C

Stab 2 Schnitt 5



HZ-17H-Mo115.1-2-5/7 100 x 200 μm

Stab 2 Schnitt 5



100 μm

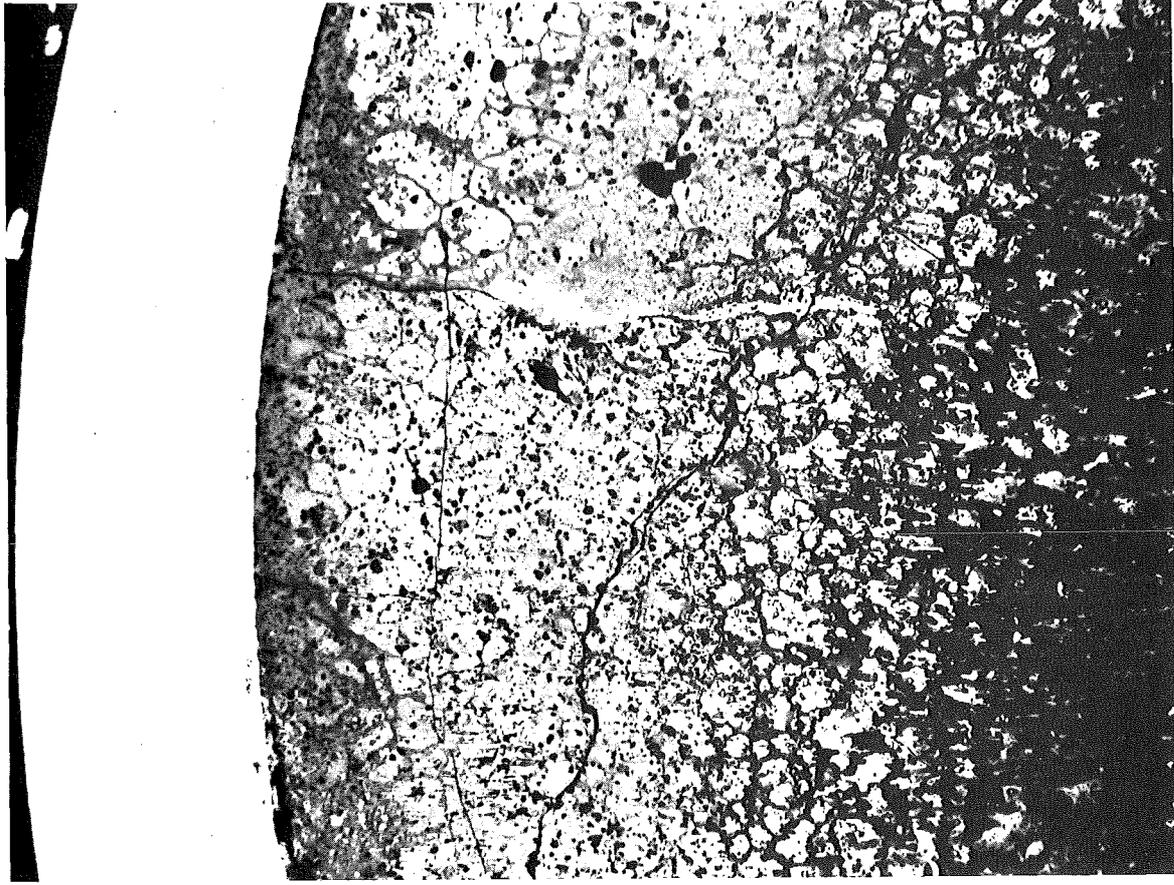
HZ-17H-Mo115.1-2-5/8 200x



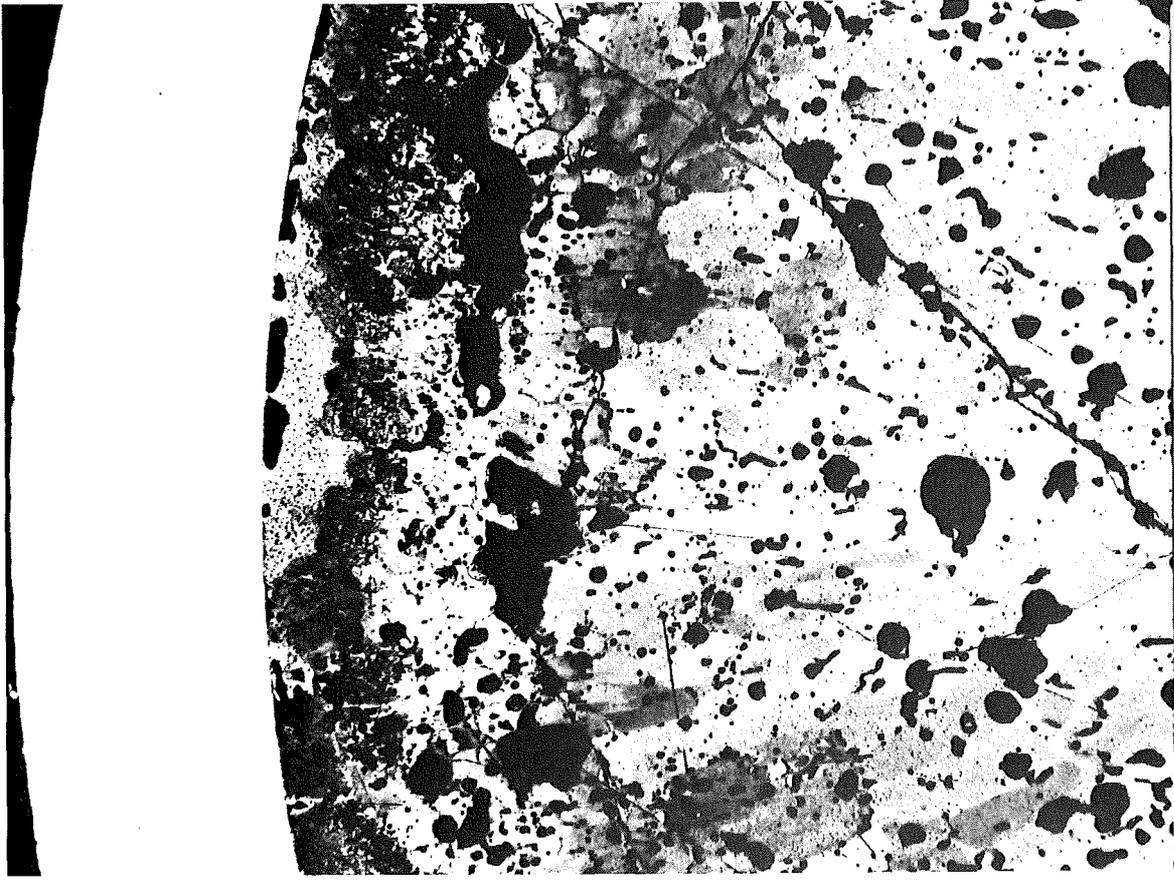
100 μm

HZ-17H-Mo115.1-2-5/9 200x

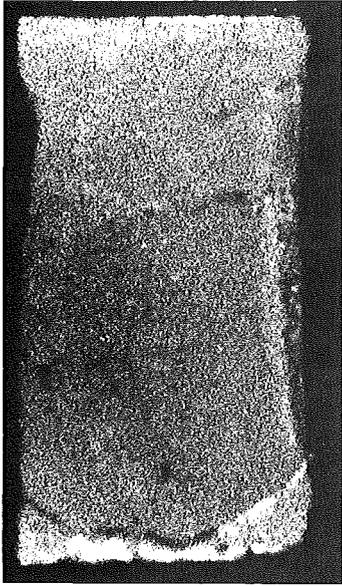
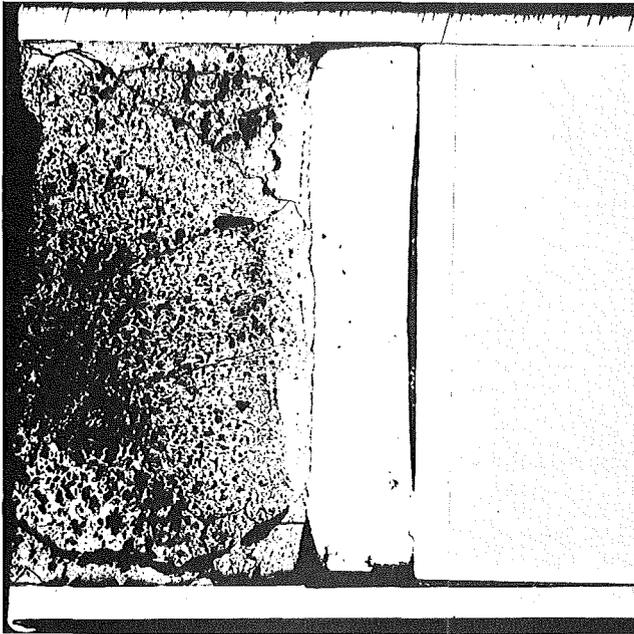
Stab 2 Schnitt 5



HZ-17H-Mo115.1-2-5/12 100 x 200 µm
Geätzt



HZ-17H-Mo115.1-2-5/13 100 x 200 µm
Geätzt



Schnitt 6

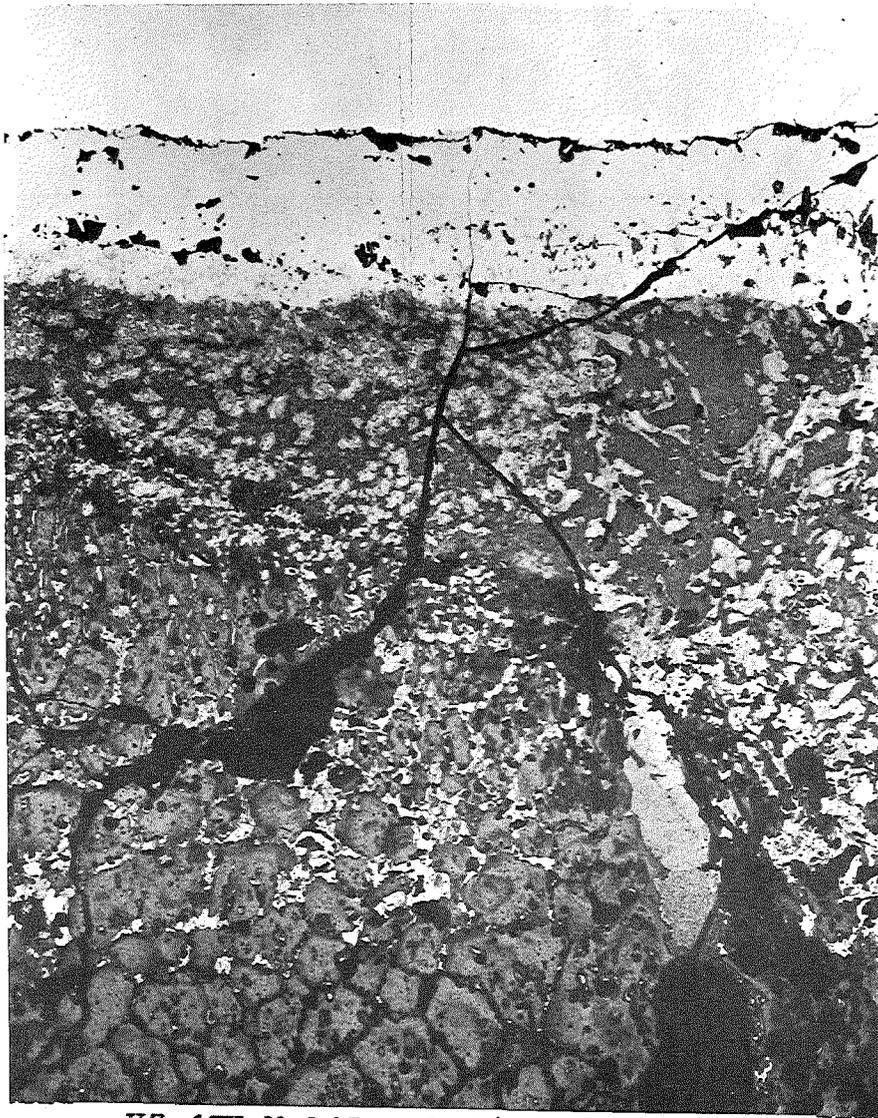
α (2 sec)

β - γ (8 sec)

Autoradiografie

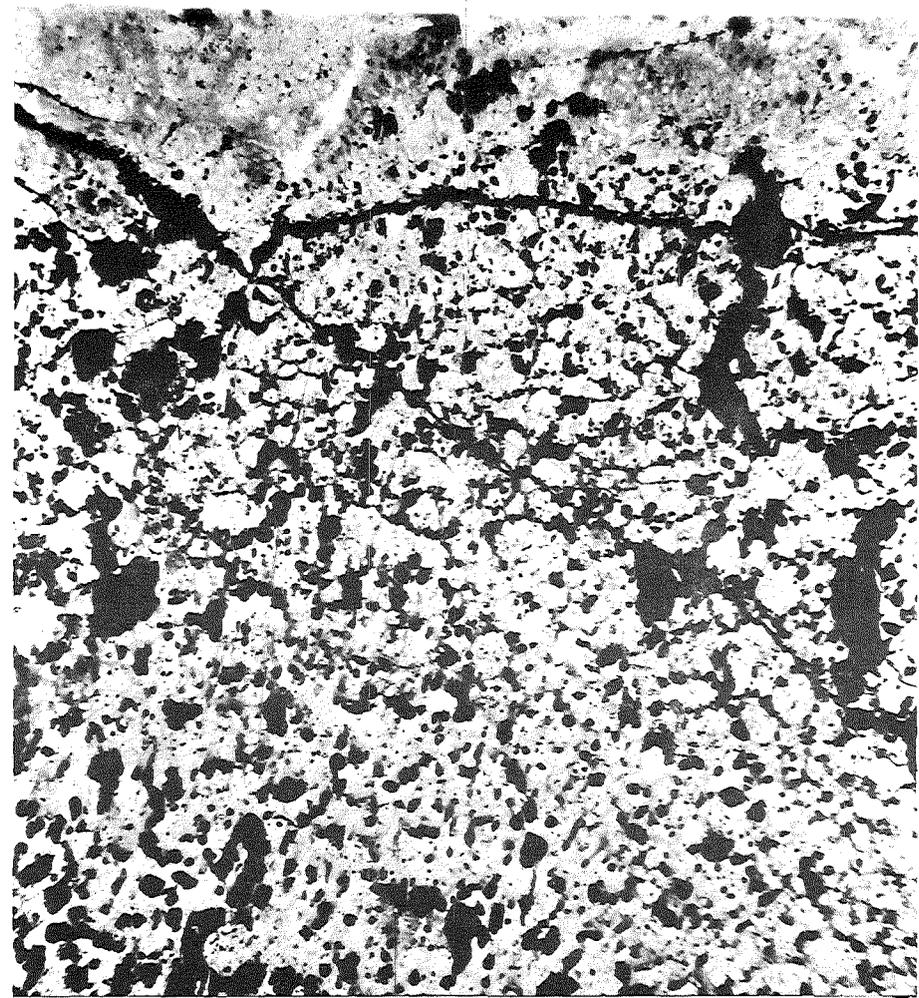
1 mm

Mol 15/1 Prüfling 2 (U,Pu) C



HZ-17H-Mo115.1-2-6/13 200x
geätzt

100 μm

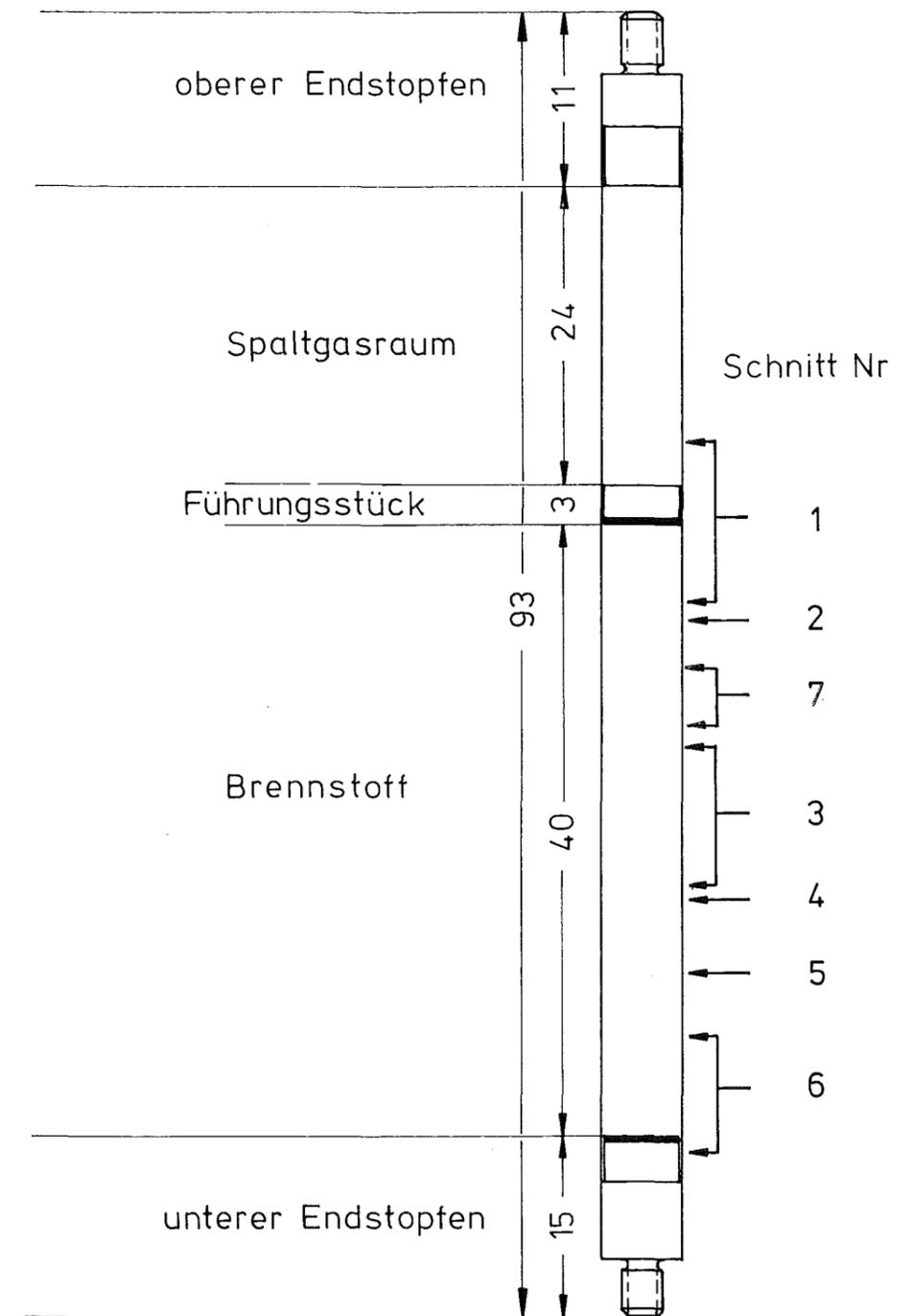
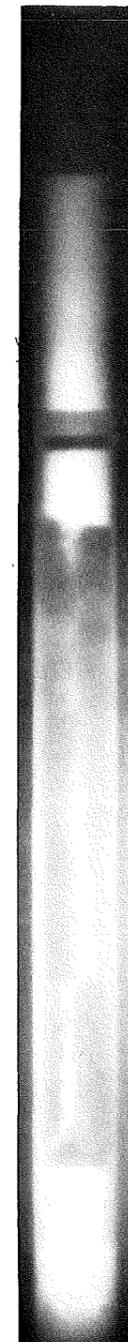


HZ-17H-Mo115.1-2-6/9 100x
geätzt

200 μm

Stab 2 Schnitt 6

Prüfling 2	
Brennstoff:	
Form	: Tabletten
Zusammensetzung	: (U,Pu)C
Tablettendichte	: 93,7 % th.D.
Hülle:	
Material	: 1.4988
Aussendurchmesser	: 5,6 mm
Wandstärke	: 0,3 mm
Geometrie:	
Länge des Prüflings	: 93,2 mm
Länge der Brennstoffsäule	: 39,9 mm
Radiale Spaltweite	: 265 μ m
Schmierdichte	: 74,9 % th.D.
Bestrahlung:	
Einrichtung	: Kapsel mit Cu-Kreuz
Dauer in Vollasttagen	: 184,2 d
Ende	: 26.9.7
Rechn. Abbrand	: 90 MWd/kg Me
Stableistung max/mittl.	: 1130/883 W/cm

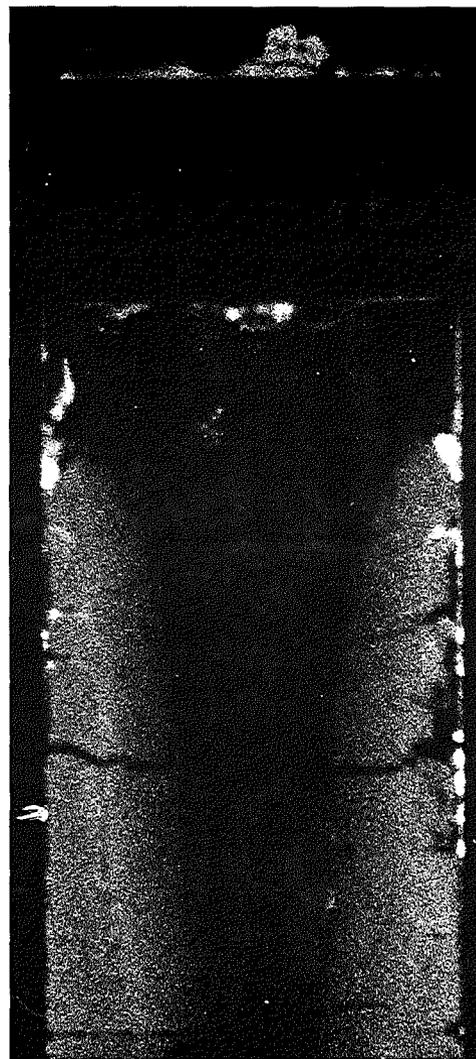


7= Abbrand-und Spaltgasprobe



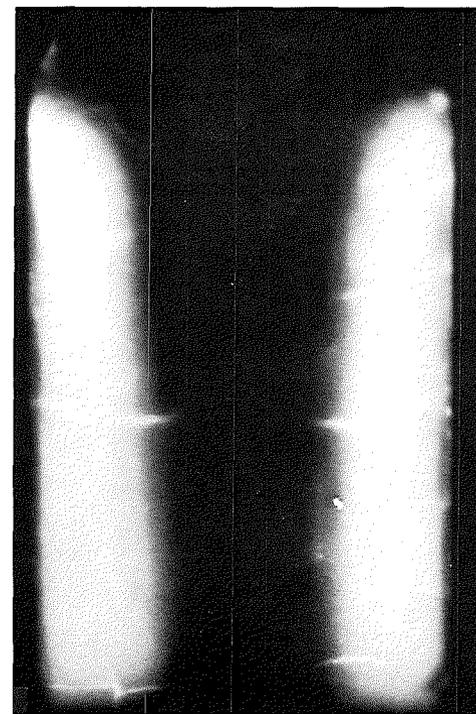
Schnitt 1

1mm



α (2 sec)

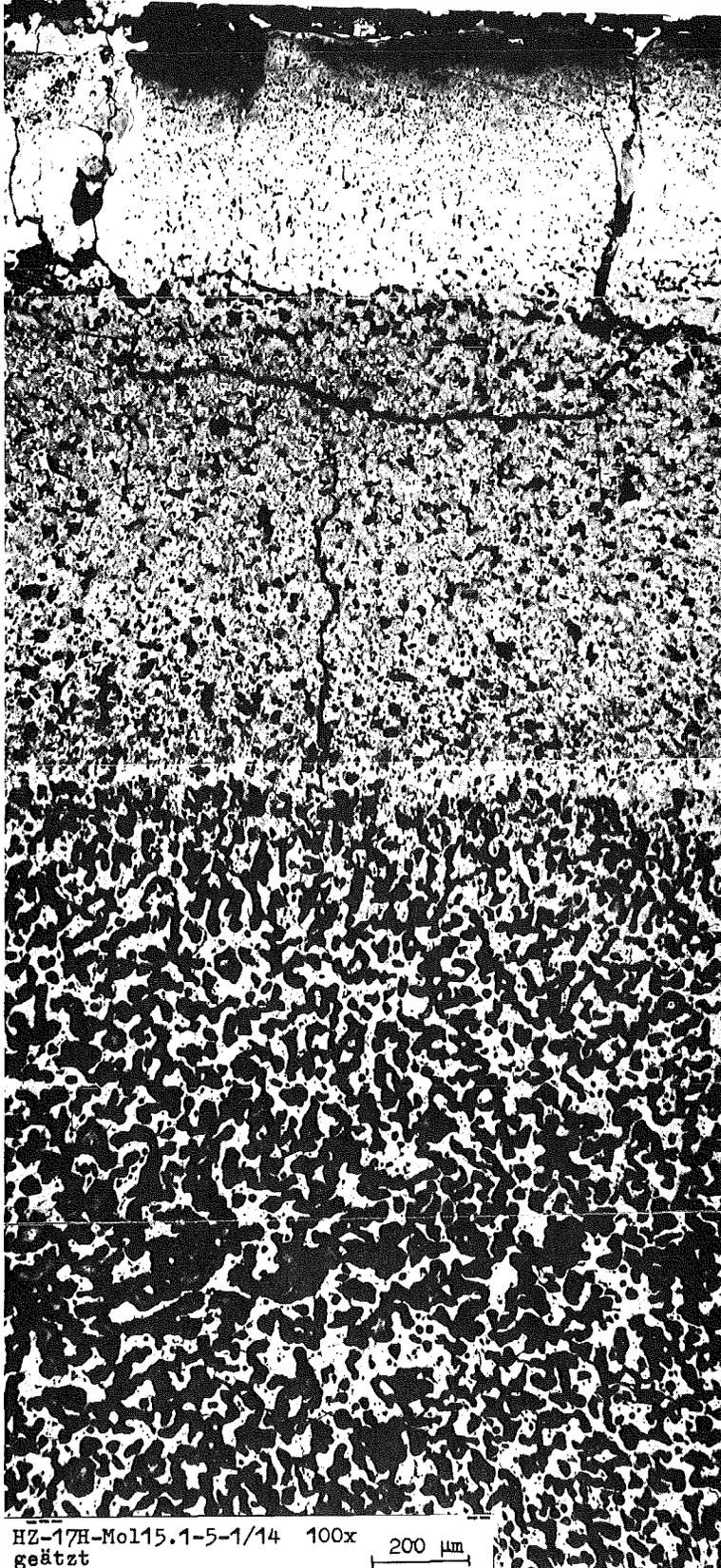
Autoradiografie



β-γ (8 sec)

Mol 15/1 Prüfling 5 (U,Pu)₂ C₃

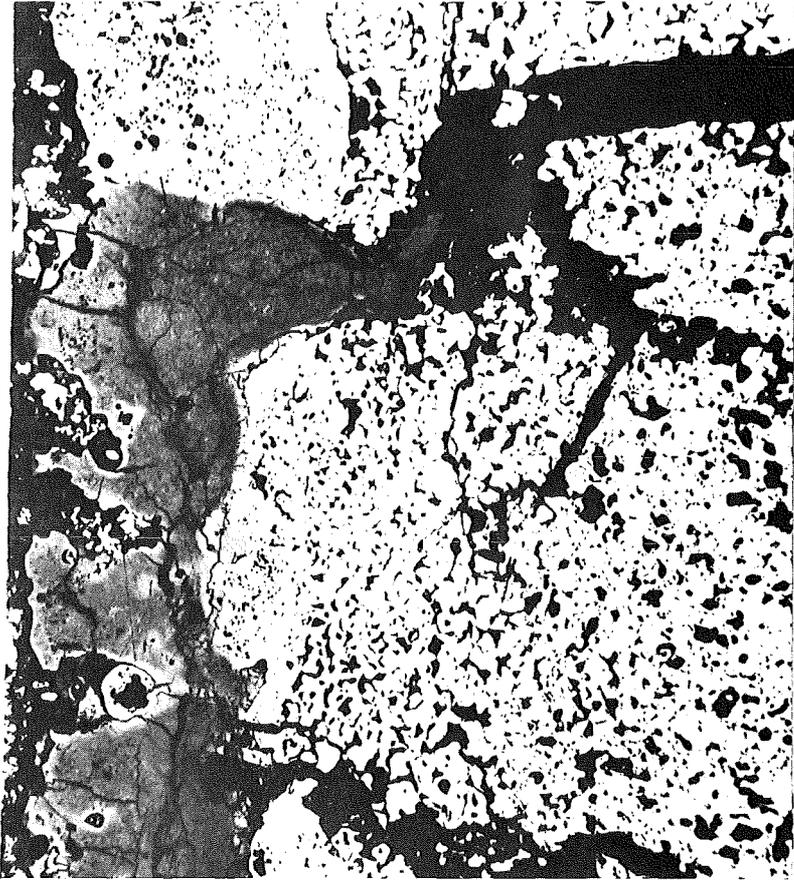
Stab 5 Schnitt 1



HZ-17H-Mo115.1-5-1/14 100x
geätzt

200 μ m

Stab 5 Schnitt 1

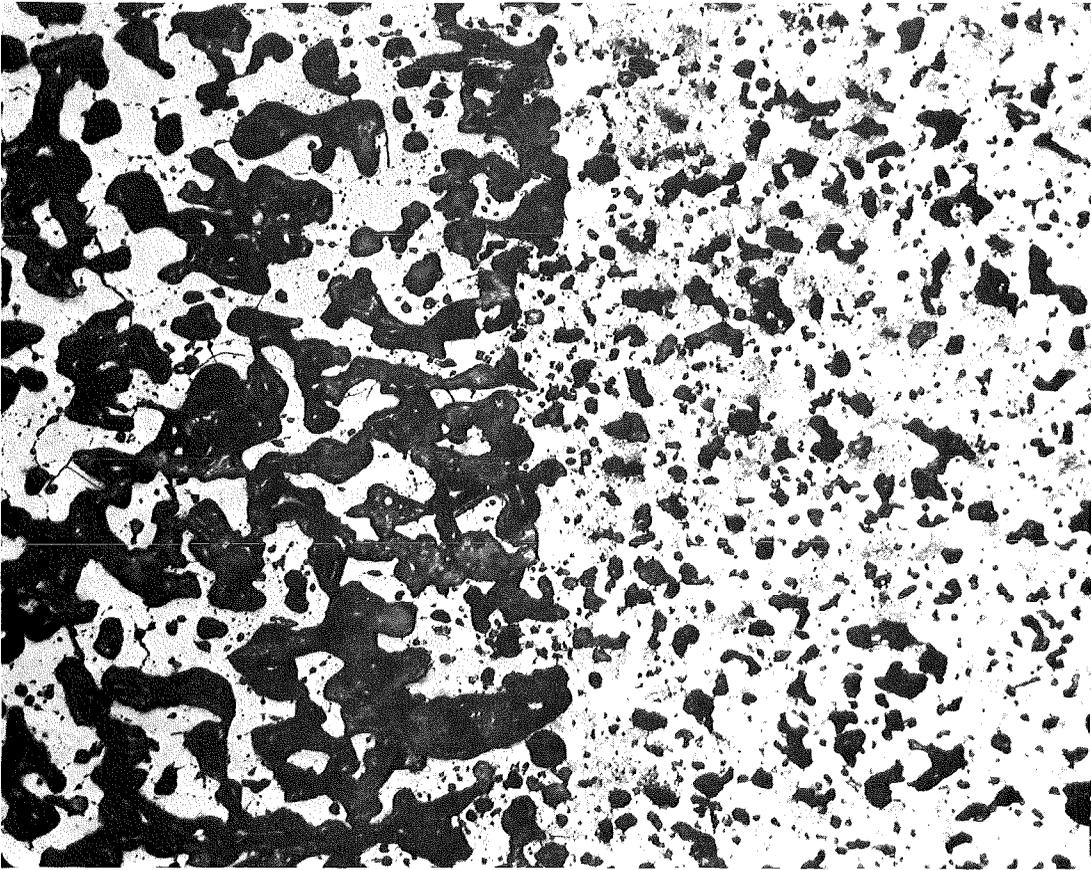


HZ-17H-Mol15.1-5-1/8 100x 200 µm

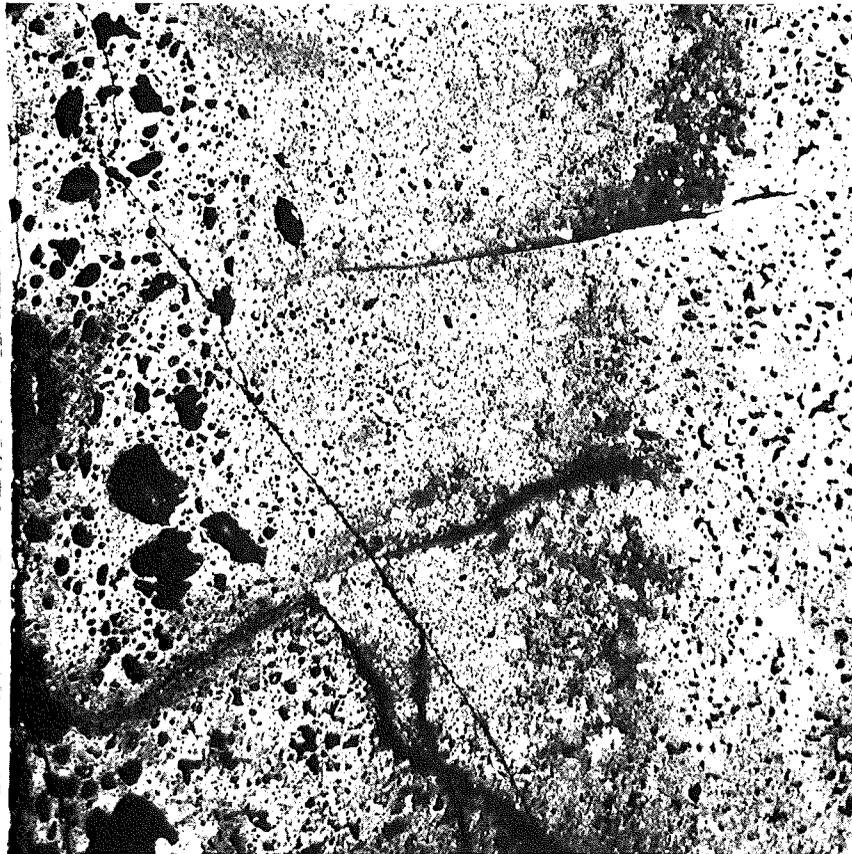


HZ-17H-Mol15.1-5-1/16 200x 100 µm
geätzt

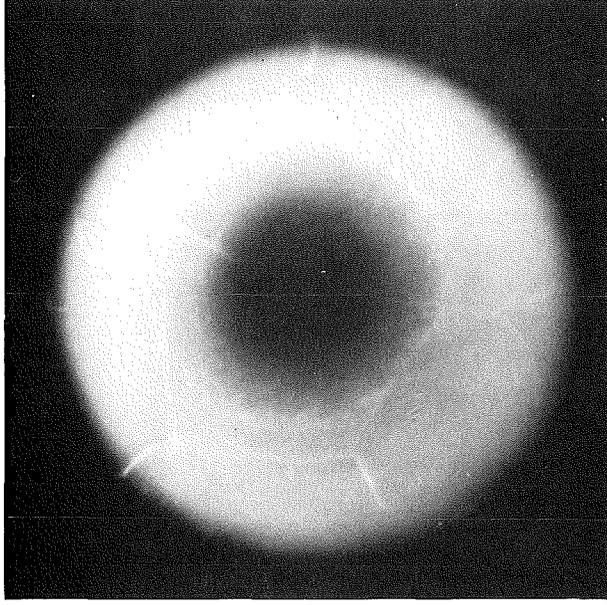
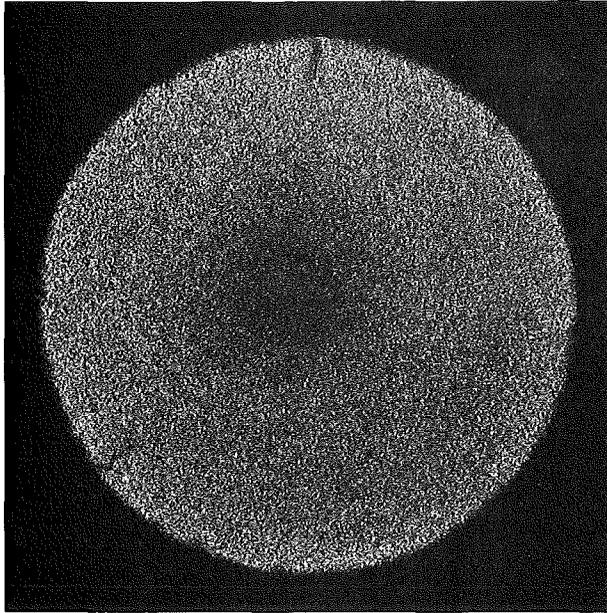
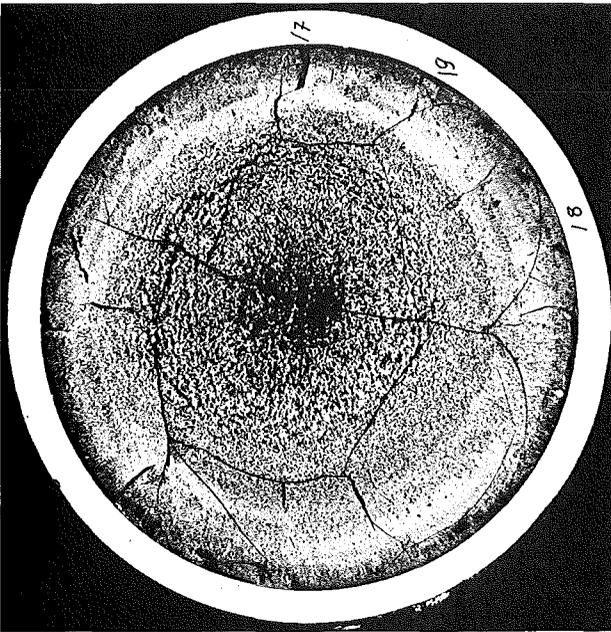
Stab 5 Schnitt 1



HZ-17H-Mo115.1-5-1/18 200 x 100 μm
geätzt



HZ-17H-Mo115.1-5-1/20 500 x 40 μm
geätzt



Schnitt 2

α (2 sec)

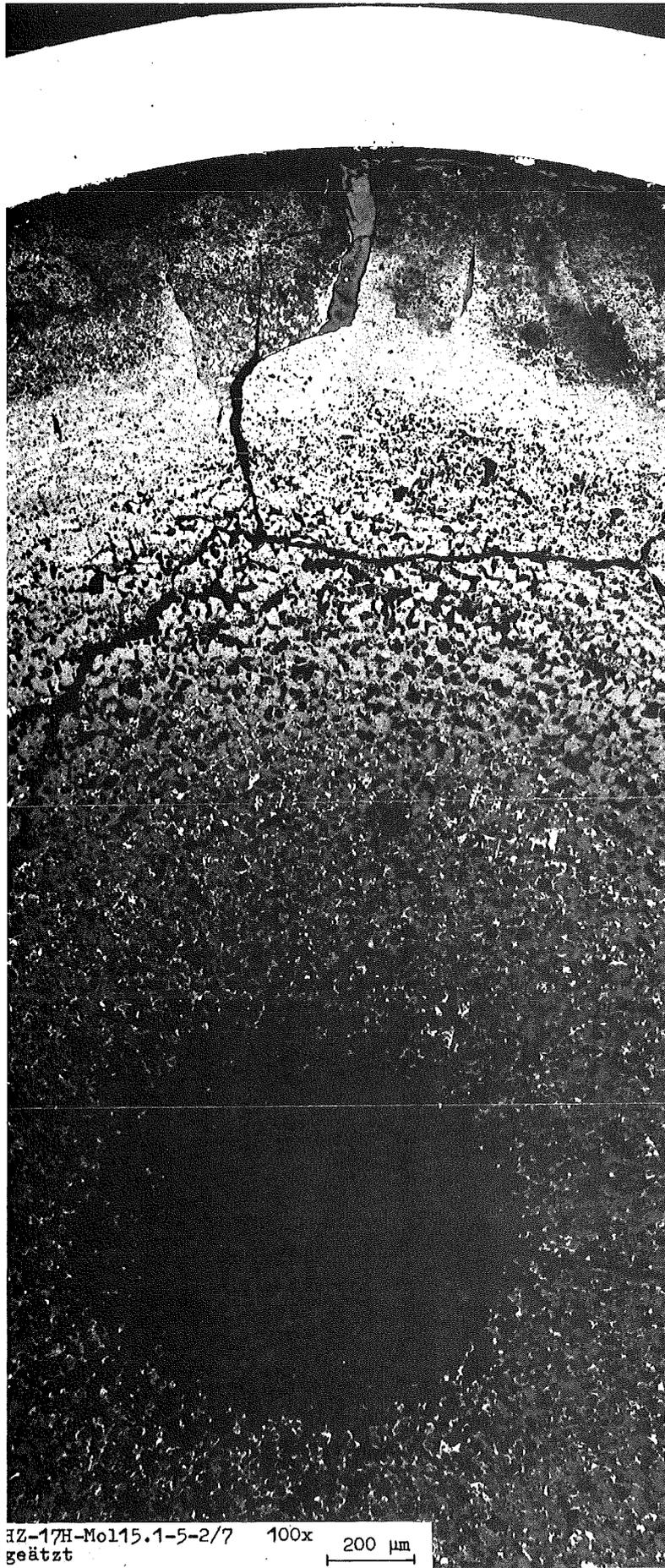
β - γ (6 sec)

Autoradiografie

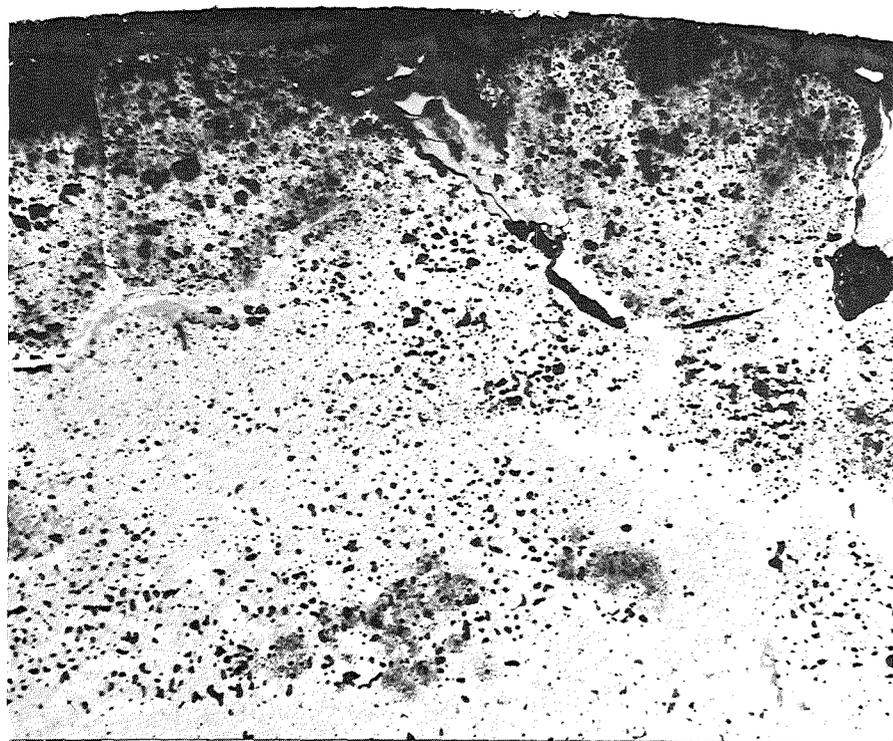
1 mm

Mol 15/1 Prüfling 5 (U,Pu)₂ C₃

Stab 5 Schnitt 2



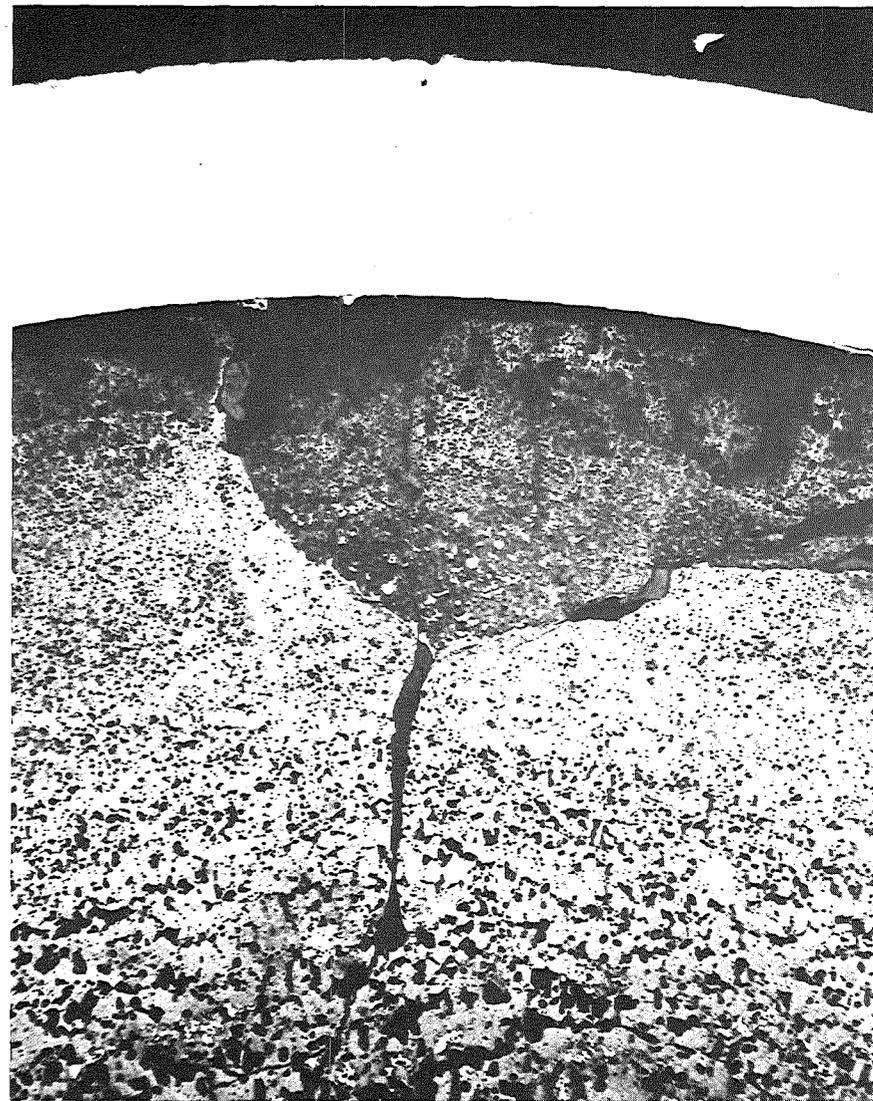
EZ-17H-Mol15.1-5-2/7 100x 200 μm
geätzt



HZ-17H-Mo115.1-5-2/9
geätzt

200 x

100 μm

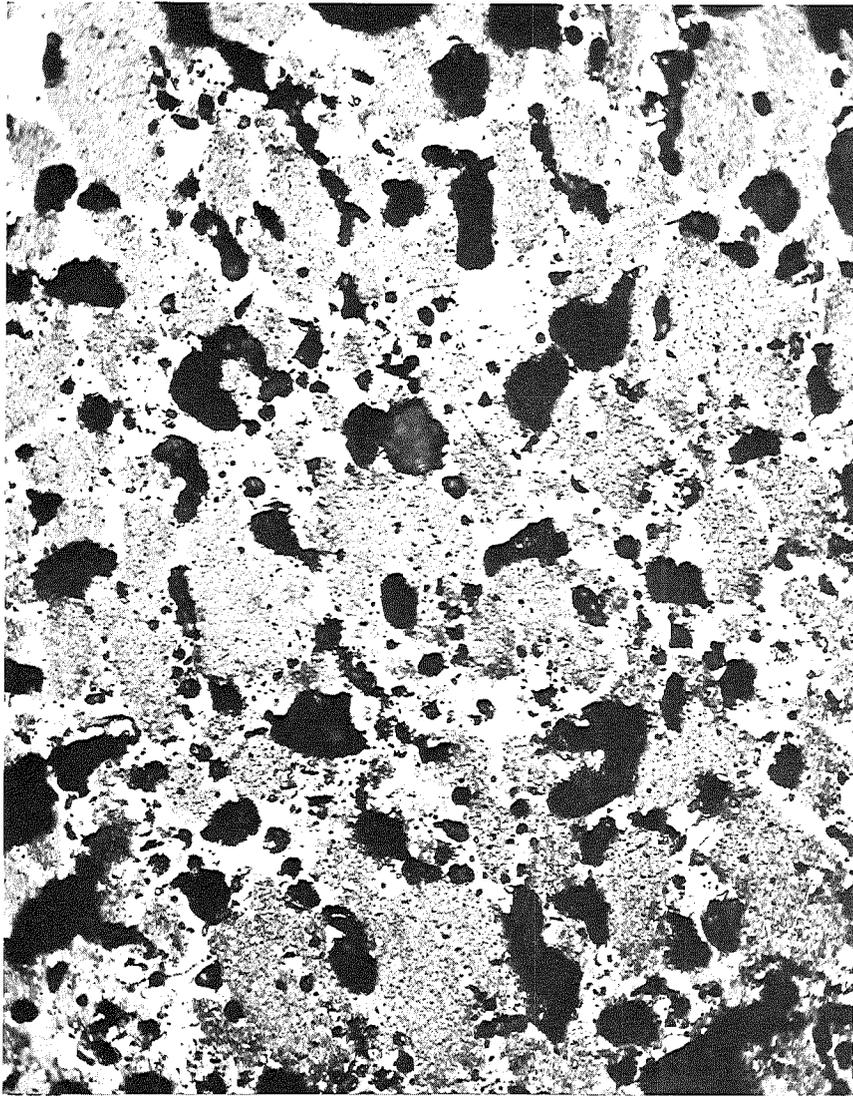


HZ-17H-Mo115.1-5-2/8
geätzt

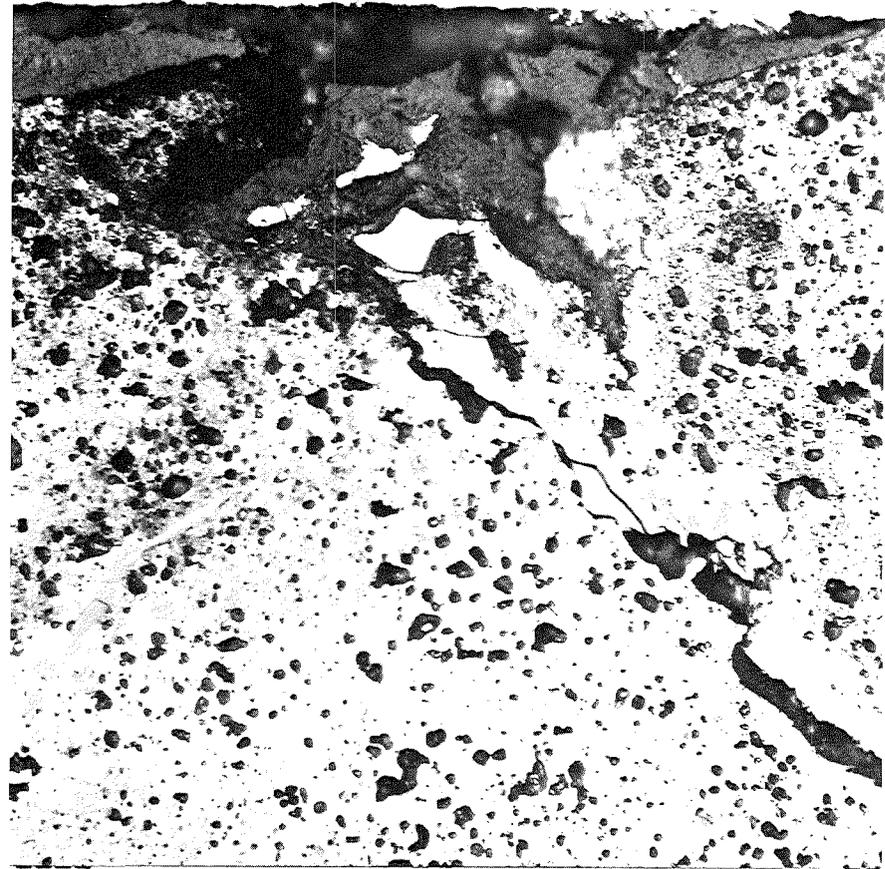
100x

200 μm

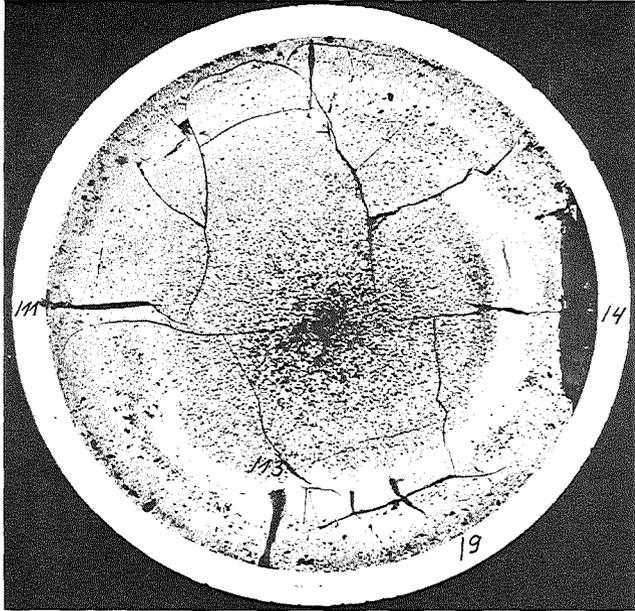
Stab 5 Schnitt 2



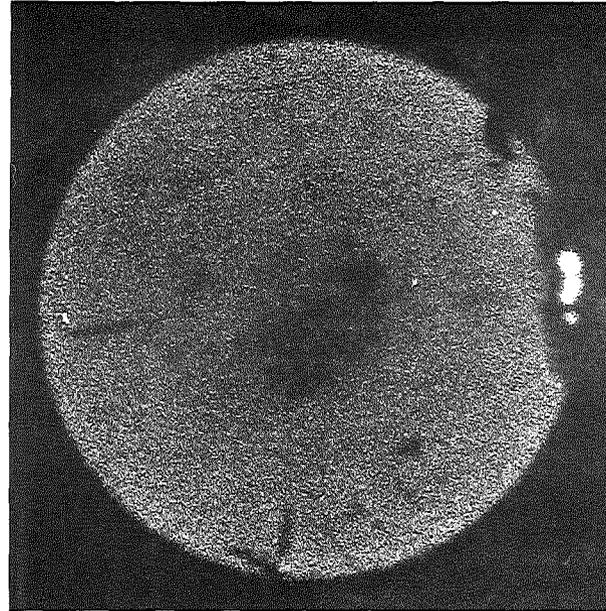
HZ-17H-Mo115.1-5-2/11 500 x
geätzt 40 μm



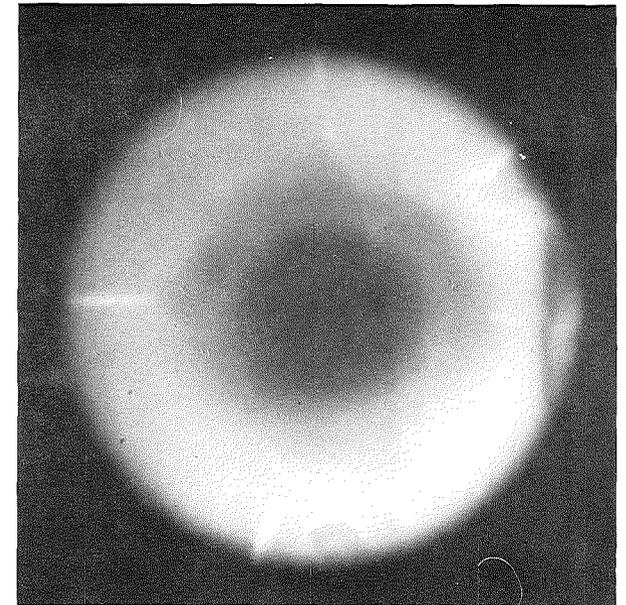
HZ-17H-Mo115.1-5-2/10 500 x
geätzt 40 μm



Schnitt 3



α (2 sec)



β - γ (6 sec)

Autoradiografie

1mm

Mol 15/1 Prüfling 5 (U,Pu)₂ C₃

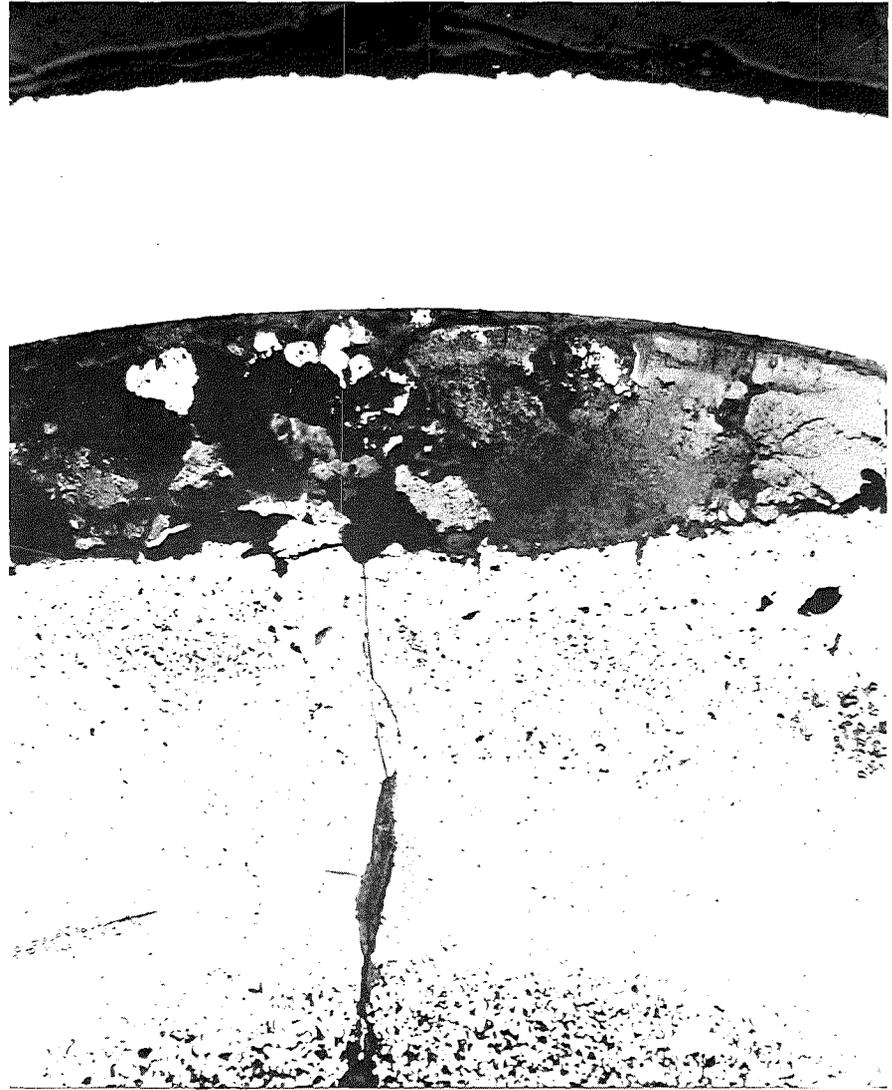
- II/54 -

Stab 5 Schnitt 3

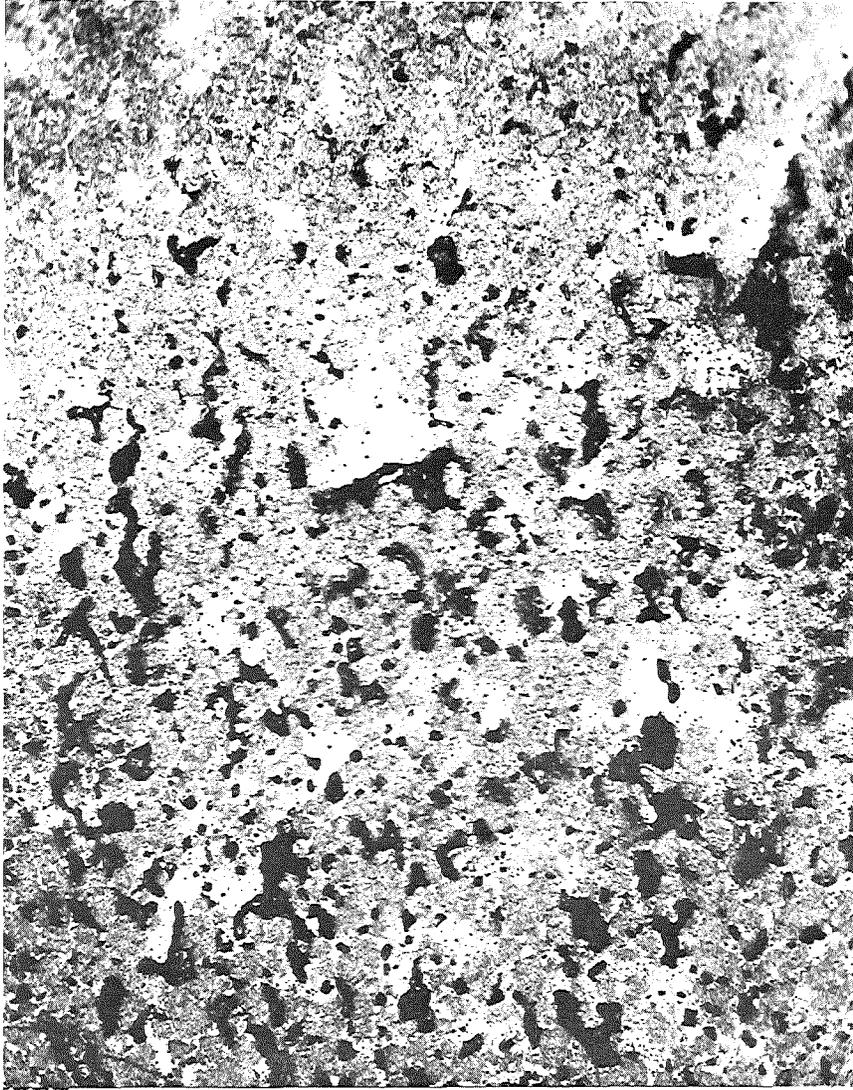




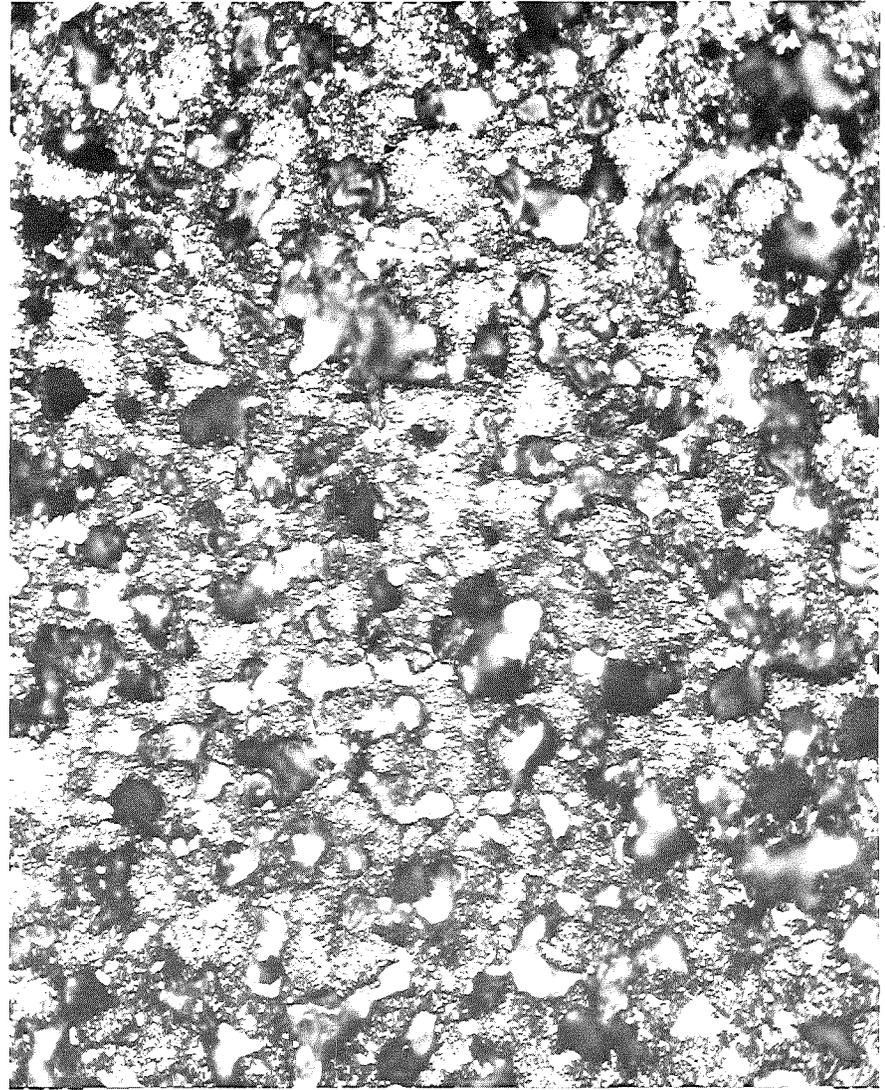
HZ-17H-Mo115.1-5-3/11 100x
geätzt 200 μm



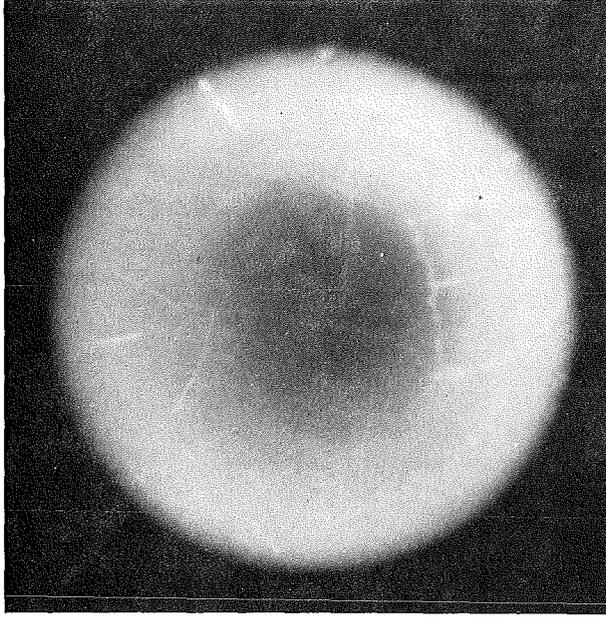
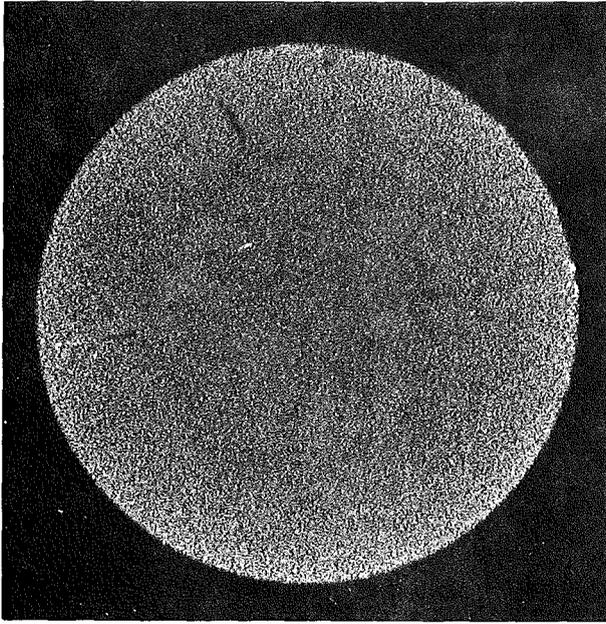
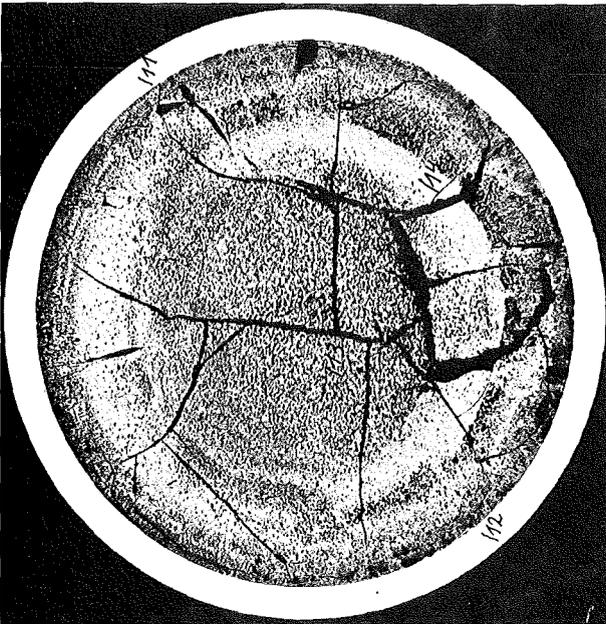
HZ-17H-Mo115.1-5-3/4 100x 200 μm



HZ-17H-Mo115.1-5-3/13 500 x
geätzt 40 μm



HZ-17H-Mo115.1-5-3/12 500 x
geätzt 40 μm



Schnitt 4

α (2 sec)

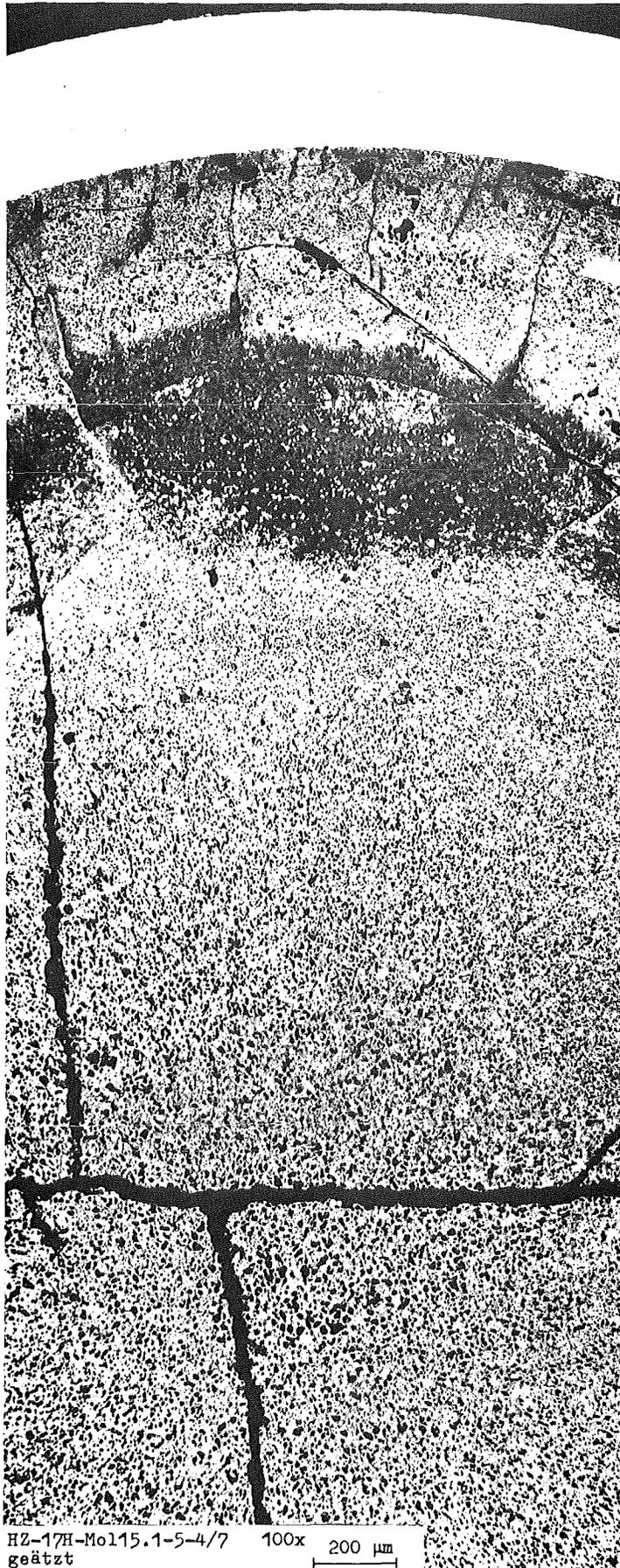
β - γ (6 sec)

Autoradiografie

1 mm

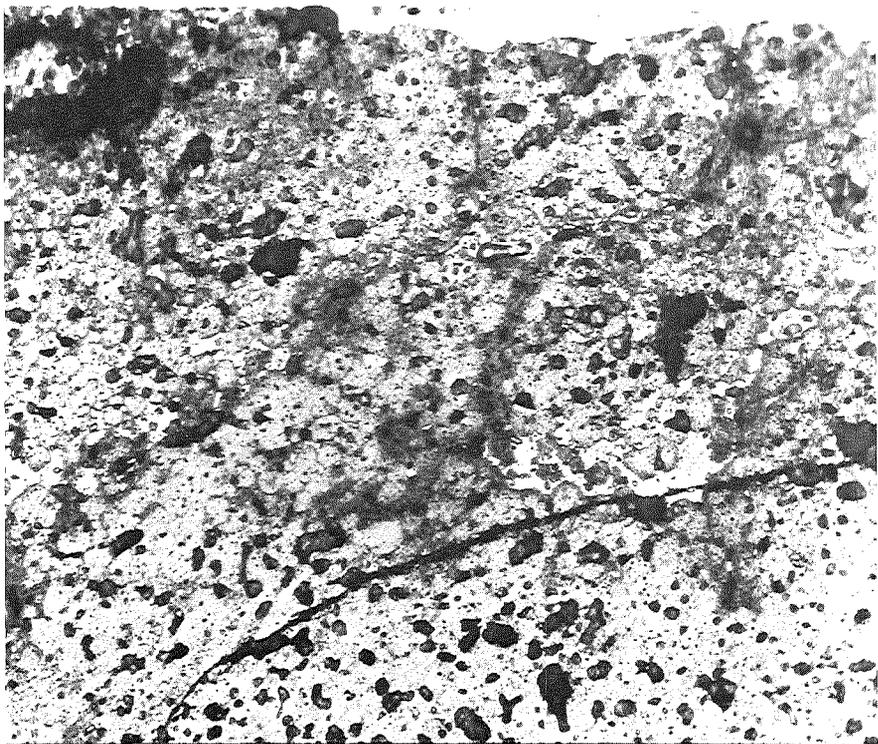
Mol 15/1 Prüfling 5 (U,Pu)₂ C₃

Stab 5 Schnitt 4



HZ-17H-Mo115.1-5-4/7
geätzt

100x 200 μm



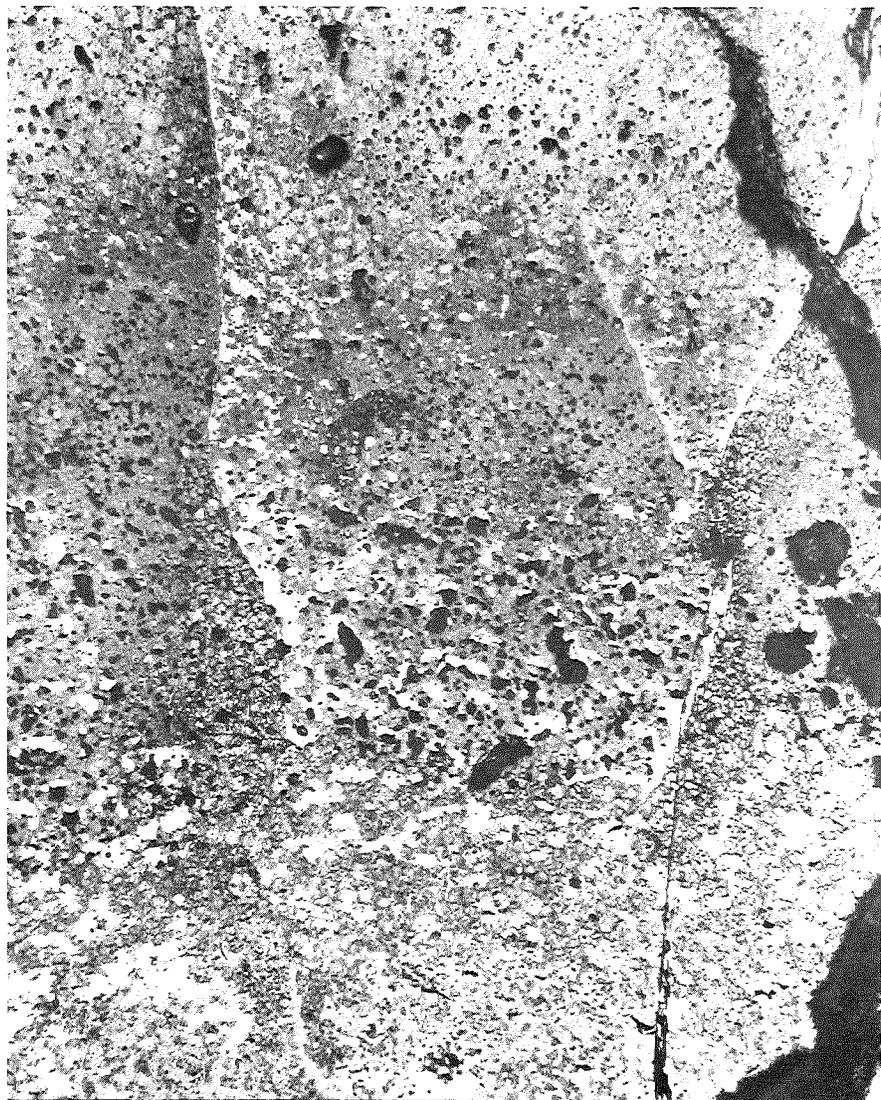
HZ-17H-Mo115.1-5-4/12 500 x
geätzt

40 μm



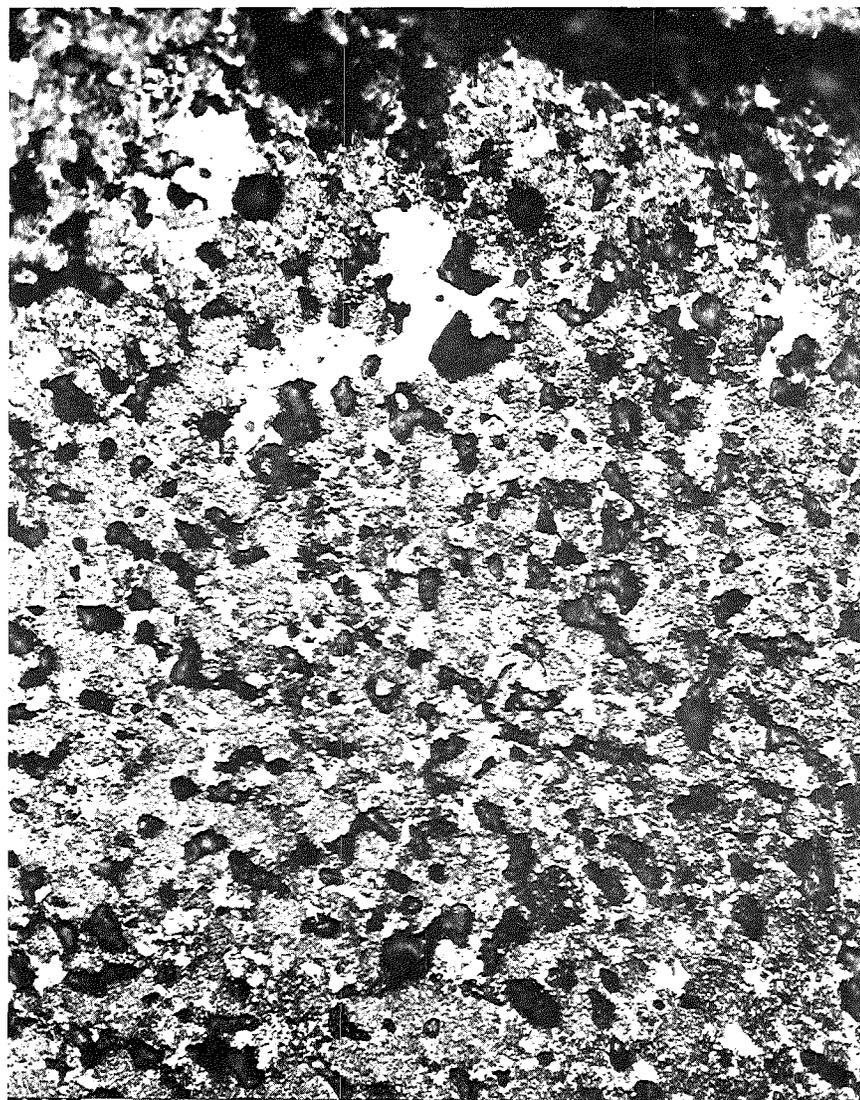
HZ-17H-Mo115.1-5-4/11 100x
geätzt

200 μm



HZ-17H-Mol15.1-5-4/14 200 x
geätzt

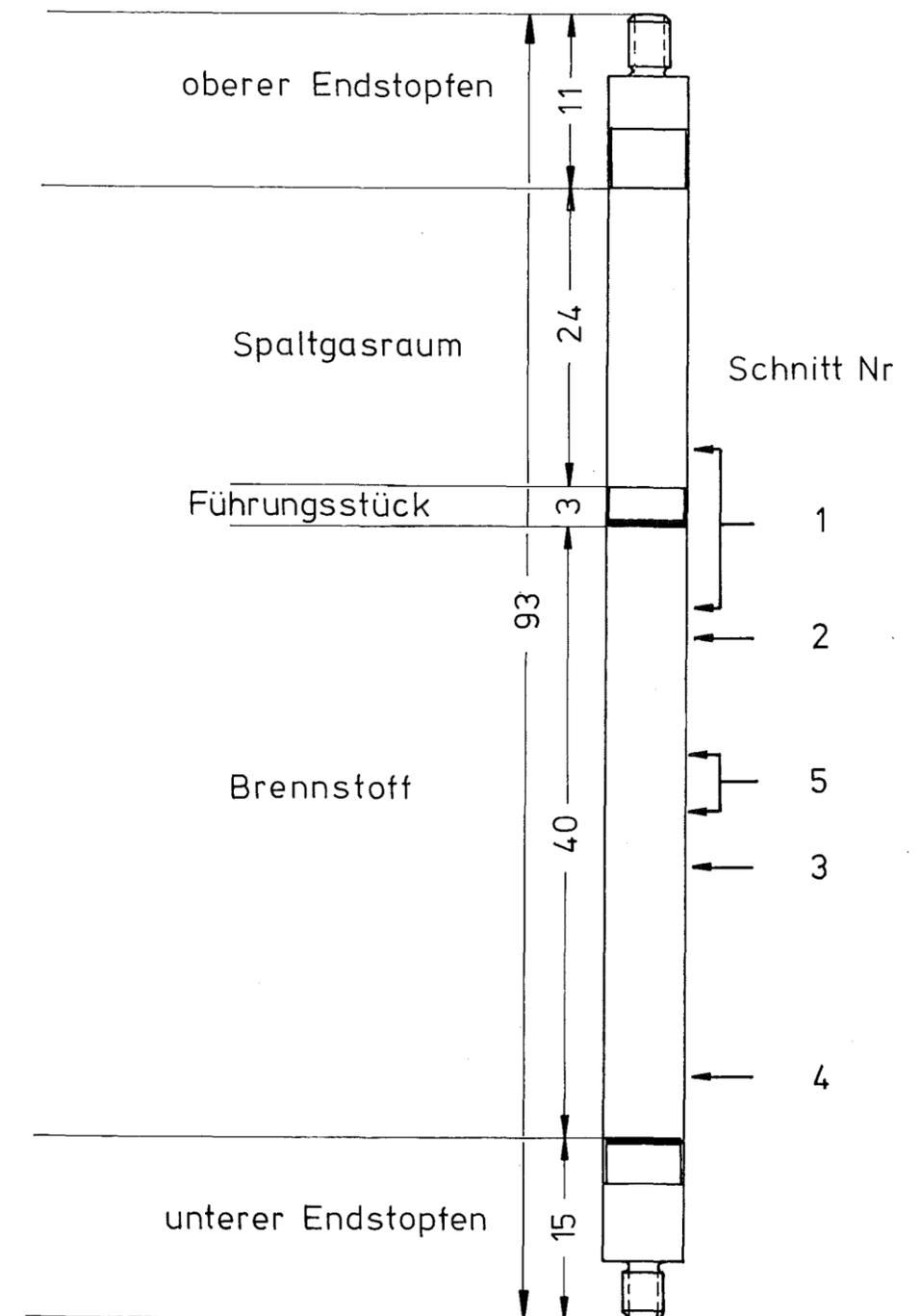
100 μm



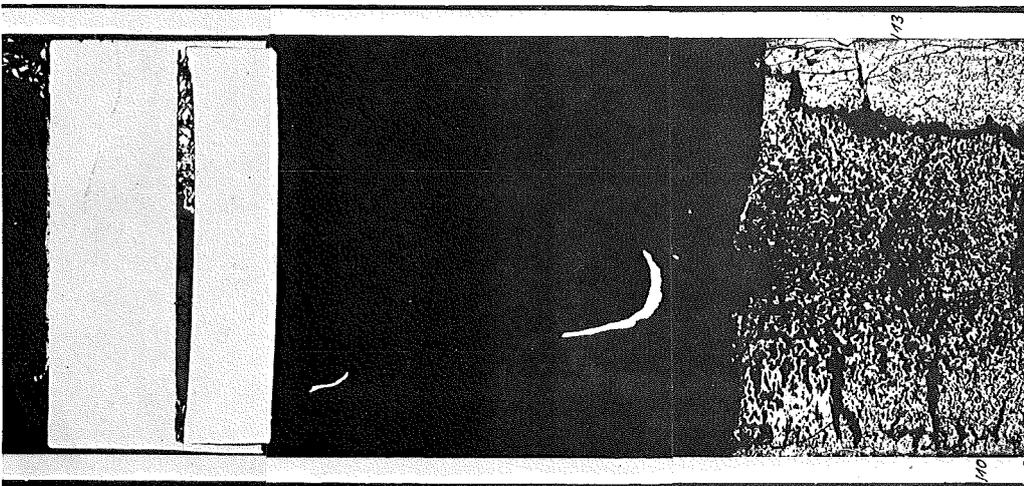
HZ-17H-Mol15.1-5-4/13 500 x
geätzt

40 μm

Prüfling 5	
Brennstoff :	
Form	: Tabletten
Zusammensetzung	: $(U, Pu)_2 C_3$
Tablettendichte	: 92,5 % th.D.
Hülle :	
Material	: 1.4988
Aussendurchmesser	: 5,6 mm
Wandstärke	: 0,3 mm
Geometrie :	
Länge des Prüflings	: 93,3 mm
Länge der Brennstoffsäule	: 39,1 mm
Radiale Spaltweite	: 180 μ m
Schmierdichte	: 79,7 % th.D.
Bestrahlung :	
Einrichtung	: Kapsel mit Cu-Kreuz
Dauer in Vollasttagen	: 184,2 d
Ende	: 26. 9. 74
Rechn. Abbrand	: 96 MWd/kg Me
Stableistung max/mittl.	: 1194/910 W/cm



5 = Abbrand-und Spaltgasprobe

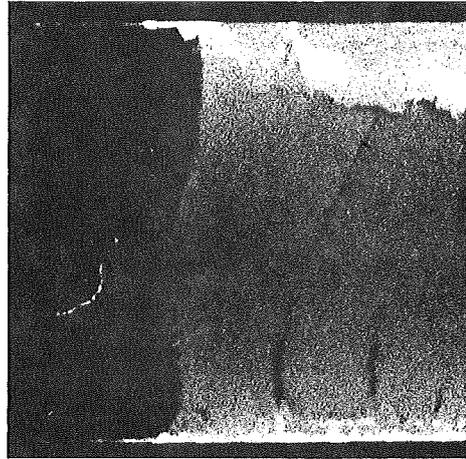


Schnitt 1

1mm

α (3 sec)

Autoradiografie

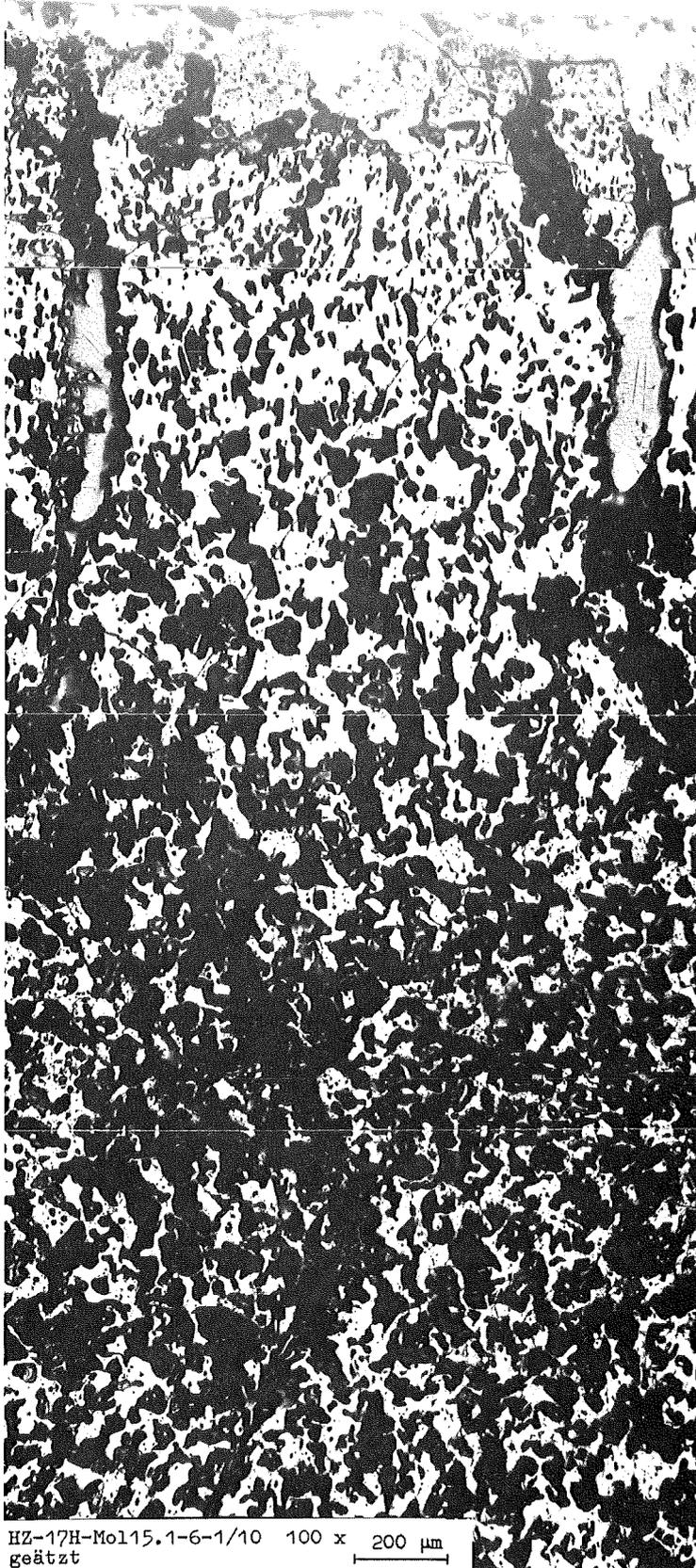


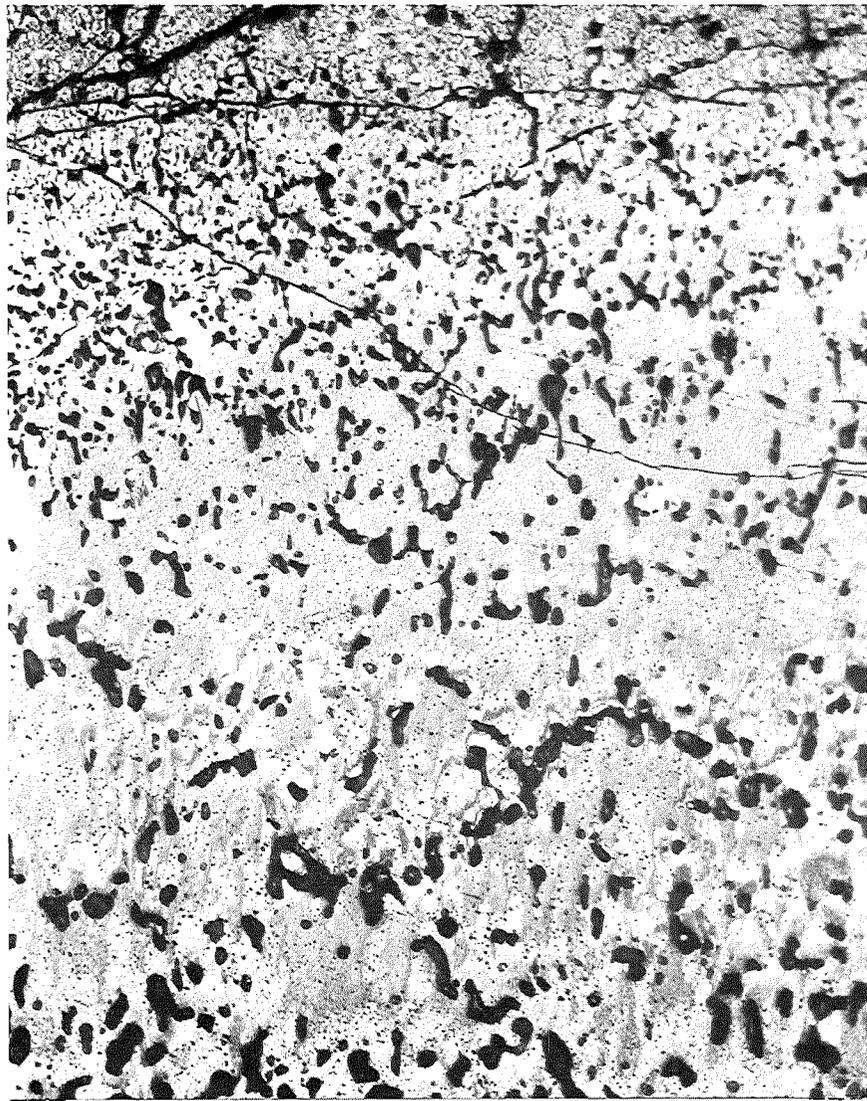
β - γ (6 sec)



Mol 15/1 Prüfling 6 (U,Pu) C

Stab 6 Schnitt 1





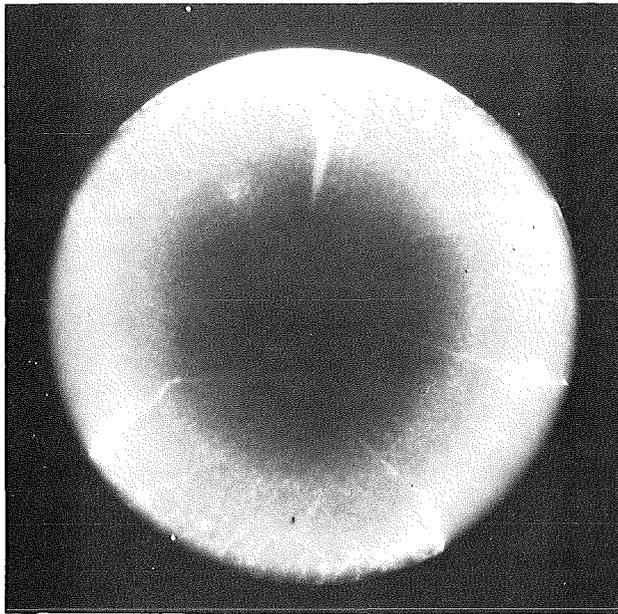
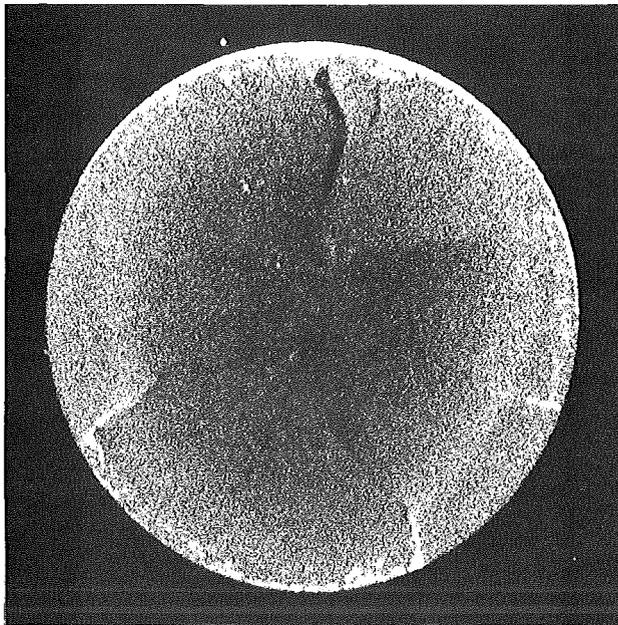
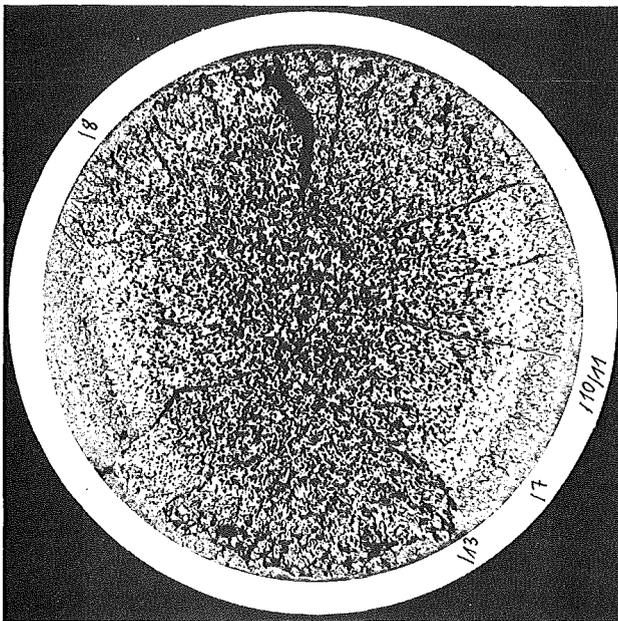
HZ-17H-Mo115.1-6-1/14 200 x
geätzt

100 μm



HZ-17H-Mo115.1-6-1/13 200 x
geätzt

100 μm



Schnitt 2

α (3 sec)

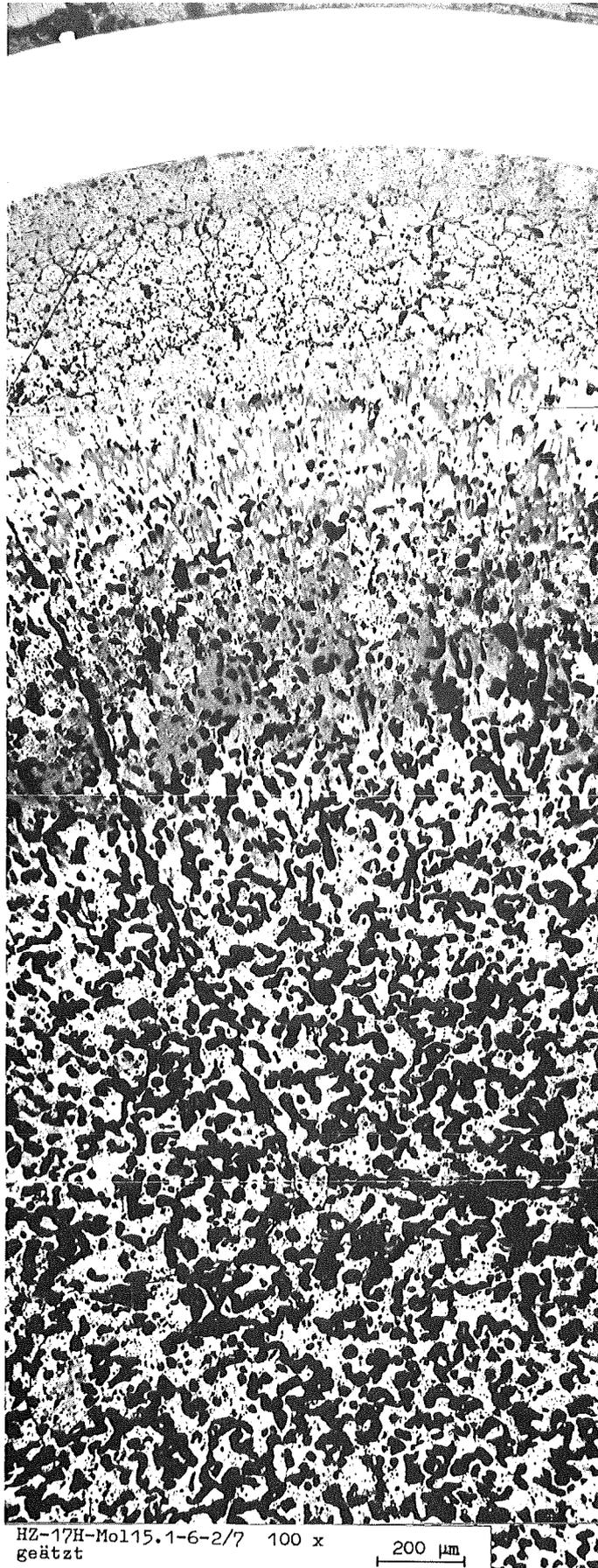
β - γ (6 sec)

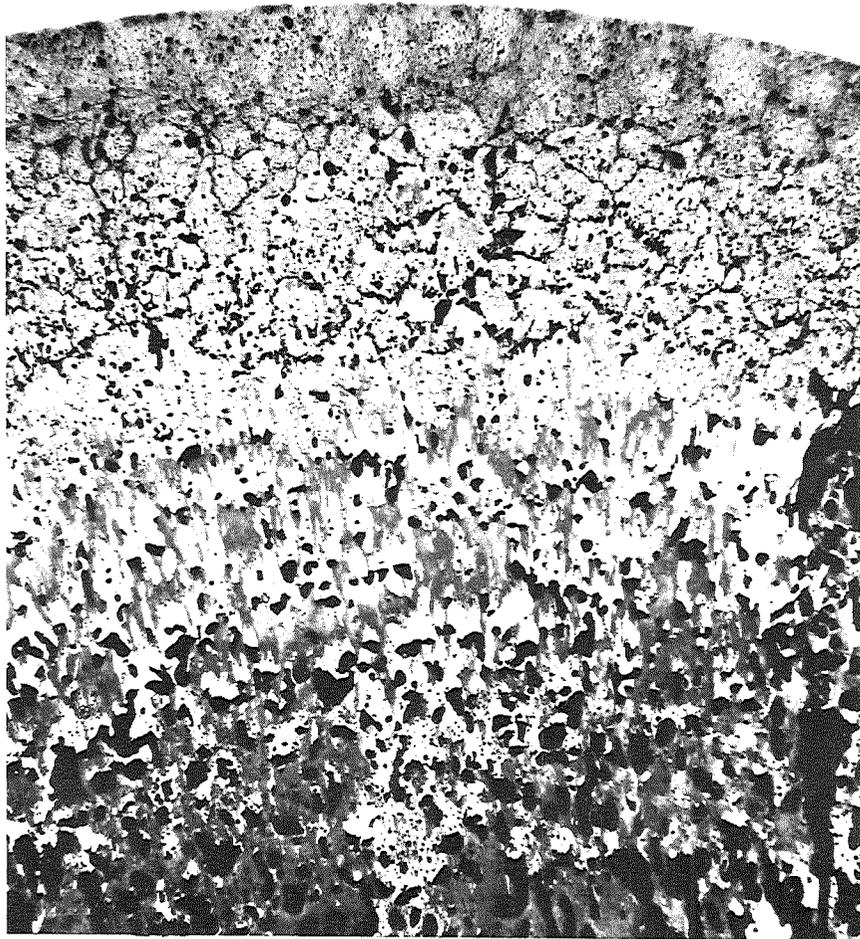
Autoradiografie

1 mm

Mol 15/1 Prufing 6 (U,Pu) C

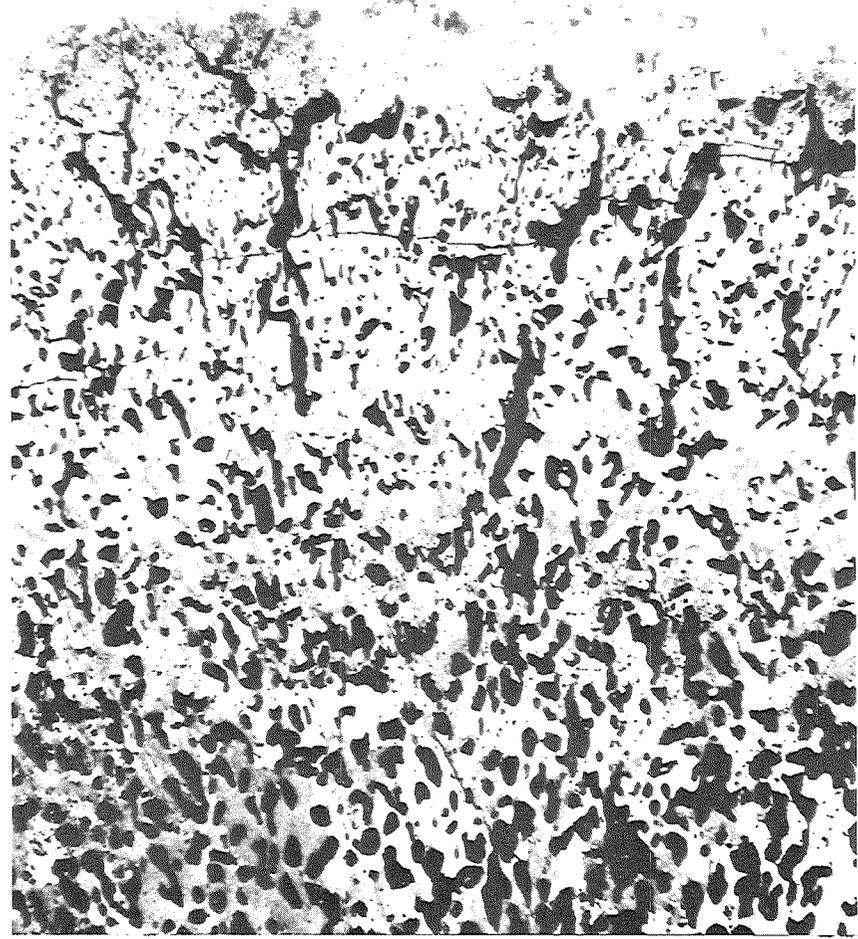
Stab 6 Schnitt 2





HZ-17H-Mo115.1-6-2/10 100 x
geätzt

200 μm



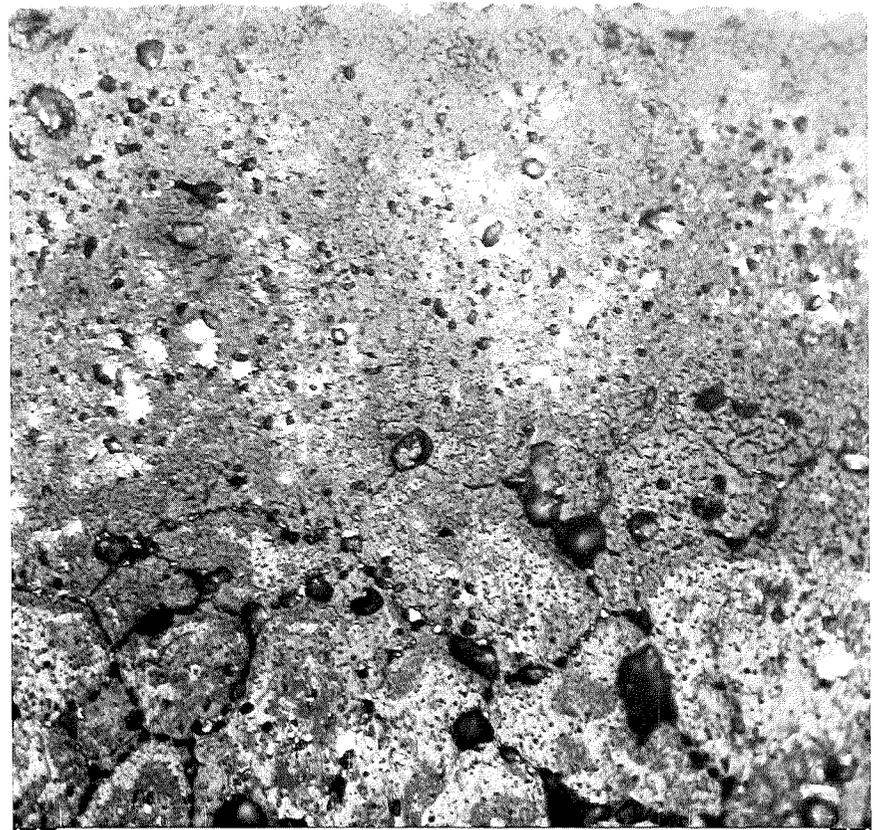
HZ-17H-Mo115.1-6-2/8 100 x
geätzt

200 μm



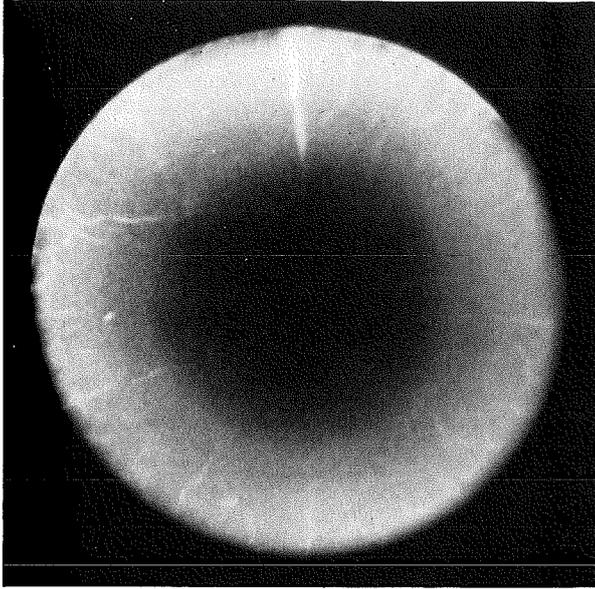
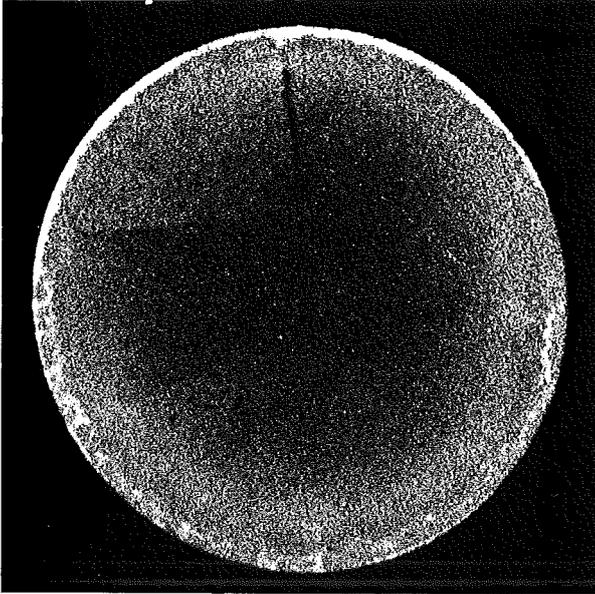
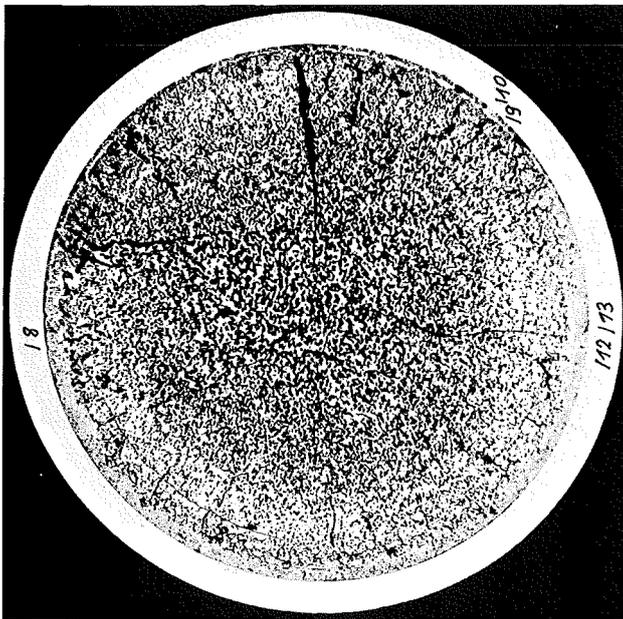
HZ-17H-Mo15.1-6-2/13 100 x
geätzt

200 μm



HZ-17H-Mo15.1-6-2/11 500 x
geätzt

40 μm



Schnitt 3

α (3 sec)

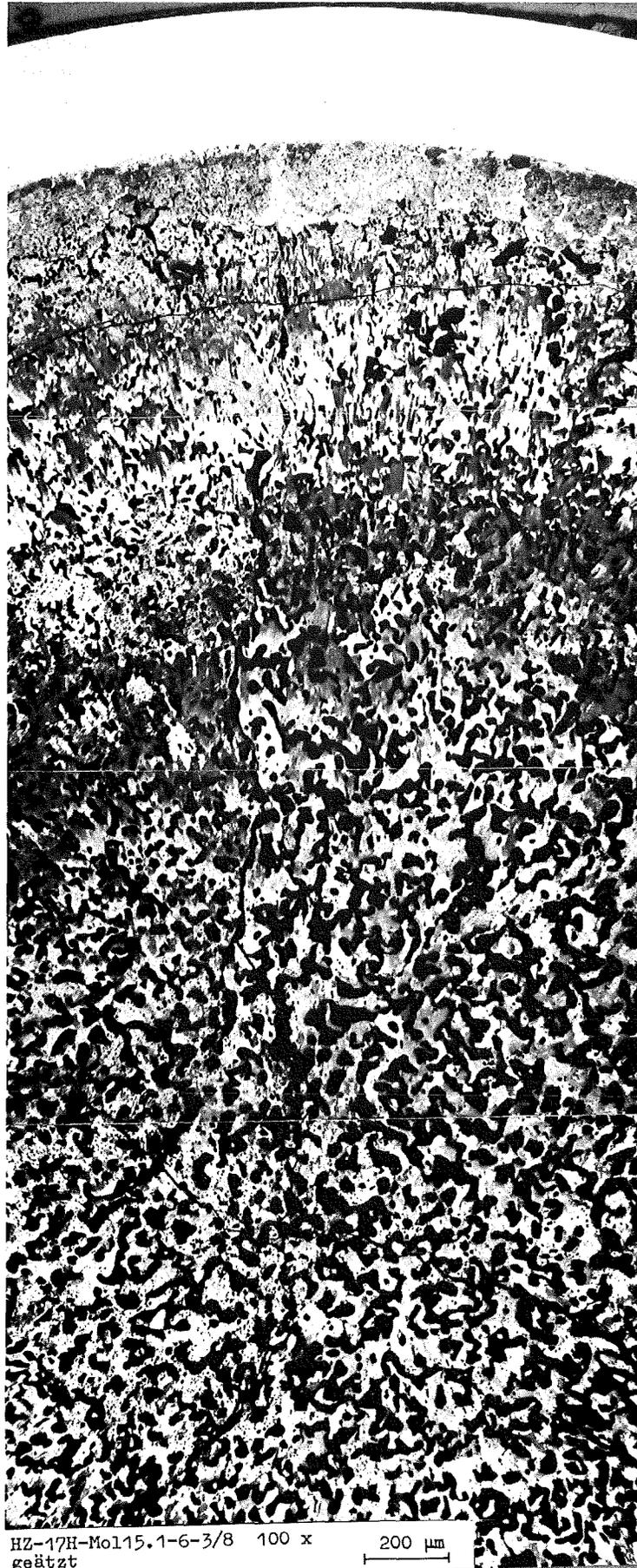
β - γ (6 sec)

Autoradiografie

1 mm

Mol 15/1 Prüfling 6 (U,Pu) C

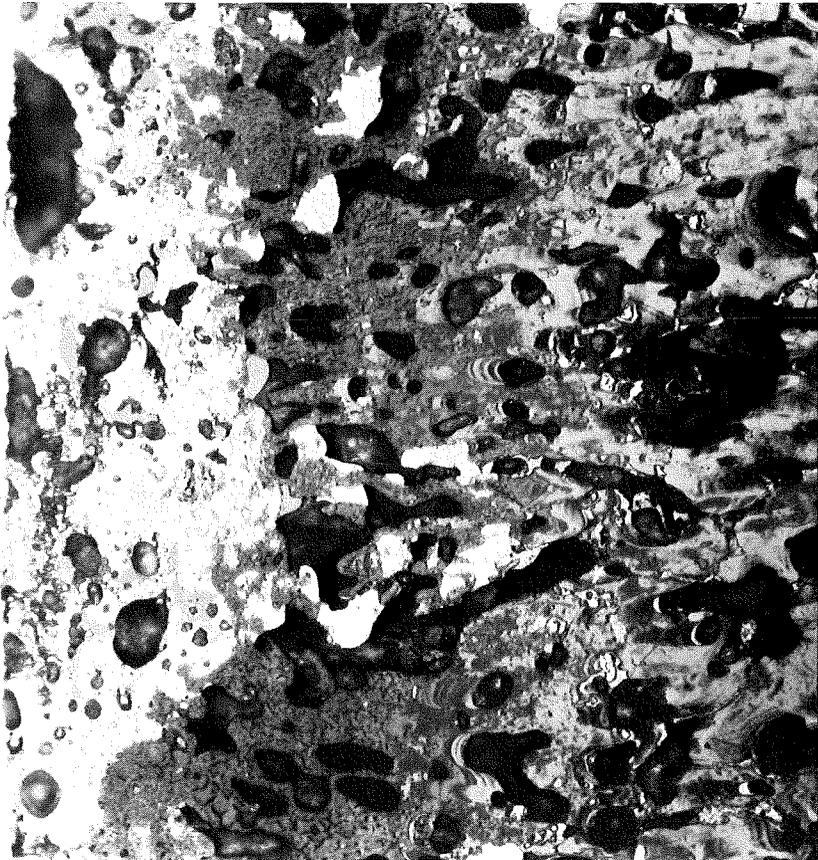
Stab 6 Schnitt 3



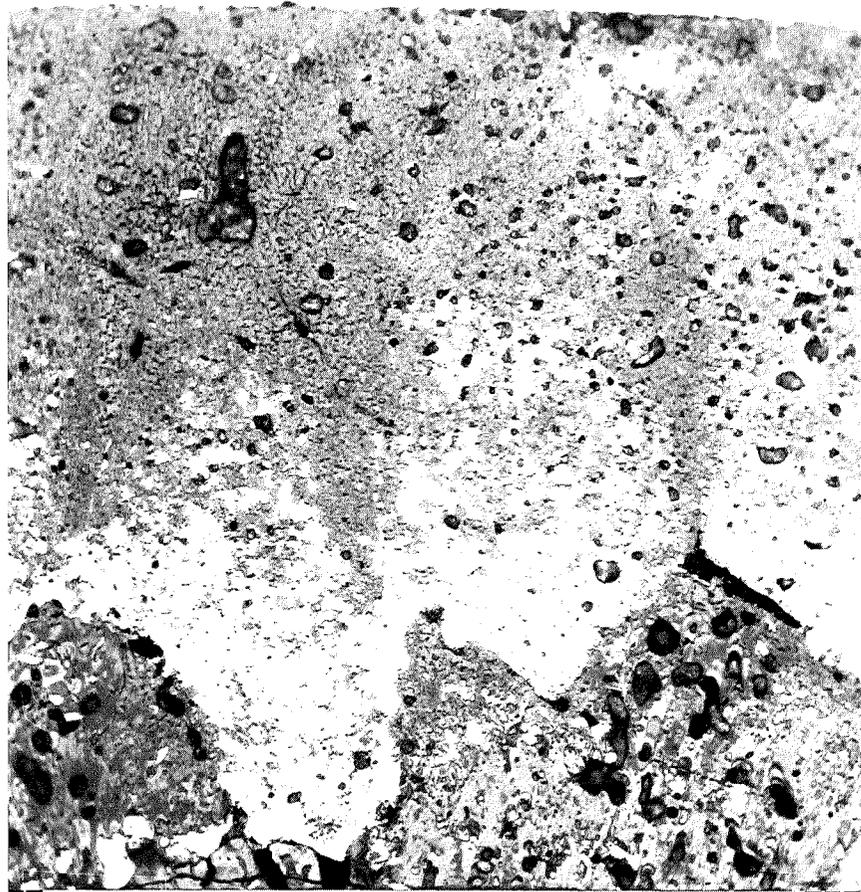
Stab 6 Schnitt 3



HZ-17H-Mo115.1-6-3/9 100 x 200 μm
geätzt

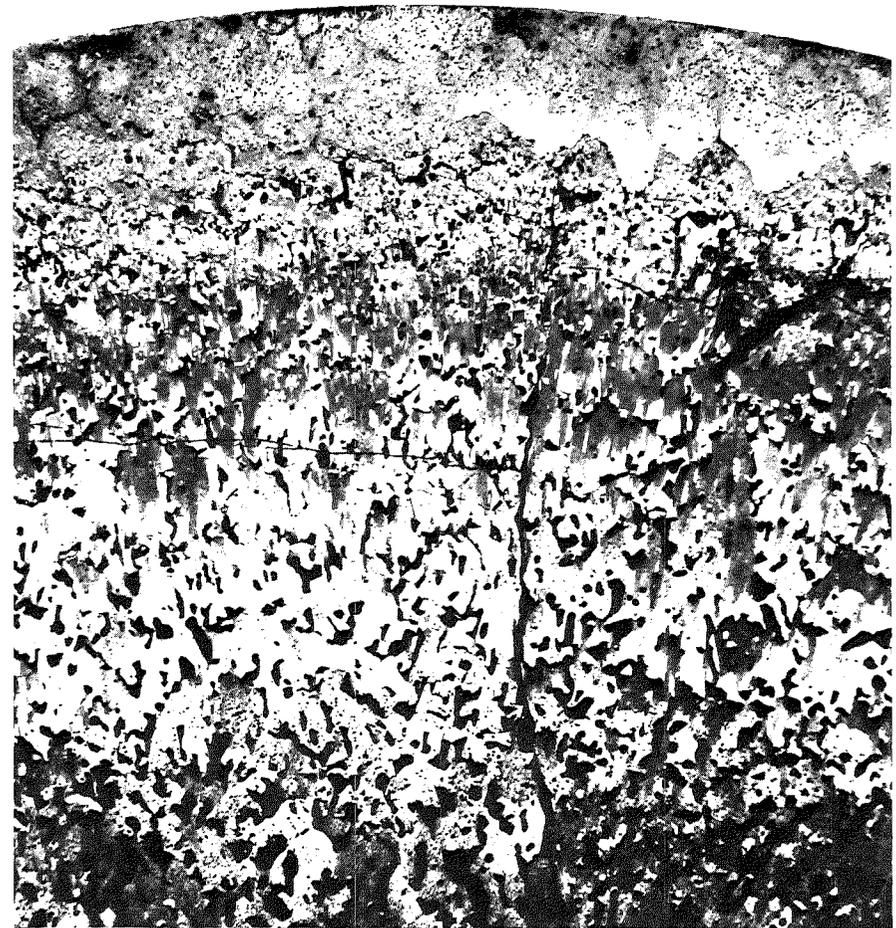


HZ-17H-Mo115.1-6-3/10 500 x 40 μm
geätzt



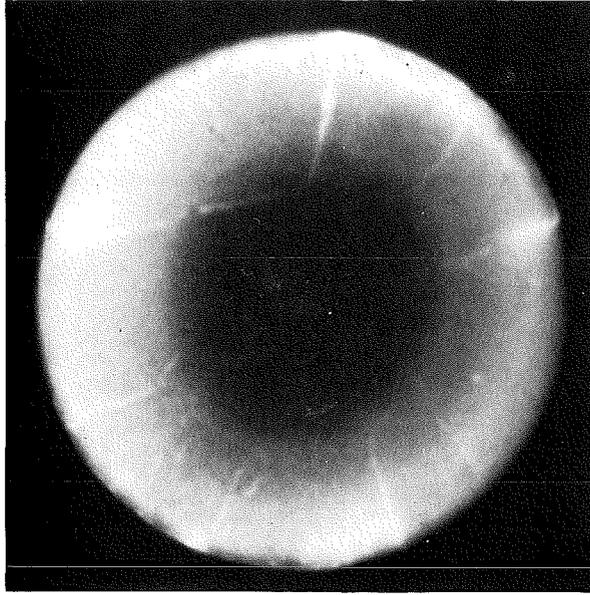
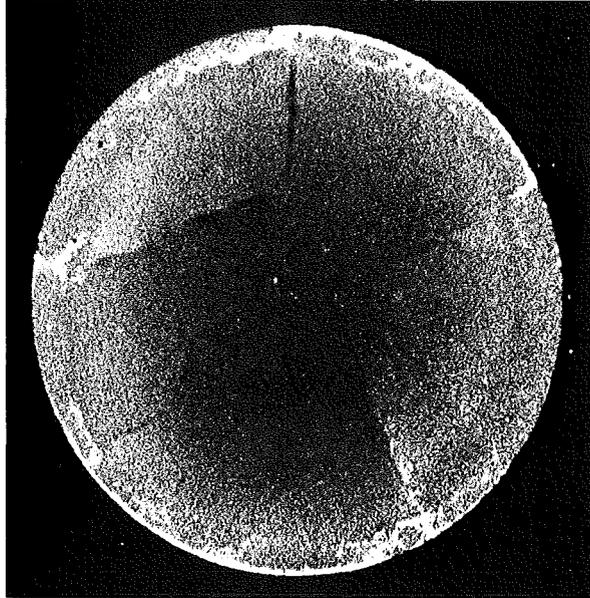
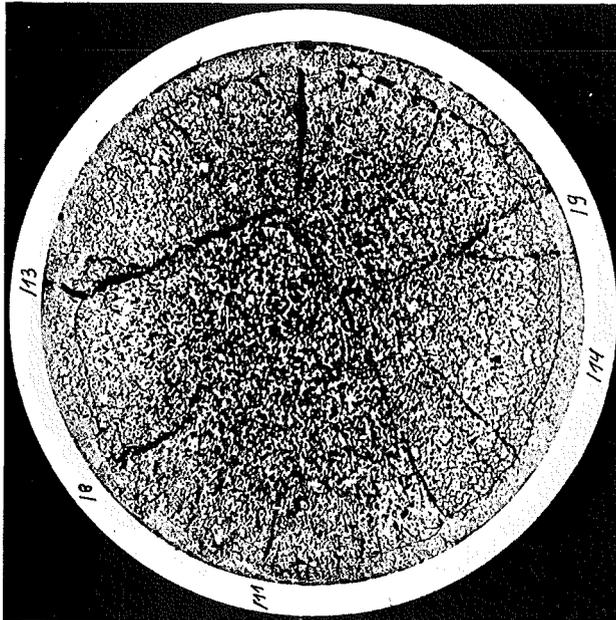
HZ-17H-Mo15.1-6-3/13 500 x
geätzt

40 μm



HZ-17H-Mo15.1-6-3/12 100 x
geätzt

200 μm



Schnitt 4

α (3 sec)

β - γ (6 sec)

Autoradiografie

1 mm

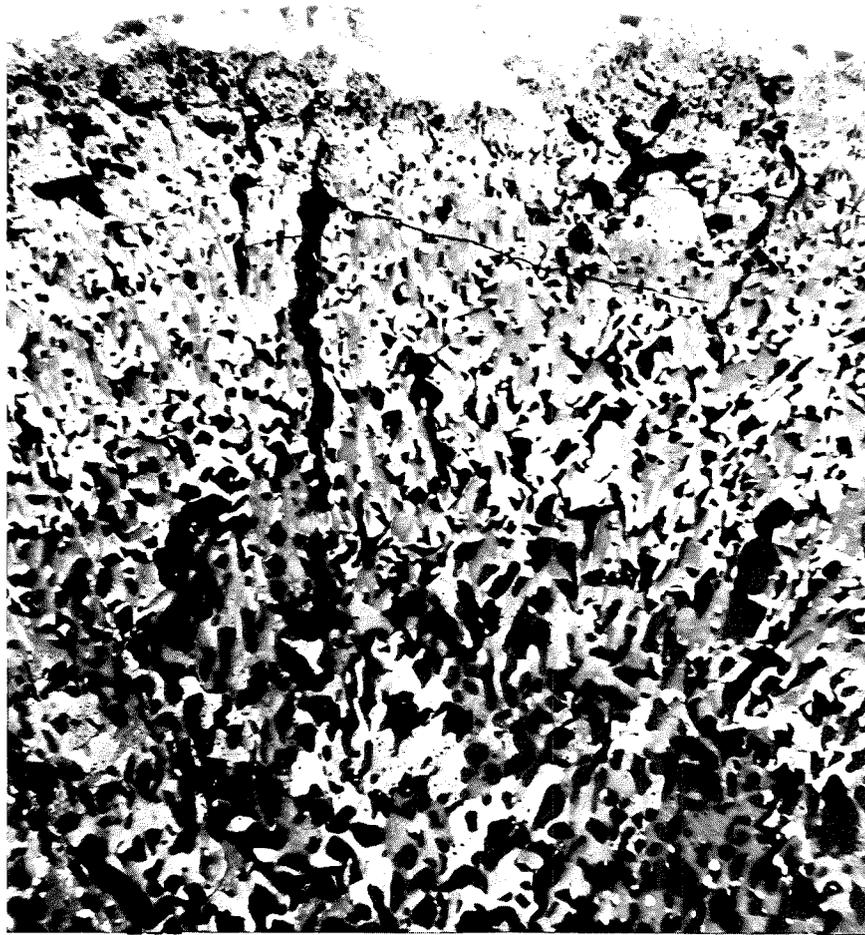
Mol 15/1 Prüfling 6 (U,Pu) C

Stab 6 Schnitt 4



HZ-17H-Mo15.1-6-4/8 100 x
geätzt

200 μm

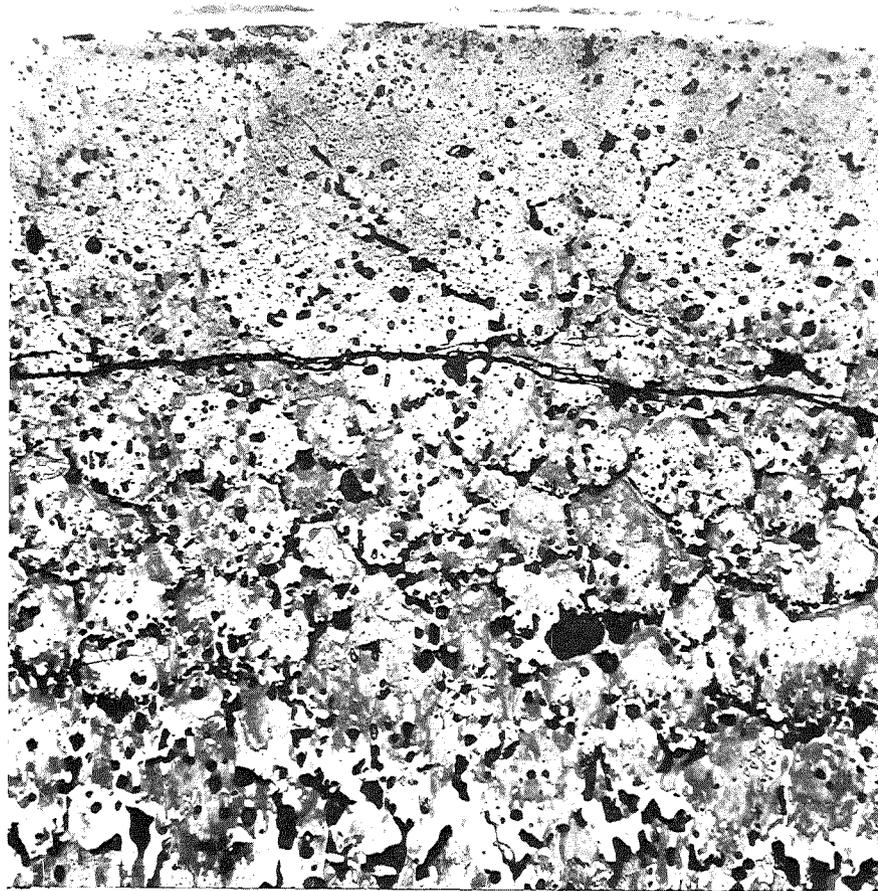


HZ-17H-Mo115.1-6-4/11 100 x
geätzt 200 μm



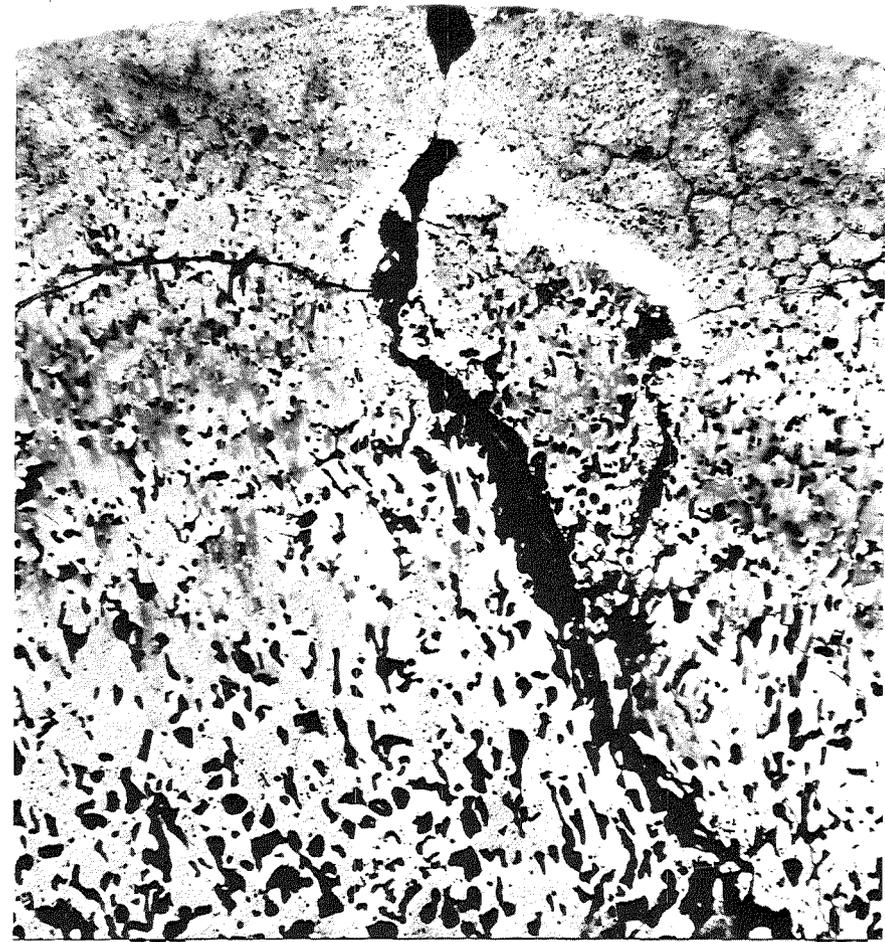
HZ-17H-Mo115.1-6-4/9 100 x
geätzt 200 μm

Stab 6 Schnitt 4



HZ-17H-Mo115.1-6-4/14 200 x
geätzt

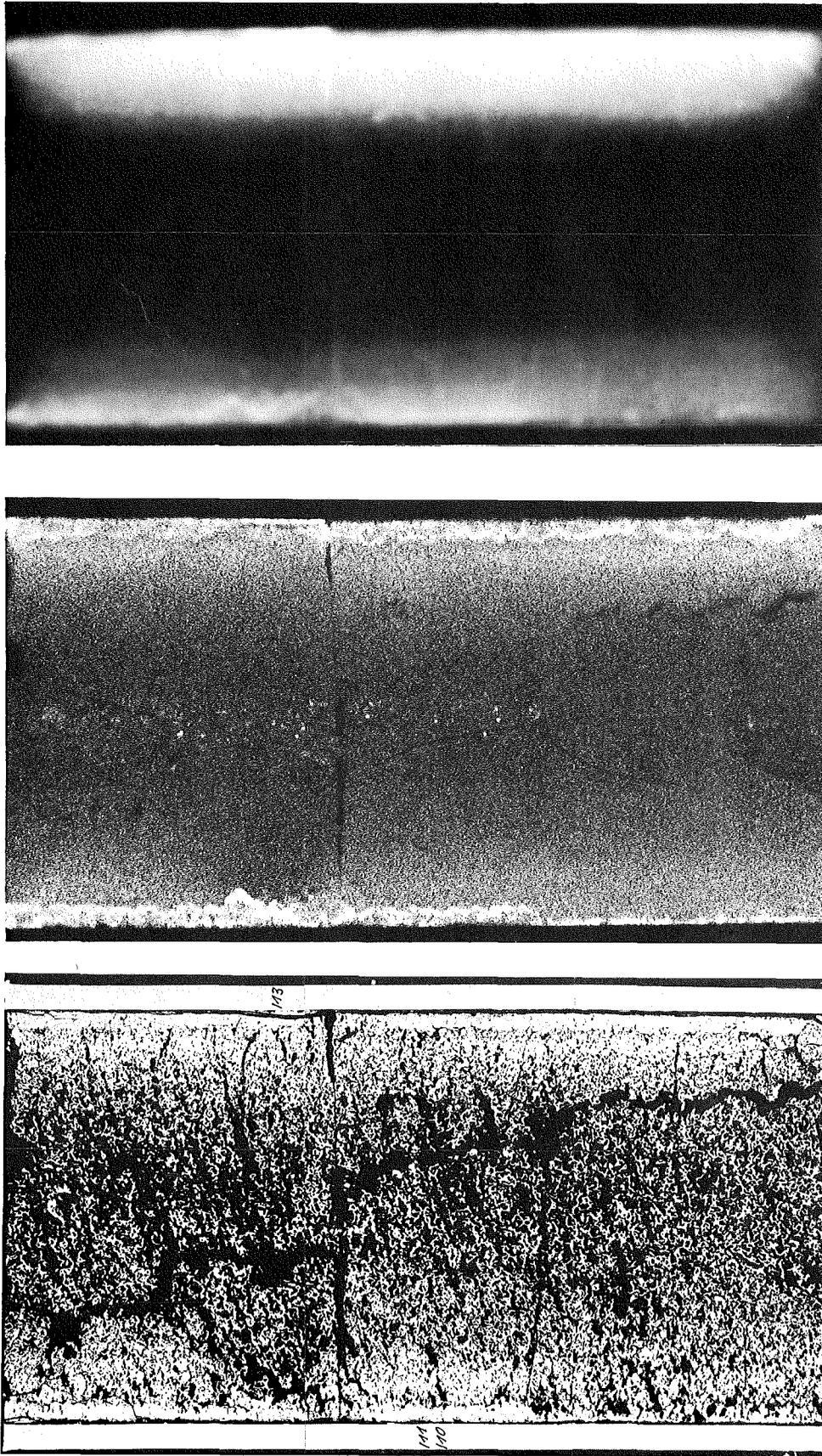
100 μm



HZ-17H-Mo115.1-6-4/13 100 x
geätzt

200 μm

Stab 6 Schnitt 4



Schnitt 5

1mm

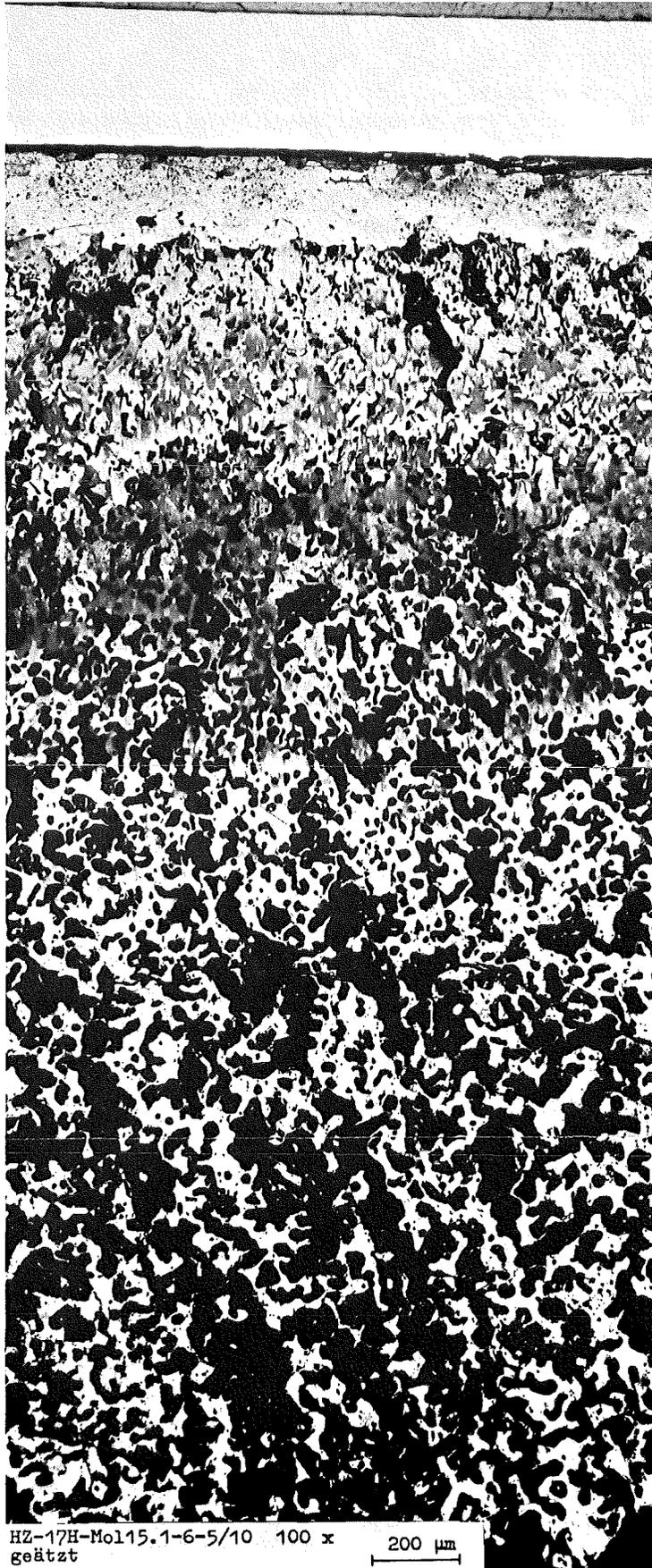
α (3 sec)

Autoradiografie

β - γ (6 sec)

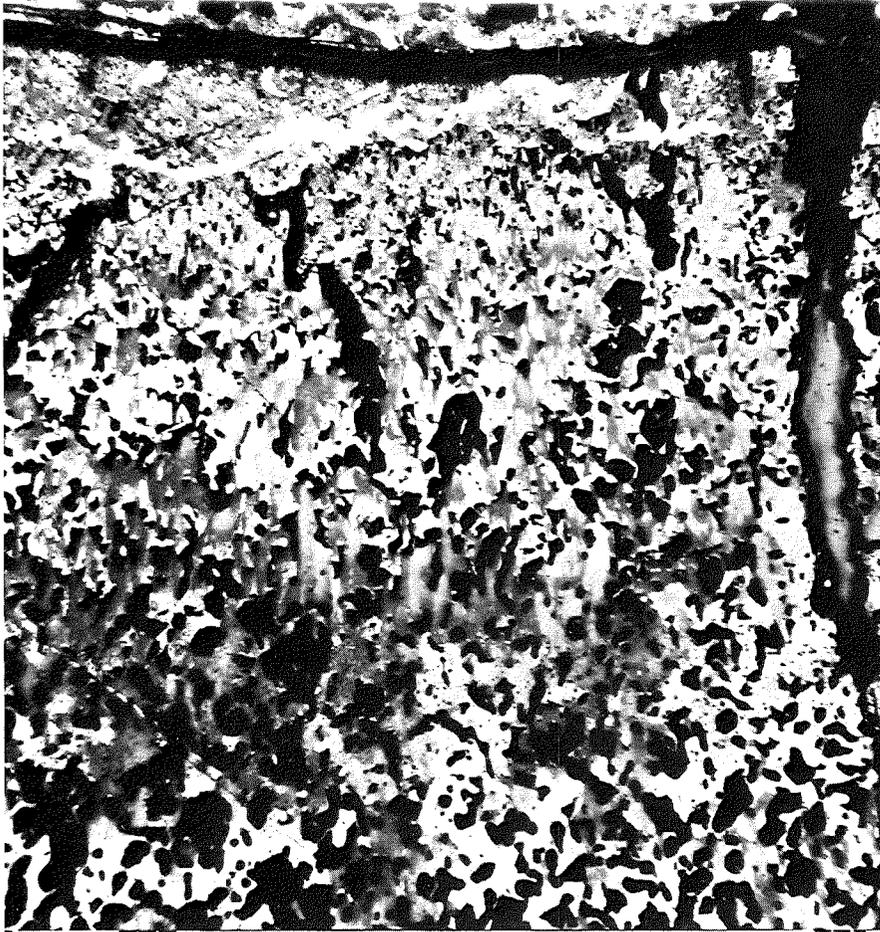
Mol 15/1 Prüfling 6 (U,Pu) C

Stab 6 Schnitt 5



HZ-17H-Mo15.1-6-5/10 100 x
geätzt

200 µm



HZ-17H-Mo115.1-6-5/13 100 x
geätzt

200 μm



HZ-17H-Mo115.1-6-5/11 100 x
geätzt

200 μm

Prüfling 6

Brennstoff:

Form : Tabletten
Zusammensetzung : (U,Pu)C
Tablettendichte : 93,7 % th.D.

Hülle:

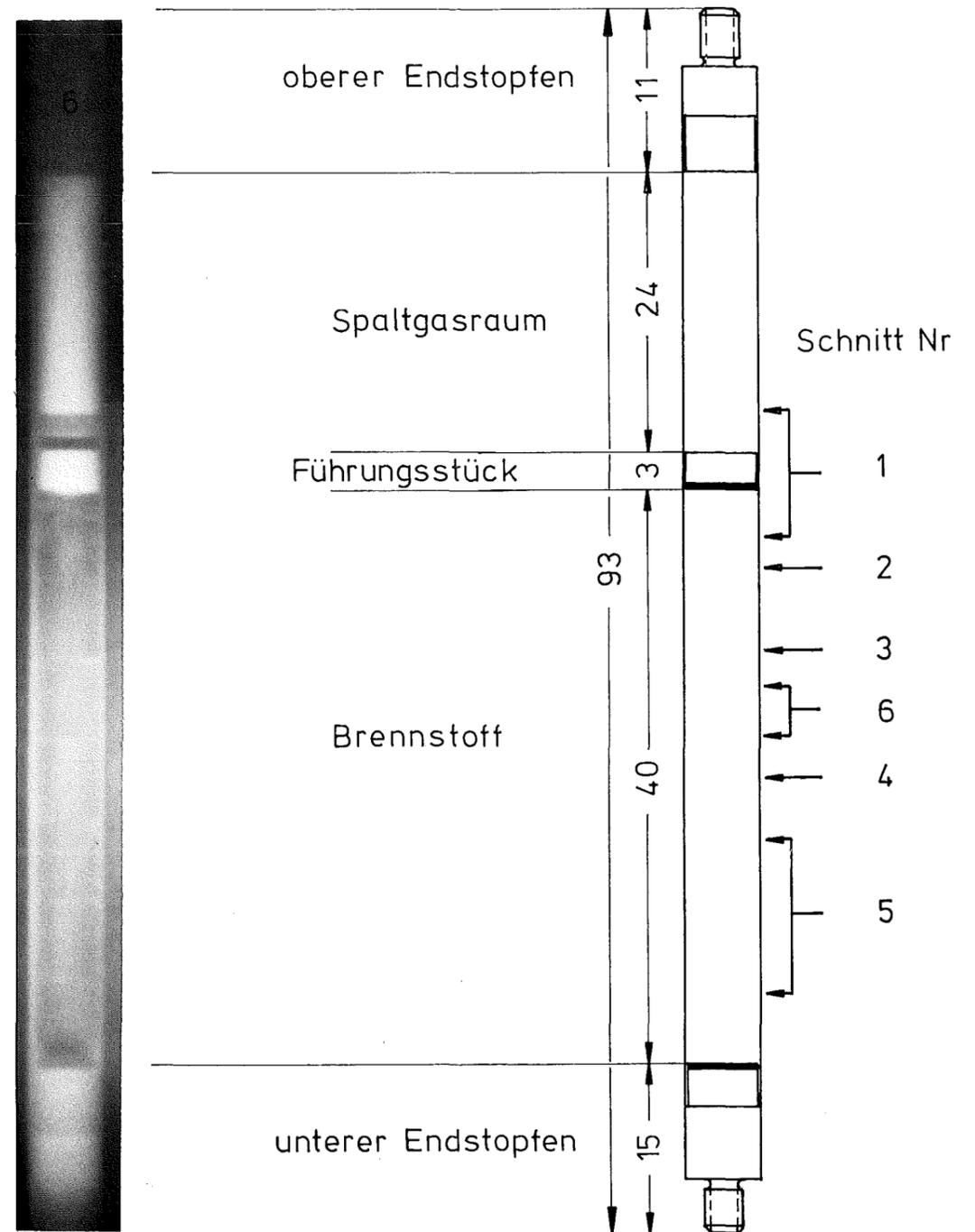
Material : 1.4988
Aussendurchmesser : 5,6 mm
Wandstärke : 0,3 mm

Geometrie:

Länge des Prüflings : 93,3 mm
Länge der Brennstoffsäule: 39,9 mm
Radiale Spaltweite : 265 µm
Schmierdichte : 74,9 % th.D.

Bestrahlung:

Einrichtung : Kapsel mit Cu-Kreuz
Dauer in Vollasttagen : 184,2 d
Ende : 26.9.74
Rechn. Abbrand : 93 MWd/kg Me
Stableistung max/mittl. : 1157/955 W/cm



6 = Abbrand-und Spaltgasprobe