



KfK 3078
Dezember 1980

Untersuchungen zum Schwellen des U, Pu-Mischkarbids

H. Zimmermann
Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Schneller Brüter

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Schneller Brüter

KfK 3078

Untersuchungen zum Schwellen des U,Pu-Mischkarbids

H. Zimmermann

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH., Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Mischkarbidproben wurden in verschiedenen Kapseltypen bestrahlt und in bezug auf Brennstoffschwellung und Spaltgasverhalten untersucht. Die Bestrahlungen wurden im Reaktor FR 2 in Karlsruhe bei Temperaturen zwischen 300 und 1750°C bis zu Abbränden von 5,5% durchgeführt. Die Schwellung wurde durch Dichtemessungen in Tetrachlorkohlenstoff ermittelt. Die Spaltgasbestimmungen erfolgten durch Messung des freigesetzten Gases und des zurückgehaltenen Spaltgases.

Die Schwellrate des Mischkarbids hängt in starkem Maße von der Temperatur ab. Bei Temperaturen unter 1000°C liegt sie zwischen 1 und 1,5% pro % Abbrand. Bei Temperaturen über 1000°C nimmt die Schwellrate mit steigender Temperatur zu. Sie beträgt ca. 3% pro % Abbrand bei 1300°C und ca. 12% pro % Abbrand bei 1750°C. Bei hohen Temperaturen verringert sich die Schwellrate mit zunehmendem Abbrand infolge einer Sättigung der Spaltgasblasenporosität. Die Spaltgasfreisetzung bei hohen Temperaturen ist vergleichbar mit der von Oxidbrennstoff bei gleichen Temperaturen.

Abstract

Investigations on Swelling of U-Pu Mixed Carbide

Mixed carbide fuel samples irradiated in various types of capsules were investigated with respect to fuel swelling and fission gas behaviour. The irradiations were carried out in the FR 2 reactor in Karlsruhe at temperatures between 300 and 1750°C up to 5.5% burnup. The swelling was evaluated by immersion density measurements in carbon tetrachloride. The fission gas determinations were carried out by measuring the released gas and by measuring the retained fission gas.

The swelling rate of mixed carbide is a strong function of temperature. At temperatures below 1000°C it is between 1 and 1.5% per % burnup. At

temperatures above 1000°C the swelling rate increases with temperature. It is about 3% per % burnup at 1300°C and about 12% per % burnup at 1750°C. The swelling rate at high temperatures decreases with increasing burnup due to a saturation of the fission gas bubble porosity. The fission gas release at high temperatures is comparable with that of oxide fuel at the same temperature.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Versuchsdurchführung	1
2.1 Probenmaterial	1
2.2 Bestrahlungskapseln	2
2.2.1 Druckfreie Schwellkapsel	2
2.2.2 Druckstempelkapsel	3
2.2.3 Gasdruckkapsel	4
2.2.4 Kriechkapsel	5
2.3 Bestrahlungsbedingungen	5
2.4 Untersuchungsmethoden	7
2.5 Untersuchungsergebnisse	7
3. Auswertung und Diskussion	9
Literatur	14
Abbildungen	15

5.12.1980

1. Einleitung

Zur Beschreibung des Bestrahlungsverhaltens von Brennstäben ist unter anderem die genaue Kenntnis des Schwellverhaltens des Brennstoffes erforderlich. Das Ziel der im vorliegenden Bericht beschriebenen Experimente war die Ermittlung der Schwellung des U,Pu-Mischkarbids in Abhängigkeit vom Abbrand und von der Bestrahlungstemperatur. Der größte Beitrag zum Schwellen wird bei höheren Temperaturen erfahrungsgemäß durch Spaltgasblasenbildung und -wachstum geliefert. Besondere Aufmerksamkeit wurde deshalb auch dem Spaltgasverhalten gewidmet.

2. Versuchsdurchführung

2.1 Probenmaterial

Für die Bestrahlungsexperimente wurde hochdichtes (U,Pu)C benötigt. Es standen Brennstofftabletten zweier Hersteller zur Verfügung, des Europäischen Instituts für Transurane (TUI) und des Plutoniumlabors des IMF. In beiden Fällen handelt es sich um gesinterte Pellets mit 85 Gew.-% UC und 15 Gew.-% PuC. Im einzelnen hatten die Brennstofftabletten folgende Daten:

TUI-Karbid, Ringpellets für druckfreie Schwellkapsel

Außendurchmesser: $5,14 \pm 0,01$ mm
Innendurchmesser: 1,95 mm
Tablettenhöhe: 3,8 - 4,3 mm
Dichte: 96% TD.

Chemische Zusammensetzung /1/:

C = 4,77 Gew.-%, O = 0,50 Gew.-%, N = 0,09 Gew.-%, ECC = 5,23 Gew.-%
 M_2C_3 -Gehalt ca. 20%.

IMF-Karbid, Voll- und Ringpellets für alle Kapseltypen

Außendurchmesser: $5,16 \pm 0,02$ mm
Innendurchmesser: 2,2 mm für druckfreie Schwellkapsel
2,6 mm für Hochdruckschwellkapsel

Tablettenhöhe: 1,4 - 1,7 mm bei Ringpellets
ca. 7 mm bei Vollpellets
Dichte: 94% TD.

Chemische Zusammensetzung (Spezifikation):

O: <3000 ppm, N <500 ppm

ECC >4,80 Gew.-%, jedoch maximal nur 10 Vol.-% M_2C_3 .

2.2 Bestrahlungskapseln

2.2.1 Druckfreie Schwellkapsel

Zur Bestimmung der freien Schwellung bei Temperaturen bis zu 2100 K wurde eine Bestrahlungskapsel verwendet, die die Forderung nach einer möglichst geringen Temperaturdifferenz im Brennstoff erfüllt. Die Bestrahlungsprobe ist ein Stapel von Brennstoffringpellets mit 2 mm dicken Wolfram-Ringscheiben zwischen den einzelnen Pellets. Der Stapel wird auch an beiden Enden durch W-Scheiben begrenzt. Die Brennstoffpellets sind zur Vermeidung eines hohen axialen Temperaturgradienten nur von geringer Höhe. Sie führen ihre Spaltungswärme überwiegend über die Stirnflächen an die W-Scheiben ab, deren Außendurchmesser größer ist als der der Brennstoffpellets. Die radiale Wärmeableitung erfolgt dann über die Mantelflächen dieser Scheiben an die Innenwand eines Mo-Rohres. Die gewünschte Brennstofftemperatur wird durch die Breite des heliumgefüllten Spaltes zwischen den W-Scheiben und dem Mo-Rohr eingestellt. Die Temperaturmessung erfolgt mit einem Thermoelement in der Zentralbohrung der Bestrahlungsproben.

Die Probenkapsel (Abb.1) besteht aus einem mit Rippen versehenen Edelstahl-Hüllrohr, das an beiden Enden durch Abschluß-Stopfen gasdicht verschlossen ist. An die Abschluß-Stopfen schließen sich zwei Isolierkörper aus Ergon an, die ein dickwandiges Mo-Rohr zentrieren. Der Spalt zwischen Mo-Rohr und Probenkapsel dient zur Erhöhung der Mo-Rohrtemperatur und damit zur Erhöhung der Proben temperatur. In dem Mo-Rohr befindet sich die Bestrahlungsprobe, die durch das Tauchrohr des Zentralthermo-

elementes zentriert wird. Die Bestrahlungsprobe wird an beiden Enden durch Isolierpellets aus Zirkonoxid begrenzt. Eine schwache Feder fixiert die Bestrahlungsprobe während der Montage und des Transports zum Reaktor in ihrer axialen Lage. Zur Bestimmung der Brennstofftemperatur dient das Zentralthermoelement, das bei Auslegungstemperaturen über 1100°C ein W5Re/W26Re-Thermoelement und bei Temperaturen unter 1100°C ein Chromel/Alumel-Thermoelement ist. Ein weiteres Chromel/Alumel-Thermoelement befindet sich im Mo-Rohr.

2.2.2 Druckstempelkapsel

Dieser Kapseltyp zur Bestimmung der Schwellung bei verschiedenen Drücken und Temperaturen wurde in zwei Versionen gebaut und eingesetzt. Bei der einfacheren Ausführung /2/ wird der Schwellbetrag unter anderem durch Längenmessung vor und nach der Bestrahlung bestimmt. Die weiterentwickelte Ausführung /3/ wurde mit einem induktiven Verlagerungsaufnehmer (Differentialtransformator) ausgerüstet, der zusätzlich die kontinuierliche Messung der Längenänderung während der Bestrahlung ermöglicht. Die Bestrahlungsprobe ist eine ungefähr 40 mm lange Brennstoffsäule, die sich in einem dickwandigen Rohr (Außendurchmesser 23 mm) aus der Molybdänlegierung TZM befindet und oben einen axial beweglichen Stempel trägt (Abb.2). Das Mo-Rohr sitzt, über Distanznocken zentriert, in einer Kapsel aus Edelstahl, deren unterer Abschlußstopfen den unbeweglichen Verschlußstempel aufnimmt. Der bewegliche obere Stempel steckt in einem Stempelhalter, der in einer mit dem Edelstahlrohr verschweißten Führungshülse gelagert ist. Der obere Teil des Stempelhalters ist mit der Führungshülse gasdicht durch einen Faltenbalg verbunden, der mit seiner Federkraft über den Stempelhalter den Stempel auf die Brennstoffsäule drückt. Die Endstücke des Stempelhalters und des unteren Abschlußstopfens sind als Meßbolzen ausgebildet.

Die Probenkapseln - drei bei der einfachen Ausführung, zwei bei der Ausführung mit Verlagerungsaufnehmer - befinden sich, über Nocken zentriert und durch Distanzrohre voneinander getrennt, übereinander in einer äußeren Druckkapsel aus Edelstahl. Die Druckbelastung der Proben erfolgt

durch einen Gasdruck in dieser Druckkapsel. Der Gasdruck wirkt auf den Stempelhalter und übt über den Stempel einen Druck auf den Brennstoff aus, der dem Verhältnis der wirksamen Stempelhalter-Stirnfläche zur Stempelfläche multipliziert mit der Differenz der Gasdrücke in Druck- und Probenkapsel entspricht.

Die Temperatureinstellung erfolgt durch unterschiedliche Breite der Gasspalte und durch die Wahl des Schutzgases. Die eigentliche (innere) Probenkapsel ist jedoch stets mit Helium gefüllt, um durch Verschlechterung der Wärmeleitfähigkeit des Heliums infolge zunehmender Spaltgasbeimengung dem Temperaturabfall der Probe durch die abnehmende Spaltungsrate entgegenzuwirken. Die Temperaturmessung erfolgt mit drei Thermoelementen in um 120° versetzten achsparallelen Bohrungen in dem Mo-Rohr.

2.2.3 Gasdruckkapsel

Zur Bestimmung der Schwellung unter hydrostatischem Druck wurde eine Bestrahlungskapsel benutzt, in der Brennstoffproben unter einem äußeren Gasdruck bis zu 45 MPa bei Temperaturen von maximal 1750°C bestrahlt werden können. Ausführliche Beschreibungen dieses Kapseltyps sind in /4 - 6/ gegeben. Abb. 3 zeigt eine Kapsel in schematischer Darstellung. Die Bestrahlungsprobe und der innere Aufbau der Kapsel entspricht der Kapsel zur Bestimmung der freien Schwellung. Die äußere Umwandung ist jedoch eine Druckkapsel aus Edelstahl 1.4988 mit einem Innendurchmesser von 20 mm und einer Wandstärke von 5 - 6 mm je nach der erforderlichen Breite des Gasspalt zwischen Druckkapsel und äußerem Kapselrohr. Durch vier Bohrungen im Boden der Druckkapsel sind Tauchrohre aus Wolfram zur Aufnahme von Thermoelementen hindurchgeführt. Ein Thermoelement dient zur Messung der Zentraltemperatur, drei Thermoelemente messen die Temperatur des Molybdän-Zwischenrohres. Der obere Endstopfen der Druckkapsel enthält eine Kapillare, durch die das Gas bei der Montage eingespeist wird und die zum Meßwertgeber führt. Eine Filterpackung im oberen Endstopfen verhindert den Austritt von plutoniumhaltigen Aerosolen bei einem Ausströmen des Gases aus der Druckkapsel.

2.2.4 Kriechkapsel

Zur Ermittlung der Schwellung wurden auch drei Proben aus Kriechexperimenten in bezug auf ihre Dichteänderungen untersucht. Bei den Proben handelt es sich um die gleichen (U,Pu)C-Tabletten aus IMF-Produktion, die in den druckfreien Bestrahlungskapseln und in den Gasdruckkapseln eingesetzt wurden. Die Bestrahlungsprobe besteht auch hier aus einem Stapel von Brennstofftabletten mit Zwischenringen. Die Probe befindet sich jedoch in flüssigem Natrium-Kalium und wird axial belastet. Eine ausführliche Beschreibung der Kriechkapsel wird in /7/ gegeben.

2.3 Bestrahlungsbedingungen

Die Bestrahlungen erfolgten im Karlsruher Forschungsreaktor FR 2 auf Isotopenkanal-Positionen bei thermischen Neutronenflüssen zwischen 3 und $7 \cdot 10^{13}$ Neutronen/cm².s. Die wichtigsten Bestrahlungsdaten sind in Tab.1 aufgeführt.

Die Abbrandangaben basieren auf den radiochemischen Abbrandbestimmungen, die an je einer Probe eines Kapselversuchseinsatzes ausgeführt wurden. Der Abbrand der anderen Proben des gleichen KVE wurde entsprechend dem Verhältnis der mittleren Neutronenflüsse an der jeweiligen Probenposition und der Abbrandprobe-Position aus dem radiochemisch bestimmten Wert berechnet. Aus den radiochemisch bestimmten Abbrandwerten und den dazugehörigen Bestrahlungszeiten wurden die mittleren Spaltungsraten ermittelt.

Die Brennstofftemperaturen sind die über das Brennstoffvolumen gemittelten Temperaturen, deren maximale und zeitlich gemittelte Werte angegeben sind. Die maximalen Brennstofftemperaturen traten meist zu Beginn oder zumindest in der ersten Hälfte der Bestrahlungszeit auf. Lediglich bei den Proben 13 und 14 wurden die höchsten Temperaturen am Bestrahlungsversuch gemessen.

Tab. 1: Bestrahlungsdaten der (U,Pu)C-Schwellproben

Kapseltyp	Probe	Brennstoff	Zeit	Mittlere Spaltrate $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$	Abbrand %	Brennstofftemperatur, °C		Mittlere Probenbelastung MPa
						mittl.	max.	
Druckfreie Kapsel	1	TUI	89	6,4 E 13	1,5	1400	1450	0
	2	TUI	89	6,4 E 13	1,5	1750	1780	0
	3	TUI	179	5,9 E 13	2,8	1450	1470	0
	4	TUI	179	5,9 E 13	2,8	1750	1790	0
	5	IMF	232	7,3 E 13	4,5	1550	1640	0
	6	IMF	232	7,0 E 13	4,3	1600	1680	0
	7	IMF	362	5,6 E 13	5,4	1250	1390	0
	8	IMF	362	5,5 E 13	5,3	1500	1610	0
	9	IMF	362	5,4 E 13	5,2	1630	1700	0
Druckstempelkapsel	10	IMF	49	3,1 E 13	0,4	1250	1350	20
	11	IMF	200	3,1 F 13	1,7	1200	1360	20
	12	IMF	200	3,2 F 13	1,7	1600	1740	20
Gasdruckkapsel	13	IMF	93	4,3 E 13	1,1	1000	1150	38
	14	IMF	93	4,4 E 13	1,1	1200	1300	31
	15	IMF	205	2,6 E 13	1,4	1050	1250	33 (10d)/20
	16	IMF	205	2,7 E 13	1,5	1200	1550	40 (10d)/ 6
Kriechkapsel	17	IMF	166	5,9 E 13	2,6 ¹⁾	570	620	40
	18	IMF	166	5,9 E 13	2,6 ¹⁾	380	430	40
	19	IMF	317	6,5 E 13	5,5 ¹⁾	280	310	40

1) berechneter Abbrand

2.4 Untersuchungsmethoden

Die Nachbestrahlungsuntersuchungen der Brennstoffproben erfolgten in den Heißen Zellen des Kernforschungszentrums. Folgende Untersuchungen wurden durchgeführt:

- Bestimmung der freien Spaltgase, sofern die Größe und der Abbrand der zu untersuchenden Probe eine für eine Analyse hinreichend große Spaltgasmenge erwarten ließ.
- Messung der Brennstoffdichte nach dem Auftriebsverfahren in Tetrachlorkohlenstoff.
- Bestimmung der im Brennstoff zurückgehaltenen Spaltgase. Zu diesem Zweck wurden die Brennstoffproben nach Abschluß der anderen Untersuchungen in einer Kugelmühle gemahlen und das während des Mahlprozesses freigesetzte Spaltgas bestimmt. Dieses Spaltgas wird im folgenden kurz als Porensplattgas P bezeichnet, denn es stammt zum überwiegenden Teil aus Poren und Blasen. Beim Mahlen wurde der Brennstoff bis auf Teilchengrößen unter 1 µm zerkleinert. Dadurch dürfte sämtliches Spaltgas freigesetzt worden sein, das sich in intragranularen Blasen mit Durchmessern bis unterhalb 0,5 µm oder in Blasen und Poren an Korngrenzen und Subkorngrenzen befand. Die gemahlten Proben wurden anschließend in Salpetersäure aufgelöst, wobei das restliche Spaltgas freigesetzt wurde (Gittersplattgas G). Die Spaltgasmengen wurden gaschromatografisch bestimmt.
- Radiochemische Abbrandbestimmung mit Ce-144 und Cs-137 bei niedrigen Brennstofftemperaturen als Abbrandindikatoren. Für diese Untersuchung, die an je einer Probe eines Kapselversuchseinsatzes im Institut für Radiochemie durchgeführt wurde, wurde die Brennstofflösung benutzt, die bei der Bestimmung der gebundenen Spaltgase anfiel.

2.5 Untersuchungsergebnisse

Die Ergebnisse der Nachbestrahlungsuntersuchungen sind in der Tab.2 aufgeführt. Die prozentuale Volumenänderung, im folgenden als Schwellung S bezeichnet, wurde aus der Brennstoffdichte vor und nach Bestrahlung berechnet. Es gilt

$$S = 100 \left(\frac{\rho_0}{\rho_1} - 1 \right) \quad (1)$$

ρ_0 Brennstoffdichte vor Bestrahlung

ρ_1 Brennstoffdichte nach Bestrahlung

Tab. 2: Schwell- und Spaltgasdaten der (U,Pu)C-Proben

Probe	Abbrand %	Temperatur °C 1)	Schwellung %	Freisetzung % Xe/Kr		Porensplattgas		Gittersplattgas	
						Gasatome (U+Pu)-Atom	Xe Kr	Gasatome (U+Pu)-Atom	Xe Kr
1	1,5	1435	8,2	-	-	7,61 E-4	13,0	-	-
2	1,5	1750	17,8	86,9	-	1,92 E-4	17,5	3,79 E-4	16,3
3	2,8	1450	15,2	78,6	-	1,02 E-3	13,8	8,02 E-4	15,7
4	2,8	1750	27,7	86,3	-	8,73 E-4	15,4	2,64 E-4	13,3
5	4,5	1565	23,6	66,4	15,4	3,80 E-3	15,9	6,36 E-4	14,8
6	4,3	1615	24,5	73,1	-	2,64 E-3	14,5	8,05 E-4	13,1
7	5,4	1315	16,6	56,9	21,3	-	-	-	-
8	5,3	1525	23,8	58,4	24,5	4,42 E-3	13,7	7,91 E-4	17,8
9	5,2	1635	27,8	78,4	18,8	2,92 E-3	13,4	8,53 E-4	17,0
10	0,4	1295	0,8	-	-	2,05 E-4	12,6	-	-
11	1,7	1260	5,2	46,7	-	7,70 E-4	16,0	1,88 E-3	16,7
12	1,7	1685	14,9	-	-	1,61 E-4	17,0	-	-
13	1,1	1150	2,7	27,3	-	2,00 E-3	15,7	3,08 E-4	15,7
14	1,1	1300	3,6	14,2	-	2,49 E-3	17,2	3,16 E-4	16,2
15	1,4	1015	4,8	15,2	-	1,85 E-3	15,4	1,72 E-3	16,4
16	1,5	1217	5,3	24,6	-	3,04 E-3	17,7	4,18 E-4	15,7
17	2,6	~600	3,3	-	-	-	-	-	-
18	2,6	~400	3,6	-	-	-	-	-	-
19	5,5	~300	5,6	-	-	-	-	-	-

1) s. Abschnitt 3

Die Spaltgasfreisetzung war nur bei einigen Proben direkt gemessen worden. Diese Werte sind durch die Angabe des Xe:Kr-Verhältnisses gekennzeichnet. Bei anderen Proben war wegen der zu erwartenden geringen freien Spaltgasmengen oder aus Gründen eines schnelleren Untersuchungsablaufes in den Heißen Zellen auf die Bestimmung der freien Spaltgase verzichtet worden. In diesen Fällen wurde die Spaltgasfreisetzung aus der Differenz des erzeugten und des zurückgehaltenen Spaltgases berechnet, wobei eine Erzeugungsrate von 0,3 Gasatomen pro Spaltung zugrundegelegt wurde.

3. Auswertung und Diskussion

Ziel der Auswertung ist die Darstellung der Schwellung und des Spaltgasverhaltens, insbesondere der Freisetzung, als Funktion des Abbrandes und der Brennstofftemperatur. Während die Angabe des Abbrandes als gemessene Größe eindeutig ist, ist die Angabe der Brennstofftemperatur bei nicht konstanter Temperatur während der gesamten Bestrahlungszeit etwas problematisch. Eindeutig bestimmbar sind die höchste und niedrigste Brennstofftemperatur sowie der zeitlich gemittelte Wert. Wegen der starken Temperaturabhängigkeit des Spaltgasverhaltens ist die zeitlich gemittelte Brennstofftemperatur nicht immer die geeignete Bezugsgröße. Jede Temperaturerhöhung während der Bestrahlung führt zu einer Erhöhung der Schwellrate und der Spaltgasfreisetzungsrates, wobei der Einfluß dieser Effekte auf die Gesamtschwellung bzw. Gesamtspaltgasfreisetzung abhängig ist vom Zeitpunkt ihres Auftretens. Zur näherungsweise Berücksichtigung des starken Einflusses der Maximaltemperatur wird eine Bezugstemperatur T^* eingeführt, für die folgender Ansatz gemacht wird

$$T^* = (1 - x)T_m + x T_{max} \quad (2)$$

mit

$$x = \frac{t_{T,max}}{t_{ges}} \quad (3)$$

T_m zeitlich gemittelte Brennstofftemperatur

T_{max} maximale Brennstofftemperatur

$t_{T,max}$ Zeitpunkt des Auftretens der maximalen Brennstofftemperatur

t_{ges} Gesamtbestrahlungszeit.

Tritt die Maximaltemperatur unmittelbar zu Beginn der Bestrahlung auf, so ist die zeitlich gemittelte Brennstofftemperatur Bezugstemperatur. Tritt sie dagegen am Bestrahlungsende auf, so ist die Maximaltemperatur Bezugstemperatur

Die Brennstoffschwellung zeigt eine starke Temperatur- und Abbrandabhängigkeit. Zur Interpolation der Meßwerte wurde folgende Formel entwickelt

$$S = 0,8 A + S_{G,Sätt.} [1 - \exp(-XA)] \quad (4)$$

mit

$$S_{G,Sätt.} = 10 + \frac{24}{1 + \exp\left(\frac{1400 - T}{74}\right)} \quad (5)$$

und

$$X = 0,06 + 8,025 \cdot 10^3 \exp(-2,027 \cdot 10^4/T) \quad (6)$$

S Schwellung in Vol.-% für $500 \text{ K} \leq T \leq 2000 \text{ K}$

T Temperatur in K

A Abbrand in %.

Der erste Term in Gleichung (4) gibt die Schwellung durch feste Spaltprodukte wieder. Der zweite Term beschreibt die Spaltgasschwellung, wobei davon ausgegangen wird, daß die maximal mögliche Spaltgasblasenporosität 34% beträgt. Dieser Maximalwert wird jedoch erst bei Temperaturen über 1300°C erreicht.

Abb.4 zeigt den Vergleich zwischen den gemessenen und den nach Formel (4) berechneten Schwellungen. Bei der Entwicklung der Formel sind die Ergebnisse der druckfrei bestrahlten IMF-Karbidproben stärker berücksichtigt worden als die Ergebnisse der TUI-Karbidproben. Die freie Schwellung als Funktion des Abbrandes ist in der Abb.5 dargestellt, wobei die experimentell bestimmten Werte als Meßpunkte eingetragen wurden und die für verschiedene Temperaturen berechneten Werte als Kurven eingezeichnet wurden. Die Schwellung nimmt zunächst linear mit dem Abbrand zu. Mit steigendem Abbrand deutet eine Abflachung der Kurven offenbar

eine langsam eintretende Sättigung des Spaltgasschwellens an. Diese Verminderung der Spaltgasschwellrate verschiebt sich mit zunehmender Temperatur zu niedrigeren Abbränden. Die Schwellrate durch feste Spaltprodukte sollte in erster Näherung abbrandunabhängig sein. Abb.6 gibt die berechnete freie Schwellrate zwischen 0 und 1% Abbrand als Funktion der Brennstofftemperatur wieder.

Ein Vergleich der in den verschiedenen Kapseltypen gemessenen Schwellungen zeigt, daß bis zu Temperaturen von 1300°C und Drücken bis zu 30 MPa kein schwellmindernder Einfluß eines äußeren Druckes erkennbar ist.

Die Spaltgasdaten sind in ihrer Anzahl zu klein, um allgemein gültige Aussagen zum Spaltgasverhalten in Karbidbrennstoff zu machen. Zudem ist in all den Fällen, in denen nicht alle drei Spaltgasfraktionen bestimmt werden konnten oder in denen die Summe der gemessenen Gase nicht mit der berechneten Gasmenge befriedigend übereinstimmt, mit Meßfehlern zu rechnen, wobei insbesondere zwei Fehlermöglichkeiten, die Einwaage von Fremdkörpern (Zwischenplättchen) bei der Mengenbestimmung des Brennstoffes für die Messung des Poren- und Gitterspaltgases und Gasverluste in den Apparaturen, zu einer zu niedrigen Konzentration des zurückgehaltenen Spaltgases und damit zu einer zu hoch berechneten Spaltgasfreisetzung führt. Unter diesem Aspekt sind die recht hohen berechneten Spaltgasfreisetzungswerte der Proben 13, 15 und 16 mit einer gewissen Vorsicht zu betrachten. Allerdings muß auch berücksichtigt werden, daß die Probengeometrie mit ihrem sehr hohen Oberflächen:Volumen-Verhältnis durchaus zu einer stärkeren Freisetzung beitragen kann.

Die Abbildungen 7 - 9 zeigen die Konzentrationen des Gitter- und Porenspaltgases sowie ihrer Summe, des gesamten zurückgehaltenen Spaltgases, in Abhängigkeit vom Abbrand, wobei die Werte nach den Bestrahlungstemperaturen zu Gruppen zusammengefaßt wurden. Die Konzentration des Gitterspaltgases strebt bei Temperaturen über 1400°C offenbar schon bei Abbränden zwischen 1 und 3% Sättigungswerten zu, die bei hohen Temperaturen nur noch relativ wenig von der Temperatur abhängen. Bei einer Brennstofftemperatur von 1750°C ist mit einer Sättigungskonzentration

des Gitterspaltgases um $4 \cdot 10^{-4}$ Gasatomen pro (U+Pu)-Atom zu rechnen. Die Konzentration des Porenspaltgases und damit auch des insgesamt zurückgehaltenen Spaltgases scheint bei Temperaturen bis zu 1600°C im untersuchten Abbrandbereich bis 5,5% noch anzusteigen. Wegen der geringen Zahl der Meßwerte und ihrer Schwankungen sind weitergehende Aussagen zum Spaltgasverhalten nur bedingt möglich. Verfahrensbedingte Fehler bei der Bestimmung der Fraktionen des zurückgehaltenen Spaltgases laufen stets auf eine Unterschätzung des Poren- und Gitterspaltgases hinaus. Unter stärkerer Wichtung der oberen Meßwerte des zurückgehaltenen Spaltgases und seiner beiden Fraktionen sind in die Abbildungen 7 bis 9 Konzentrationsverläufe für 1250, 1500 und 1750°C eingezeichnet. Teilweise mußten diese Kurven mangels Meßwerte zu kleineren Abbränden extrapoliert werden, wobei davon ausgegangen wurde, daß sich bei höheren Abbränden Sättigungswerte des Poren- und des Gitterspaltgases einstellen.

Abb.10 zeigt die gemessenen und die mit Hilfe der Konzentrationen des zurückgehaltenen Spaltgases ermittelten Freisetzungswerte. Auf eine Extrapolation zu niedrigeren oder höheren Abbränden wurde verzichtet, weil die Datenbasis zu klein ist.

Abb.11 gibt den Zusammenhang zwischen Spaltgasfreisetzung und Schwellung wieder. Mit zunehmender Schwellung steigt auch die Spaltgasfreisetzung. Dieser Zusammenhang läßt sich folgendermaßen erklären. Mit zunehmender Spaltgasblasenporosität vergrößert sich auch die offene Porosität und damit das Verhältnis von freier Oberfläche zum Volumen des Brennstoffes. Die unmittelbare Folge ist dann der Anstieg der Spaltgasfreisetzungsrates. In Abb.12 ist die Porosität der Bestrahlungsproben im Ausgangszustand und nach verschiedenen Abbränden bei verschiedenen Temperaturen gezeigt. Deutlich ist die mit steigender Bestrahlungstemperatur zunehmende Porengröße zu erkennen.

Ein Vergleich der an U,Pu-Mischkarbid gemessenen Schwellungen mit Schwellungen, die an UO_2 unter ähnlichen Bestrahlungsbedingungen gemessen wurden /8/, zeigt, daß die Schwellung des Karbids um 30 bis 50%

über der des UO_2 liegt, wobei der untere Wert für relativ niedrige Brennstofftemperaturen um 1000°C und der höhere Wert für hohe Brennstofftemperaturen (1750°C) gilt. In erster Näherung verhalten sich damit die Schwellraten beider Brennstoffe zueinander wie ihre Schwermetalldichten. Die Konzentrationen des zurückgehaltenen Spaltgases und damit auch die Spaltgasfreisetzungen bei gleichen Temperaturen und Abbränden sind ebenfalls ähnlich.

Danksagung

Dieser Bericht beruht auf Bestrahlungen im FR 2 und Nachuntersuchungen in den Heißen Zellen des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Allen beteiligten Mitarbeitern von KTB und IMF sei hiermit gedankt.

Literatur

- /1/ H. Wedemeyer, E. Günther
unveröffentlichte Ergebnisse

- /2/ H.Häfner, K.Philipp
FR 2-Bestrahlungskapseln zur Untersuchung des Brennstoffschwellens
KfK 1398 (1971)

- /3/ H.E.Häfner, K.Philipp
Druckschwellkapsel mit kontinuierlicher Dehnungsmessung
KfK 1985 (1974) 63 - 66

- /4/ H,E.Häfner
Hochdruckkapsel zur Bestrahlung von Brennstoff-Schwellproben
im FR 2
KfK 2068 (1974)

- /5/ H.E.Häfner
High-pressure Capsule for the Irradiation of Fuel Swelling
Specimens in the FR 2 Reactor
Nuclear Technology 34 (1977) 69 - 74

- /6/ H.E.Häfner, K.Philipp, G.Sebold
Abschlußbericht über Entwicklung und Betrieb von Hochdruck-
Bestrahlungskapseln zur Ermittlung des Kernbrennstoffschwellens
im FR 2
KfK 2948 (1980)

- /7/ H.E.Häfner, H.Will
Instrumentierte Brennstoffkriechkapsel
Kerntechnik 13 (1971) 454 - 457

- /8/ H.Zimmermann
Investigations on Swelling and Fission Gas Behaviour in Uranium
Dioxide
J.Nucl.Mat. 75 (1978) 154 - 161

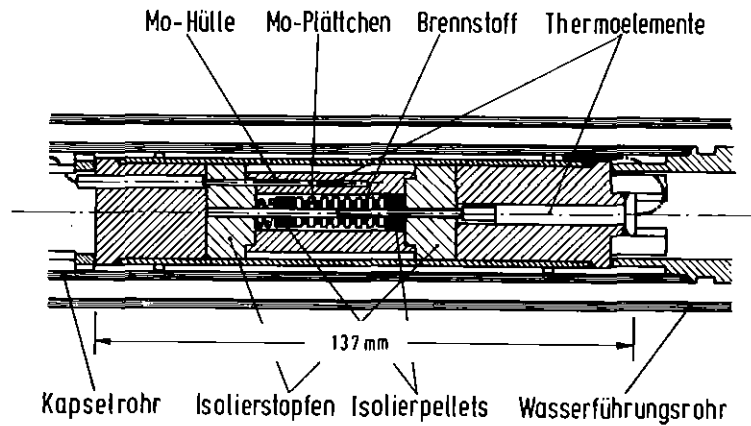


Abb. 1: Kapsel zur Bestimmung der freien Schwellung

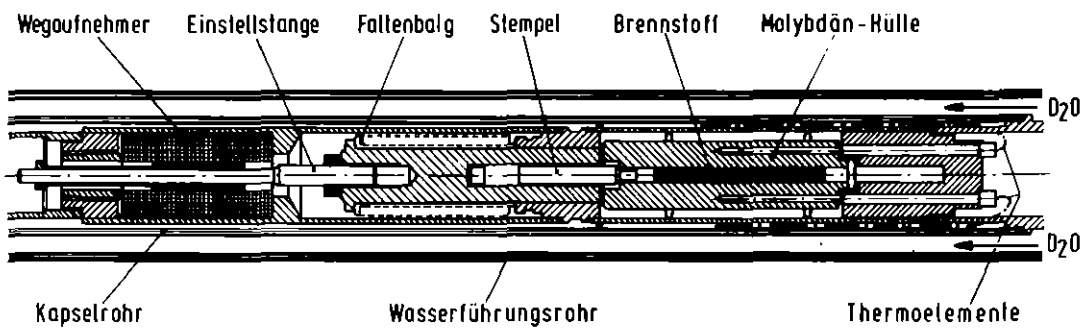


Abb.2: Druckstempelkapsel mit induktivem Wegaufnehmer

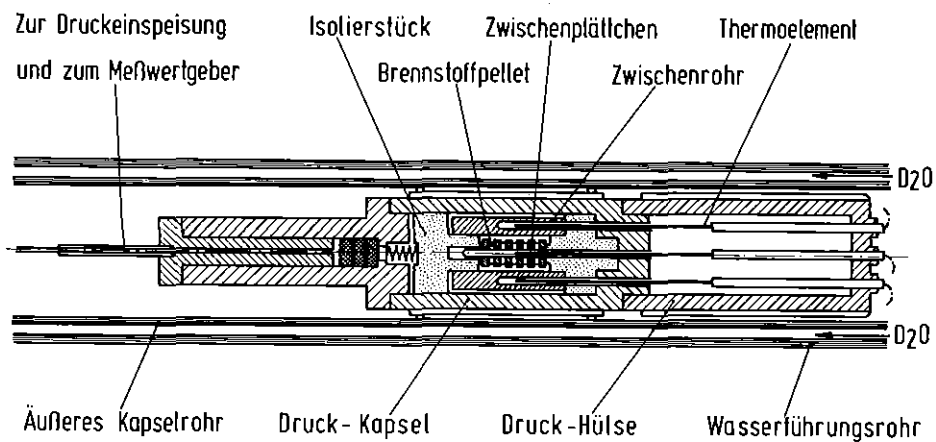
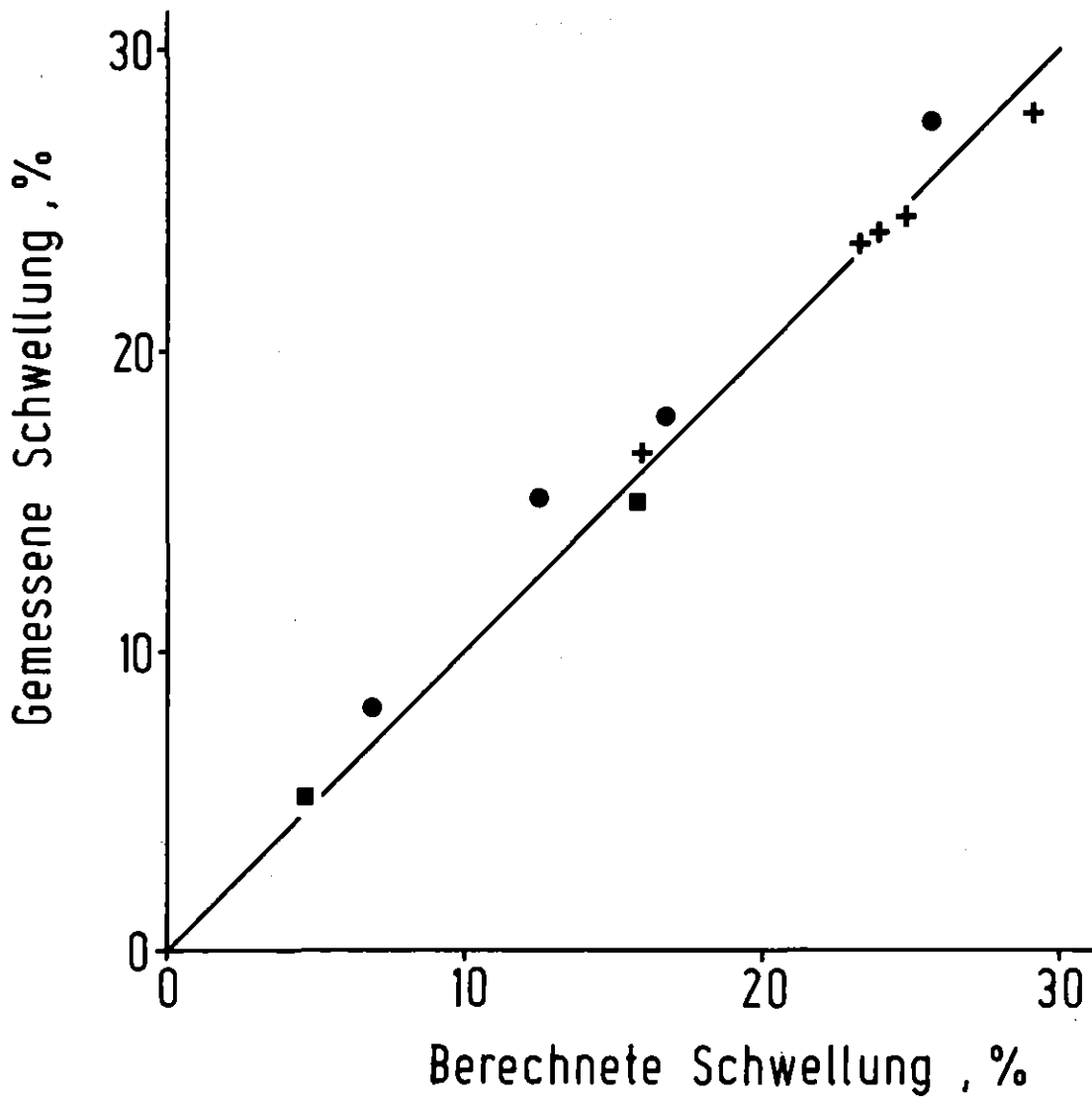


Abb.3: Gasdruck-Schwellkapsel



- + Druckfreie Schwellkapsel, IMF - Karbid
- " " " " , TUI - Karbid
- Druckstempelkapsel, drucklos, IMF - Karbid

Abb.4: Vergleich der gemessenen und berechneten freien Schwellungen

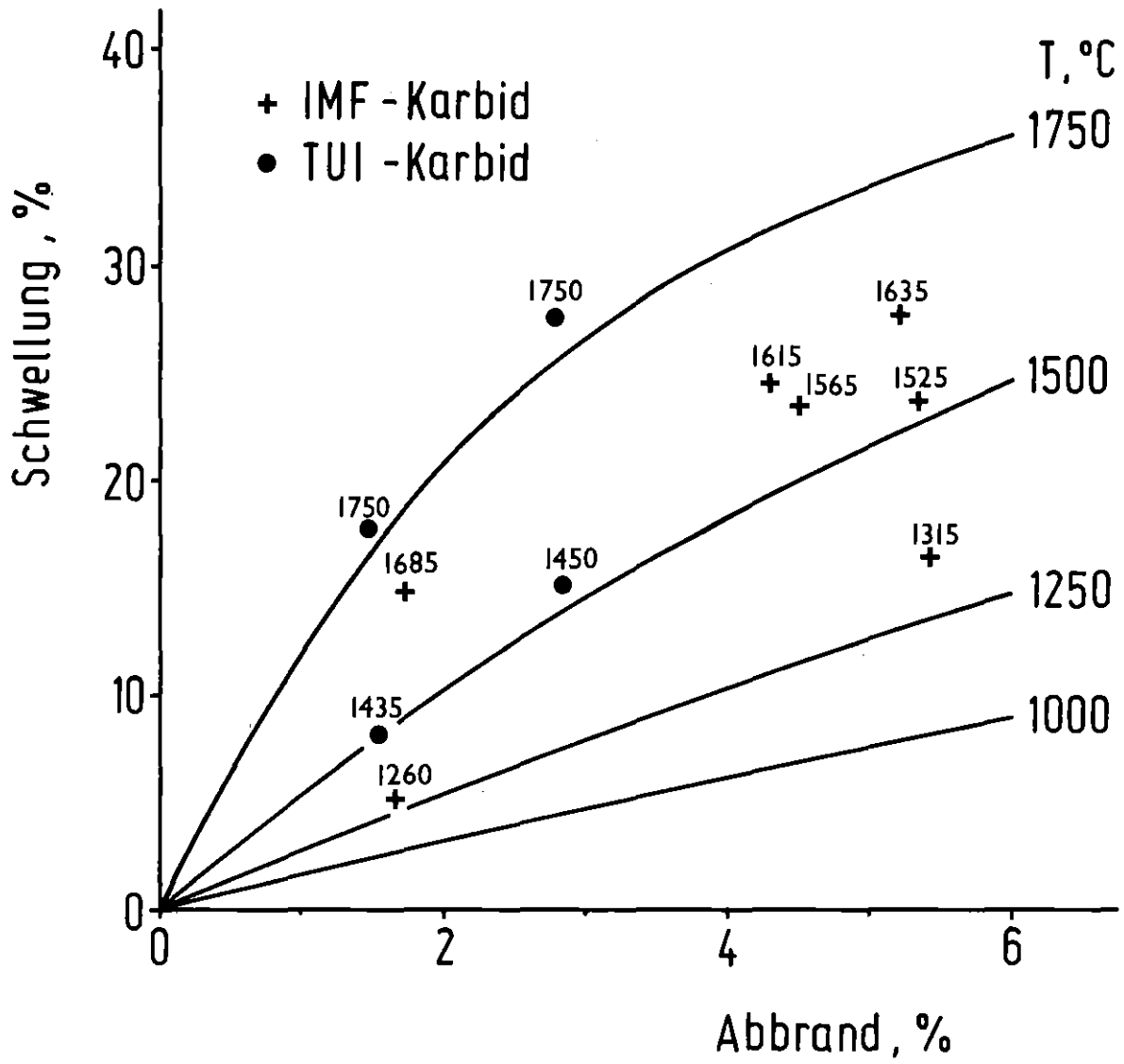


Abb. 5: Gemessene und berechnete freie Schwellung des U,Pu-Mischkarbids in Abhängigkeit vom Abbrand

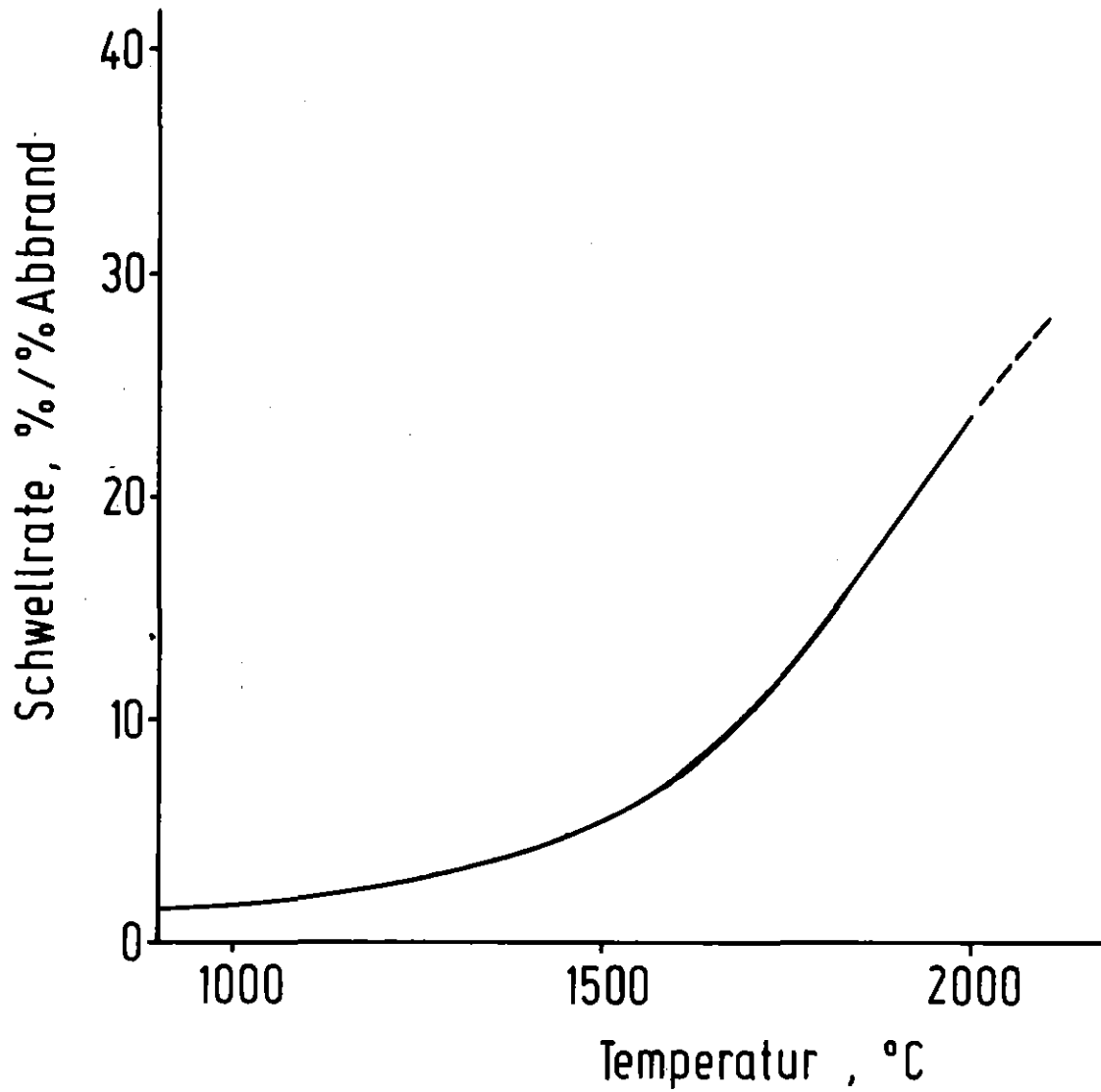


Abb. 6: Berechnete mittlere freie Schwellrate des U,Pu-Mischkarbids zwischen 0 und 1% Abbrand als Funktion der Temperatur

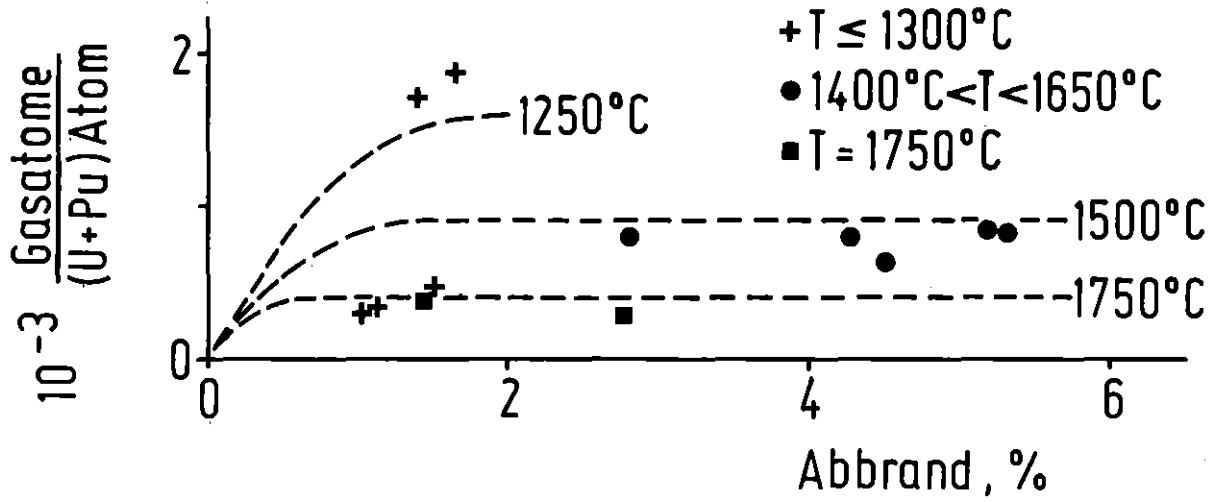


Abb. 7: Gitterspaltgaskonzentration in Abhängigkeit vom Abbrand

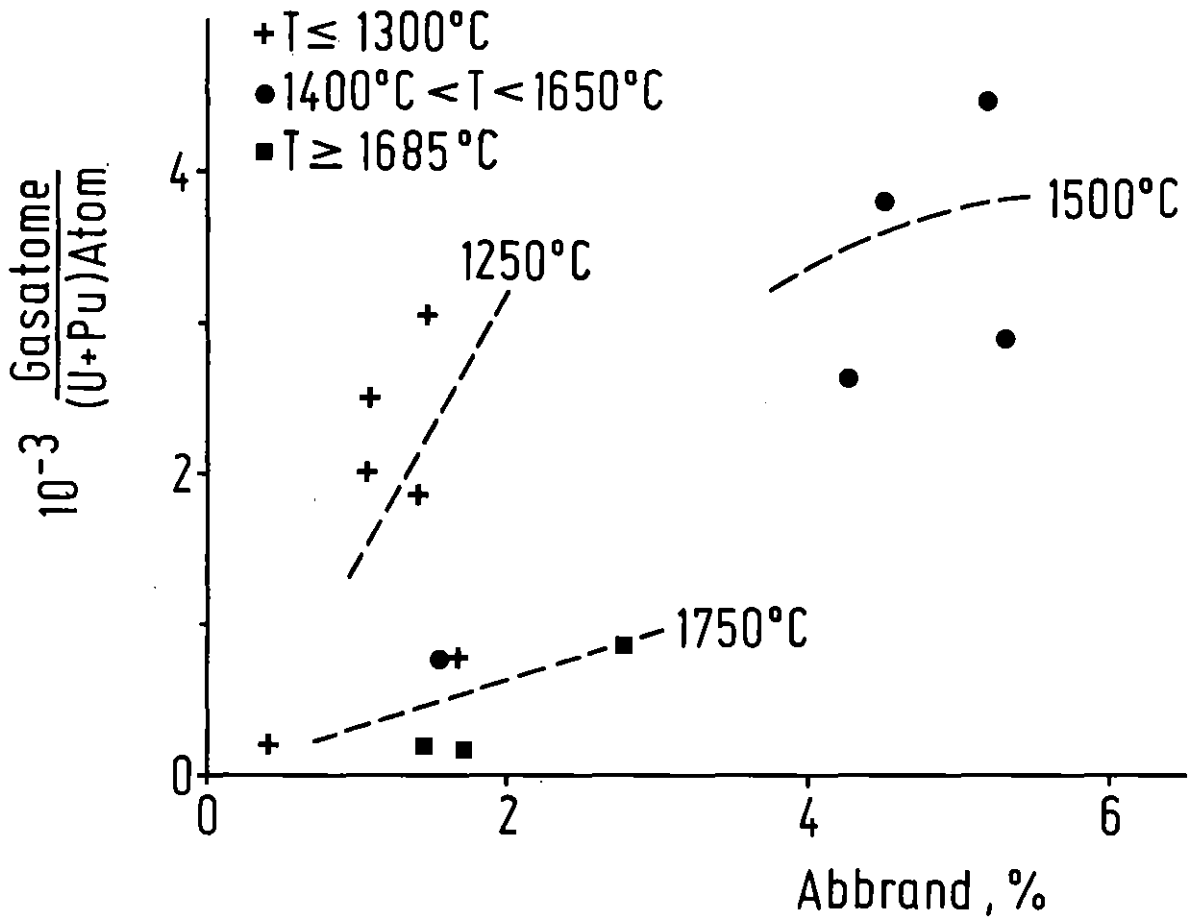


Abb. 8: Porenspaltgaskonzentration in Abhängigkeit vom Abbrand

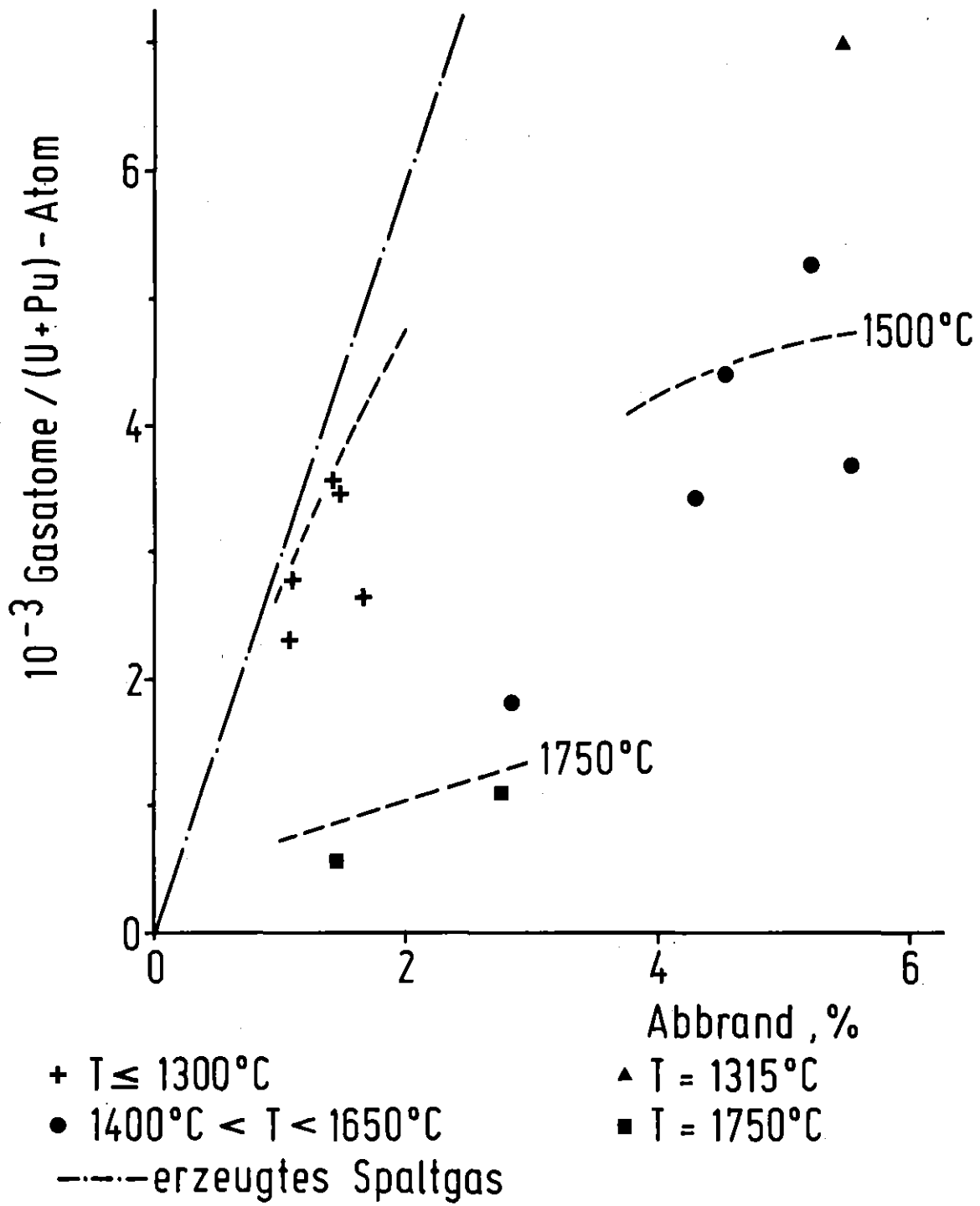


Abb. 9: Konzentration des zurückgehaltenen Spaltgases in Abhängigkeit vom Abbrand

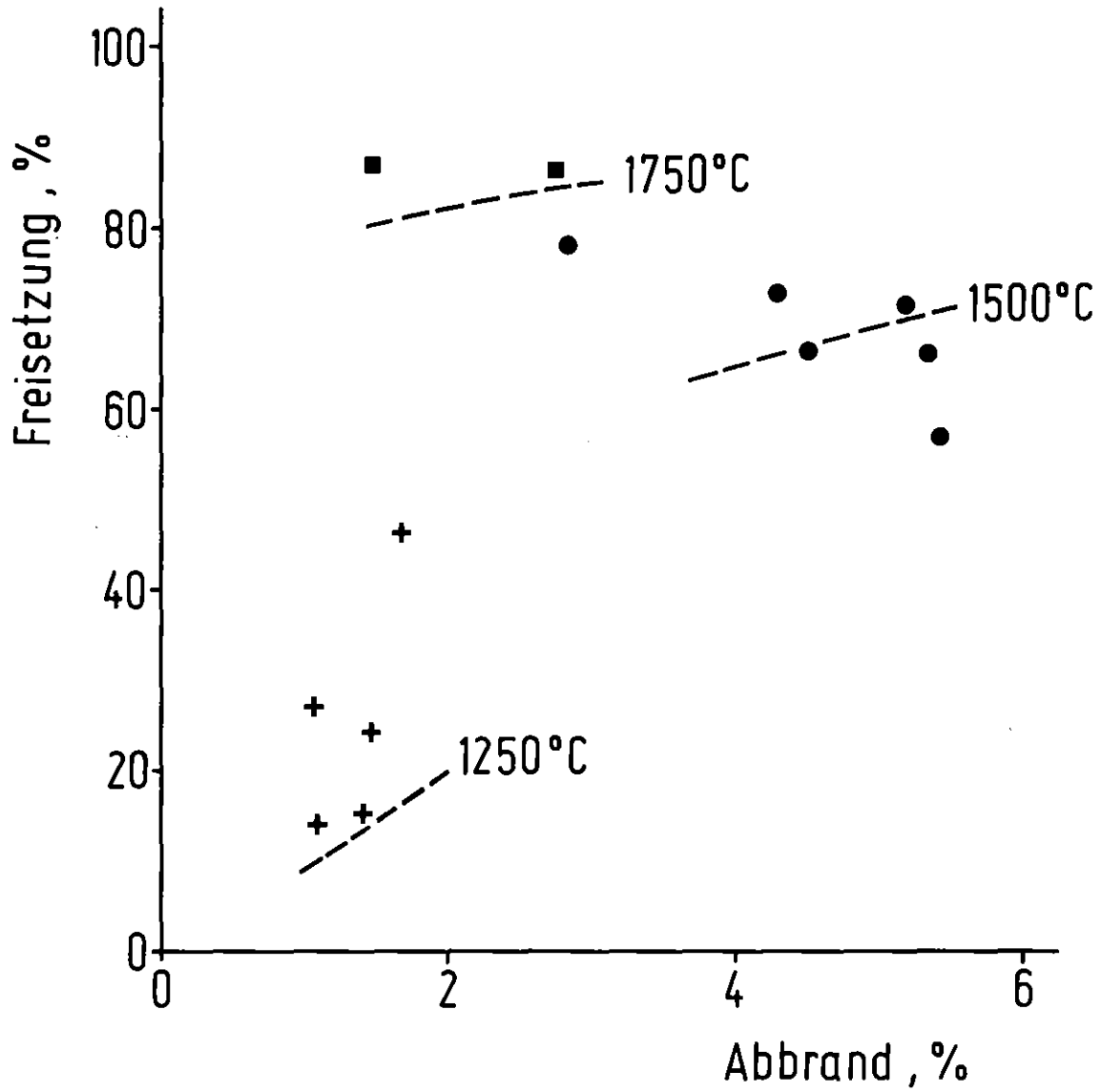


Abb. 10: Spaltgasfreisetzung der (U,Pu)C-Bestrahlungsproben in Abhängigkeit vom Abbrand

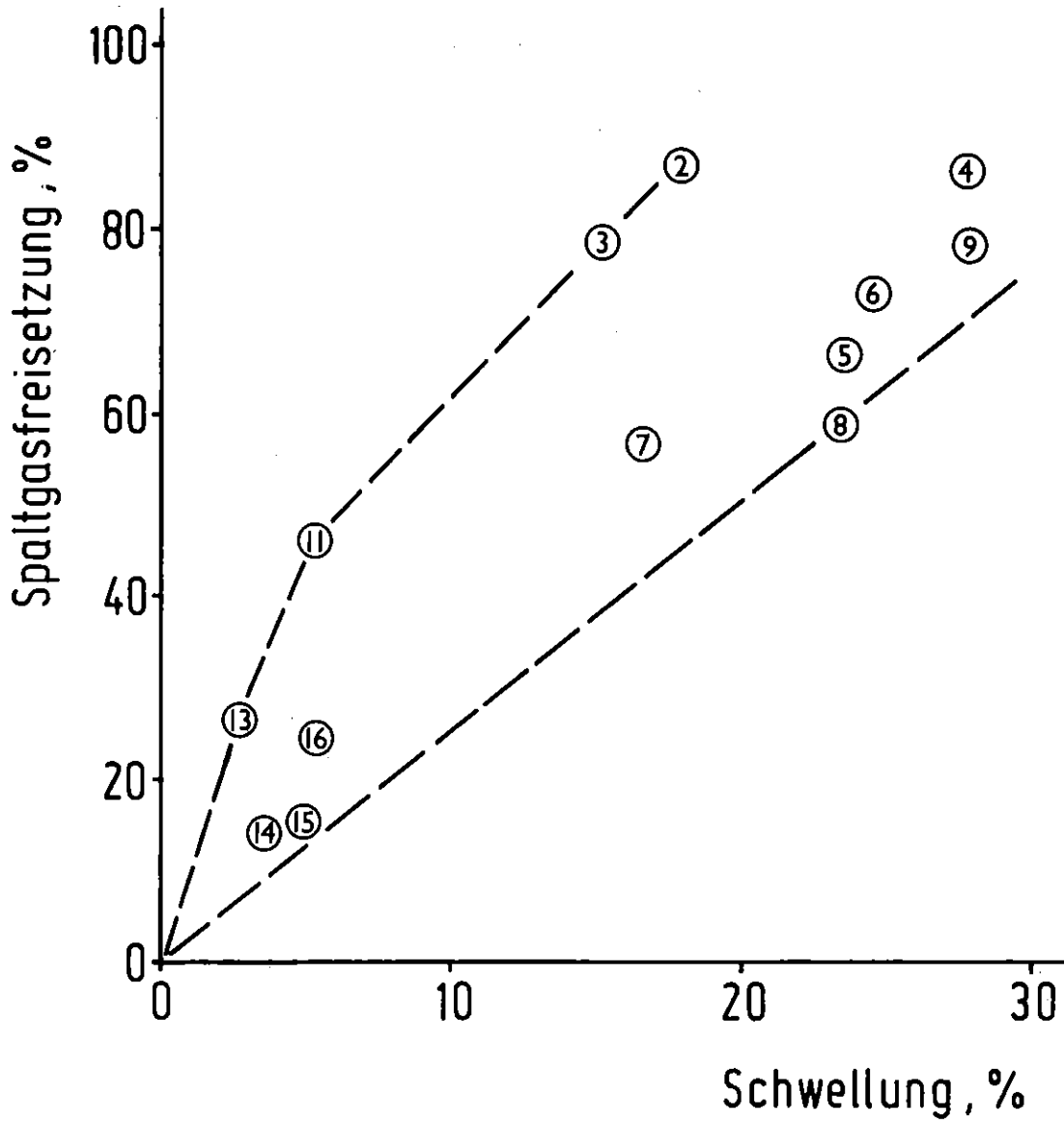
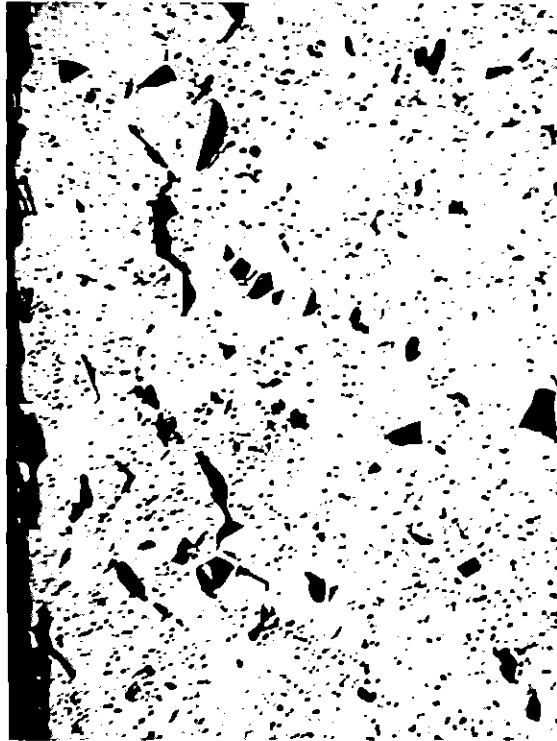
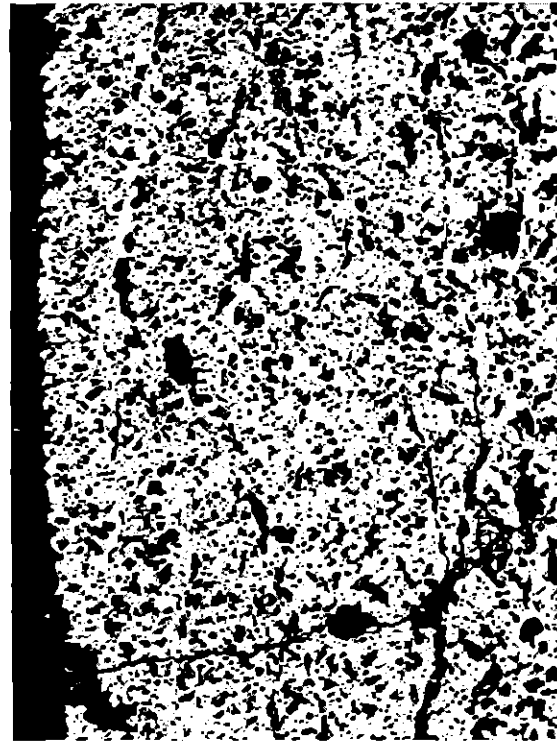


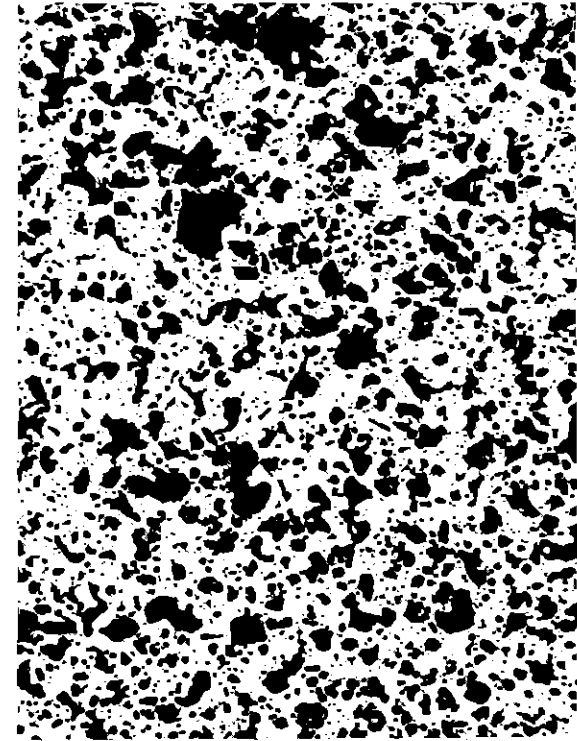
Abb. 11: Zusammenhang zwischen Schwellung und Spaltgasfreisetzung bei den (U,Pu)C-Bestrahlungsproben



"Ausgangszustand" 200:1
32 h bestrahlt bei 1200°C



Probe 1 200:1
Abbrand: 1,5% T = 1435°C
Schwellung: 8,2%



Probe 9 200:1
Abbrand: 5,2% T = 1635°C
Schwellung: 27,8%

Abb.12: Porosität der (U,Pu)C-Bestrahlungsproben im Ausgangszustand und nach verschiedenen Abbränden bei verschiedenen Temperaturen