

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

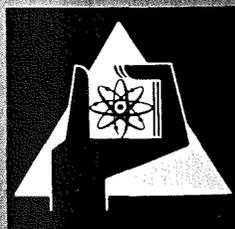
Juni 1977

KFK 2477

Institut für Material- und Festkörperforschung  
Projekt Schneller Brüter

**Modelltheoretische Analyse der Struktur und  
des thermischen Verhaltens des  $UO_2$ - $PuO_2$ -  
Brennstoffes in dem Bestrahlungsversuch  
FR2-Kapselversuchsgruppe 5a**

J. López Jiménez, H. Elbel



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

K F K 2477

Institut für Material- und Festkörperforschung

Projekt Schneller Brüter

Modelltheoretische Analyse der Struktur und des thermischen  
Verhaltens des  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstoffes in dem Bestrahlungsversuch  
FR2-Kapselversuchsgruppe 5a

---

J. López Jiménez<sup>+)</sup> , H. Elbel

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

<sup>+)</sup>  delegiert von Junta de Energía Nuclear, Madrid



## K u r z f a s s u n g

Im Karlsruher Forschungsreaktor FR2 wurden im Rahmen der Versuchsgruppe 5a neun Brennstabprüflinge in insgesamt drei Bestrahlungskapseln getestet. Die Prüflinge enthielten  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstofftabletten.

Die drei Kapseln wurden unterschiedlich lang bestrahlt. Sie erreichten Abbrände von rund 6, 17 bzw. 47 MWd/kgMe bei Stableistungen von 400 bis 600 W/cm und Hülloberflächentemperaturen zwischen 500 und 700 °C.

Aufgrund der geringen Fertigungsspalte von rund 45  $\mu\text{m}$  (radial) bestand bei den vergleichsweise hohen Stableistungen bereits mit Beginn der Bestrahlung Kontakt zwischen Brennstofftabletten und Hüllrohr. Die Versuchsgruppe 5a bot deshalb die Möglichkeit, Aussagen über die Abbrandabhängigkeit des Wärmedurchgangs durch die Kontaktzone zwischen Brennstofftabletten und Hüllrohr abzuleiten.

Über eine detaillierte Analyse der Brennstoffstruktur wurde die Brennstoffoberflächentemperatur bestimmt. Dazu wurden zwei Modelle verwendet, die die Ausbildung der Stengelkristallzone bzw. der Zone mit gerichtetem Kornwachstum in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit und dem Temperaturprofil im Brennstoff beschreiben. Die Ergebnisse der Analyse zeigten, daß mit zunehmendem Abbrand auch bei Kontakt zwischen Brennstoff und Hüllrohr eine Verschlechterung der Wärmeableitung aus dem Brennstoff und damit ein Ansteigen der Brennstoffoberflächentemperatur auftrat. Die Brennstoffoberflächentemperaturen, die mit Hilfe eines Wärmedurchgangsmodells berechnet wurden, stimmten sehr gut mit den Temperaturen überein, die über die Brennstoffstruktur bestimmt wurden.

Die Analyse der Brennstoffstruktur lieferte darüberhinaus Aussagen über die Abhängigkeit der Grensradien und Grenztemperaturen der Strukturzonen von den Betriebsbedingungen.

## A b s t r a c t

### An Analysis of the Structure and the Thermal Behaviour of the $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ -Fuel in the Irradiation Experiment FR2 Capsule Test Series 5a

---

In the Karlsruhe research reactor FR2 nine fuel pins were irradiated within three irradiation capsules in the course of the test series 5a. The pins contained  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$  fuel pellets. The times of irradiation were different for the three capsules. They reached burnup values of about 6, 17, and 47 MWd/kgMe with linear rod powers of 400 to 600 W/cm and clad surface temperatures between 500 and 700 °C.

Due to the small initial gap width of about 45  $\mu\text{m}$  (radial) and the relatively high rod powers, contact between fuel pellets and clad existed already from the beginning of the irradiation. Therefore, the test series 5a was suitable in showing how heat transfer through the contact zone between fuel and clad depends on burnup.

A detailed analysis of the fuel structure was carried out in order to determine fuel surface temperatures. For this purpose two models were used describing the formations of the columnar-grain growth region and the equiaxed-grain growth region, respectively, as function of the irradiation time and the temperature profile in the fuel. The results of the analysis showed that the heat transfer through the contact zone became worse and, as a consequence, the fuel surface temperature rose with increasing burnup.

Fuel surface temperatures calculated by means of a heat transfer model agreed very well with those determined from the fuel structures.

Moreover, some evidence on the dependency of the radii as well as temperatures at the structure boundaries on the operation conditions was obtained from the analysis of the fuel structures.

<u>Inhalt:</u>	<u>Seite</u>
1. Einleitung	1
2. Experimentelle Daten	2
2.1 Auswahl des experimentellen Materials	2
2.2 Auslegungsdaten und Betriebsbedingungen	2
2.3 Experimentelle Ergebnisse	4
3. Analyse des thermischen Verhaltens des Brennstoffs	4
3.1 Annahmen zur Berechnung der radialen Temperaturprofile	5
3.2 Bestimmung der Grenze der Stengelkristallzone	5
3.3 Bestimmung der Grenze der Zone mit gerichtetem Kornwachstum	7
3.4 Bestimmung der wahrscheinlichen Brennstoffrandtemperaturen	8
3.5 Bestimmung der Wärmedurchgangszahl für die Kontaktzone zwischen Brennstoff und Hüllrohr	8
3.5.1 Bestimmung über die Brennstoffstruktur	8
3.5.2 Bestimmung über ein Wärmedurchgangsmodell	9
4. Schlußfolgerung für die Abbrandabhängigkeit der Wärmedurchgangszahl bei Kontakt	9
5. Analyse der Umstrukturierung des Brennstoffs	
5.1 Allgemeine Bemerkungen	11
5.2 Modelltheoretische Ergebnisse	12
5.3 Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen	13
6. Schlußfolgerung für die Grenzradien und Grenztemperaturen der Strukturzone	14
7. Zusammenfassung	15
Literatur	17
Anhang	
Tabellen 1 - 8	
Abbildungen 1 - 16	

## 1. Einleitung

Im Karlsruher Forschungsreaktor FR2 wurden im Rahmen der Versuchsgruppe 5a /1/ neun Brennstabprüflinge in insgesamt drei Bestrahlungskapseln getestet. Die Prüflinge enthielten  $\text{UO}_2$ - $\text{PuO}_2$ -Brennstofftabletten. Ihre Hüllen waren aus dem Werkstoff 1.4988 gefertigt. Der Hülldurchmesser betrug rund 7,0 mm, die Hüllwandstärke 0,4 mm.

Die Brennstoffsäule eines jeden Prüflings war aus Tabletten der Dichtestufen 84, 87, 90 und 93 % TD zusammengesetzt. Sie hatte eine Länge von rund 80 mm.

Die drei Kapseln wurden unterschiedlich lang bestrahlt. Sie erreichten Abbrände von rund 6, 17 bzw. 47 MWd/kgMe bei Stabileistungen von 400 bis 600 W/cm und Hülloberflächentemperaturen zwischen 500 und 700°C. Da die Bestrahlung im thermischen Fluß durchgeführt wurde, war die Wärmequellendichte im Brennstoff sehr stark vom Radius abhängig.

Die Kapseln waren mit sieben Thermoelementen ausgestattet, die zur Messung der NaK-Temperaturen an verschiedenen axialen Positionen der Prüflinge dienten.

Der Zweck der Versuchsgruppe war es, das Bestrahlungsverhalten von Brennstofftabletten unterschiedlicher Dichte zu vergleichen. Mit ihr konnte gezeigt werden, daß die keramografisch sichtbaren Strukturänderungen des Brennstoffs bereits bis zur ersten Abbrandstufe weitgehend abgeschlossen waren. Sie sind von der Ausgangsdichte des Brennstoffs und der Stabileistung in der erwarteten Weise abhängig /1,2,3/. Weitere Ergebnisse des Bestrahlungsversuchs, wie z.B. bezüglich Nachsintern des Brennstoffs, Hüllrohraufweitung, Verträglichkeit von Brennstoff und Hülle und Plutonium-Entmischung im Brennstoff werden in /3/ und /4/ berichtet.

Aufgrund der geringen Fertigungsspalte von rund 45 µm (radial) bestand bei den vergleichsweise hohen Stabileistungen bereits mit Beginn der Bestrahlung Kontakt zwischen Brennstofftabletten und Hüllrohr. Die Versuchsgruppe 5a bietet deshalb über die bereits ausgeschöpften Auswertemöglichkeiten hinaus die zusätzliche Möglichkeit, Aussagen über die Abbrandabhängigkeit des Wärmedurchgangs durch die Kontaktzone zwischen Brennstofftabletten und Hüllrohr abzuleiten.

Die Grundlage für die modelltheoretische Analyse bildete die genaue Auswertung der Brennstoffstruktur in ihrer Abhängigkeit von Stableistung und Bestrahlungszeit. Dazu wurden zwei Modelle verwendet, die die Ausbildung der Stengelkristallzone bzw. der Zone mit gerichtetem Kornwachstum in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit und dem Temperaturprofil im Brennstoff beschreiben. Die mit Hilfe dieser Analyse abgeleiteten Brennstoffrandtemperaturen und Wärmedurchgangszahlen werden mit Werten verglichen, die unter Verwendung eines Modells zur Beschreibung des Wärmedurchgangs bestimmt wurden.

Darüberhinaus lieferte die detaillierte Auswertung der Brennstoffstruktur Aussagen über die Abhängigkeit der Grenzdicken und Grenztemperaturen der Strukturzonen von den Betriebsbedingungen.

## 2. Experimentelle Daten

### 2.1 Auswahl des experimentellen Materials

Von den insgesamt 9 bestrahlten Prüflingen waren zwei (5A/5 und 5A/9) nach der Bestrahlung nicht mehr intakt. Sie wurden nicht in die Analyse einbezogen. Ein dritter Prüfling (5A/7) wurde ausgeschieden, da dessen Thermoelemente keine brauchbaren Meßergebnisse geliefert haben. Auf die Auswertung eines weiteren Prüflings (5A/4) wurde verzichtet, da an den vorhandenen Querschnitten keine eindeutige Bestimmung der Strukturzonen möglich war. Somit verblieben für die Analyse 5 Prüflinge (5A/2, 6, 1, 8 und 3).

Für jeden Prüfling waren jeweils 4 Querschliffe entsprechend den 4 Dichtestufen angefertigt worden. Von diesen mußte jeweils einer verworfen werden, der am Ende der Brennstoffsäule in einem Bereich mit außergewöhnlicher Zentralkanalbildung lag. Die trompetenförmige Ausbildung des Zentralkanals an diesen Stellen läßt auf einen Randeffect bei der Wärmeableitung aus den Prüflingen schließen. Für die Analyse konnten demnach insgesamt 15 Querschliffe verwendet werden.

### 2.2 Auslegungsdaten und Betriebsbedingungen

Die allgemeinen Auslegungsdaten der Prüflinge des Bestrahlungsversuchs 5a sind in der Tabelle 1 zusammengestellt (nach /1/). Den Aufbau der Prüflinge zeigt schematisch die Abb. 1.

Die Betriebsbedingungen, die zu den ausgewählten Querschliffen bestimmt wurden, werden in der Tabelle 2 wiedergegeben. Die angegebenen Werte sind über die Bestrahlungszeit gemittelte Werte. Mit wenigen Ausnahmen verliefen die einzelnen Bestrahlungen unter relativ konstanten Bedingungen. Die Abweichung, die bei der Bestrahlung der Prüflinge 5A/8, 9 und 3 im siebten Zyklus nach unten hin aufgetreten ist (s./1/), brauchte nicht berücksichtigt zu werden, da sie keinen Einfluß auf die Auswertung erwarten ließ. Hülloberflächentemperaturen und Stableistungswerte wurden mit Hilfe der in /1/ angegebenen Umrechnungsvorschriften aus den Meßwerten der Thermoelemente abgeleitet. Leider haben nicht alle Thermoelemente über die volle Bestrahlungszeit funktioniert.

Von den drei Thermoelementen des Prüflings 5A/2 zeigten nur zwei plausible Temperaturen an, allerdings auch nur in der ersten Phase der Bestrahlung. Aufgrund des gleichförmigen Verlaufs der gleichzeitig an anderen Prüflingen aufgenommenen Meßwerte lassen sich die Temperaturen bis zum Bestrahlungsende extrapolieren.

Ein Thermoelement des Prüflings 5A/6 zeigte zu tiefe Temperaturen an, so daß sich die Auswertung nur auf das verbleibende zweite stützen konnte. Auch bei dem Prüfling 5A/1 hat nur ein Thermoelement bis zum Ende der Bestrahlung funktioniert.

Die Thermoelemente der am längsten bestrahlten Prüflinge haben offensichtlich über die gesamte Bestrahlungszeit brauchbare Werte geliefert.

Zur Bestimmung der Betriebsbedingungen an den untersuchten Querschliffen wurden neben den brauchbaren Temperaturmeßwerten die axialen Profile der Gamma-Aktivität der Prüflinge herangezogen.

Aufgrund der radialen Absenkung des thermischen Neutronenflusses ist die Wärmequellendichte über dem Querschnitt der einzelnen Prüflinge nicht konstant gewesen. Abb. 2 gibt ihren radialen Verlauf (in relativen Einheiten) für eine Volltablette wieder, wie er mit dem Rechenprogramm MERKUR /5/ bestimmt wurde. Der Einfluß der Plutonium-Umverteilung auf die Wärmequellendichteverteilung wurde im einzelnen nicht betrachtet, da er aufgrund der Flußabsenkung nur gering ist.

### 2.3 Experimentelle Ergebnisse

Die für die Struktur der ausgewählten Querschliffe charakteristischen Daten (Zentralkanalradius, Radius der Stengelkristallzone, Radius der Zone mit gerichtetem Kornwachstum, Anfangsdichte und mittlere Enddichte des Brennstoffs) sind in der Tabelle 2 zusammengestellt (nach /1/). Die mittlere Enddichte wurde mit Hilfe folgender Beziehung bestimmt:

$$P_1 = \frac{P_0 \cdot R_{\text{Bao}}^2 + R_{\text{Hio}}^2 - R_{\text{Bao}}^2 - R_{\text{Bi1}}^2 - R_{\text{Hi1}}^2 + (R_{\text{Hi1}} - \delta_1)^2 - \frac{2}{3} \cdot A \cdot R_{\text{Bao}}^2}{(R_{\text{Hi1}} - \delta_1)^2 - R_{\text{Bi1}}^2} \quad (1)$$

mit

- $P_1$  = Leervolumen im Brennstoff am Ende der Bestrahlung (Bruchteil)
- $P_0$  = Porosität im Brennstoff am Anfang der Bestrahlung (Bruchteil)
- $R_{\text{Bao}}$  = Außenradius des Brennstoffs am Anfang der Bestrahlung
- $R_{\text{Bi1}}$  = Innenradius des Brennstoffs am Ende der Bestrahlung
- $R_{\text{Hio}}$  = Innenradius der Hülle am Anfang der Bestrahlung
- $R_{\text{Hi1}}$  = Innenradius der Hülle am Ende der Bestrahlung
- $\delta_1$  = Spalt zwischen Brennstoff und Hülle am Ende der Bestrahlung
- $A$  = relative Volumenvergrößerung des Brennstoffs am Ende der Bestrahlung (Bruchteil)

Sie schließt Poren, Blasen und Risse ein.

Für die durchgeführte Untersuchung wurden weiter die in Abb. 3 bzw. Tabelle 3 wiedergegebenen Spaltgasfreisetzungswerte verwendet (nach /1/). Die beiden Werte für die höchste Abbrandstufe sind aus den in /1/ für die niedrigen Abbrandstufen angegebenen Daten unter Annahme einer gesamten Spaltgasfreisetzung von 50 % extrapoliert worden.

### 3. Analyse des thermischen Verhaltens des Brennstoffs

Die modelltheoretische Analyse basiert auf einer Gegenüberstellung der durch die Querschliffe repräsentierten Brennstoffstruktur (s.Tab.2) und des zu dem entsprechenden Abbrandzustand ermittelten radialen Temperaturprofils bzw. der daraus berechneten Brennstoffstruktur.

### 3.1 Annahmen zur Berechnung der radialen Temperaturprofile

Bei der Ermittlung der Temperaturprofile zu den einzelnen Querschliffen wurde zur Vereinfachung der Auswertung auf eine Wiedergabe der radialen Abhängigkeit einiger Materialgrößen, wie z.B. der Porositätsverteilung, verzichtet. Die Verwendung von entsprechend gewählten Mittelwerten ist vertretbar, da die dadurch eingeführten Ungenauigkeiten im Vergleich zu den Toleranzgrenzen bzw. Ungenauigkeiten bei den Auslegungsdaten und Betriebsbedingungen gering sind.

Die Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs wurde mit der in /6/ vorgeschlagenen Beziehung beschrieben. Die Abhängigkeit von der Porosität wurde durch den für sphärische Poren geltenden Ansatz  $(1-P)^{1,5}$  /7/ erfaßt.

Bei der thermischen Analyse des Brennstoffs wurde dessen Oberflächentemperatur als Randbedingung eingesetzt. Da aufgrund der vorliegenden Erfahrung dieser Wert bei den Stableistungen und Hülloberflächentemperaturen des Bestrahlungsversuchs 5a am jeweiligen Ende der Bestrahlung über  $900^{\circ}\text{C}$  liegen sollte, wurden zur Auffindung des wahrscheinlichen Wertes Rechnungen in einem Temperaturbereich von  $900^{\circ}\text{C}$  bis  $1100^{\circ}\text{C}$  durchgeführt. Ausgehend von der jeweiligen Randtemperatur wurde das radiale Temperaturprofil unter Berücksichtigung der Flußabsenkung, der entsprechenden Stableistung und der aktuellen Geometrie und mit den zuvor erwähnten Annahmen bestimmt.

Abb. 4 zeigt als Beispiele die Temperaturprofile zu drei Querschliffen.

### 3.2 Bestimmung der Grenze der Stengelkristallzone

Durch Porenwanderung im radialen Temperaturgradienten der Brennstofftablette wird deren innere Zone unter gleichzeitiger Ausbildung eines Zentralkanals verdichtet. Im Querschliff ist diese Zone an der Ausbildung der sogen. Säulenkristalle erkennbar. Zur rechnerischen Bestimmung der äußeren Grenze dieser Zone wurde ein Verfahren benutzt, das auf den Vorschlägen von Nichols /8/ beruht. Dieser nimmt an, daß die Stengelkristallstruktur sichtbar wird, wenn die Linsenporen sich um eine gewisse minimale Strecke  $d$  während der Bestrahlungszeit bewegt haben. Das verwendete Verfahren wird in /9/ ausführlich beschrieben. Es geht von folgender Darstellung der Wanderungsgeschwindigkeit der

Linsenporen aus:

$$v_p = \left( \frac{4 \cdot 10^6 \Omega}{RT} \right) D_g^* \left( \frac{T}{2000} \right)^{3/2} \left( \frac{T_{\text{sint}}}{T} \right) \left( \frac{\Delta H_{\text{vap}}}{RT} \right) \cdot \exp \left( \frac{\Delta S_{\text{vap}}}{R} \right) \cdot \exp \left( - \frac{\Delta H_{\text{vap}}}{RT} \right) \left( \frac{1}{T} \frac{dT}{dx} \right) \quad (2)$$

Darin bedeuten:

- $v_p$  = Wanderungsgeschwindigkeit der Linsenporen ( $\text{\AA}/\text{s}$ ),
- $\Omega$  = Volumen eines Moleküls der Festkörpermatrix,  $41 \text{ \AA}^3$  für  $\text{UO}_2$ ,
- $T$  = Brennstofftemperatur (K),
- $R$  = Universelle Gaskonstante,  $8.3148 \text{ J/mol K}$ ,
- $T_{\text{sint}}$  = Sintertemperatur,  $1800 \text{ K}$ ,
- $\Delta H_{\text{vap}}$  = Verdampfungswärme des Festkörpers,  $567 \text{ kJ/mol}$  /10/,
- $\Delta S_{\text{vap}}$  = Verdampfungsentropie des Festkörpers,  $150 \text{ J/mol K}$  /10/,
- $D_g^*$  = Diffusionskoeffizient von  $\text{UO}_2$  im Porengas ( $\text{cm}^2/\text{s}$ ),
- $dT/dx$  = Temperaturgradient im Brennstoff (K/cm).

Für den Diffusionskoeffizienten von  $\text{UO}_2$  in Helium bzw. Xenon bei 1 atm und 2000 K wurden nach /9/ angenommen:

$$\begin{aligned} D_g^* (\text{He-UO}_2) &= 11 \text{ cm}^2/\text{s} \quad \text{und} \\ D_g^* (\text{Xe-UO}_2) &= 0,9 \text{ cm}^2/\text{s}. \end{aligned}$$

Die Diffusionskoeffizienten, die für die Rechnung verwendet wurden, wurden nach der Beziehung

$$D_g^* ( (x \cdot \text{He} + (1-x) \cdot \text{Xe}) - \text{UO}_2 ) = 10^{1.0414x - 0.0458(1-x)} \text{ cm}^2/\text{s} \quad (3)$$

für die jeweiligen Abbrandzustände der untersuchten Querschliffe bestimmt.

Der numerische Formalismus geht von folgendem Ansatz aus:

$$t = \int_r^{r-d} \frac{dr'}{v_p(r')}, \quad (4)$$

mit  $v_p(r')$  Porenwanderungsgeschwindigkeit an der Stelle  $r'$  (cm/h),  
 $r$  Radius im Brennstoff (cm),  
 $d$  untere Grenze der Wanderungsstrecke (cm),  
 $t$  Wanderungszeit der Poren (h).

Die Rechnung startet mit einem Radius  $r$ , für den gilt:  $r-d$  darf nicht kleiner sein als der Radius, an dem das Maximum von  $v_p$  liegt (vgl. Abb.5).  $r$  wird solange vergrößert, bis die berechnete Wanderungszeit  $t$  über die Strecke  $d$  gleich der gesamten Bestrahlungszeit ist. Der so gefundene Radius wird als Grenzradius der Stengelkristallzone definiert.

Für die Größe der Strecke  $d$  wurde in Anlehnung an /8/ ein Wert gewählt, der einem Zehntel der Differenz aus Außen- und Innenradius des Brennstoffs entspricht. Aufgrund des starken Gradienten der Porenwanderungsgeschwindigkeit hat die Länge der Strecke  $d$  auf die Genauigkeit des Rechenergebnisses nur eine untergeordnete Bedeutung.

### 3.3 Bestimmung der Grenze der Zone mit gerichtetem Kornwachstum

Die Ausbildung der Zone mit gerichtetem Kornwachstum wurde entsprechend /11/ mit folgender Beziehung beschrieben:

$$d^3 - d_0^3 = 0,75 \cdot 10^{12} \exp(-87000/RT) \cdot t, \quad (5)$$

mit  $d$  Durchmesser des gewachsenen Kornes ( $\mu\text{m}$ ),  
 $d_0$  Durchmesser des ursprünglichen Kornes ( $\mu\text{m}$ ),  
 $R$  universelle Gaskonstante,  $1,98 \text{ cal/mol} \cdot \text{K}$ ,  
 $T$  lokale Temperatur im Brennstoff (K),  
 $t$  Bestrahlungszeit (h).

Als Startwert für die Rechnungen wurde  $d_0$  mit  $5 \mu\text{m}$  angenommen. Körner, deren Durchmesser am Ende der Bestrahlungszeit auf einen Wert von größer  $25 \mu\text{m}$  angewachsen sind, wurden zur Zone des Kornwachstums gezählt (nach /9/).

### 3.4 Bestimmung der wahrscheinlichen Brennstoffrandtemperaturen

Mit Hilfe der in den Abschnitten 3.2 und 3.3 geschilderten Verfahren wurden zu verschiedenen Brennstoffrandtemperaturen die Grenzzadien der entsprechenden Brennstoffzonen berechnet. Für die drei Randtemperaturwerte 900, 1000 und 1100°C sind die Ergebnisse in der Tabelle 4 für die untersuchten Querschliffe zusammengestellt. Anhand der Tabelle 4 wurde die jeweilige wahrscheinliche Randtemperatur so bestimmt, daß die zugehörigen berechneten Grenzzadien die beste Übereinstimmung mit den aus den Querschliffen optisch bestimmten Grenzzadien ergaben (vgl. Abb. 6 und 7). Bemerkenswert ist, daß Übereinstimmung für die beiden Gruppen der Grenzzadien mit geringen Abweichungen bei ein und derselben Brennstoffrandtemperatur gefunden wurde.

### 3.5 Bestimmung der Wärmedurchgangszahl für die Kontaktzone zwischen Brennstoff und Hüllrohr

#### 3.5.1 Bestimmung über die Brennstoffstruktur

Mit den aus der Strukturanalyse abgeleiteten Brennstoffrandtemperaturen, den vorgegebenen Stabileistungen und Hülloberflächentemperaturen wurden Wärmedurchgangszahlen durch die Kontaktzone zwischen Brennstoff und Hüllrohr für die einzelnen Querschliffe bestimmt, unter Verwendung der bekannten Beziehungen:

$$h = \frac{\chi}{2\pi r_{Hi} (T_{Ba} - T_{Hi})} \quad \text{und} \quad (6)$$

$$T_{Hi} = T_{Ha} + \frac{\chi}{2\pi \bar{\lambda}_H} \ln \left( \frac{r_{Ha}}{r_{Hi}} \right) . \quad (7)$$

Es bedeuten:

$h$	=	Wärmedurchgangszahl	(W/cm <sup>2</sup> °C),
$\chi$	=	lineare Stabileistung	(W/cm),
$r_{Hi}$	=	Hüllinnenradius	(cm),
$r_{Ha}$	=	Hüllaußenradius	(cm),
$T_{Hi}$	=	Hüllinnentemperatur	(°C),
$T_{Ha}$	=	Hüllaußentemperatur	(°C),
$T_{Ba}$	=	Brennstoffrandtemperatur	(°C),
$\bar{\lambda}_H$	=	mittlere Wärmeleitfähigkeit des Hüllrohrs	(W/cm °C),

Die so bestimmten Werte sind in der Tabelle 5 mit den entsprechenden Temperatur- und Stabileistungswerten zusammengestellt. Sie beziehen sich auf das jeweilige Ende der Bestrahlung.

### 3.5.2 Bestimmung über ein Wärmedurchgangsmodell

Wärmedurchgangszahlen und Brennstoffrandtemperaturen zu den einzelnen Querschliffen wurden unabhängig von dem oben geschilderten Verfahren mit Hilfe eines Wärmedurchgangsmodells berechnet. Ausgangsdaten zu dieser Berechnung sind die Betriebsbedingungen, charakterisiert durch Hülloberflächentemperatur und Stabileistung (s. Tabelle 2), und die Beschaffenheit der Kontaktzone, charakterisiert durch die mittleren Oberflächenrauigkeiten von Brennstofftablette und Hüllrohr und die Zusammensetzung des Gases im Restspalt, d.h. die Spaltgasfreisetzung (s. Abb. 3 und Tabelle 3). Die Beziehungen, die das Modell selbst zur Berechnung der Wärmedurchgangszahl für die Kontaktzone zwischen Brennstofftablette und Hüllrohr benützt, sind im Anhang gesondert aufgeführt (nach /12/). Die Summe aus den mittleren Oberflächenrauigkeiten wurde zu  $5 \mu\text{m}$  angenommen.

Die Ergebnisse der Modellrechnungen zu den einzelnen Querschliffen wurden ebenfalls in die Tabelle 5 aufgenommen. Sie stimmen mit den nach dem zuvor geschilderten Verfahren gefundenen Werten im Rahmen der experimentellen Ungenauigkeiten und des Näherungscharakters der angewendeten Auswertemethoden sehr gut überein, wie der Vergleich der experimentell bestimmten mit den berechneten Wärmedurchgangszahlen in Abb. 8 zeigt.

## 4. Schlußfolgerung für die Abbrandabhängigkeit der Wärmedurchgangszahl bei Kontakt

---

Aufgrund der unterschiedlichen Bestrahlungszeiten bietet die Versuchsgruppe 5a die Möglichkeit, Aussagen über die Abbrandabhängigkeit des Wärmedurchgangs durch die Kontaktzone zwischen Brennstoff und Hüllrohr abzuleiten. Da die einzelnen Prüflinge zum Teil bei sehr unterschiedlichen Stabileistungen betrieben wurden, kann eine solche Abhängigkeit anhand der Tabelle 5 nur unklar erkannt werden. Sie wird aber nach einer Normierung auf gleiche Stabileistungs- und Hülloberflächentemperaturwerte deutlich.

Zu diesem Zweck wurde ein vereinfachtes Verfahren benutzt, dem neben der Beziehung (6) die folgende Beziehung zugrundegelegt wurde (siehe Anhang):

$$h = \frac{\bar{\lambda}}{\delta} . \quad (8)$$

Es bedeuten:

- $h$  = Wärmedurchgangszahl ( $\text{W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$ ),  
 $\bar{\lambda}$  = Wärmeleitfähigkeit des Gasgemisches im Restspalt ( $\text{W/cm } ^\circ\text{C}$ )  
 $\delta$  = effektiver Restspalt (cm).

Die Wärmeleitfähigkeit des Gasgemisches im Restspalt wurde als gemittelter Wert nach folgender Beziehung berechnet:

$$\bar{\lambda} = \lambda_c \cdot \bar{T}^{0,79} , \quad (9)$$

wobei  $\lambda_c$  ein Parameter ist, der von der Art und Zusammensetzung des Gasgemisches abhängt, und  $\bar{T}$  der arithmetische Mittelwert aus Hüllinnen-temperatur und Brennstofffrandtemperatur ist (in K).

Die Normierung der experimentellen Werte wurde getrennt nach zwei Gruppen durchgeführt, für die die folgenden Referenzbedingungen gewählt wurden:

- 1)  $\chi = 520 \text{ W/cm}$  und  $T_{\text{Ha}} = 620 \text{ } ^\circ\text{C}$   
und
- 2)  $\chi = 420 \text{ W/cm}$  und  $T_{\text{Ha}} = 530 \text{ } ^\circ\text{C}$ .

Diese Referenzbedingungen entsprechen den Betriebsbedingungen des Querschliffes 5A2-2 bzw. der Querschliffe 5A6-3, 4 und 7.

Die Beziehungen (6), (8) und (9) ergeben folgenden Ansatz zur Umrechnung der Brennstofffrandtemperaturen von den tatsächlichen Betriebsbedingungen auf die Referenzbedingungen:

$$T'_{\text{Ba}} = T'_{\text{Hi}} + (T_{\text{Ba}} - T_{\text{Hi}}) \cdot \frac{\chi'}{\chi} \cdot \left( \frac{T_{\text{Hi}} + T_{\text{Ba}} + 546 \text{ } ^\circ\text{C}}{T'_{\text{Hi}} + T'_{\text{Ba}} + 546 \text{ } ^\circ\text{C}} \right)^{0,79} . \quad (10)$$

Dabei kennzeichnet der Strich die Verhältnisse unter den Referenzbedingungen. Die Symbolerklärung ist die gleiche wie zu Gleichung (7).

Mit Hilfe der Beziehung (10) kann  $T'_{Ba}$  iterativ berechnet werden.

Die entsprechende Wärmedurchgangszahl  $h'$  folgt aus der Gleichung (6) unter Verwendung der den Referenzbedingungen entsprechenden Werte von  $\chi'$ ,  $T'_{Hi}$  und  $T'_{Ba}$ .

Die Ergebnisse der Normierung sind in den Abb. 9 und 10 dargestellt. Sie stimmen im Rahmen der experimentellen Ungenauigkeiten sehr gut mit den Voraussagen überein, die durch das verwendete Rechenmodell zu den jeweiligen Referenzbedingungen gemacht werden. In den Abb. 9 und 10 geben die Kurven die Rechenergebnisse wieder.

Aus dem Experiment FR2-KVE-Vg 5a folgt demnach, daß mit zunehmendem Abbrand, d.h. mit zunehmender Spaltgasfreisetzung die Wärmeleitungseigenschaften der Kontaktzone zwischen Brennstofftabletten und Hüllrohr schlechter werden und dadurch bei unveränderten Betriebsbedingungen die Randtemperaturen der Brennstofftabletten ansteigen. Die in früheren modelltheoretischen Analysen auch für den Kontaktfall angenommene Verschlechterung der Wärmeableitung aus dem Brennstab als Folge der Spaltgasfreisetzung (s. z.B./13,14/), wird durch dieses Experiment bestätigt.

## 5. Analyse der Umstrukturierung des Brennstoffs

### 5.1 Allgemeine Bemerkungen

Die Umstrukturierung des Mischoxid-Brennstoffs von Schnellbrüter-Reaktoren, d.h. im besonderen die Verdichtung des Brennstoffs unter Ausbildung eines Zentralkanals sowie der Stengelkristallzone und der Zone des gerichteten Kornwachstums ist ein dynamischer Vorgang, der von den Betriebsbedingungen geprägt wird. Temperatur und Temperaturgradient im Brennstoff und die Bestrahlungszeit sind die wichtigsten Parameter (siehe Abschn. 3.2 und 3.3). In der Praxis werden zur Abgrenzung der Strukturzonen häufig feste Temperaturgrenzwerte verwendet. Wie Tabelle 6 zeigt, schwanken die von verschiedenen Autoren angegebenen Grenzwerte zwischen 1700 und 2150°C für die Stengelkristallzone und zwischen 1300 und 1650°C für die Zone des gerichteten Kornwachstums. Die Wahl fester Temperaturgrenzwerte für die beiden genannten Zonen bedeutet eine sehr starke Vereinfachung und Einschränkung für die Beschreibung des umstrukturierten Brennstoffs.

Das wird anhand der in den beiden folgenden Abschnitten durchgeführten quantitativen Strukturanalyse der Querschliffe der Versuchsgruppe 5a deutlich werden. Ein erster Eindruck kann durch eine thermische Analyse dieser Querschliffe vermittelt werden, der an den entsprechenden experimentell bestimmten Grenzdicken der beiden Strukturzonen die beiden Grenzwerte  $1300^{\circ}\text{C}$  und  $1700^{\circ}\text{C}$  zugrundegelegt wurden. An diese beiden Werte wurden die jeweiligen Temperaturprofile angepaßt, wobei der Einfluß der Flußabsenkung selbstverständlich berücksichtigt wurde. Die Rand- und Zentraltemperaturen, die sich aus dieser Analyse für die untersuchten 15 Querschliffe ergaben, sind in der Tab. 7 zusammengestellt. Die gefundenen Werte für die Brennstoffrandtemperaturen zeigen deutlich, daß die beiden gewählten Grenzwerte erst ab einer bestimmten Bestrahlungszeit eine brauchbare Abgrenzung der Strukturzonen liefern. Diese Zeit ist dabei umso länger, je niedriger die Stabileistung ist.

## 5.2 Modelltheoretische Ergebnisse

Die Modelle, die zur Strukturanalyse verwendet wurden (siehe Abschn. 3.2 und 3.3), liefern genaue Aussagen über die Zeit- und Leistungsabhängigkeit sowohl für die Grenzdicken als auch für die Grenztemperaturen. Nach diesen Modellen nehmen die Werte für die beiden Grenztemperaturen mit zunehmender Bestrahlungszeit ab (siehe Abb. 11 und 12). Die in /16/ empfohlenen Werte,  $1700$  und  $1300^{\circ}\text{C}$ , sollten deshalb für mittlere Bestrahlungszeiten und Abbrände gelten.

Die Ausbildung der Stengelkristallzone infolge von Porenwanderung wird sowohl von der Temperatur als auch vom Temperaturgradienten im Brennstoff bestimmt. Da der Temperaturgradient von der Stabileistung abhängt, ist die entsprechende Grenztemperatur für unterschiedliche Stabileistungen verschieden. Die Abhängigkeit dieser Temperatur von der Bestrahlungszeit und der Stabileistung ist in der Abb. 11 dargestellt. Als Randbedingung wurde eine Brennstoffoberflächentemperatur von  $1000^{\circ}\text{C}$  fest vorgegeben. Die weiteren für die Berechnung notwendigen Daten entsprechen denen des Querschliffs 5A6-7 aus der Kapsel Nr. 73. Es ist dabei zu beachten, daß aufgrund der Bestrahlung im thermischen Fluß die Wärmequellendichte vom Brennstoffradius abhängig ist.

Da die Ausbildung der Zone des gerichteten Kornwachstums nicht vom Temperaturgradienten abhängt, ist auch keine Abhängigkeit von der Stableistung zu erwarten, wie die Abb. 12 zeigt. Für diese Abbildung gelten die gleichen Voraussetzungen wie für die Abb. 11.

Die Grenzradien der beiden Strukturzonen hängen natürlich von der Stableistung ab. Je höher diese ist, desto schneller bilden sich die beiden Zonen aus (siehe Abb. 11 und 12) bzw. desto größer sind die Grenzradien. Sie wandern mit zunehmender Bestrahlungszeit weiter nach außen.

Aufgrund der Flußabsenkung wird bei Stableistungen um 300 W/cm und darunter keine Zone mit Stengelkristallen ausgebildet.

### 5.3 Vergleich mit den experimentellen Ergebnissen

Die Auswertung der 15 untersuchten Querschliffe des Bestrahlungsexperiments FR2-KVE-Vg5a läßt erkennen, daß mit zunehmender Stableistung eine Tendenz zu größeren Grenzradien besteht (siehe Abb. 13 und 14). Ein direkter Vergleich der experimentell gefundenen Grenzradien in ihrer Abhängigkeit von der Stableistung mit den modelltheoretischen Voraussagen ist dadurch erschwert, daß neben der Stableistung als Parameter auch die Bestrahlungszeit, die Spaltgasfreisetzung, die Brennstoffrandtemperatur und die Hülloberflächentemperatur das experimentelle Ergebnis beeinflussen. Dabei hängt die Brennstoffrandtemperatur von den übrigen Größen ab. Der Vergleich wurde deshalb nur indirekt durchgeführt, indem mit Hilfe der beiden Rechenmodelle (siehe Abschn. 3.2 und 3.3) obere und untere Grenzen für den Bereich der experimentellen Werte bestimmt wurden. Die in den Abb. 13 und 14 dargestellten Grenzkurven entsprechen bestimmten Randtemperaturen des Brennstoffs, die als wahrscheinliche obere bzw. untere Grenzwerte in dem Experiment angenommen werden können. Dabei gelten die niedrigeren Randtemperaturen für die kürzeste Bestrahlungszeit, die hohen Randtemperaturen für die längste. Die Verteilung der Meßwerte innerhalb der Grenzkurven zeigt einen erkennbaren Trend bei der langen Bestrahlungszeit zu den oberen Grenzkurven und bei der kurzen Bestrahlungszeit zu den unteren Grenzkurven.

Die Anpassung der Grenzradien von Stengelkristallzone und Zone des gerichteten Kornwachstums, die für die Bestimmung der wahrscheinlichen Brennstoffrandtemperaturen zu den einzelnen Querschliffen durchgeführt wurde, (siehe Abschn. 3.4) ergab Randtemperaturen (siehe Tab. 5), die alle in den durch die oben erwähnten Grenzwerte definierten Bereich fallen.

Aus den nach Abschn. 3 bestimmten wahrscheinlichen Temperaturprofilen wurden an den Stellen der experimentell gefundenen Grenzradien die entsprechenden Temperaturgrenzwerte entnommen (s.Tab. 8). Sie werden in den Abb. 15 und 16 mit Ergebnissen der Modellrechnungen verglichen. Aus denselben Gründen wie bei dem Vergleich der Grenzradien werden die Temperaturgrenzwerte für die Stengelkristallzone mit Kurven verglichen, die mit dem entsprechenden Rechenmodell unter den gleichen Annahmen bestimmt wurden wie die Grenzkurven in Abb. 13. Die für die Grenzradien festgestellte Tendenz ist auch für die Grenztemperatur der Stengelkristallzone zu erkennen. Die Temperaturwerte, die aus den Querschliffen mit niederem Abbrand abgeleitet wurden, tendieren zu der Grenzkurve für kurze Bestrahlungszeit und niedere Brennstoffrandtemperatur, diejenigen aus den Querschliffen mit höherem Abbrand zu der Grenzkurve für die lange Bestrahlungszeit und hohe Brennstoffrandtemperatur.

Die Grenztemperatur für die Zone des gerichteten Kornwachstums ist nach den Modellvorstellungen unabhängig von der Stabileistung und von der Randtemperatur der Brennstofftablette, aber abhängig von der Bestrahlungszeit (vgl.Abschn. 3.3). Die aus den wahrscheinlichen Temperaturprofilen der einzelnen Querschliffe (vgl. Abschn.3) abgeleiteten Grenztemperaturen werden in der Abb. 16 mit der theoretischen Kurve verglichen. Mit Ausnahme der Werte zu den Querschliffen des Prüflings 5A6 folgen alle anderen Werte mit mehr oder minder großen Schwankungen dem durch das Rechenmodell vorausgesagten Verhalten.

## 6. Schlußfolgerung für die Grenzradien und Grenztemperaturen der Strukturzonen

Die Umstrukturierung von porösem Tablettenbrennstoff aus Mischoxid erfolgt unter Schnellbrüterbedingungen verhältnismäßig rasch. Bei der Versuchsgruppe 5a ist sie im wesentlichen bereits vor der untersuchten mittleren Abbrandstufe ( $A = 17 \text{ MWd/kgMe}$ ) abgeschlossen /1/. Aufgrund der Zeitabhängigkeit der Mechanismen, die als Ursache der Umstrukturierung auftreten (siehe Abschn.3.2 und 3.3), und besonders infolge der mit dem Abbrand gekoppelten Spaltgasfreisetzung, werden die Grenzradien der sich ausbildenden Strukturzonen im Laufe des Abbrands noch größer, gleichbleibende Betriebsbedingungen vorausgesetzt.

Im Vergleich zur ersten Betriebsphase erfolgt dieses Wachstum allerdings langsam.

Aus den Ergebnissen der Versuchsgruppe 5a folgt weiter, daß die Ausbildung der Strukturzonen von der Größe der Stableistung beeinflusst wurde. Die Auswertung der verschiedenen Querschliffe läßt einen deutlichen Trend zu größeren Grenzradien mit höherer Stableistung erkennen.

Grenztemperaturen, die den Grenzradien der Strukturzonen zugeordnet werden, können über die Betriebszeit eines Schnellbrüterbrennstabes nicht als konstante Parameter angesehen werden. Sie werden im Laufe des Abbrandes niedriger. Sie hängen darüberhinaus von den Betriebsbedingungen ab. Die in /16/ empfohlenen Werte von  $1300^{\circ}\text{C}$  für die Grenze der Zone des gerichteten Kornwachstums und von  $1700^{\circ}\text{C}$  für die Grenze der Stengelkristallzone gelten in Näherung für Abbrände um  $40 \text{ MWd/kgMe}$  und für Stableistungen um  $400 \text{ W/cm}$ .

Über den Einfluß der unterschiedlichen Dichte der Tabletten auf deren Umstrukturierung wurde in /1,2,3/ bereits berichtet. Er zeigt sich am stärksten bei der Ausbildung des Zentralkanals (Volumeneffekt bei zylindrischer Geometrie). Ein darüberhinausgehender Einfluß auf die in der vorliegenden Arbeit untersuchten Größen konnte im Rahmen der gegebenen experimentellen Ungenauigkeiten nicht festgestellt werden.

## 7. Zusammenfassung

Mit Hilfe der modelltheoretischen Analyse der Brennstoffstruktur bei dem Bestrahlungsexperiment FR2-KVE-Vg 5a wurde die Temperatur an der Oberfläche des Brennstoffs bestimmt. Durch die Auslegung des Experiments bedingt, herrschte bereits mit Beginn der einzelnen Bestrahlungen Kontakt zwischen Brennstoff und Hüllrohr. Da die einzelnen Bestrahlungen nach verschiedenen Abbränden beendet worden waren, konnte die Auswirkung des Abbrands auf die Oberflächentemperatur des Brennstoffs bei Vorliegen eines Kontakts mit der Hülle gezeigt werden.

Es wurde eine gute Übereinstimmung zwischen den aus der Brennstoffstruktur und den unter Verwendung eines Rechenmodells bestimmten Brennstoffoberflächentemperaturen gefunden. Dabei wurde für die Rechnungen die mittlere Oberflächenrauigkeit von Brennstoff und Hüllrohr mit insgesamt  $5 \mu\text{m}$  angesetzt. Weiter wurde angenommen, daß in den Bestrahlungsphasen, die für die Brennstoffstruktur bestimmend waren, ein vernachlässigbarer Kontaktdruck vorhanden war.

Beim Anfahren des Reaktors zu den einzelnen Leistungszyklen sind wesentlich höhere Kontaktdrucke aufgetreten, die nicht nur zu den beobachteten Hüllrohrverformungen, sondern auch kurzzeitig zu einer niedrigeren thermischen Belastung des Brennstoffs infolge einer besseren Wärmeableitung durch die Kontaktzone geführt haben. Diese Bestrahlungsphasen mit verminderten Brennstofftemperaturen ließen keinen Einfluß auf die beobachtete Brennstoffstruktur erkennen, ebensowenig wie die kurzzeitige Absenkung der Betriebstemperaturen im siebten Zyklus bei einigen Prüflingen.

Die Ergebnisse der Analyse bestätigen, daß mit zunehmendem Abbrand auch bei Kontakt zwischen Brennstoff und Hüllrohr mit einer Verschlechterung der Wärmeableitung aus dem Brennstoff und damit mit einer Zunahme der Brennstoffoberflächentemperatur gerechnet werden muß. Die Verschlechterung der Wärmeableitung kann durch die Spaltgasfreisetzung erklärt werden.

Die Verdichtung der inneren Zone des porösen Tablettenbrennstoffs unter gleichzeitiger Ausbildung eines Zentralkanals war bei der Versuchsgruppe 5a im wesentlichen vor Erreichen eines Abbrandes von 17 MWd/kg Me abgeschlossen. Infolge der abbrandbedingten Zunahme der Brennstoffoberflächentemperatur, aber auch infolge der Zeitabhängigkeit der Umstrukturierungsmechanismen muß angenommen werden, daß sich die Grensradien der Strukturzonen im Laufe des Abbrandes langsam noch weiter vergrößert haben.

Literatur:

- /1/ K. Kummerer, P. Weimar:  
Brennstab-Bestrahlungsversuch mit integrierter Variation der  
Brennstoffdichte, FR2-Kapsel-Versuchsgruppe 5a, KFK 1886, Mai 1975
- /2/ K. Kummerer:  
Dichteabhängige Strukturänderungen in  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstofftabletten  
beim Abbrand, Reaktortagung Nürnberg, 1975, S.403
- /3/ W. Dienst, O. Götzmann, B. Schulz:  
 $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstab-Kapselbestrahlungen der Versuchsgruppe FR2-5a,  
Auswertung von Nachbestrahlungsuntersuchungsergebnissen,  
KFK 2134, Juni 1975
- /4/ H. Kleykamp:  
Nachuntersuchungen an Brennstabprüflingen der Versuchsgruppe 5a der  
FR2-Kapselbestrahlungen, Beitrag in KFK 1275/4, April 1976, S.112-13
- /5/ L. Steinbock:  
Das Brennstabauslegungs- und Überwachungssystem MERKUR,  
KFK 2163, Sept. 1975
- /6/ H.E. Schmidt:  
Die Wärmeleitfähigkeit von Uran- und Plutonium-Dioxid bei hohen  
Temperaturen, High Temp., High Press. 3 (1971) 345
- /7/ G. Ondracek, B. Schulz:  
The Porosity Dependence of the Thermal Conductivity for Nuclear  
Fuels, J. Nucl.Mat. 46 (1973) 253
- /8/ F.A. Nichols:  
Theory of Columnar Grain Growth and Central Void Formation in Oxide  
Fuel Rods, J. Nucl.Mat. 22 (1967) 214
- /9/ D.R. Olander:  
Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements, TID-26711-P1, 1976

- /10/ M.H. Rand, T.L. Markin:  
Thermodynamics of Nuclear Materials, Symposium Proceedings, 1967, Vienna
- /11/ H. Stehle:  
Kornwachstum von  $UO_2$ , Ber.Dtsch.Keram.Ges. 40 (1963) 129
- /12/ R. Godesar:  
Untersuchung des Einflusses des Wärmeübergangskoeffizienten im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle auf die sicherheitstechnische Auslegung von stabförmigen Brennstäben für Schnelle Brutreaktoren, Dissertation TH Aachen, 1972
- /13/ K. Kummerer, H. Elbel:  
Experimental and Modelling Results Concerning the Operational Behaviour of a SNR-Type Fuel Pin, IAEA-SM-173/25, Wien (1974)
- /14/ H. Elbel:  
Modelltheoretische Behandlung des Brennstabverhaltens,  
Beitrag in KFK 1999, 1974, S. 203
- /15/ D.H. Thompson, W.W. Marr:  
Prediction of Maximum Temperature or Melting Fraction in a LMFBR Fuel Element, Nucl.Eng. and Design 17 (1971) 361
- /16/ G. Karsten, H. Kämpf, A. Gerken:  
Theoretical and Computer Analysis on the Behaviour of Fast Reactor Fuel Pins and Related Parts of the Core under Operational Conditions, KFK 878, Nov. 1968

## A n h a n g

Zusammenstellung der Beziehungen, die zur Berechnung der Wärmedurchgangszahl für die Kontaktzone zwischen Brennstofftablette und Hüllrohr verwendet wurden.

Es wurde angenommen, daß die Flächenpressung, d.h. der Kontaktdruck, sehr klein ist und damit der Anteil der Festkörperleitung am Gesamtwärmedurchgang vernachlässigt werden kann. Die Wärmedurchgangszahl kann dann nach /12/ mit Hilfe der folgenden Beziehungen berechnet werden:

$$h_c = \frac{\bar{\lambda}}{\delta}, \quad (1)$$

mit  $h_c$  = Wärmedurchgangszahl durch die Kontaktzone ( $\text{W/cm}^2 \text{ } ^\circ\text{C}$ ),  
 $\bar{\lambda}$  = Wärmeleitfähigkeit des Gasgemisches im Restspalt ( $\text{W/cm } ^\circ\text{C}$ ),  
 $\delta$  = effektiver Restspalt, gleich Summe aus mittleren Oberflächenrauigkeiten und Extrapolationslängen (cm).

$$\delta = \epsilon + \delta_{\text{Rau}}, \quad (2)$$

mit  $\epsilon$  = Gesamtgasextrapolationslänge (cm),  
 $\delta_{\text{Rau}}$  = Summe der mittleren Oberflächenrauigkeiten von Brennstofftablette und Hüllrohr (cm).

$$\epsilon = 3,75 \cdot \frac{2-0,827 \cdot \bar{\alpha}}{\bar{\alpha}} l_m, \quad (3)$$

mit  $\bar{\alpha}$  = Akkomodationskoeffizient des Gasgemisches an den beiden Oberflächen,

$l_m$  = mittlere freie Weglänge des Gasgemisches (cm).

Die mittlere freie Weglänge des Gases ist von der Temperatur und dem Gasdruck abhängig:

$$l_m = l_m^0 \frac{1}{P} \frac{1 + \frac{S}{273}}{1 + \frac{S}{T}} \cdot \frac{T}{273}, \quad (4)$$

mit  $l_m^0$  = mittlere freie Weglänge des Gasgemisches bei  $0^\circ\text{C}$  und 1 bar (cm),

$p$  = Gasdruck im Brennstab (bar),

$S$  = Sutherland-Konstante des Gasgemisches (K),

$T$  = Temperatur des Gasgemisches (K).

Weiter ist:

$$\bar{\lambda} = \sum_{i=1}^N \left[ \lambda_i / \left( 1 + \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^N B_{ij} \frac{C_j}{C_i} \right) \right], \quad (5)$$

$$B_{ij} = \frac{1}{4} \left\{ 1 + \left[ \frac{\mu_i}{\mu_j} \left( \frac{M_j}{M_i} \right)^{3/4} \frac{1 + \frac{S_i}{T}}{1 + \frac{S_j}{T}} \right]^{1/2} \right\}^2 \frac{1 + \sqrt{S_i \cdot S_j}}{1 + \frac{S_i}{T}}, \quad (6)$$

$$\frac{\mu_i}{\mu_j} = \frac{\lambda_i}{\lambda_j} \cdot \frac{C_{pj}}{C_{pi}} \frac{9-5 \cdot \frac{C_{vj}}{C_{pj}}}{9-5 \cdot \frac{C_{vi}}{C_{pi}}}, \quad (7)$$

mit  $\lambda_i$  = Wärmeleitfähigkeit der  $i$ -ten Gaskomponente ( $\text{W}/^\circ\text{C cm}$ ),

$C_i$  = Konzentration der  $i$ -ten Gaskomponente,

$M_i$  = Molekulargewicht der  $i$ -ten Gaskomponente,

$S_i$  = Sutherland-Konstante der  $i$ -ten Gaskomponente (K),

$C_{vi}$  =  $C_{pi}$  spezifische Wärmen der  $i$ -ten Gaskomponente ( $\text{J}/\text{g}^\circ\text{C}$ ).

$$\bar{\alpha} = \sum_{i=1}^N \frac{C_i \bar{\alpha}_i}{\sqrt{M_i}} / \sum_{i=1}^N \frac{C_i}{\sqrt{M_i}} \quad (8)$$

wobei

$$\frac{1}{\bar{\alpha}_i} = \frac{1}{2} \left( \frac{1}{\alpha_{1i}} + \frac{1}{\alpha_{2i}} \right) \quad (9)$$

mit  $\alpha_{1i}, \alpha_{2i}$  = Akkomodationskoeffizienten der  $i$ -ten Gaskomponente an den beiden Oberflächen.

$$l_m^{\circ} = \sum_{i=1}^N C_i \cdot l_{mi}^{\circ} , \quad (10)$$

mit  $l_m^{\circ}$  = mittlere freie Weglänge der i-ten Gaskomponente bei 0°C und 1 bar (cm).

$$S = \sum_{i=1}^N C_i S_i , \quad (11)$$

mit  $S_i$  = Sutherland-Konstante der i-ten Gaskomponente (K).

Tabelle 1: Auslegungsdaten der Prüflinge des Bestrahlungsversuchs  
FR2-KVE-Vg 5a

Brennstoff:	
Material	UO <sub>2</sub> -PuO <sub>2</sub> -Tabletten
PuO <sub>2</sub> -Anteil	19,5 ± 0,5 Gew. %
O/Me-Verhältnis	2,00 ± 0,03
theoretische Dichte	11,06 g/cm <sup>3</sup>
Tablettendichte	84 ... 93 % TD
Außendurchmesser	6,12 ± 0,01 mm
Tablettendichte	6,67 ± 1,00 mm
Hüllrohr:	
Material	1.4988
Außendurchmesser	7,045 ± 0,015 mm
Innendurchmesser	6,215 ± 0,010 mm
Brennstab:	
Schmierdichte	81 ... 90 % TD
Spaltweite, radial	47,5 mm
Brennstoffsäule	4 x 20 mm
Gasfüllung	Helium
Fülldruck	1 atm (bei 20°C)

Tabelle 2: Charakteristische Daten zu einigen Querschliffen aus dem Experiment FR2-KVE-Vg 5a(nach /1/)

KVE-Nr.	Prüfling Nr.	Schliff Nr.	Anfangsdichte (%TD)	mittlere Enddichte (%TD)	$r_z$ (mm)	$r_s$ (mm)	$r_K$ (mm)	$T_{Ha}$ (°C)	$\chi$ (W/cm)
72	5A2	1	83,5	92,8	1,07	2,40	2,65	680	590
		2	86,4	89,8	0,75	2,30	2,60	620	520
		3	89,4	91,8	0,67	2,20	2,50	620	520
73	5A6	3	84,2	88,8	0,70	1,75	2,20	530	420
		5	93,2	92,2	0,17	1,60	2,10	530	420
		7	86,9	89,2	0,50	1,70	2,15	530	420
	5A1	2	86,4	92,2	0,85	2,45	2,80	630	530
		3	89,3	93,2	0,77	2,24	2,85	630	530
		4	92,5	96,1	0,70	2,15	2,70	585	485
74	5A8	3	84,4	91,3	0,75	2,20	2,70	500	400
		5	93,4	97,7	0,60	1,90	2,60	500	400
		7	87,4	92,6	0,65	1,80	2,50	500	400
	5A3	2	86,6	96,5	0,95	2,40	2,90	580	480
		3	89,6	97,7	0,85	2,40	2,90	580	480
		4	92,9	96,8	0,57	2,30	2,80	550	435

- $r_z$  = Zentralkanalradius,
- $r_s$  = Radius der Stengelkristallzone
- $r_K$  = Radius der Kornwachstumszone
- $T_{Ha}$  = Hülloberflächentemperatur
- $\chi$  = lineare Stableistung

Tabelle 3: Füllgaszusammensetzung und -druck am Ende der Bestrahlung in einigen Prüflingen des Experimentes FR2-KVE-Vg5a

KVE Nr.	Prüfling Nr.	A (MWD/kgMe)	He (%)	Kr+Xe (%)	Kr (%)	Xe (%)	p (bar)
72	5A2	6	34	66	4,1	61,9	5
73	5A6	17	21	79	5,0	72,0	10
73	5A1	17	18	82	5,0	77,0	12
74	5A8	47	7,6 <sup>+) </sup>	92,4 <sup>+) </sup>	5,8	86,6	30
74	5A3	47	6,6 <sup>+) </sup>	93,4 <sup>+) </sup>	5,8	87,6	35

<sup>+)</sup>  extrapoliert

Tabelle 4: Gemessene und berechnete Strukturdaten zu einigen Querschliffen aus dem Experiment FR2-KVE-Vg5a

KVE Nr.	Prüfling Nr.	Schliff Nr.	$r_s$ (mm)			$r_K$ (mm)			$\chi$ W/cm
			exp	berechnet mit $T_{Ba} =$ 900°C 1000°C 1100°C		exp	berechnet mit $T_{Ba} =$ 900°C 1000°C 1100°C		
72	5A2	1	2,4	2,14	2,32 - 2,48	2,65	2,54	2,64 - 2,77	590
		2	2,3	2,05	2,24 2,43	2,60	2,50	2,62 2,74	520
		3	2,2	1,99	2,21 2,38	2,50	2,48	2,60 2,72	520
73	5A6	3	1,75	1,62	1,98 2,25	2,2	2,44	2,58 2,73	420
		5	1,6	1,53	1,88 2,15	2,1	2,41	2,56 2,70	420
		7	1,7	1,68	2,00 2,22	2,15	2,43	2,59 2,72	420
	5A1	2	2,45	2,08	2,28 2,46	2,8	2,57	2,68 2,80	530
		3	2,24	2,02	2,23 - 2,41	2,85	2,55	2,67 - 2,79	530
		4	2,15	1,60	1,96 2,22	2,7	2,44	2,6 2,73	485
74	5A8	3	2,2	1,40	1,87 2,20	2,7	2,48	2,64 2,78	400
		5	1,9	1,46	1,91 2,21	2,6	2,49	2,64 2,79	400
		7	1,8	1,42	1,91 2,21	2,5	2,48	2,65 2,79	400
	5A3	2	2,4	1,54	2,01 2,29	2,9	2,53	2,68 2,81	480
		3	2,4	1,47	1,99 2,26	2,9	2,50	2,66 2,82	480
		4	2,	1,29	1,85 2,15	2,8	2,46	2,63 2,78	435

$r_s$  = Radius der Stengelkristallzone,  $r_K$  = Radius der Kornwachstumszone  
 $\chi$  = lineare Stabileistung  $T_{Ba}$  = Brennstoffrandtemperatur

Tabelle 5: Charakteristische thermische Daten zu einigen Querschliffen aus dem Experiment FR2-KVE-Vg5a

KVE Nr.	Prüfling Nr.	Schliff Nr.	$\chi$ (W/cm)	$T_{Ha}$ (°C)	$T_{Hi}$ (°C)	$T_{Ba}^{+)}$ (°C)	$h^{+)}$ (W/°C cm <sup>2</sup> )	$T_{Ba}^{++)}$ (°C)	$h^{++)}$ (W/°C cm <sup>2</sup> )
72	5A2	1	590	680	740	1050	0,98	1090	0,85
		2	520	620	670	1000	0,81	990	0,83
		3	520	620	670	1000	0,81	990	0,83
73	5A6	3	420	530	570	900	0,65	900	0,64
		5	420	530	570	900	0,65	900	0,64
		7	420	530	570	900	0,65	900	0,64
	5A1	2	530	630	680	1100	0,65	1100	0,64
		3	530	630	680	1050	0,74	1100	0,64
		4	485	585	630	1100	0,53	1025	0,62
74	5A8	3	400	500	540	1100	0,37	1015	0,43
		5	400	500	540	1000	0,45	1015	0,43
		7	400	500	540	1000	0,45	1015	0,43
	5A3	2	480	580	625	1100	0,52	1170	0,45
		3	480	580	625	1100	0,52	1170	0,45
		4	435	550	590	1100	0,44	1100	0,43

$\chi$  = lineare Stableistung

$T_{Ha}$  = Hülloberflächentemperatur

$T_{Hi}$  = Hüllinnentemperatur

$T_{Ba}$  = Brennstoffrandtemperatur

$h$  = Wärmeübergangszahl

+) = ermittelt über Betriebsbedingungen und die Brennstoffstruktur (siehe Tab. 4)

++) = berechnet über Betriebsbedingungen und ein Modell für den Wärmeübergang vom Brennstoff zum Hüllrohr

Tabelle 6: Temperaturgrenzwerte für die Stengelkristallzone ( $T_S$ )  
und die Zone des gerichteten Kornwachstums ( $T_K$ ) nach /15/

	$T_S$ (°C)	$T_K$ (°C)
Atomic International	1800	1600
General Electric	2150	1650
GfK	1700	1300
Westinghouse	2000	1600

Tabelle 7: Zentral- und Randtemperaturen zu einigen Querschliffen aus dem  
Experiment FR2-KVE-Vg5a, ermittelt mit  $T_S = 1700^\circ\text{C}$  und  $T_K = 1300^\circ\text{C}$

KVE Nr.	Prüfling Nr.	Schliff Nr.	t (d)	$\chi$ (W/cm)	$T_{Ha}$ (°C)	$T_Z$ (°C)	$T_{Ba}$ (°C)
72	5A2	1	33	590	680	2640	330
		2	33	520	620	2615	395
		3	33	520	620	2615	175
73	5A6	3	92	420	530	2100	-65
		5	92	420	530	2190	-55
		7	92	420	530	2170	-125
	5A1	2	92	530	630	2475	860
		3	92	530	630	2080	1075
		4	92	485	585	2130	885
74	5A8	3	276	400	500	2180	850
		5	276	400	500	1990	860
		7	276	400	500	1955	745
	5A3	2	276	480	580	2165	1090
		3	276	480	580	2200	1090
		4	276	435	550	2270	980

t = Bestrahlungszeit

$\chi$  = lineare Stableistung

$T_{Ha}$  = Hülloberflächentemperatur

$T_Z$  = Brennstoffzentraltemperatur

$T_{Ba}$  = Brennstoffrandtemperatur

Tabelle 8: Temperaturwerte an den gemessenen Grenzen der Strukturzonen zu einigen Querschliffen  
aus dem Experiment FR2-KVE-Vg5a

KVE Nr.	Prüfling Nr.	Schliff Nr.	$T_Z$ (°C)	$T_S$ (°C)	$T_K$ (°C)	$T_{Ba}$ (°C)	A (MWd/kgMe)	$\chi$ (W/cm)	Dichteber. (% TD)
72	5A2	1	2232	1751	1546	1050	6	590	84
73	5A6	3	1948	1754	1560	900	17	420	84
74	5A8	3	2036	1698	1417	1100	47	400	84
72	5A2	2	2251	1736	1511	1000	6	520	87
73	5A6	7	2008	1782	1588	900	17	420	87
73	5A1	2	2275	1711	1420	1100	17	530	87
74	5A8	7	1968	1764	1444	1000	47	400	87
74	5A3	2	2037	1633	1284	1100	47	480	87
72	5A2	3	2240	1776	1572	1000	6	520	90
73	5A1	3	2222	1780	1313	1050	17	530	90
74	5A3	3	2047	1621	1279	1100	47	480	90
73	5A6	5	2029	1783	1582	900	17	420	93
73	5A1	4	2149	1786	1449	1100	17	485	93
74	5A8	5	1984	1731	1384	1000	47	400	93
74	5A3	4	2065	1640	1340	1100	47	435	93

$T_Z$  = Zentraltemperatur

$T_S$  = Temperatur am Rand der Stengelkristallzone

$T_K$  = Temperatur am Rand der Kornwachstumszone

$T_{Ba}$  = Brennstoffrandtemperatur

A = Abbrand

$\chi$  = lineare Stableistung

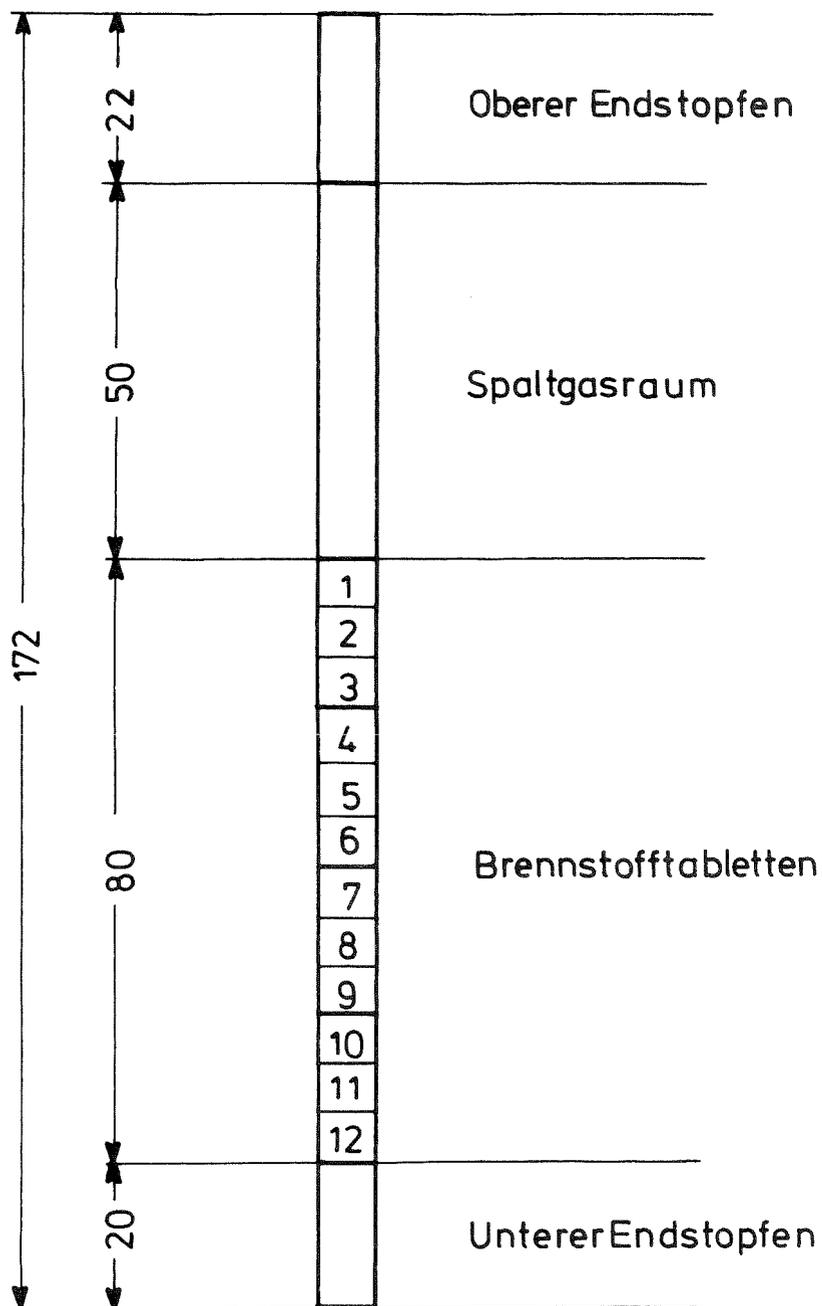


Abb. 1: Schematischer Aufbau der Prüflinge (nach /1/)

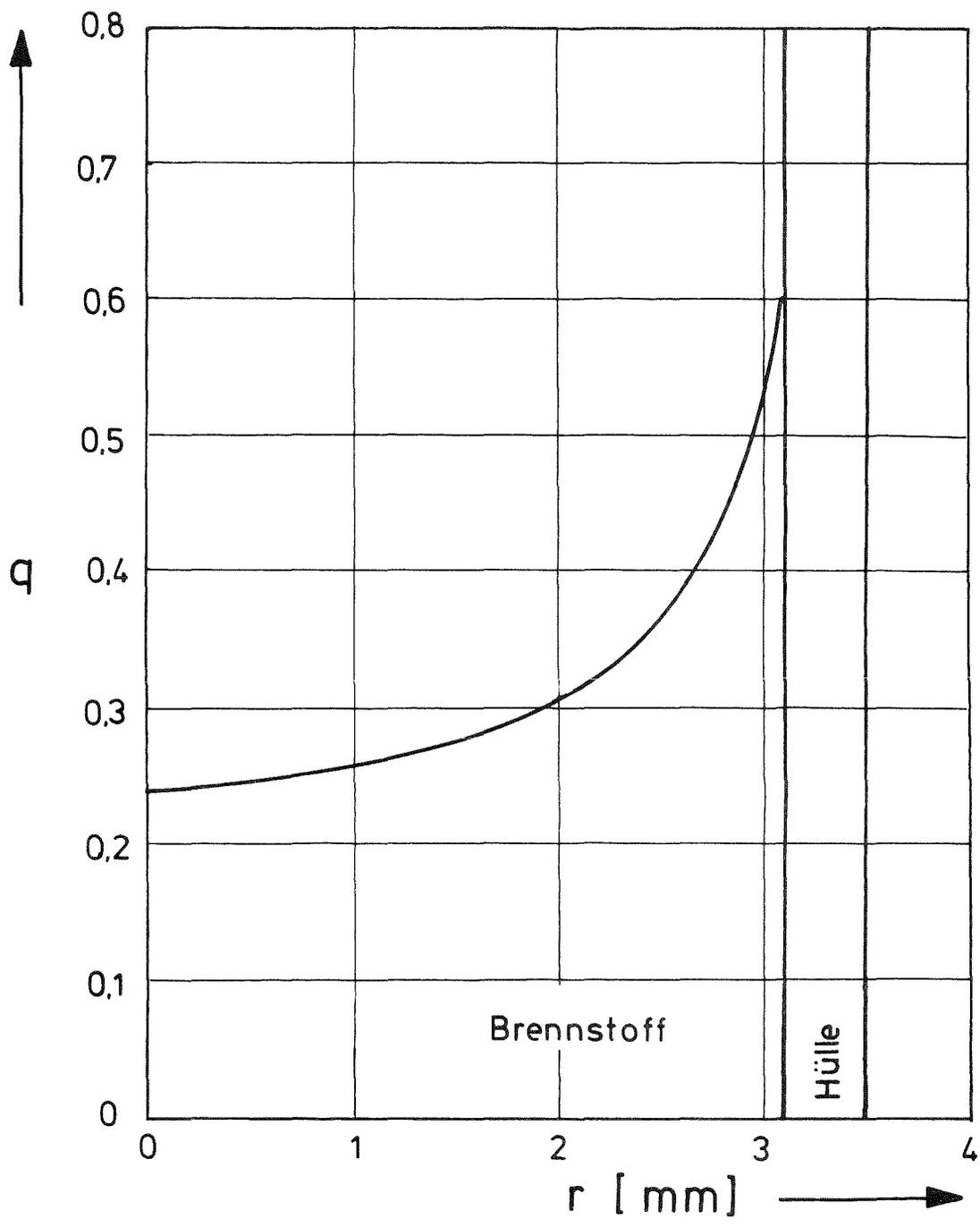


Abb. 2: Flußabsenkung im Brennstoff (nach /1/ und /5/),  
in relativen Einheiten

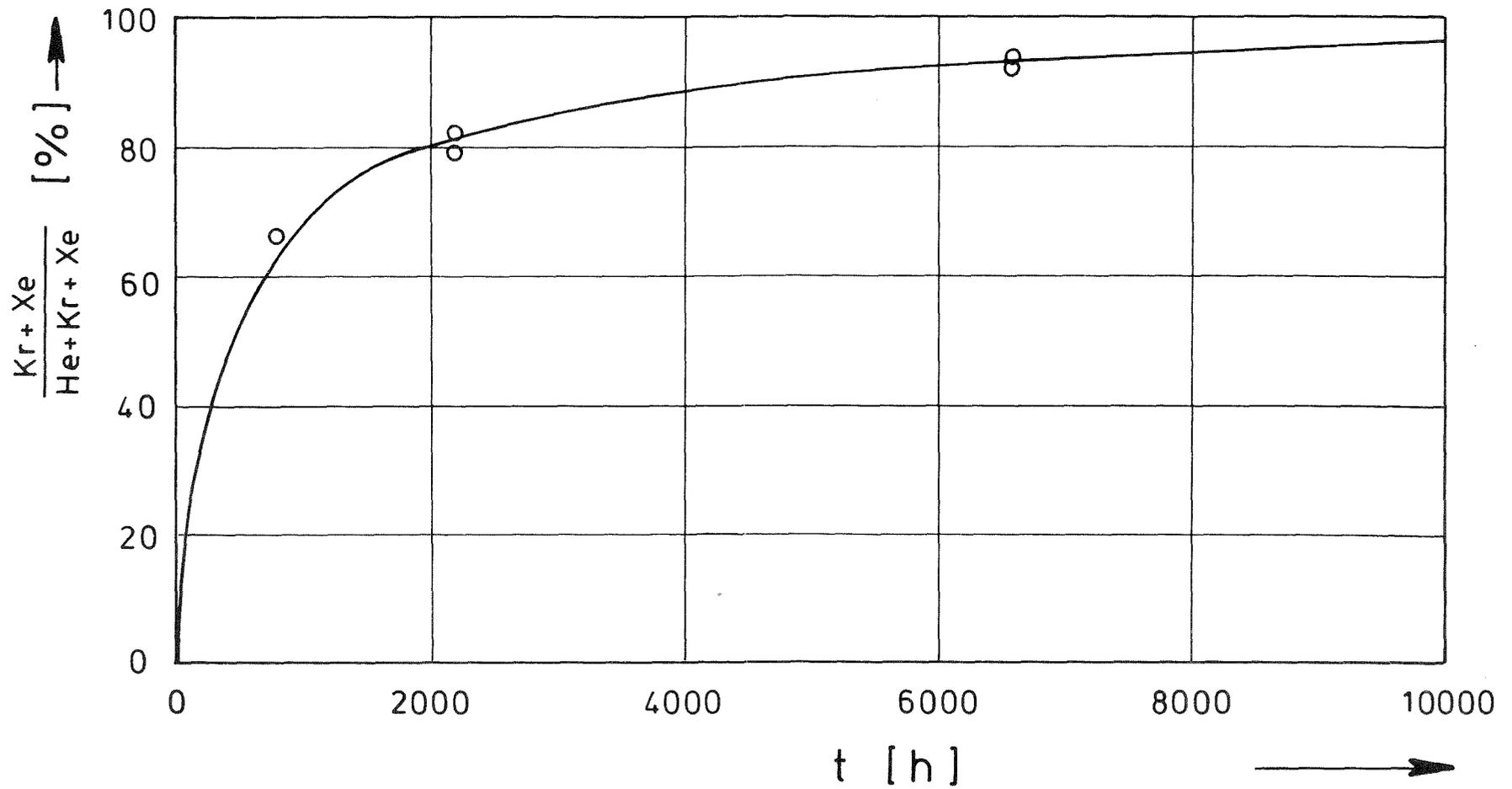


Abb. 3: Spaltgasfreisetzung als Funktion der Bestrahlungsdauer

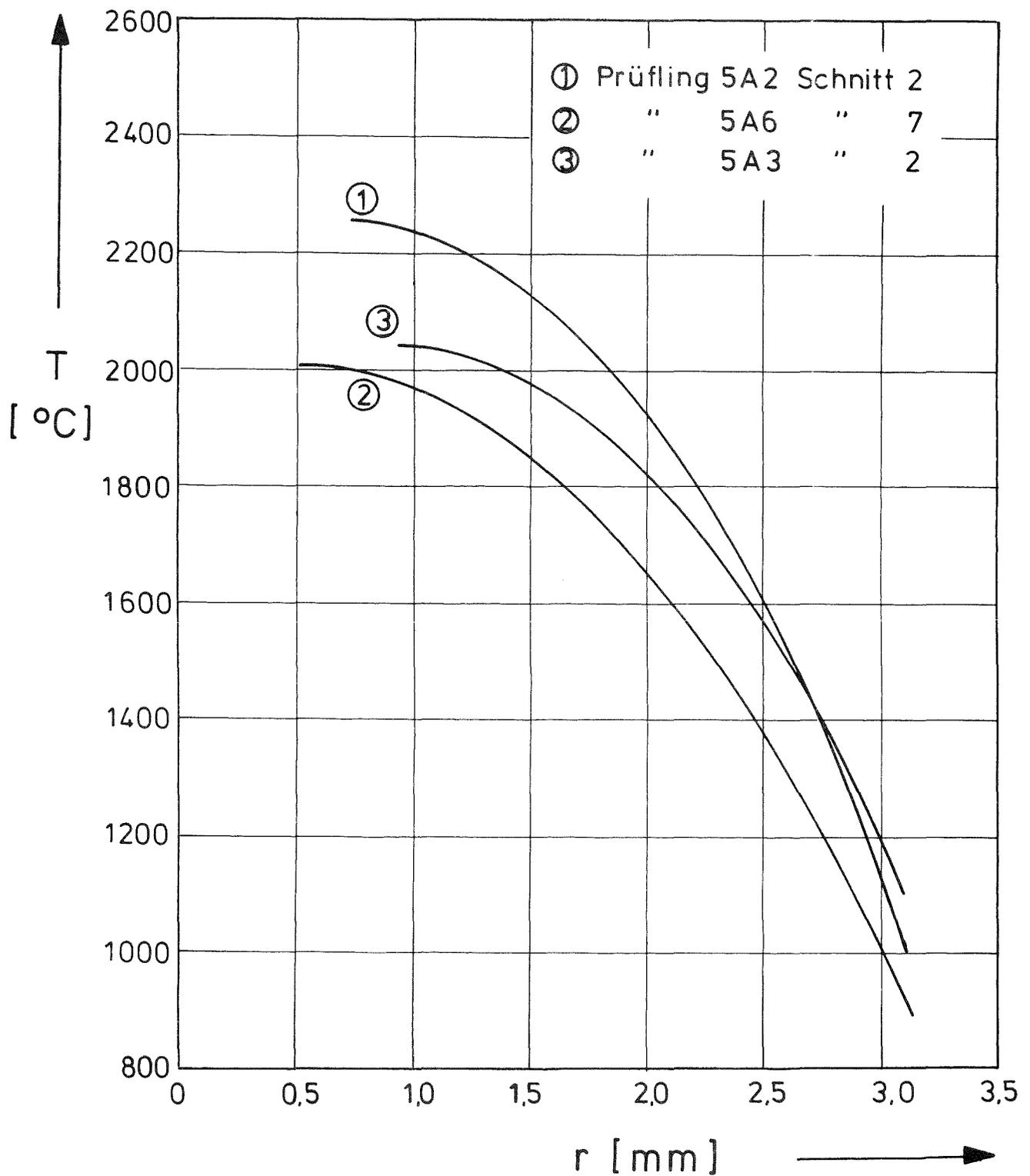


Abb. 4: Radiale Temperaturprofile für drei Querschliffe  
am Ende der Bestrahlung

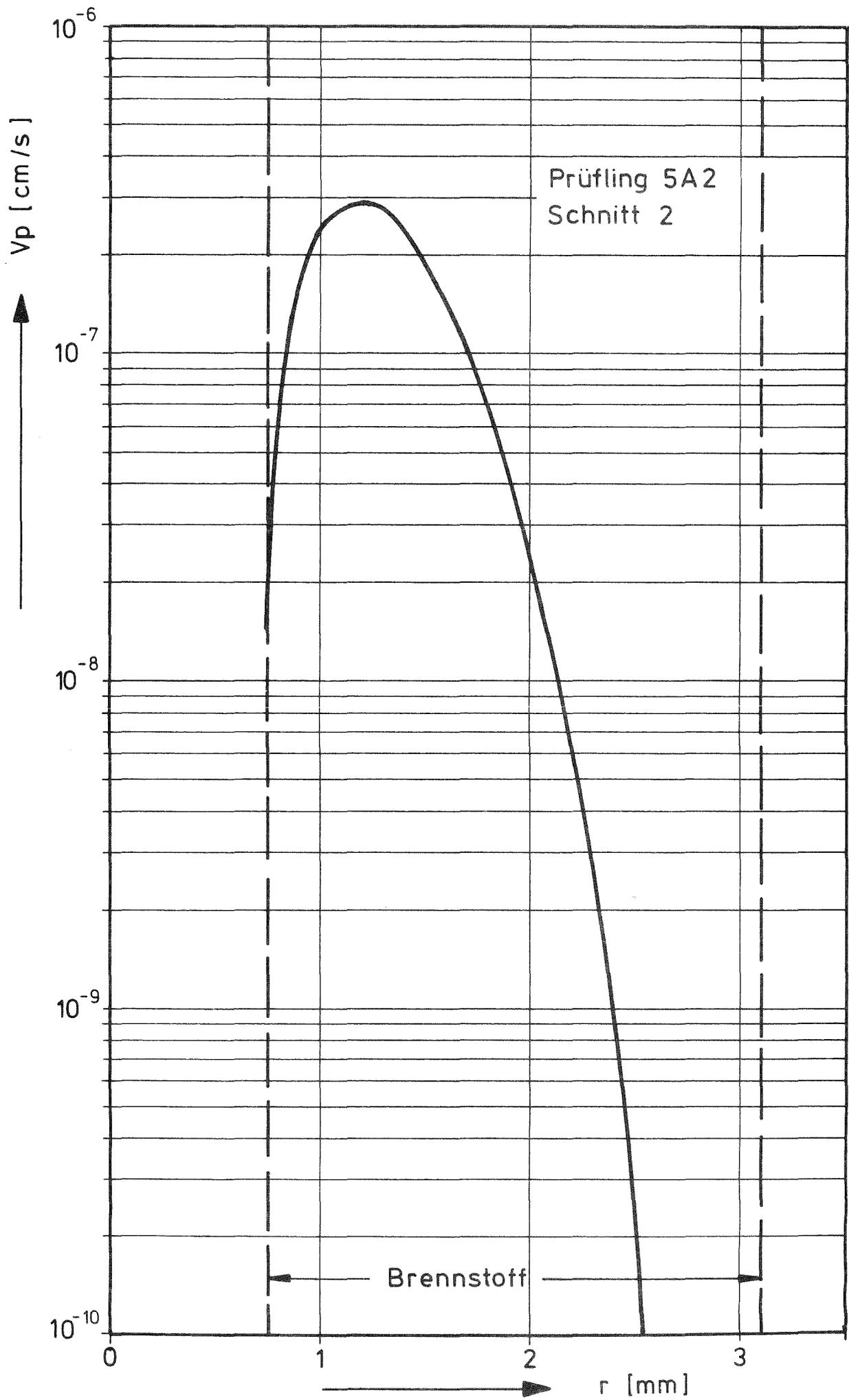


Abb. 5: Porenwanderungsgeschwindigkeit als Funktion des Brennstoffradius

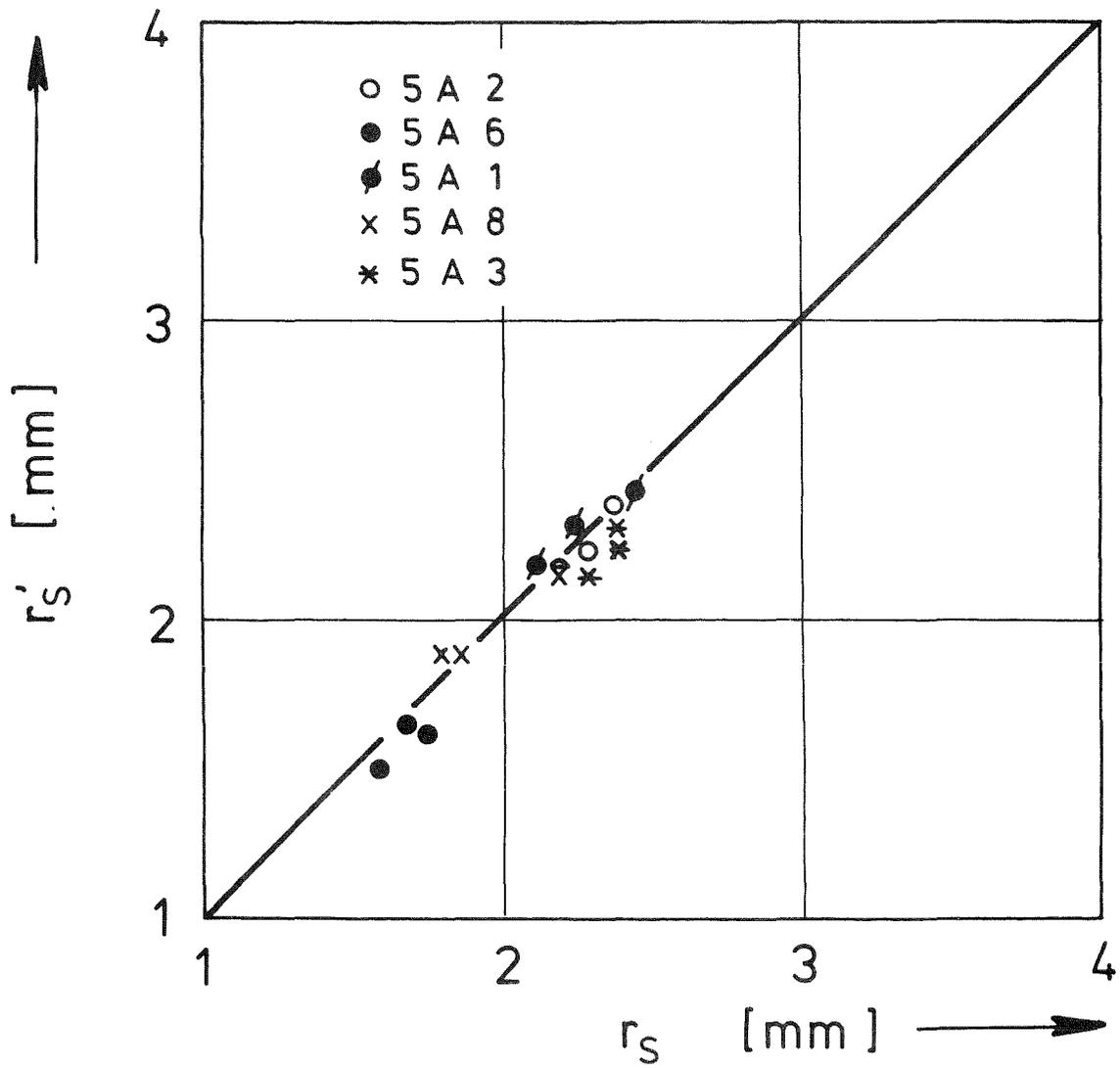


Abb. 6: Vergleich der gemessenen Radien ( $r_s$ ) der Stengelkristallzone mit den berechneten ( $r'_s$ ) an 15 Querschliffen aus der FR2-KVE-Versuchsgruppe 5a



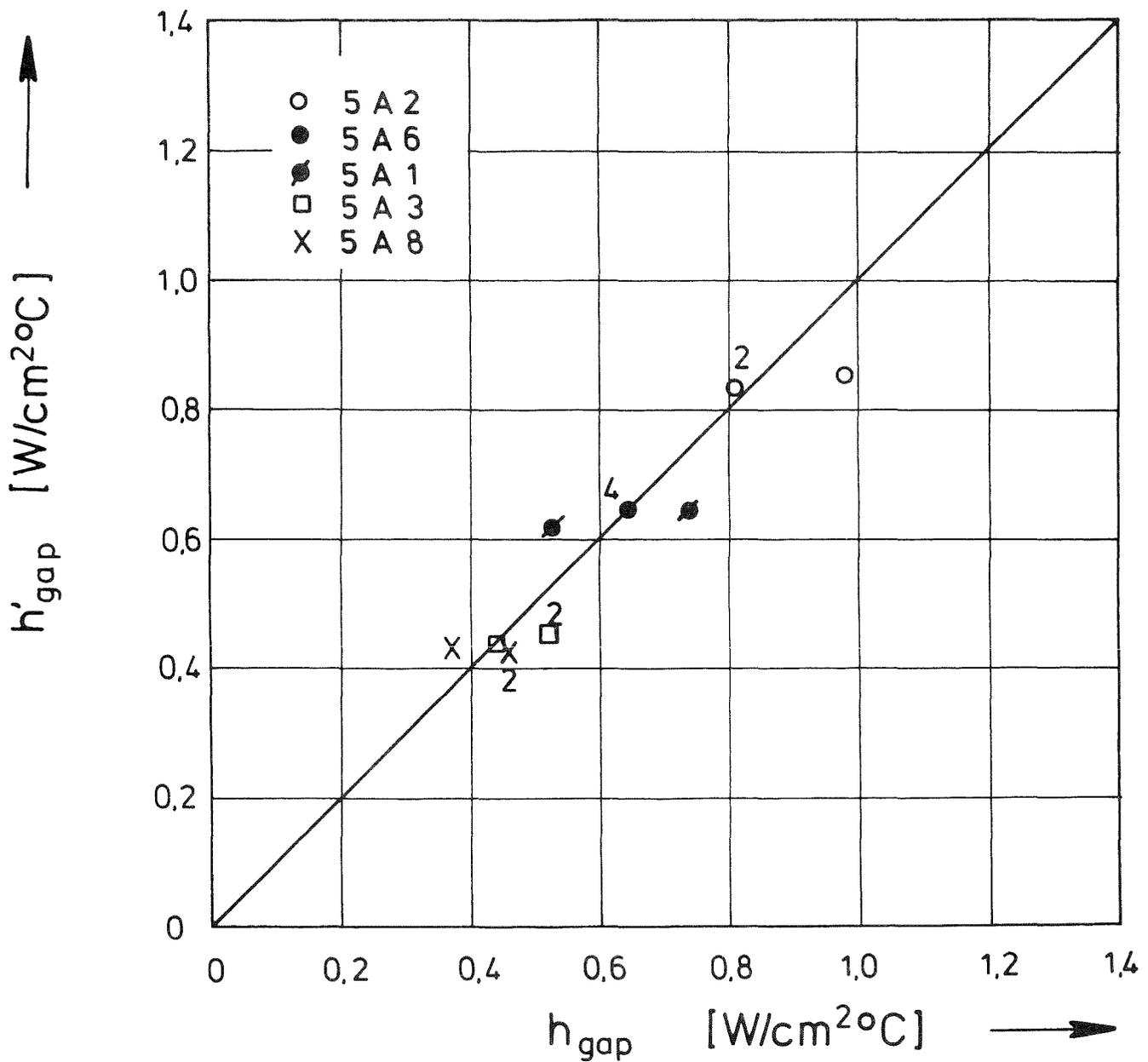


Abb. 8: Vergleich der experimentell bestimmten ( $h_{\text{gap}}$ ) mit den berechneten ( $h'_{\text{gap}}$ ) Wärmedurchgangszahlen an 15 Querschliffen aus der FR2-KVE-Versuchsgruppe 5a.  
(Die Ziffern geben die Anzahl identischer Werte an.)

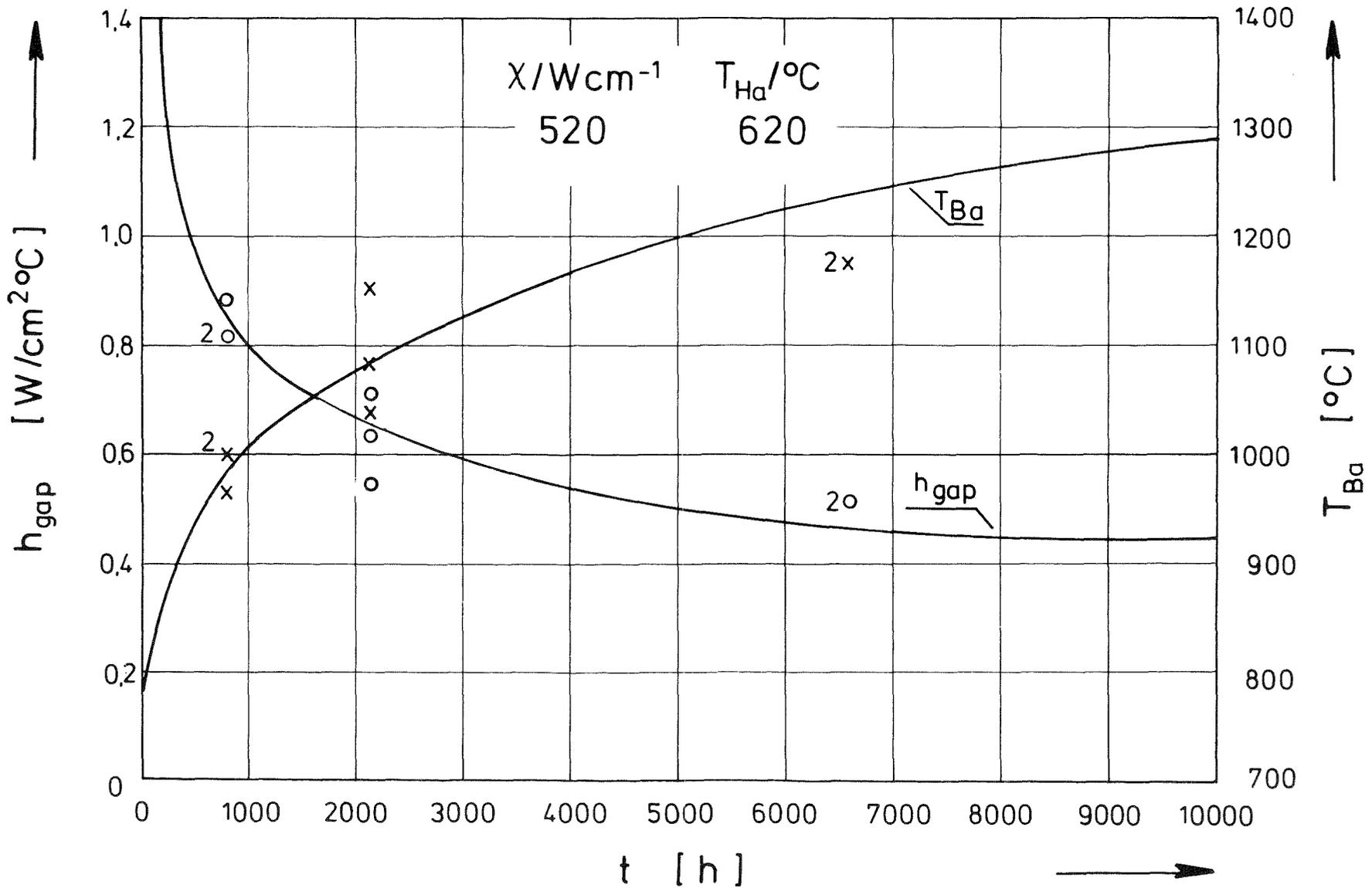


Abb. 9: Wärmedurchgangszahl  $h_{\text{gap}}$  und Brennstoffrandtemperatur  $T_{\text{Ba}}$  als Funktion der Bestrahlungszeit bei der FR2-KVE-Versuchsgruppe 5a, bezogen auf eine lineare Stableistung von 520 W/cm und eine Hülloberflächentemperatur von 620 °C (experimentell ermittelte Werte  $T_{\text{Ba}}$  x,  $h_{\text{gap}}$  o). (Die Ziffern geben die Anzahl identischer Werte an.)

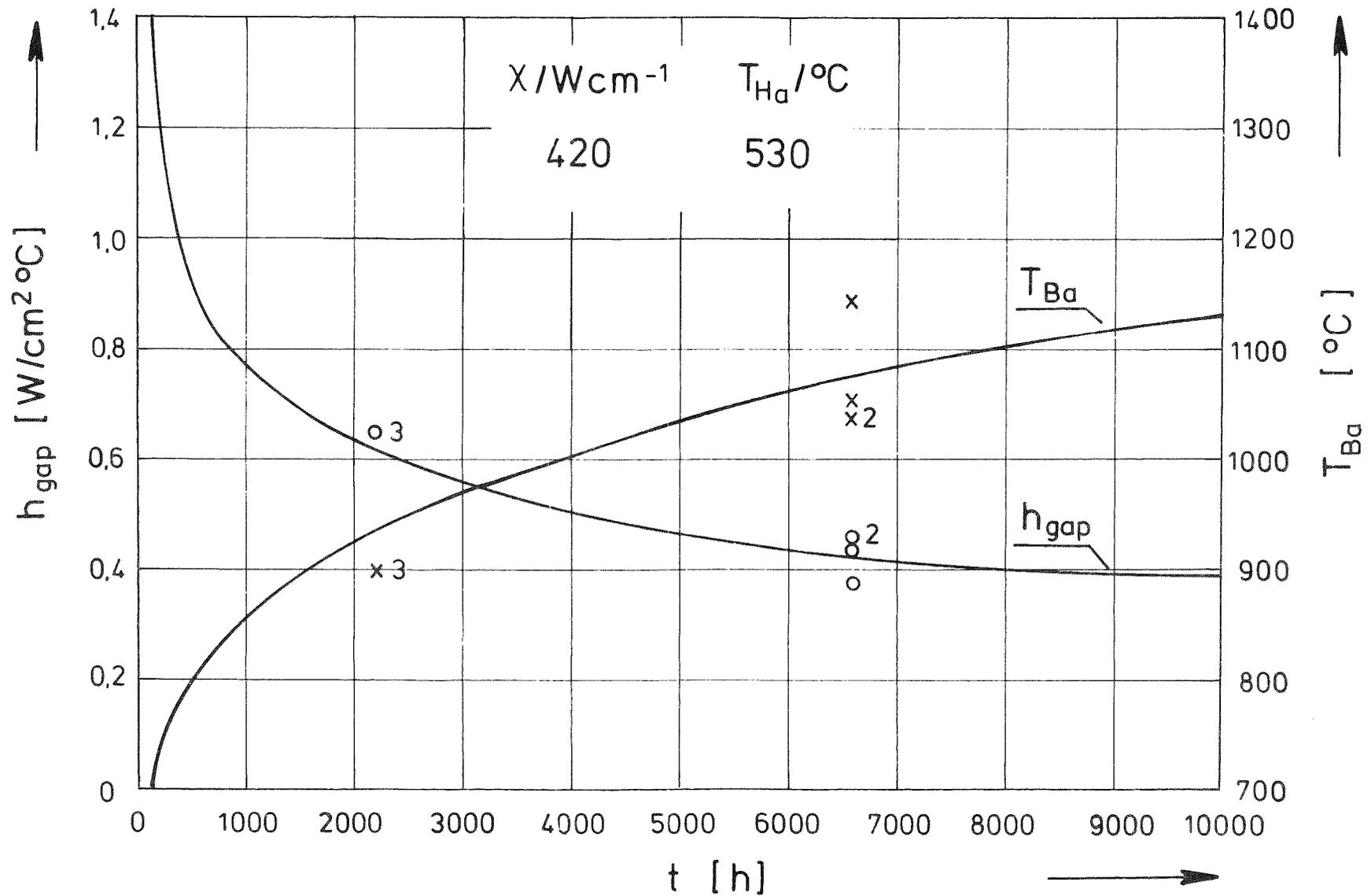


Abb. 10: Wärmedurchgangszahl  $h_{\text{gap}}$  und Brennstoffrandtemperatur  $T_{\text{Ba}}$  als Funktion der Bestrahlungszeit bei der FR2-KVE-Versuchsgruppe 5a, bezogen auf eine lineare Stableistung von 420 W/cm und eine Hülloberflächentemperatur von 530 °C (experimentell ermittelte Werte  $T_{\text{Ba}}$  X,  $h_{\text{gap}}$  O).  
 (Die Ziffern geben die Anzahl identischer Werte an.)

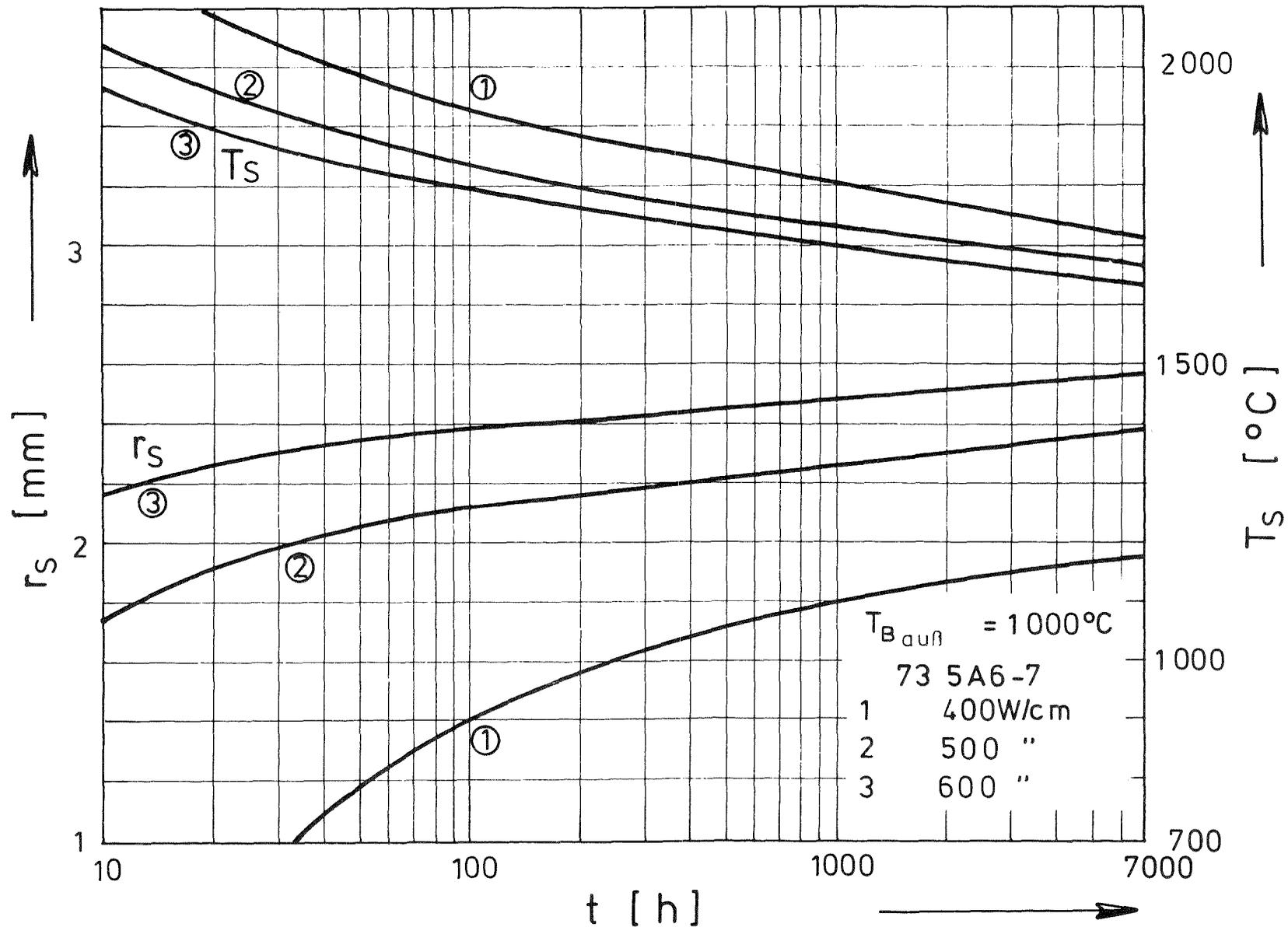


Abb. 11: Grenzradien  $r_s$  und Grenztemperaturen  $T_s$  der Stengelkristallzone als Funktion der Bestrahlungszeit  $t$  (nach Abschn. 3.2) für verschiedene lineare Stabileistungen bei einer Brennstoffrandtemperatur von  $1000^{\circ}\text{C}$ . (Zu Querschliff 73 5A6-7).

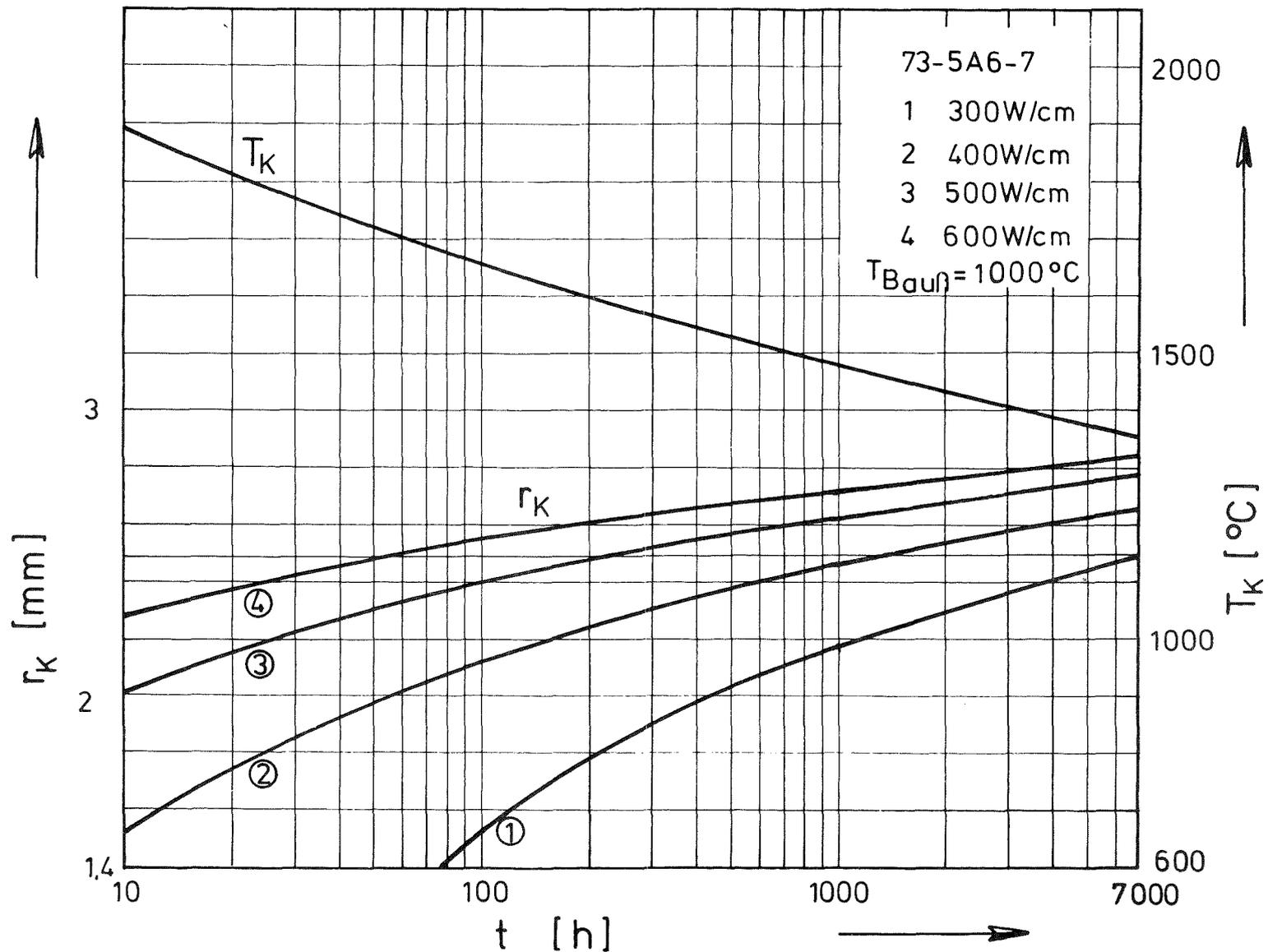


Abb. 12: Grenzradien  $r_K$  und Grenztemperaturen  $T_K$  der Zone mit gerichtetem Kornwachstum als Funktion der Bestrahlungszeit  $t$  (nach Abschn. 3.3) für verschiedene lineare Stableistungen bei einer Brennstoffrandtemperatur von  $1000^\circ\text{C}$ .  
(Zu Querschliff 73 5A6-7).

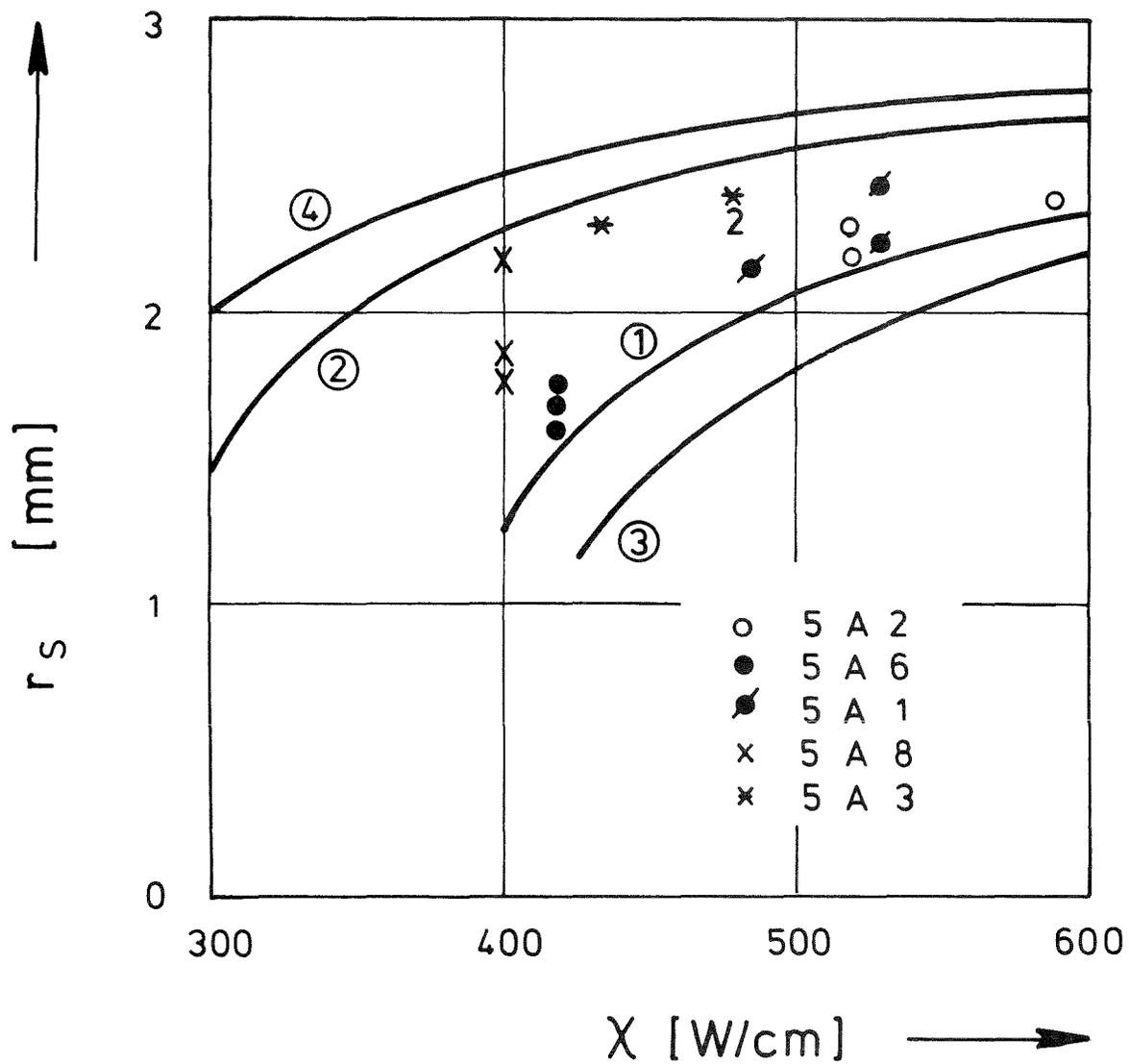


Abb. 13: Grenzradius  $r_s$  in Abhängigkeit von der linearen Stableistung  $\chi$ ,

Parameter der berechneten Kurven:

1	$t = 790$ h	$T_{Ba} = 900$ °C
2	6624 h	1100 °C
3	790 h	800 °C
4	6624 h	1200 °C

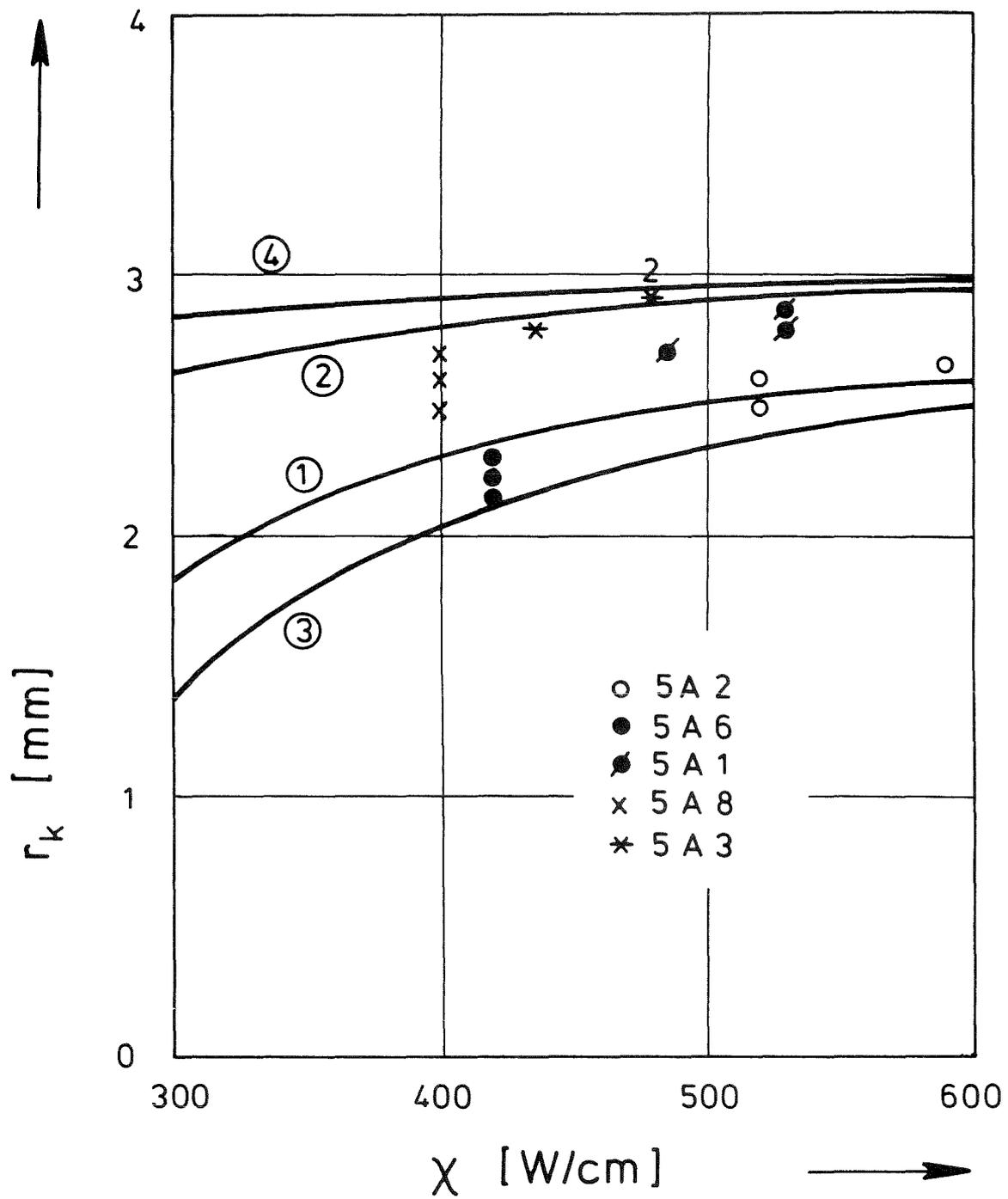


Abb. 14: Grenzradius  $r_k$  in Abhängigkeit von der linearen Stableistung  $\chi$ ,  
Parameter der berechneten Kurven wie in Abb. 13

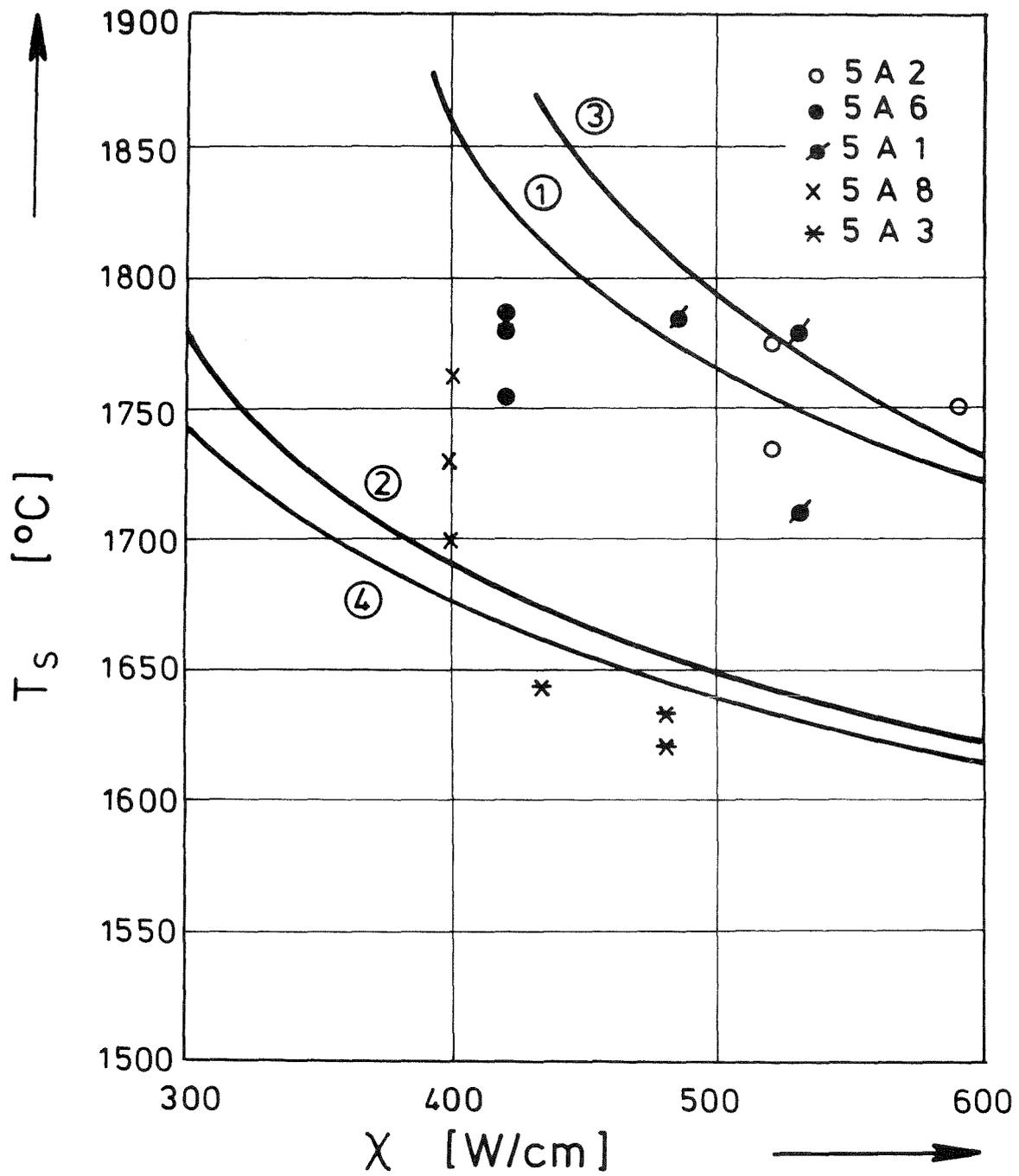


Abb. 15: Grenztemperatur  $T_s$  in Abhängigkeit von der linearen Stableistung  $\chi$ ,  
Parameter der berechneten Kurven wie in Abb.13

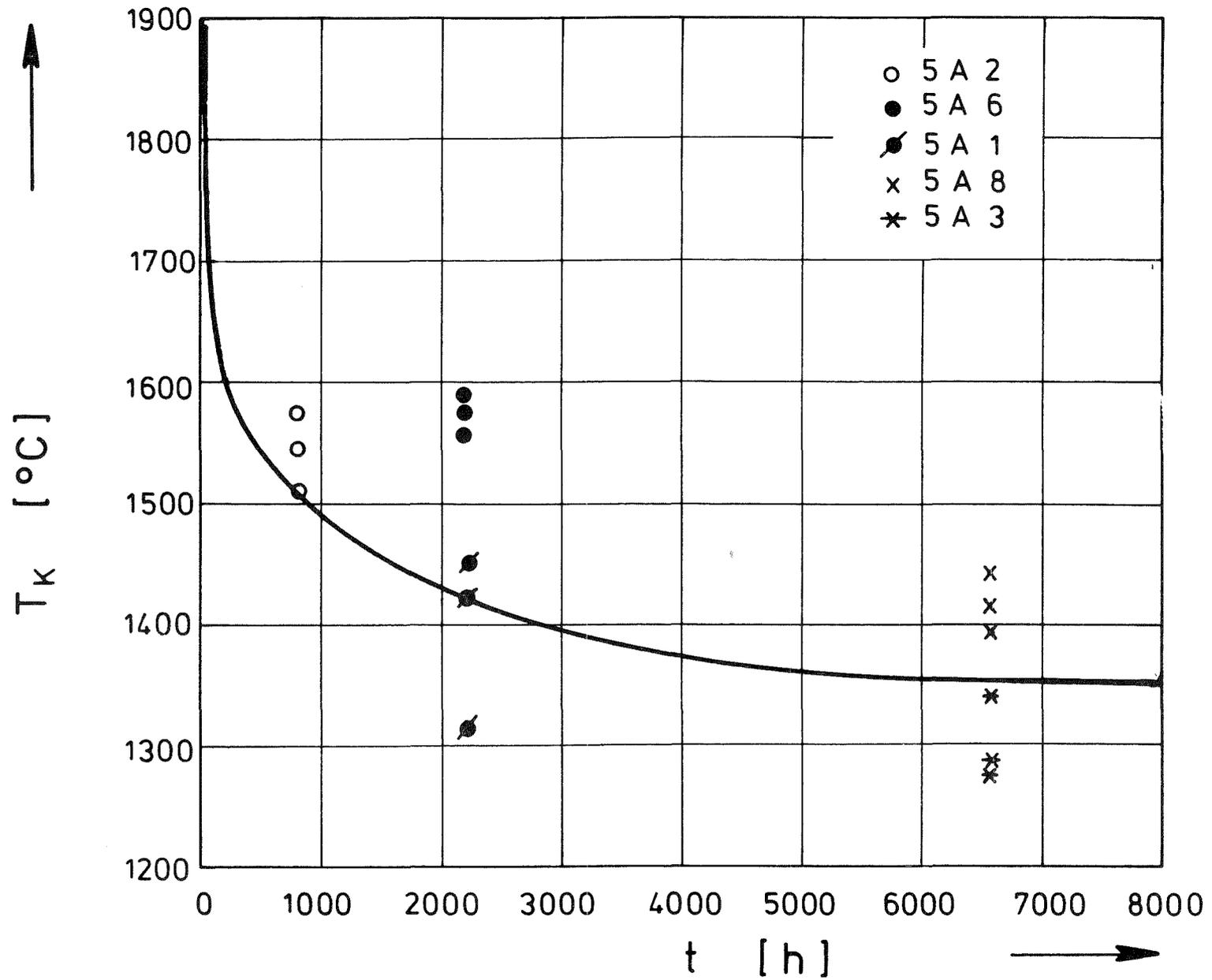


Abb. 16: Grenztemperatur  $T_K$  in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit,  
Kurve berechnet nach Abschn. 3.3