

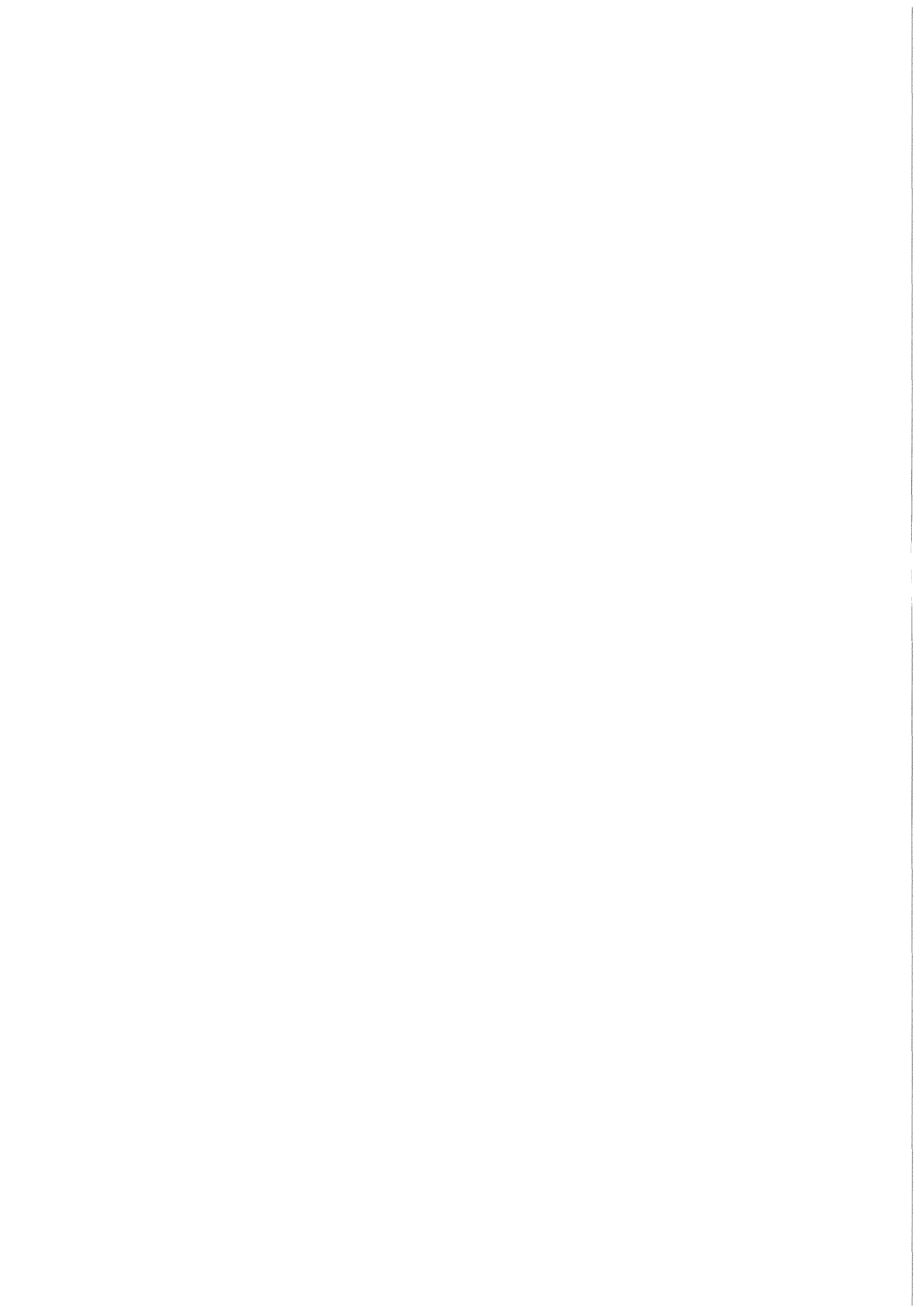
KfK 3433
Juni 1983

In-pile-Experimente zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverluststörfall

**Ergebnisse der zerstörenden
Nachuntersuchungen der Versuchsserie G
(35000 MWd/t_U)**

**P. Hofmann, C. Petersen, G. Schanz, H. Zimmermann
Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Nukleare Sicherheit**

Kernforschungszentrum Karlsruhe



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Nukleare Sicherheit

KfK 3433

In-pile-Experimente zum Brennstabverhalten
beim Kühlmittelverluststörfall

Ergebnisse der zerstörenden Nachuntersuchungen
der Versuchsserien G (35 000 MWd/t_U),
C (2 500 MWd/t_U) und E (8 000 MWd/t_U) sowie
mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren

P. Hofmann, C. Petersen, G. Schanz, H. Zimmermann
unter Mitarbeit von

B. Burbulla
W. Hellriegel
O. Romer
F. Weiser
R. Zerull

(Heiße Zellen)

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH., Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Die in-pile Versuche mit unbestrahlten und bestrahlten Brennstabprüflingen hatten zum Ziel, den Einfluß nuklearer Parameter auf die Mechanismen des Brennstabversagens unter LOCA-Bedingungen zu untersuchen. Als Versuchsstäbe wurden Prüflinge mit einer aktiven Brennstofflänge von 50 cm verwendet. Die Versuchsserie G (G1, G2/3) bestand aus zehn Einzelstab-Versuchen, die mit vorbestrahlten Prüflingen durchgeführt wurden. Der mittlere Abbrand betrug $35\ 000\ \text{MWd}/t_U$.

Dieser Bericht beschreibt die Ergebnisse der zerstörenden Nachuntersuchung im Hinblick auf das mechanische Verhalten des Zircaloy-4-Hüllmaterials, das Oxidations- und Korrosionsverhalten des Hüllrohres, den Gefügestand und die Mikrohärtigkeit des Zircaloy, das mechanische Verhalten des Brennstoffes sowie die Spaltgasfreisetzung und Volumenänderung des Brennstoffes. Hinsichtlich des Oxidationsverhaltens, des Gefügestandes und der Mikrohärtigkeit des Hüllmaterials werden ergänzend auch die Versuchsergebnisse der Versuchsserien C ($2\ 500\ \text{MWd}/t_U$ Abbrand) und E ($8\ 000\ \text{MWd}/t_U$) sowie der elektrisch beheizten Brennstab-simulatoren dargestellt. Außerdem wird ein Vergleich der Versuchsergebnisse aller Versuchsserien vorgenommen.

Dieser Bericht ist im Zusammenhang mit den von der Hauptabteilung Ingenieurtechnik erstellten Berichten (Versuchsserie G1: KfK 3061, Versuchsserie G2/3: KfK 3099) zu sehen, in denen die Ergebnisse der zerstörungsfreien Nachuntersuchungen dokumentiert sind.

In-pile-Experiments on the Fuel Rod Behavior in a Loss-of-Coolant Accident

Results of Destructive Postirradiation Examinations of Test Series G (35 000 MWd/t_U)

Abstract

In-pile tests with unirradiated and irradiated fuel rod specimens have been performed to investigate the influence of nuclear parameters on the mechanisms of fuel rod failure under LOCA conditions. The test specimens had an active fuel length of 50 cm. Test series G (G1, G2/3) comprised ten single-rod tests with preirradiated specimens. The average burnup was 35,000 MWd/t_U.

This report describes the results of the destructive post-test examinations including: (a) the mechanical behavior of the Zircaloy-4 cladding, (b) the oxidation and corrosion behavior of the cladding, (c) the structural condition and microhardness of the zircaloy, (d) the mechanical behavior of the fuel, and (e) fission gas release and volume changes of the fuel. The oxidation behavior, the structural condition, and the microhardness of the cladding are compared to the results of the test series C (2,500 MWd/t_U burnup) and E (8,000 MWd/t_U) and of the electrically heated fuel rod simulators. Moreover, a comparison is made between the results of all test series.

The results of the non-destructive post-test examinations have been documented by the Hauptabteilung Ingenieurtechnik (test series G1: KfK 3061, test series G2/3: KfK 3099).

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	
1.1 Versuchsziele	1
1.2 Berichtsziel	2
1.3 Literatur	4
Abbildungen: Schnittpläne F 1 bis F 6	5
2. Mechanisches Verhalten des Hüllrohres	17
2.1 Angaben zur Umfangsdehnung und Wandstärken- änderung	17
2.2 Quantifizierung der Umfangsdehnung in radialer und axialer Richtung des Stabes	19
2.3 Schlußfolgerungen und Zusammenfassung	20
2.4 Literatur	21
Abbildungen	22
3. Allgemeines Oxidationsverhalten des Hüllrohres	33
3.1 Hüllrohrzustand nach Vorbestrahlung	33
3.2 Außenansicht der geborstenen Brennstäbe	33
3.3 Oxidationszustand der Hüllrohre	35
3.3.1 Außenseite	35
3.3.2 Innenseite	37
3.4 Gefüge und dessen Auswertung auf die lokal erreichte Maximaltemperatur	38
3.4.1 Zum Verfahren der Temperaturabschätzung	39
3.4.2 Ergebnisse der Gefügebeurteilung und Temperaturabschätzung	40
3.5 Mikrohärtemessungen	44
3.6 Ergebnisse der Versuchsserien C, E und BSS und Vergleich aller Serien	45
3.6.1 Oxidationsverhalten	46
3.6.2 Gefüge- und Temperaturinterpretation	47
3.6.3 Mikrohärte	50
3.7 Zusammenfassung und Schlußfolgerungen	51
3.8 Literatur	53
Tabellen	54
Abbildungen	62

	Seite
4. Beurteilung der Hüllrohrinnenkorrosion	97
4.1 Allgemeines	97
4.2 Chemisches Verhalten des Brennstoffes	98
4.3 Chemisches Verhalten der Spaltprodukte	99
4.4 Zusammenfassung und Schlußfolgerungen	101
4.5 Literatur	103
Abbildungen	104
5. Mechanisches Verhalten des Brennstoffes	106
5.1 Nicht vorbestrahlter Brennstoff	106
5.2 Vorbestrahlter Brennstoff	107
5.3 Zusammenfassung und Schlußfolgerungen	108
5.4 Literatur	108
Abbildungen	109
6. Spaltgasverhalten und Brennstoffvolumenänderungen	112
6.1 Untersuchungsmethoden	112
6.2 Dichteänderungen und Spaltgasverhalten während der Vorbestrahlung	113
6.3 Spaltgasverhalten während der LOCA-Tests	114
6.4 Nachbestrahlungsglühungen	115
6.5 Schlußfolgerungen	116
Abbildungen	118

1. Einleitung

1.1. Versuchsziele

Zur Untersuchung des Brennstabverhaltens bei Kühlmittelverluststörfällen in Leichtwasserreaktoren werden im Rahmen des Projektes Nukleare Sicherheit theoretische und experimentelle Arbeiten durchgeführt. Mit den hier behandelten In-pile-Versuchen im DK-Loop des FR 2-Reaktors soll festgestellt werden, ob und wie die in Out-of-pile-Versuchen nicht simulierbaren nuklearen Parameter die Mechanismen des Brennstabversagens beeinflussen.

Zu diesem Zweck werden einerseits nuklear beheizte Brennstabprüflinge, andererseits elektrisch beheizte Referenzstäbe durch Kühlungsunterbrechung gezielten Temperaturtransienten unterzogen, in denen die 2. Aufheizphase eines Kühlmittelverluststörfalls simuliert wird.

Mit der hier behandelten Versuchsserie G (G1 und G 2/3) sollte das Verhalten von vorbestrahlten Prüflingen untersucht werden. Von den zwölf bis zu einem Abbrand von 35 000 MWd/t_U bestrahlten Stäben waren zehn einer Transiente auszusetzen, die Stäbe G 1.6 und G 3.6 für die radiochemische Abbrandbestimmung sowie zur Untersuchung des Brennstoffzustandes nach der Bestrahlung zu verwenden. Der Zielabbrand der Brennstäbe sollte 35 000 MWd/t_U betragen. Die Abbrandbestimmungen ergaben aber einen tatsächlichen mittleren Abbrand von etwa 33 800 MWd/t_U für die Versuchsserie G 1 /1-1/ und etwa 36 250 MWd/t_U für die Versuchsserie G 2/3 /1-2/.

Aus Vergleichsgründen wurden auch einige Teststäbe der Versuchsserien C (2 500 MWd/t_U Abbrand) /1-3/ und E (8 000 MWd/t_U) /1-4/ sowie der elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren /1-5/ untersucht. Die Versuchsergebnisse hinsichtlich des Oxidationsverhaltens, des Gefügestandes und der Mikrohärtigkeit des Hüllmaterials sind in Abschnitt 3 dargestellt.

1.2. Berichtsziel

Die generelle Beschreibung des Versuchsprogramms, der Prüflinge und der Versuchsführung sowie die Dokumentation der während der Transientenversuche gemessenen Daten und die Ergebnisse der zerstörungsfreien Nachuntersuchung in den Heißen Zellen sind in /1-1 bis 1-5/ dargestellt. Tabelle 1-1 zeigt die wesentlichen Versuchsdaten wie Bersttemperatur, Berstdruck und Zeit bis zum Versagen der Brennelement-Hüllrohre der Versuchsserie G. In diesem Bericht werden die Ergebnisse der zerstörenden Nachuntersuchungen (Metallographie) der Brennstäbe der Versuchsserie G und z.T. auch der Versuchsserien C und E sowie der elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren beschrieben. Dieser Bericht ist in Zusammenhang mit den Berichten /1-1 bis 1-5/ zu sehen.

Tabelle 1-1: Versuchsdaten der in-pile LOCA-Experimente mit den Prüflingen der Versuchsserien G 1 und G 2/3 (Abbrand 35 000 MWd/t_U).

Test	Aufheizgeschwindigkeit bei 650°C [K/s]	Zeit bis zum Versagen [s]	Bersttemperatur [K]	max.Hülltemperatur [K]	Berstdruck [bar]	Berstdehnung [%]
G 1.1*)	10,1	-	-	1283	-	2
G 1.2	**)	55	1003	1282	68	30
G 1.3	9,0	70	1163	1250	41	62
G 1.4	6,1	58	1058	1244	83	33
G 1.5	**)	60	1053	1200	52	41
G 2.1	13,6	38	1142	1225	37	32
G 2.2	13	31	1119	1213	66	28
G 3.1	12,3	55	1173	1203	33	46
G 3.2	15,4	33	1111	1213	57	41
G 3.3	9,8	29	1023	1220	111	32

*) Kein Versagen infolge eines Lecks

**) abnormale Aufheizung; Versagen erfolgt auf einem Temperaturplateau

Von den Prüflingen wurden nach dem in-pile Versuch verschiedene Brennstababschnitte herausgetrennt und metallographisch präpariert. Von den Querschliffen liegen mindestens zwei Schliffebene im Bereich der Hüllrohrbeule, einer etwa in der Mitte des Risses, der andere am Beulenende. Darüber hinaus wurden Proben von Schliffebene unterhalb und oberhalb der Berststelle hergestellt. Die genauen Positionen der Schliffebene sind den Schnittplänen zu entnehmen (Abb. 1-1 bis 1-12). Von den Prüflingen G 1.6 und G 3.6, die nicht LOCA-getestet wurden, wurden jeweils nur ein Quer- und Längsschliff angefertigt (Abb. 1-6, 1-12).

Von den Schliffebene wurden neben Makroaufnahmen auch zahlreiche Mikroaufnahmen an verschiedenen Stellen am Rohrumfang hergestellt. Nur ein kleiner Teil dieser metallographischen Aufnahmen wird jedoch in diesem Bericht dokumentiert.

Von den Proben wurden zunächst im ungeätzten Zustand Schlifffbildaufnahmen hergestellt, da auf diesen die Oxidschichten am besten sichtbar sind. Um jedoch das Gefüge des Zircaloy (Zry) besser erkennen zu können, wurden die Proben anschließend geätzt. Darüber hinaus wurden zum Teil Interferenzkontrastaufnahmen sowie Aufnahmen mit polarisiertem Licht hergestellt.

Die Nachuntersuchungen des vorliegenden Berichtes gliedern sich in vier Teile:

- Mechanisches Verhalten des Zry-4, Umfangsdehnung, Wandstärkenabnahme;
- allgemeines Oxidationsverhalten des Hüllrohres, speziell im Hinblick auf die Innen- und Außenoxidation durch den Wasserdampf, Gefügestand und Mikrohärtigkeit des Hüllmaterials sowie Abschätzung der Hüllrohrtemperatur anhand des Gefügestandes;
- Spaltgasverhalten und Volumenänderungen des Brennstoffs während der Vorbestrahlung und bei der LOCA-Transiente.

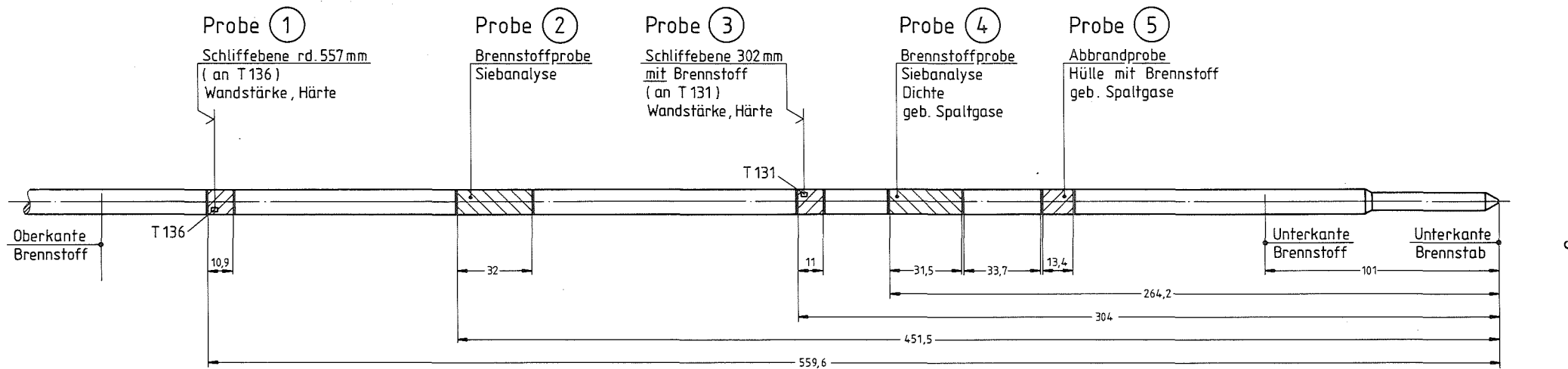
Ein Teil der wesentlichen Nachuntersuchungsergebnissen wie

- die Dicke der sauerstoffstabilisierten α -Zr(O)-Phase und der ZrO_2 -Schicht auf der Hüllrohr Außen- und Innenseite,
- die anhand des Gefügestandes abgeschätzte Hüllmaterialtemperatur,
- der Vergleich von gemessener und abgeschätzter Hüllrohr-Maximaltemperatur und
- die Mikrohärtigkeit des Zircaloy-4

sind in den Tabellen 3.1 bis 3.6 dargestellt.

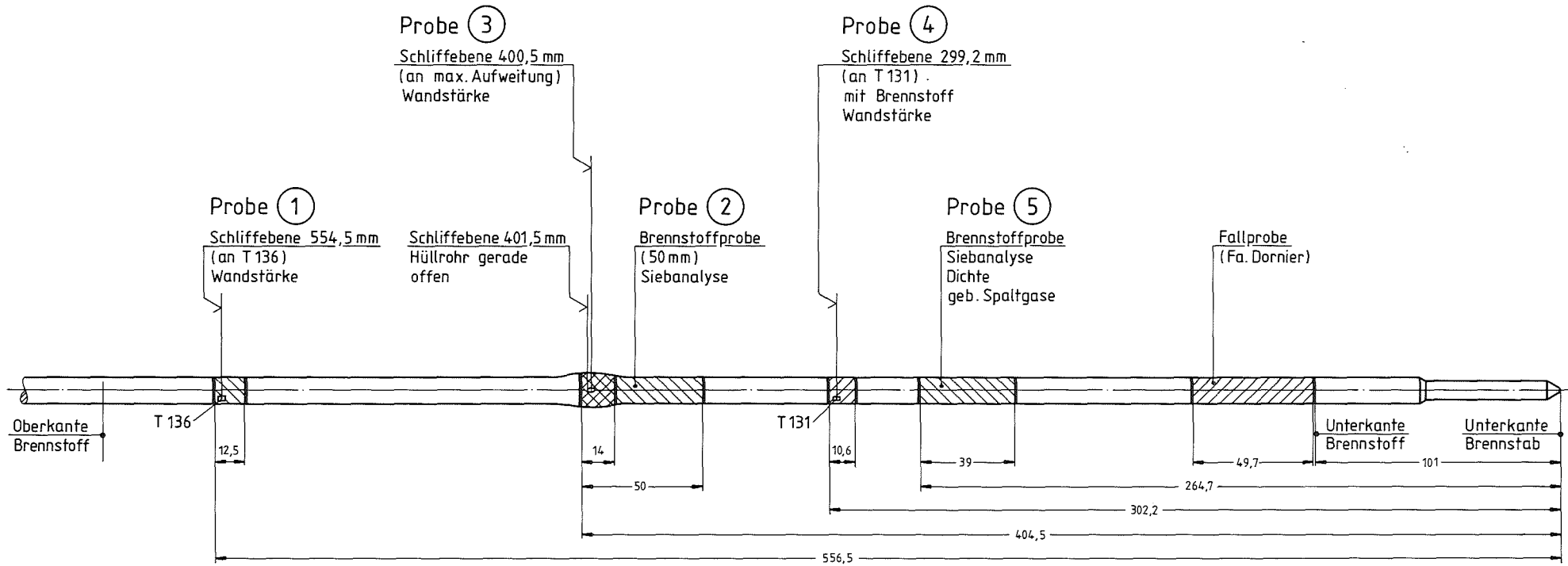
1.3. Literatur

- /1-1/ M. Prüßmann, E.H. Karb, L. Sepold
"In-pile-Experimente zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverluststörfall", Bericht über die Versuchsserie G 1 (35 000 MWd/t_U), KfK 3061 (1981)
- /1-2/ L. Sepold, E.H. Karb, M. Prüßmann,
"In-pile Experimente zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverluststörfall"; Versuchsserie G 2/3 (35 000 MWd/t_U), KfK 3099 (1981)
- /1-3/ M. Prüßmann, E.H. Karb, L. Sepold,
"In-pile Experimente zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverluststörfall"; Bericht über die Versuchsserie C (2 500 MWd/t_U), KfK 3195 (1982)
- /1-4/ M. Prüßmann, E.H. Karb, L. Sepold
"In-pile Experimente zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverluststörfall", Bericht über die Versuchsserie E (8 000 MWd/t_U), KfK 3345 (1982)
- /1-5/ M. Prüßmann, E.H. Karb, L. Sepold,
"FR2-In-pile-Versuche zum LWR-Brennstabverhalten mit elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren", KfK 3255 (1982)



Schnittplan G 1.1 (Abbrand : 35 000 MWd/t)

Abb. 1-1:



— 6 —

Schnittplan G 1.2 (Abbrand : 35000 MWd/t)

Abb. 1-2:

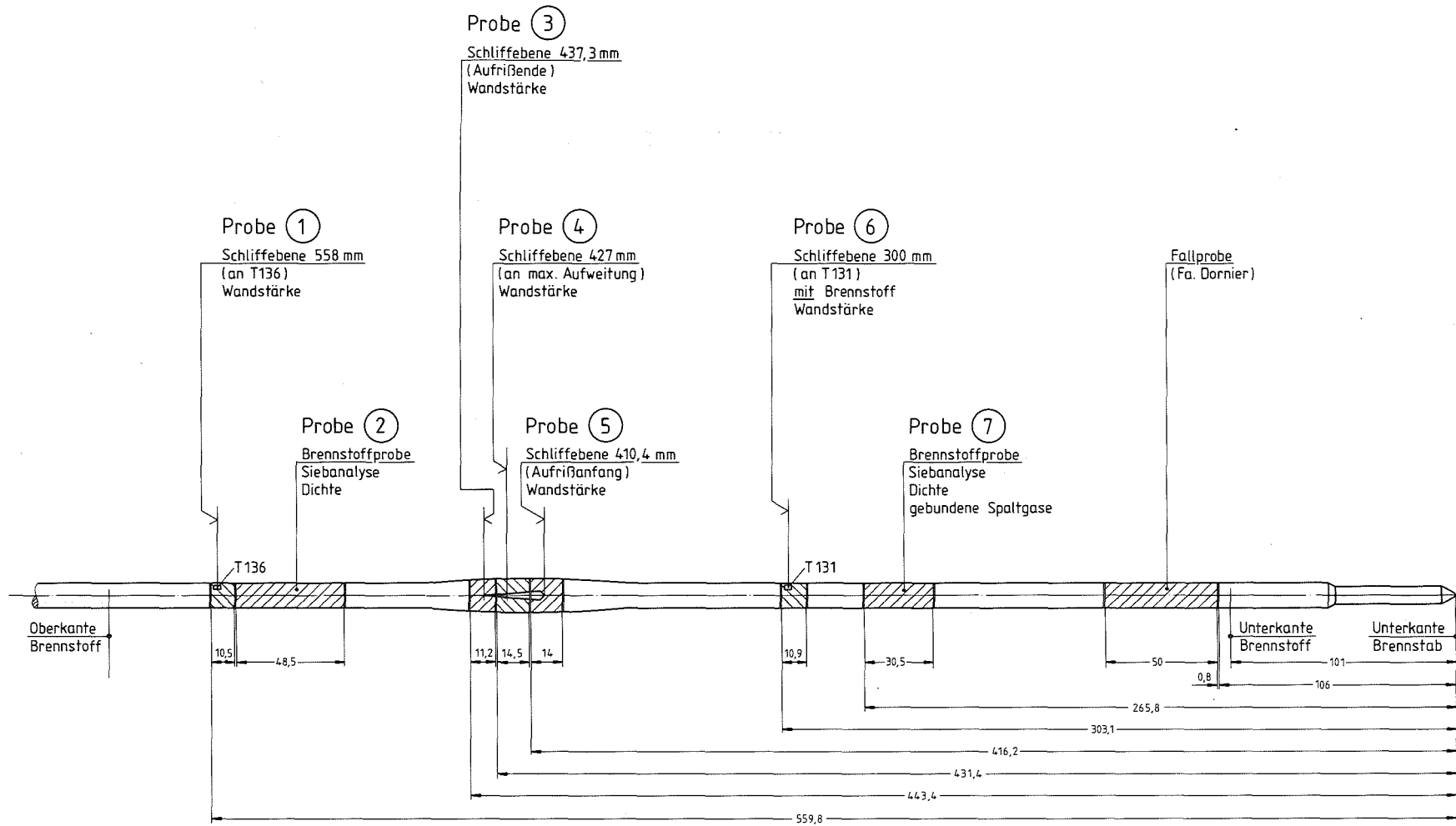
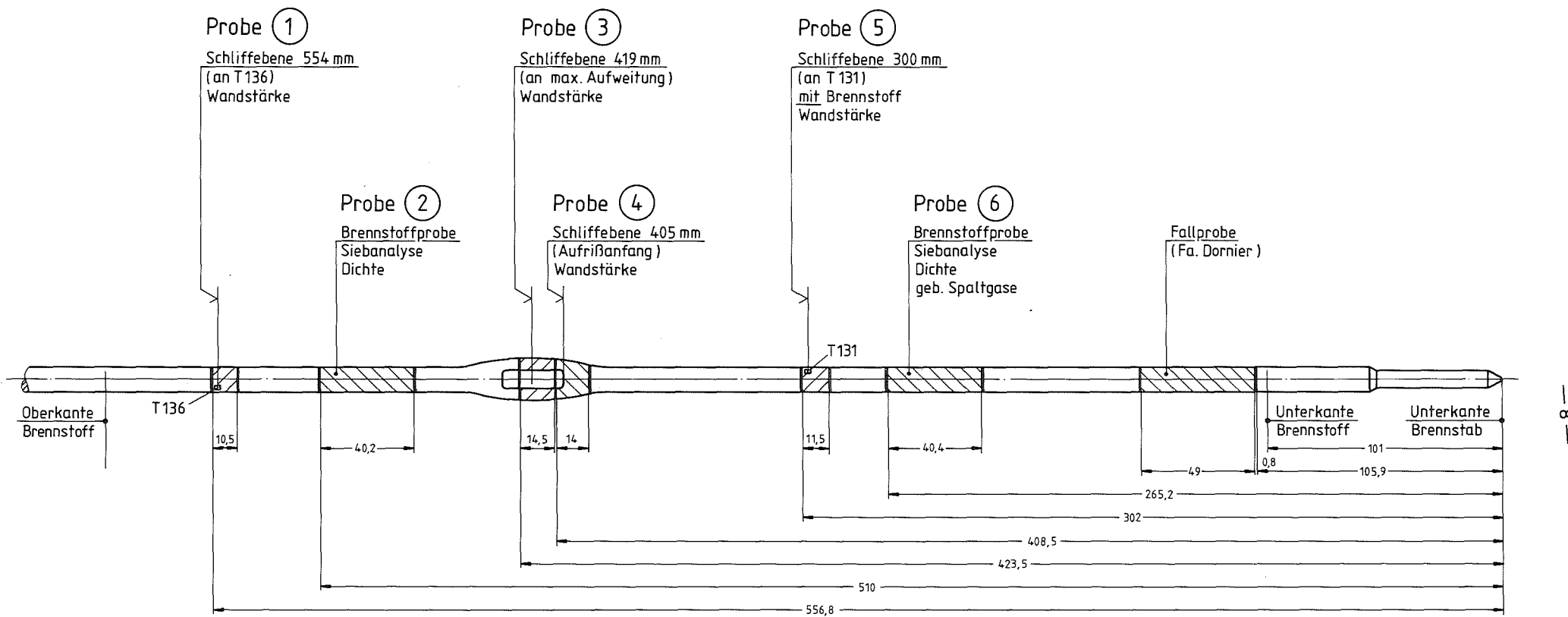


Abb. 1-3:

Schnittplan G1.3 (Abbrand: 35000 Mwd/t)



Schnittplan G 1.4 (Abbrand : 35 000 MWd/t)

Abb. 1-4:

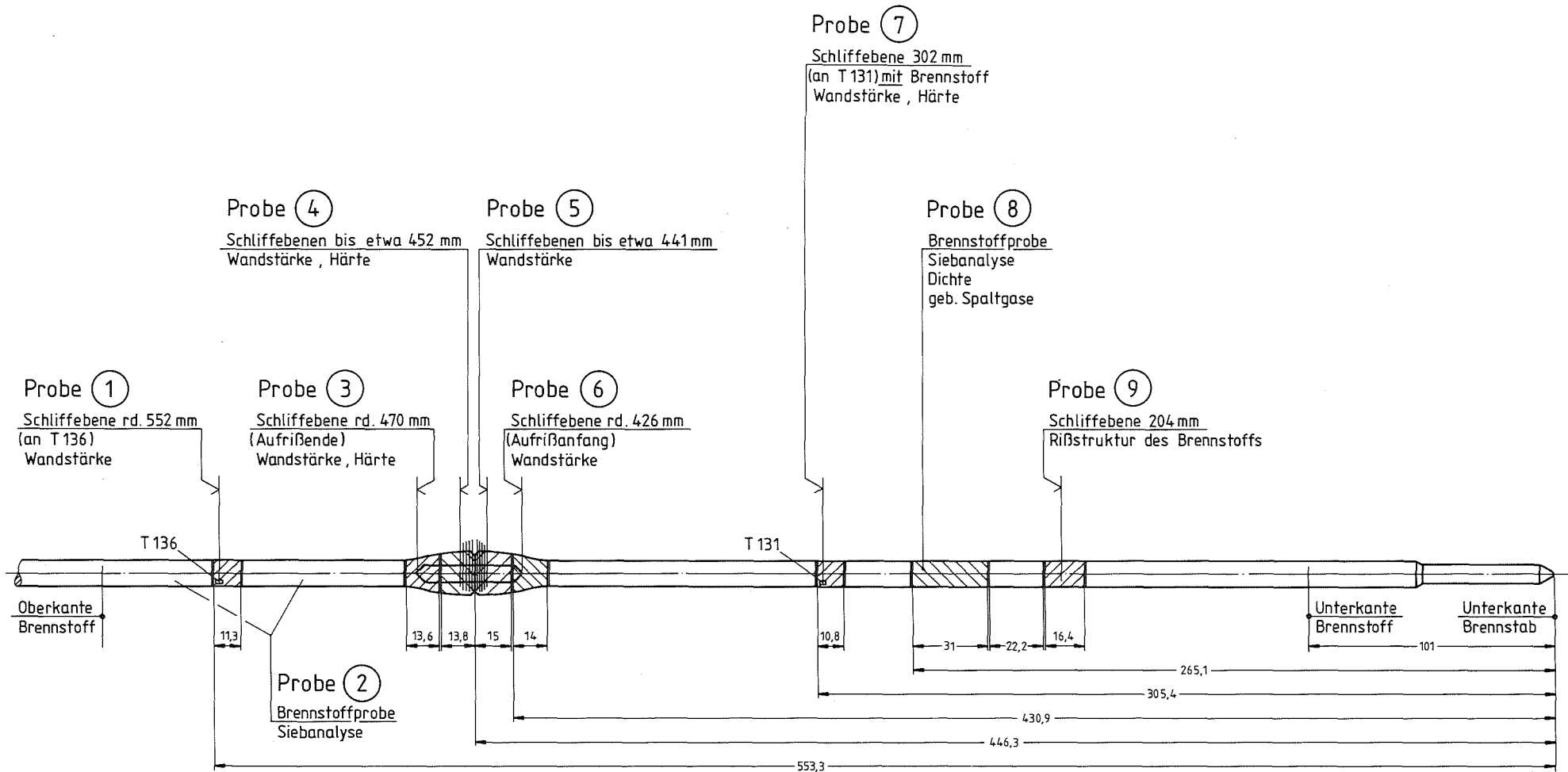
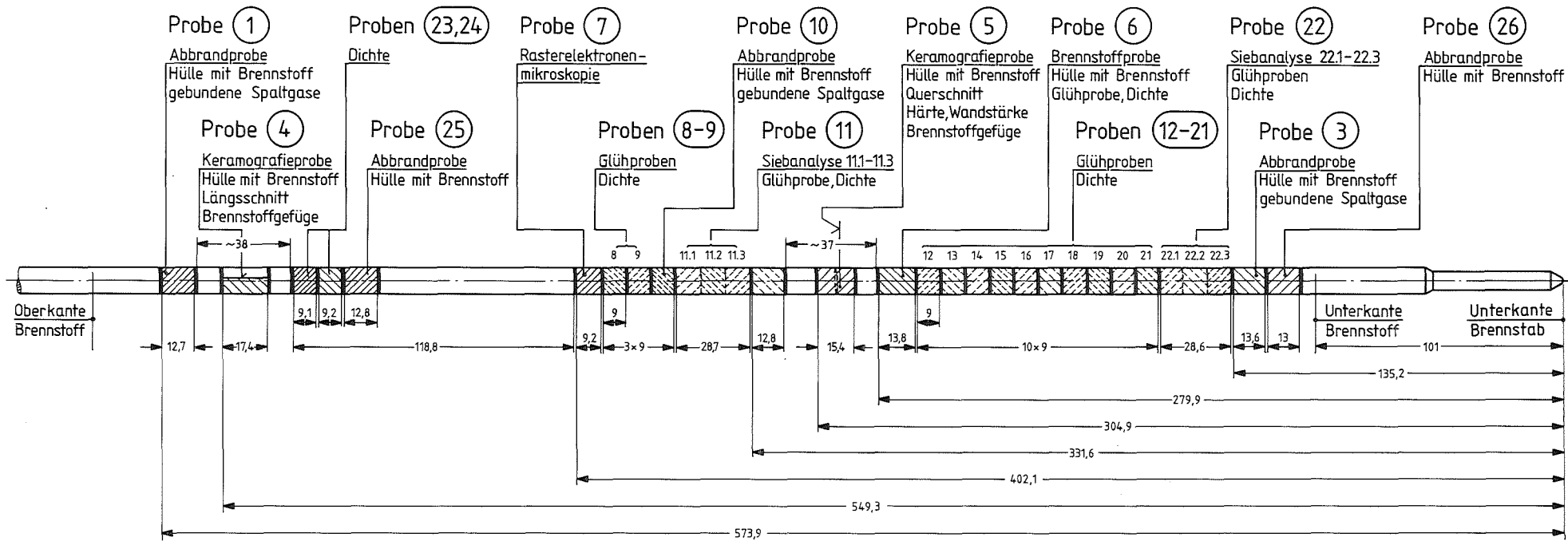


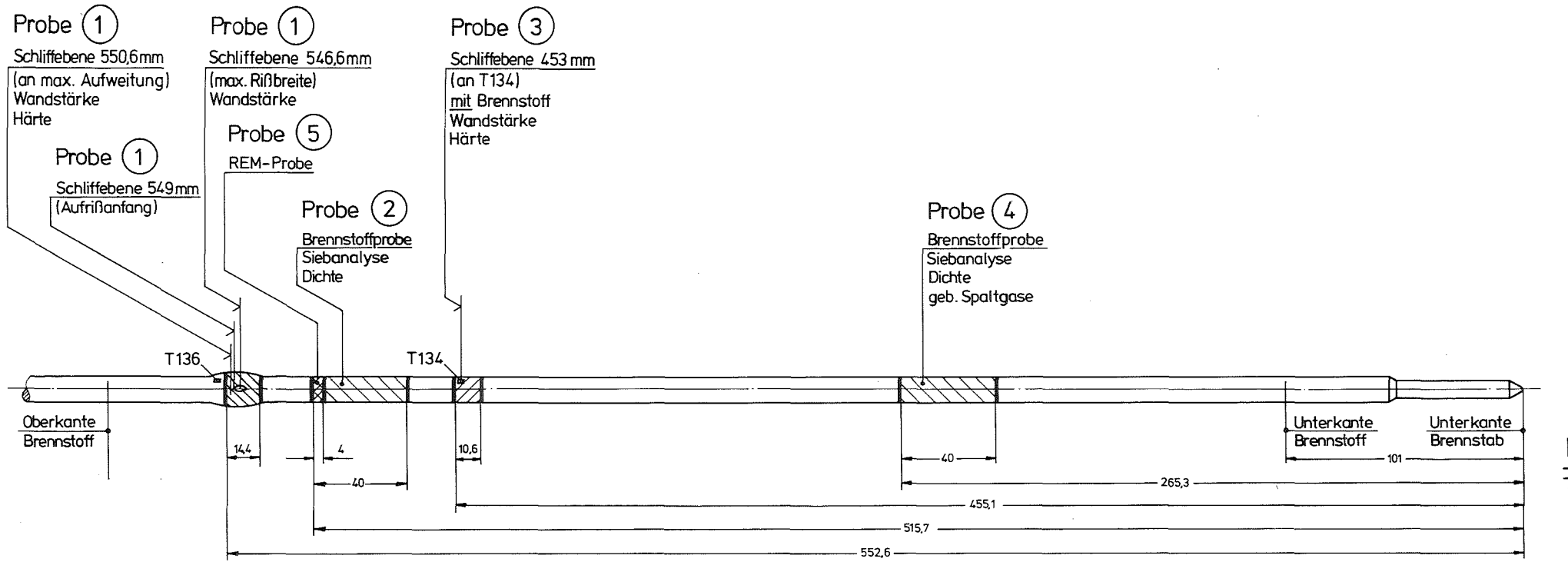
Abb. 1-5:

Schnittplan G1.5 (Abbrand: 35 000 MWd/t)



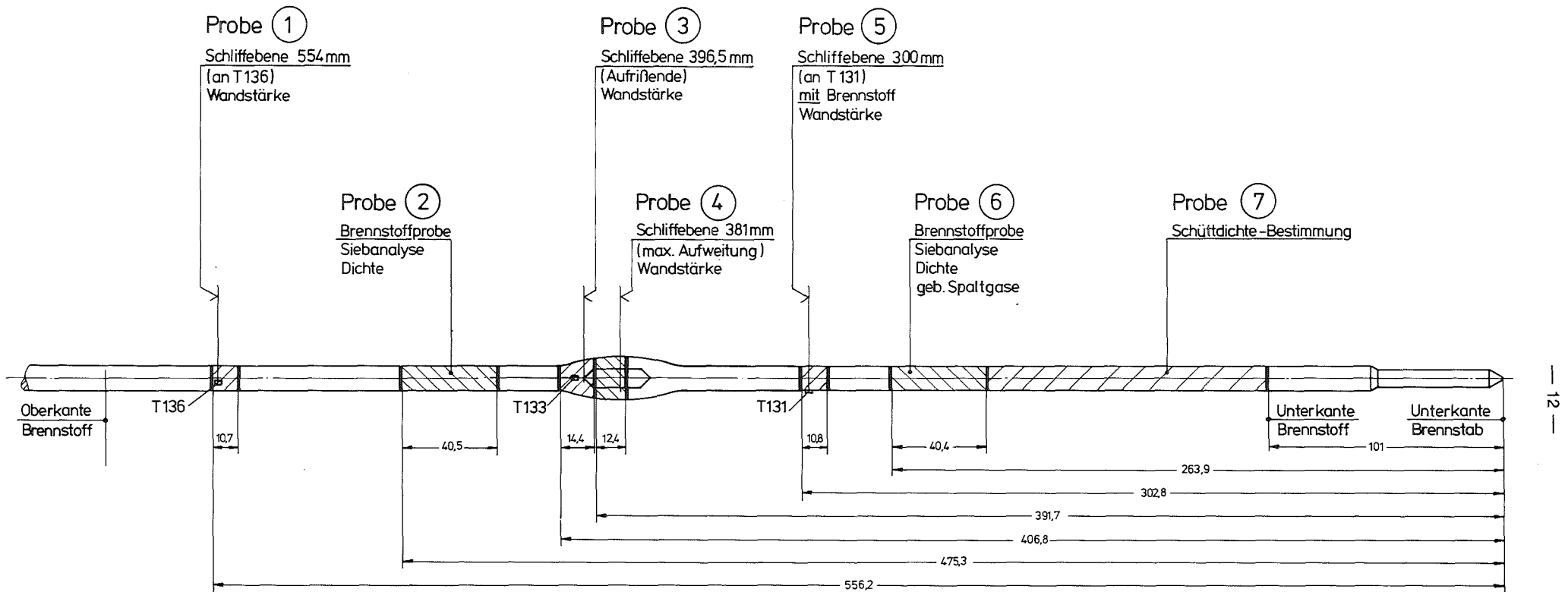
Schnittplan G 1.6 (Abbrand : 35000 MWd/t)

Abb. 1-6:

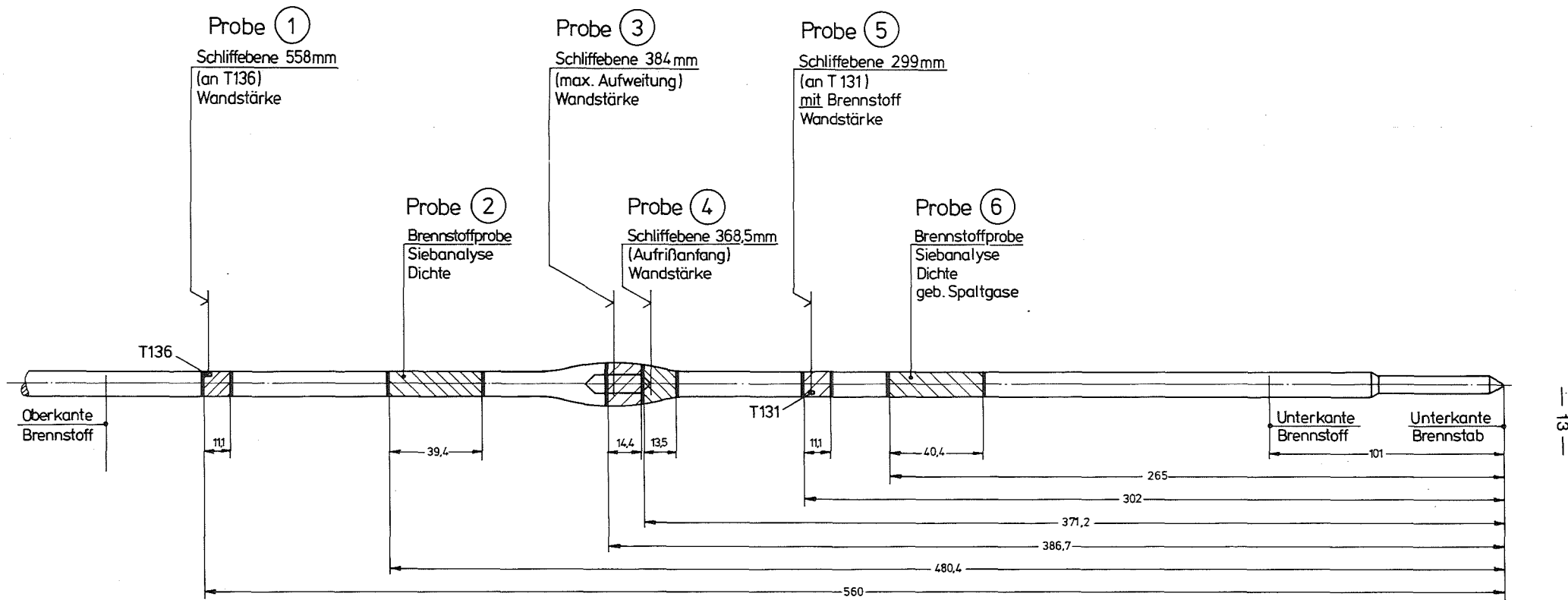


Schnittplan G2.1 (Abbrand: 35000 MWd/t)

Abb. 1-7:

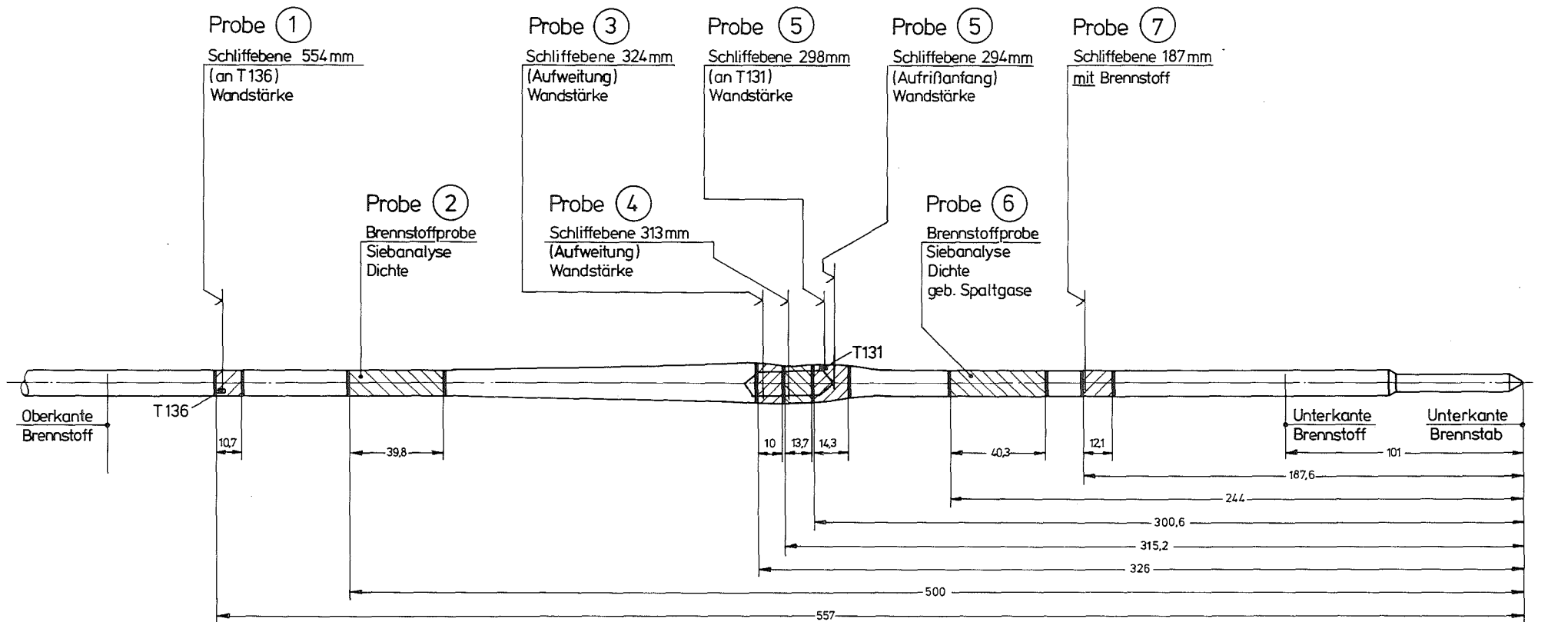


Schnittplan G2.2 (Abbrand : 35000 MWd/t)



Schnittplan G3.1 (Abbrand : 35000 MWd/t)

Abb. 1-9:

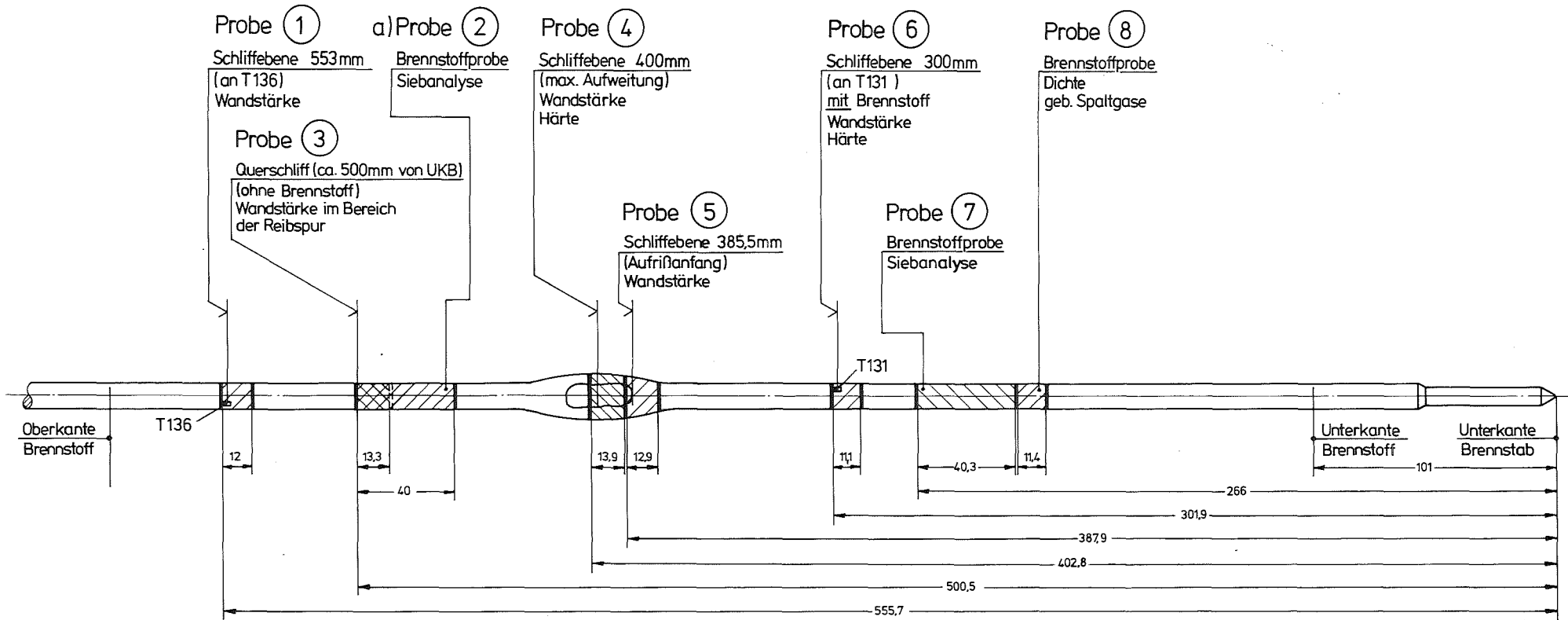


14

Abb. 1-10:

KfK IT 1981

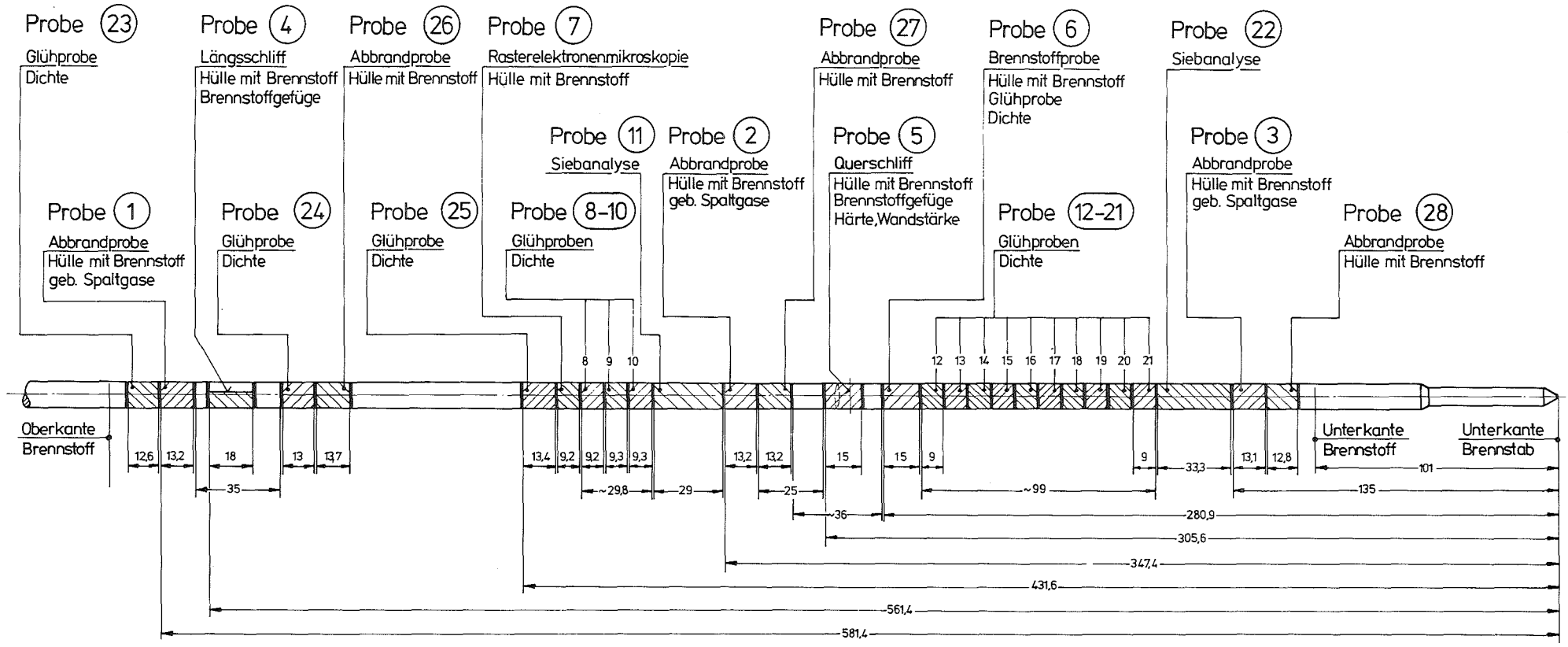
Schnittplan G3.2 (Abbrand : 35000 MWd / t)



Änderung: a) Probe 2 entfällt, da kein Brennstoff vorhanden.



Schnittplan G3.3 (Abbrand : 35000 MWd / t)



10

Schnittplan G3.6 (Abbrand : 35000 MWd/t)

Abb. 1-12:

2. Mechanisches Verhalten des Hüllrohres

2.1. Angaben zur Umfangsdehnung und Wandstärkenänderung

Aus den Übersichtsaufnahmen von Ebenen der maximalen Aufweitung wird für alle untersuchten Stäbe dieser Serie die maximale Umfangsdehnung gemessen. Diese Ebenen sind als Aufnahmen der Querschliffe in den Abbildungen 2-1 bis 2-9 dargestellt. Die dazugehörigen Umfangsdehnungen sind für die einzelnen Stäbe in Tabelle 2-1 aufgelistet.

Tabelle 2-1: Normale (ϵ_{U_O}) und wahre (ϵ_{U_W}) Umfangsdehnungen der untersuchten Stäbe der G-Serie.

Stab-Nr.	ϵ_{U_O} [%]	ϵ_{U_W} [%]
G 1.2	30	26
G 1.3	64	50
G 1.4	34	29
G 1.5	43	36
G 2.1	28	25
G 2.2	29	26
G 3.1	46	38
G 3.2	45	37
G 3.3	35	30

Dabei ergibt sich für die Stäbe G 3.2 und G 3.3 eine größere Umfangsdehnung, als sie bei der zerstörungsfreien Messung am Hüllrohr selbst ermittelt wurde /2-1, 2-2/. Wie in den Abbildungen 2-8 und 2-9 dargestellt, ist aus den Querschliffen der Grund ersichtlich, denn die Anteile der eingebördelten Rißenden sind bei einer Durchmesserbestimmung nicht zugänglich.

Die Wandstärkenänderungen wurden in der gleichen Weise bestimmt wie in /2-3/ beschrieben. Die Wandstärkenänderungsprofile werden im einzelnen nicht wiedergegeben, sondern nur zur Berechnung des Radialdehnungslokalisierungsparameter W_{θ} in Kapitel 2.2 benötigt. Dabei gilt als besonders kritische Größe die minimale Wandstärke beim Bersten. Die Bestimmung dieser Größe setzt gute Kenntnisse des Bruchverhaltens voraus, denn es muß der Zustand vor dem unkontrollierten Zerplatzen des Rohres erfaßt werden. In Tabelle 2.2. sind die aus Mikroschliffbildern bei 500facher Vergrößerung ausgemessenen minimalen Wandstärken \bar{S}_B aus beiden Reißenden gemittelt aufgelistet.

Tabelle 2.2: Minimale Wandstärken der untersuchten Stäbe der G-Serie

Stab-Nr.	\bar{S}_B [μm]
G 1.2	110
G 1.3	90
G 1.4	155
G 1.5	155
G 2.1	70
G 2.2	110
G 3.1	55
G 3.2	70
G 3.3	160

2.2. Quantifizierung der Umfangsdehnung in radialer und axialer Richtung des Stabes.

Zur Quantifizierung der Umfangsdehnung wurde ein Radialdehnungslokalisierungsparameter W_{θ} eingeführt (Definition ist in /2-4/ gegeben). Dieser Parameter war ursprünglich vorgesehen, Umfangsdehnungen aus verschiedenen Versuchsführungen zu vergleichen. Wegen des subjektiven Anteils bei Ausmessung der minimalen Wandstärken, führte dies in der Vergangenheit zu Fehlinterpretationen, sodaß in Abbildung 2-10 nur die W_{θ} -Werte aus FR-2 in-pile Versuchen der verschiedenen Serien A, B, F und G als Funktion der wahren Umfangsdehnung dargestellt werden. Dabei ergibt sich ein relativ breites Streuband mit der auch schon von Chung und Kassner /2-5/ gefundenen Tendenz, das mit zunehmender Umfangsdehnung W_{θ} kleinere Werte annimmt. Dies ist kein empirischer Zusammenhang sondern in der mathematischen Formulierung des W_{θ} Parameters enthalten /2-5/.

Der Axialdehnungslokalisierungsparameter W_z ermöglicht in Analogie zu W_{θ} eine Quantifizierung der Beulenform in axialer Richtung. Die Definition sagt aus, daß für $W_z \leq 0,5$ lange gleichförmige Beulen und für $W_z > 0,5$ eher kurze ausgeprägte Beulen entlang der Rohrachse erwartet werden.

Ein Vergleich der Versuchswerte der G-Serie und der Serie A, B und F (mit out-of-pile Berstdaten in /2-4/) in Abhängigkeit von der Berstzeit (Abb. 2-11) zeigt, daß alle in-pile Tests W_z -Werte $> 0,5$ erhalten. Lange gleichförmige Beulen werden eher von langsamen Aufheizgeschwindigkeiten bei geringen Innendrücken erzeugt, oder bei Versuchsbedingungen wie beim in pile Berstversuch E5 /2-6/, wo die Temperaturtransiente während des Beulvorganges verlangsamt wurde.

Ein Einfluß der Vorbestrahlung auf die Quantifizierungsparameter konnte nicht festgestellt werden.

2.3. Schlußfolgerungen und Zusammenfassung

- Die erreichten Bruchumfangsdehnungen der vorbestrahlten Stäbe dieser Serie unterscheiden sich unter vergleichbaren Berstbedingungen nicht von in-pile verformten Prüflingen ohne Vorbestrahlung.
- Die Werte der Radial- und Axialdehnungslokalisierungsparameter liegen für die vorbestrahlten und nicht vorbestrahlten Prüflinge im gleichen Streuband. Wegen der Empfindlichkeit von W_{θ} auf die minimale Wandstärke und bestehender subjektiver Anteile bei der Ausmessung dieser Größe ist ein Vergleich mit Literaturwerten unmöglich.
- Durch die Vorbestrahlung von 35 000 MWd/t_U wurde zumindest das Hüllrohr in seinem mechanischen Verhalten nicht beeinflußt.

2.4. Literatur

- /2-1/ M. Prüßmann, E.H. Karb, L. Sepold
"In-pile-Experimente zum Brennstabverhalten beim
Kühlmittelverluststörfall, Bericht über die Ver-
suchsserie G 1", KfK 3061 (1981)
- /2-2/ L. Sepold, E.H. Karb, M. Prüßmann
"In-pile-Experimente zum Brennstabverhalten beim
Kühlmittelverluststörfall, Bericht über die Ver-
suchsserie G 2/3", KfK 3099 (1981)
- /2-3/ P. Hofmann, C. Petersen, G. Schanz, H. Zimmermann
"In-pile Experimente zum Brennstabverhalten beim
Kühlmittelverluststörfall, Ergebnisse der zerstö-
renden Nachuntersuchungen der Versuchsserie F",
KfK 3288 (1982)
- /2-4/ E. H. Karb et.al.
"KfK In-pile Tests on LWR Fuel Rod Behavior During
the Heatup Phase of a LOCA",
KfK 3028 (1980), Part II, 52
- /2-5/ E. H. Karb et. al.
unveröffentlichter Bericht (1982)
- /2-6/ L. Sepold, E.H. Karb, M. Prüßmann
"In-pile-Experimente zum Brennstabverhalten beim
Kühlmittelverluststörfall, Bericht über die Ver-
suchsserie E", KfK 3345 (1982)

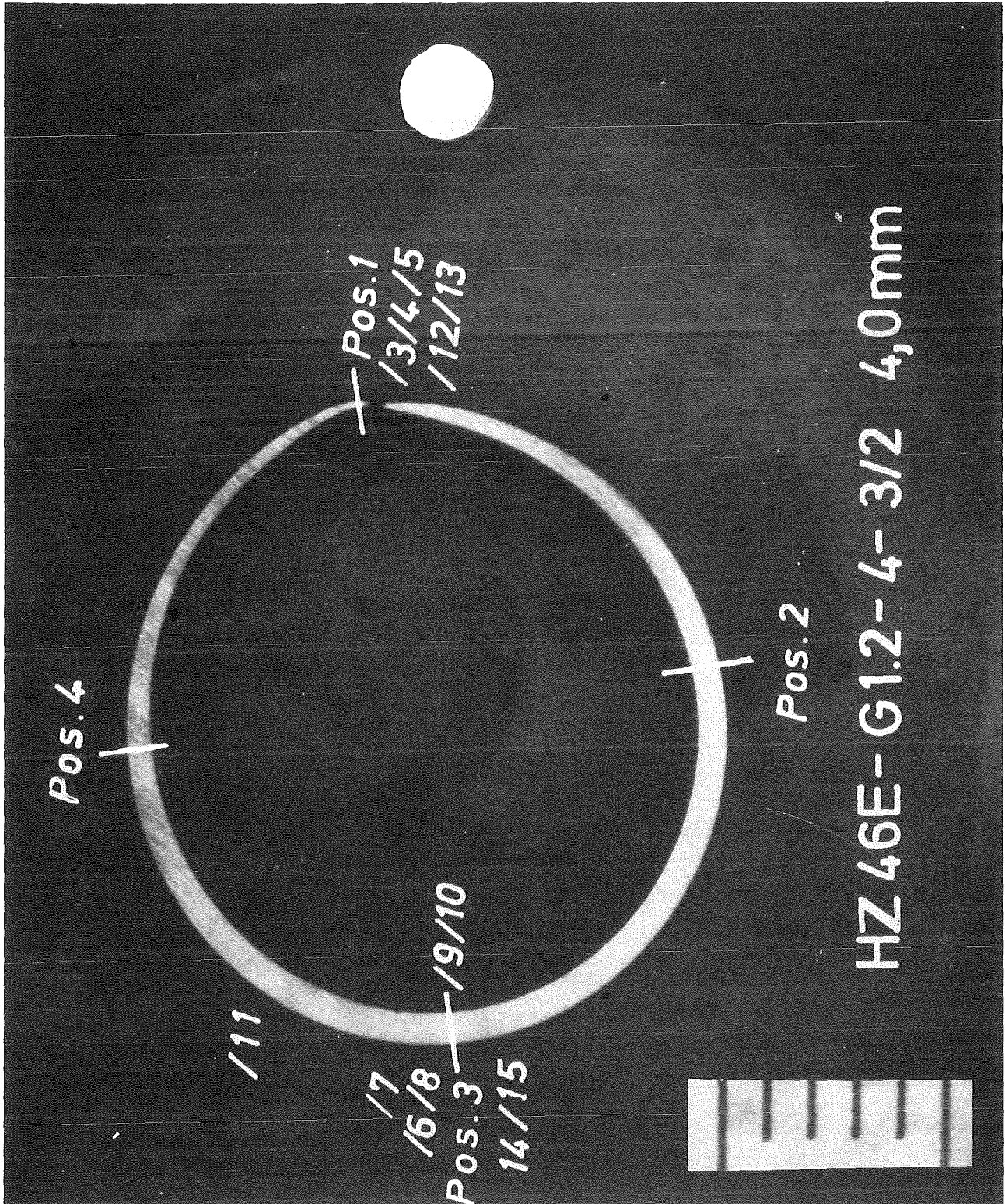


Abb. 2-1: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes G 1.2

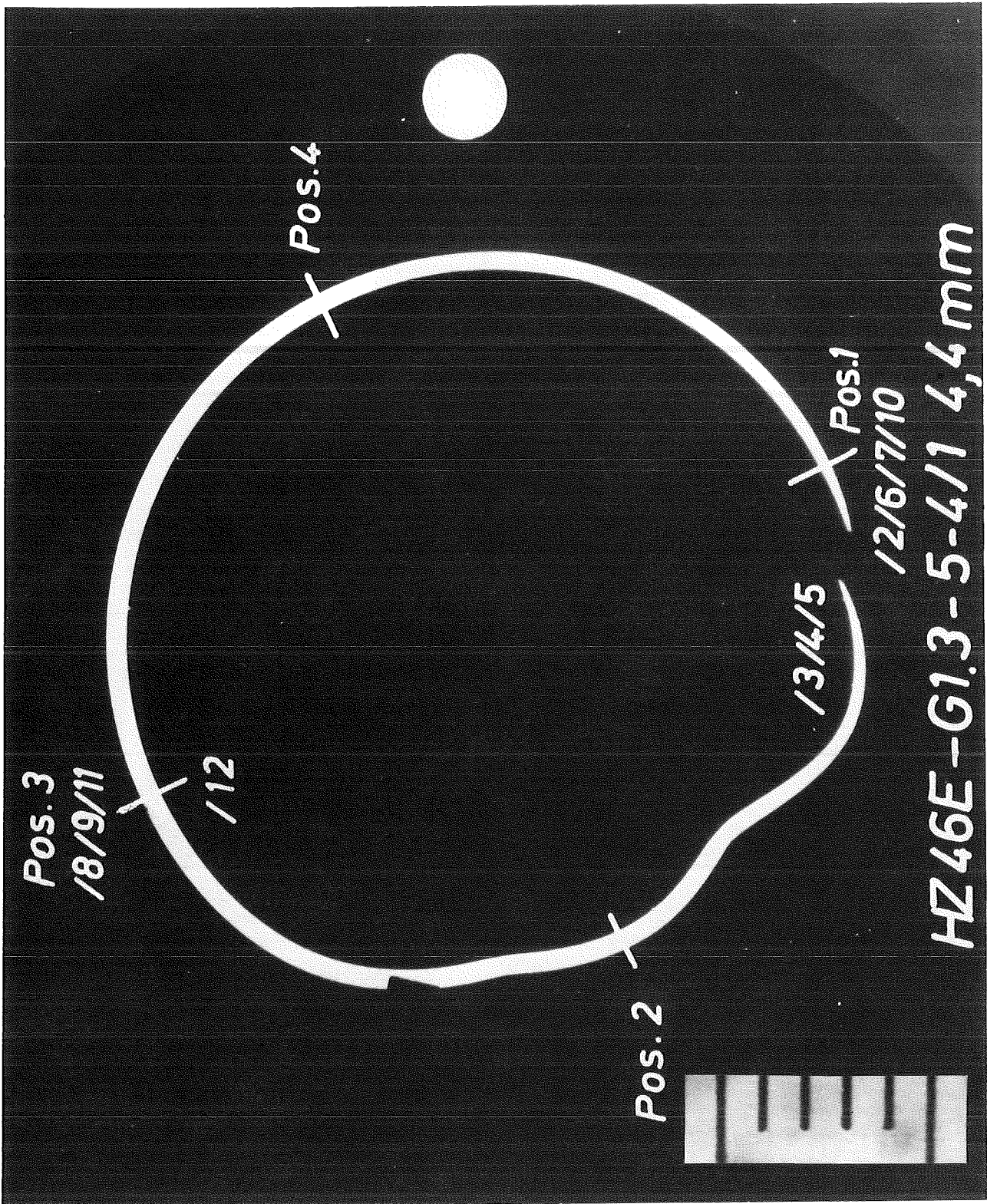


Abb. 2-2: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes G 1.3

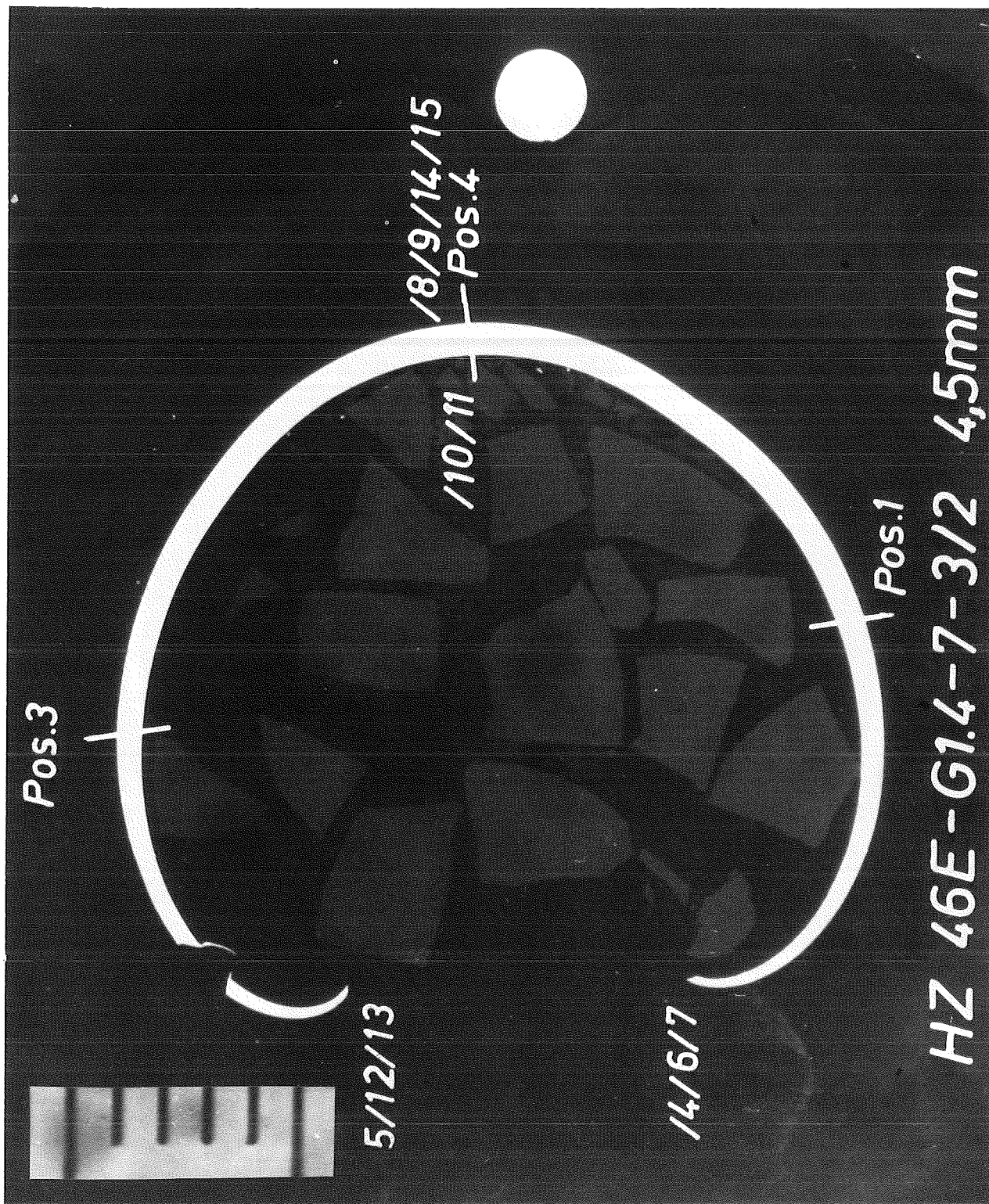


Abb. 2-3: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes G 1.4

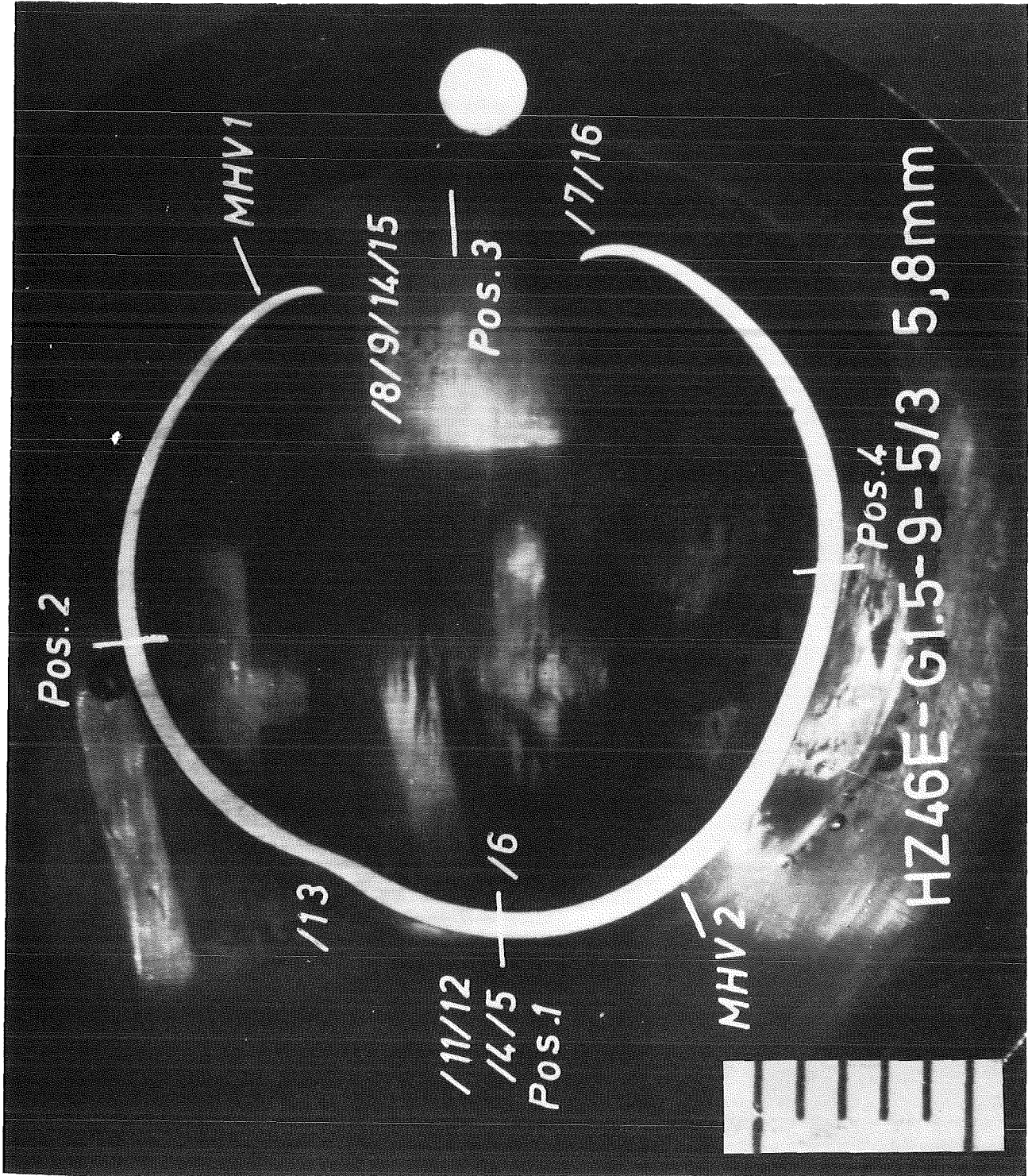


Abb. 2-4: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes G 1.5

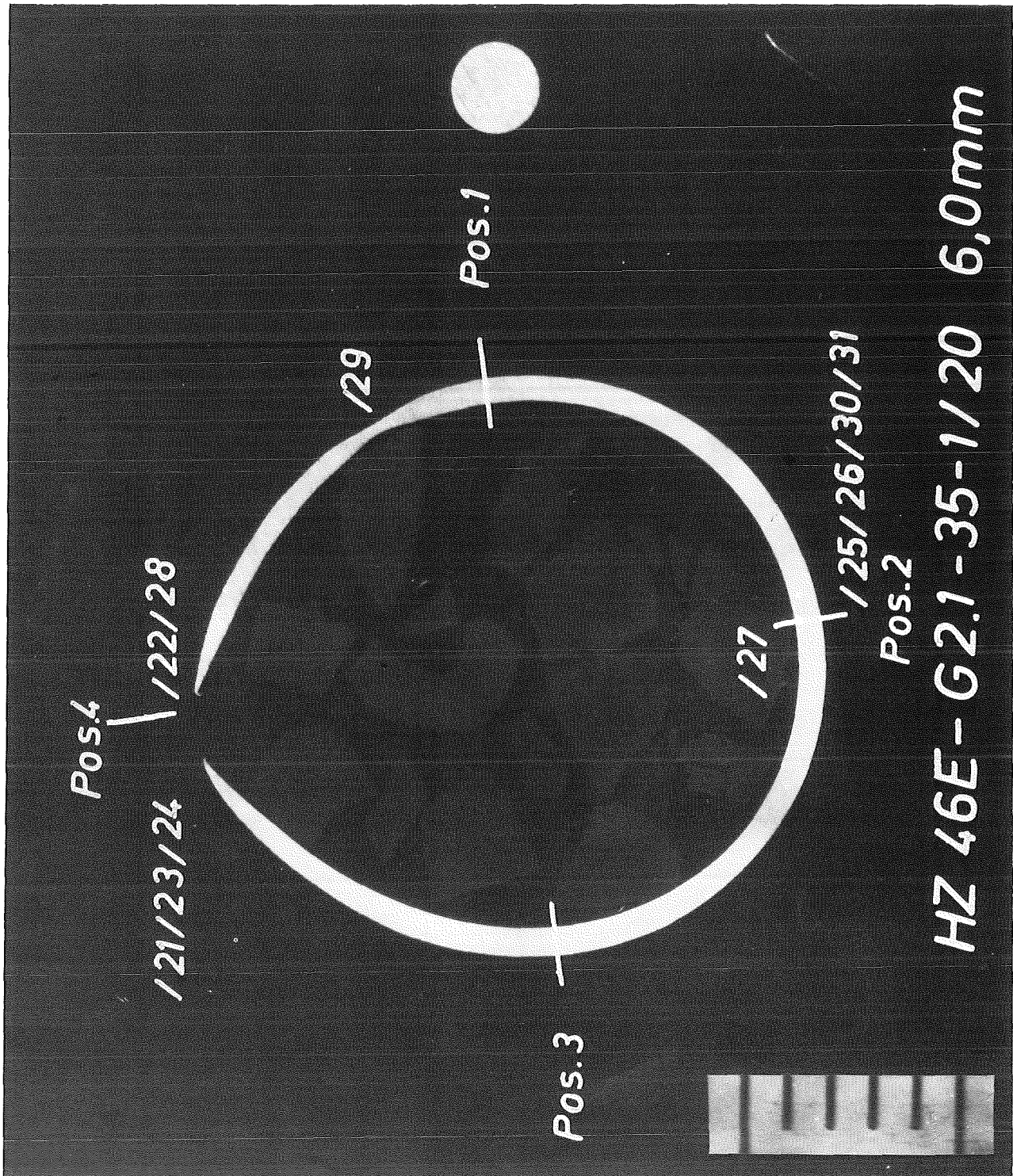


Abb. 2-5: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes G 2.1

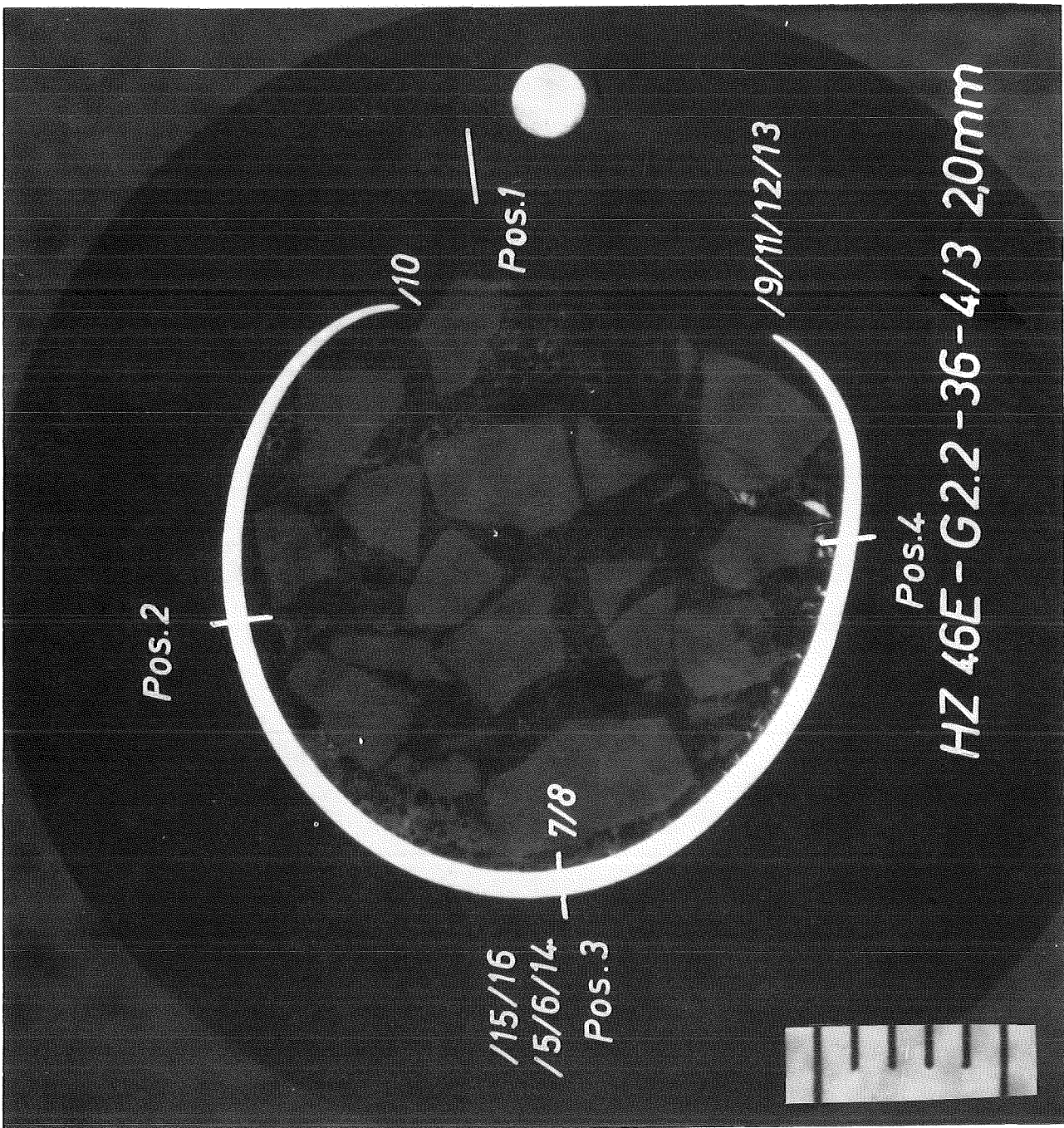


Abb. 2-6: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes G 2.2

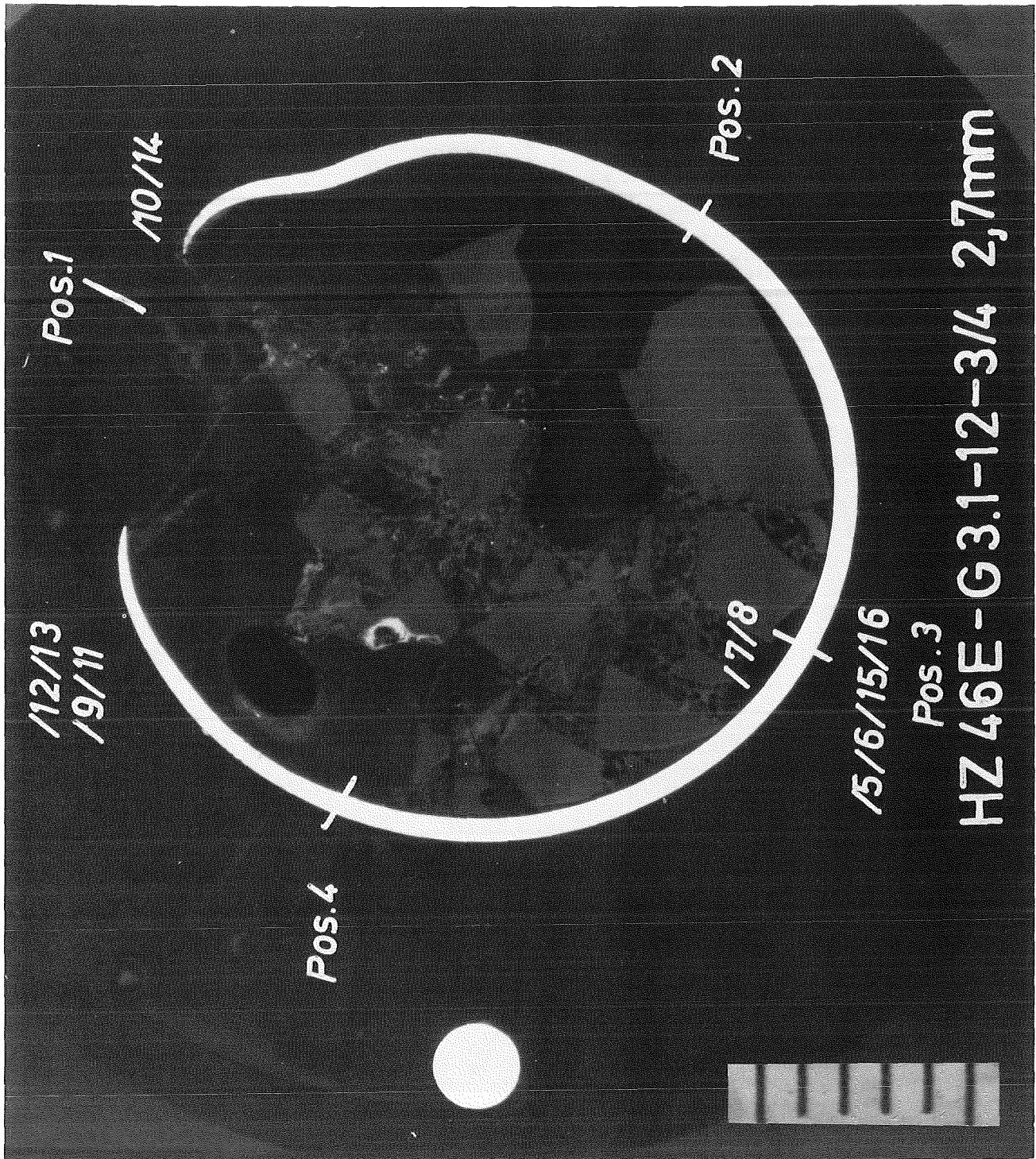


Abb. 2-7: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes G 3.1

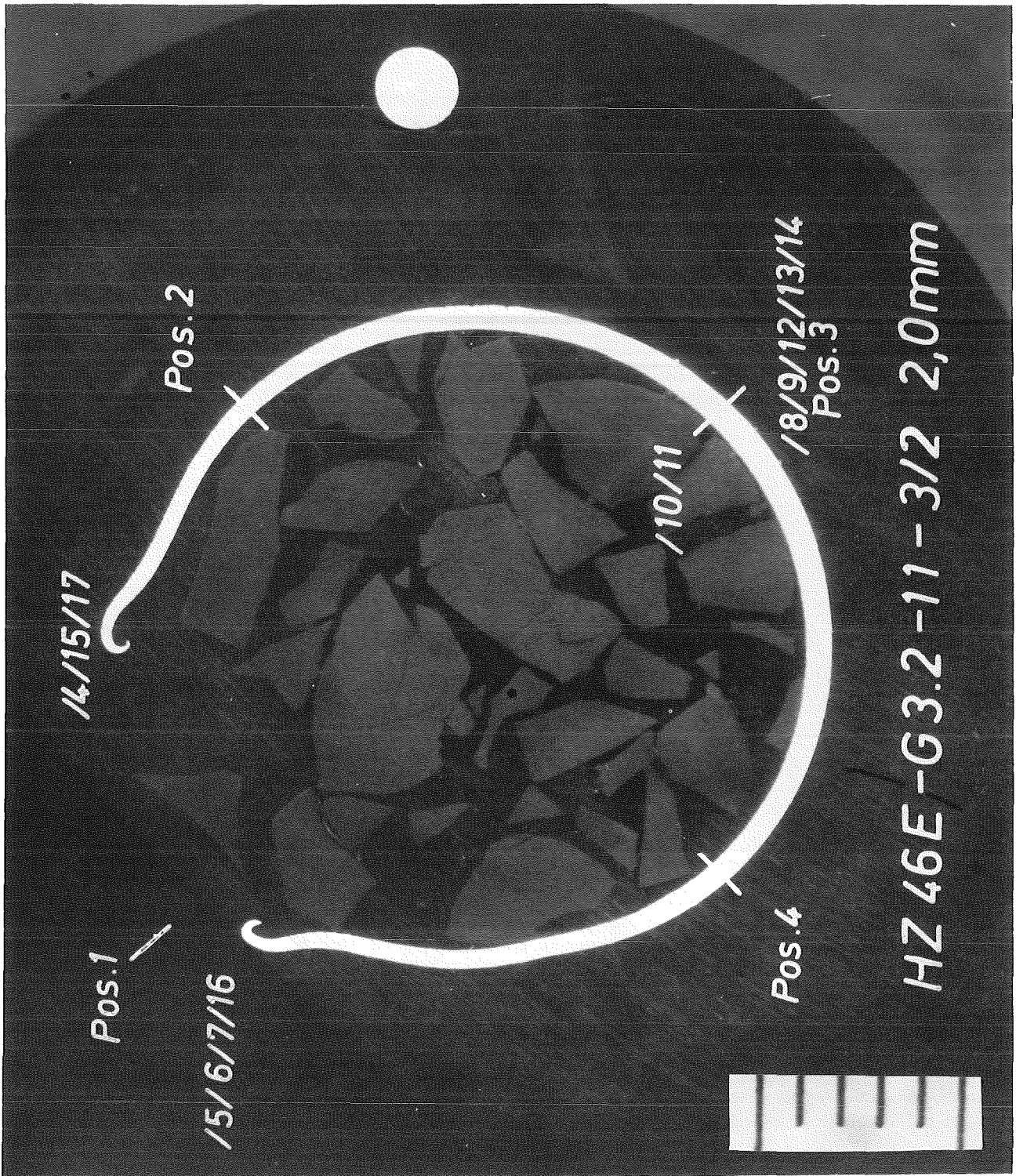


Abb. 2-8: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes G 3.2

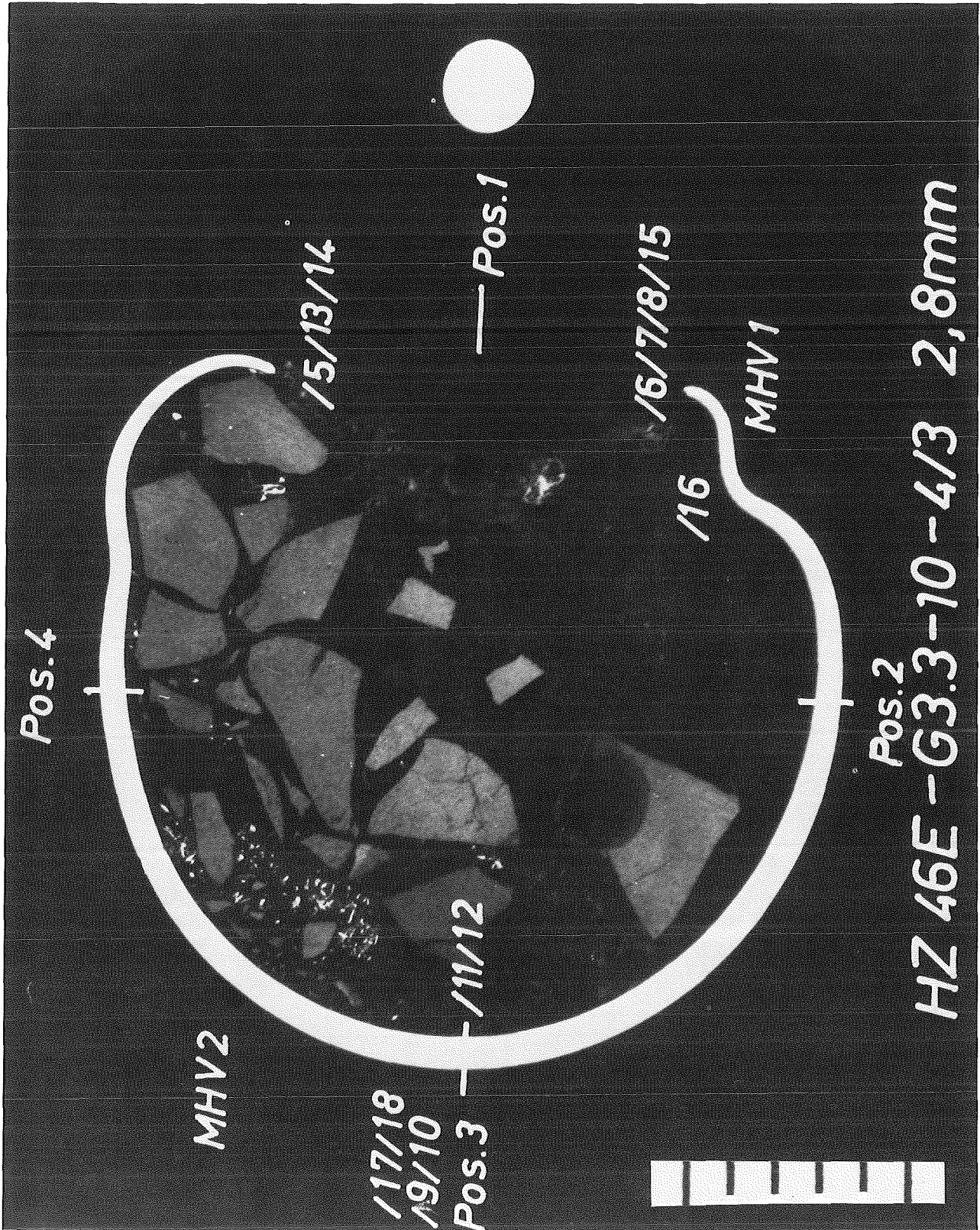


Abb. 2-9: Übersichtsaufnahme der Berststelle des Stabes G 3.3

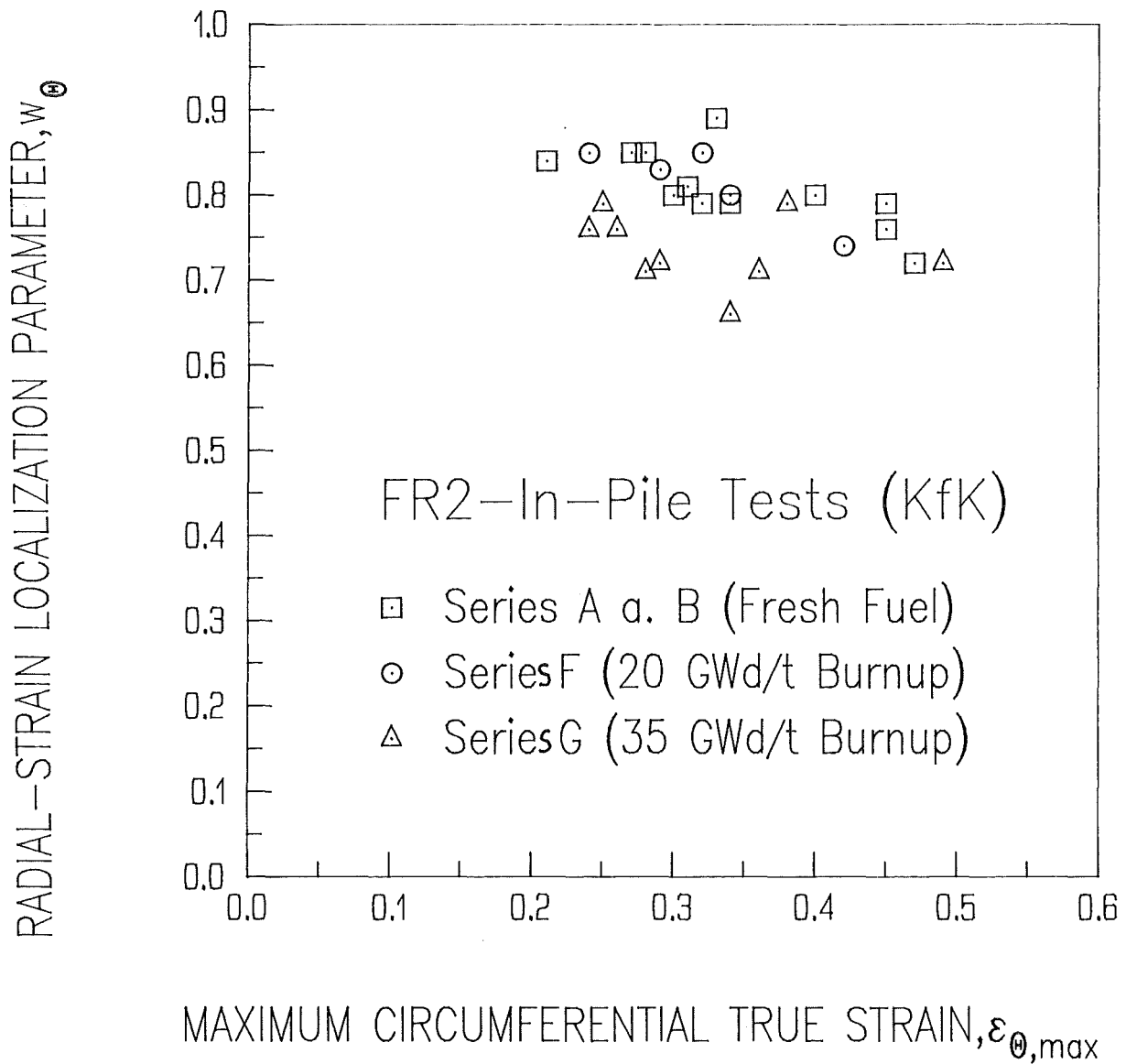


Abb. 2-10: Vergleich von Umfangsdehnungen der untersuchten FR2-in-pile Tests in Abhängigkeit vom Radialdehnungslokalisierungsparameter.

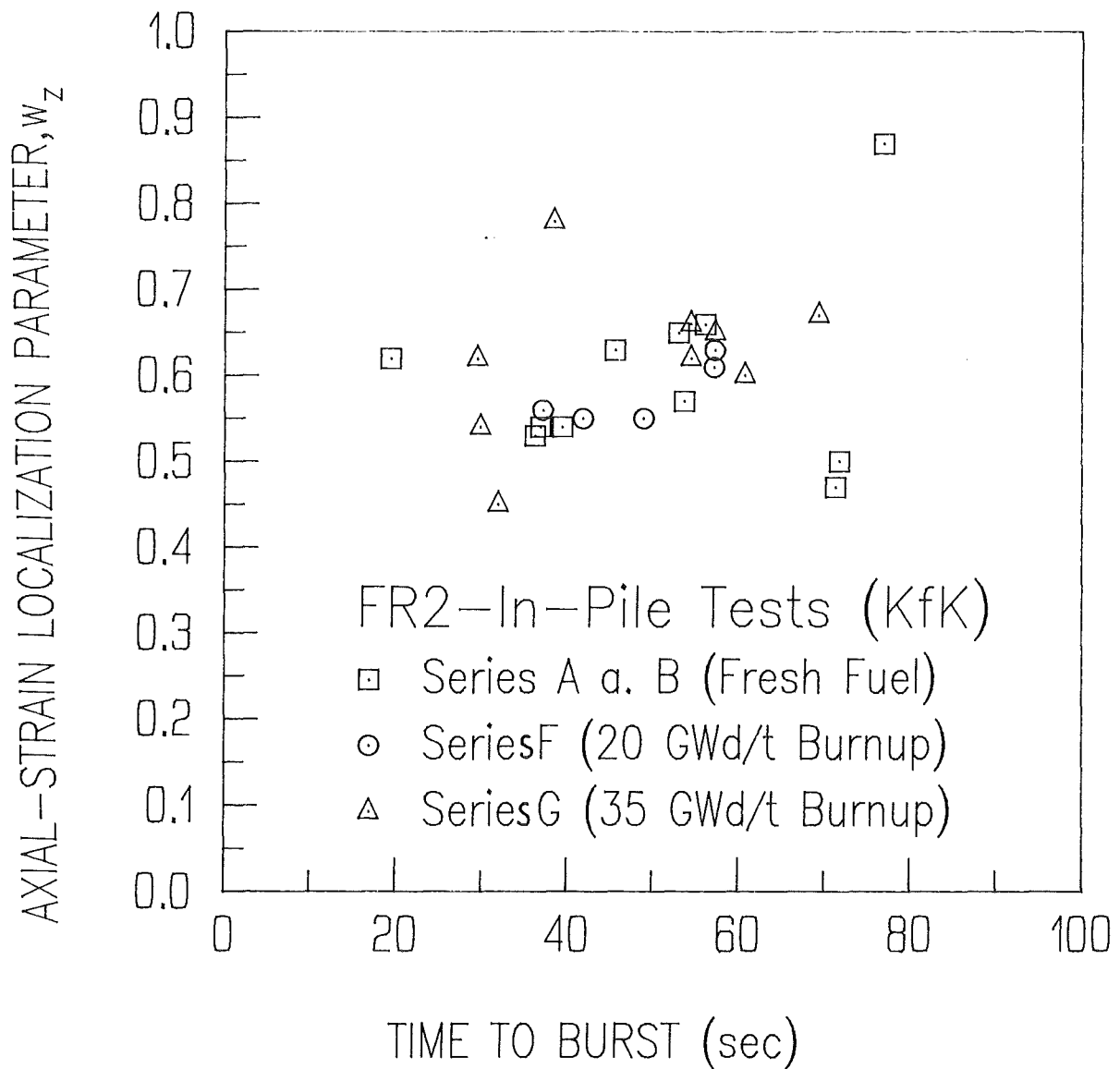


Abb. 2-11: Vergleich von Berstzeiten der untersuchten FR2-in-pile Tests und der out of pile Tests (in [2-4]) in Abhängigkeit vom Axialdehnungslokalisierungsparameter.

3. Allgemeines Oxidationsverhalten des Hüllrohres

3.1 Hüllrohrzustand nach Vorbestrahlung

Die Brennstäbe G1.6 und G3.6 wurden nach der Vorbestrahlung keiner Temperaturtransiente unterworfen, sondern direkt zur zerstörenden Nachuntersuchung zerlegt. Sie sind daher als typisch für den Vorbestrahlungszustand und damit für den Ausgangszustand der übrigen Stäbe der G-Serie zu betrachten.

Die Staboberflächen erwiesen sich im Bereich des Brennstoffs als hellgrau mit schwach blaugrau bis braunrot verfärbten Zonen in Höhe des oberen und unteren Endes der Brennstoffsäule. Diese Färbung der ursprünglich hell metallisch glänzenden Hüllrohre kann auf geringfügige Oxidation während der Bestrahlung der Brennstäbe zurückgeführt werden, die bei ca. 150°C maximaler Hüllrohrtemperatur stattfand.

Das in Abb. 3-1 dargestellte Zircaloy-Gefüge des Stabes G1.6 ist typisch für alle untersuchten Positionen und auch für den Stab G3.6. Im Längs- und im Querschliff ist das bei der Rohrherstellung durch Pilgern entstandene Verformungsgefüge mit in Rohrlängsrichtung gestreckten Körnern der α -Zr-Phase gezeigt. Die mikroskopische Beobachtung hat auch in unmittelbarer Nähe der inneren Rohroberfläche kein Anzeichen einer denkbaren chemischen Wechselwirkung mit dem Brennstoff ergeben und eine äußere Oxidation war im Gefüge ebenfalls nicht nachweisbar.

3.2 Außenansicht der geborstenen Brennstäbe

Vor der Zerlegung wurde der Zustand der Brennstäbe beurteilt und in Übersichts- und Detailaufnahmen der Außenansicht dokumentiert (Abb. 3-2 bis 3-4). Die Brennstabhüllen zeigen danach die folgenden Färbungsmerkmale: Im Bereich oberhalb des Brennstoffes bis zum oberen Enstopfen ist die Oberfläche der Hüllrohre einheitlich matt hellgrau. Im gesamten Brennstoffbereich überwiegt eine gleichmäßige bis fleckige matte, mittel- bis dunkelgraue Färbung. Hellgraue bis weiße Farbtöne treten nur bei drei Brennstäben fleckenweise auf: Der (nicht innendruckbelastete und daher nicht geborstene) Stab G1.1 zeigt im unteren Bereich hell gefärbte Zonen (Abb. 3-2). Stab G1.5 ist am oberen Rißende und an Stellen oberhalb des Risses hellgrau bis weiß gefärbt, während Stab G2.1

im Berstbereich und darunter in Richtung des Risses und über etwa den halben Rohrumfang ausgedehnt "weißes Oxid" trägt (Abb. 3-3 und 3-4). An den unteren Endstopfen der meisten Stäbe sind schwache blaugraue und braunrote Verfärbungen erkennbar.

Das Auftreten der genannten Färbungen kann im Detail nicht mit den Versuchsparametern der einzelnen Stäbe korreliert werden. Hellgraue Färbung außerhalb und die matt dunkelgraue Tönung innerhalb des Brennstoffbereichs sind die Folge geringfügiger bis stärkerer Oxidation des Zircaloy. Das dabei entstehende Oxid ist bekanntlich dunkelgrau bis anthrazit-schwarz im Normalfall, während bei Störungen des Schichtwachstums, mechanischer Schädigung der Schicht bzw. längerer Oxidationsdauer der Übergang in helles bis weißes und abblätterndes Oxid stattfinden (Breakaway-Effekt). Die hellen Zonen der Brennstäbe können auf die Bildung entsprechenden "weißen Oxides" zurückgeführt werden. Eine Erklärung für ihr Auftreten nur bei einigen Stäben und an den beobachteten speziellen Stellen kann jedoch nicht gegeben werden, zumal die Existenz weißen Oxides nach der relativ geringen Oxidation während der hier betrachteten Transienten noch nicht zu erwarten war. Da solche hellen Oxidfärbungen auch bei Brennstäben der F-Serie, jedoch nicht bei Stäben der Serien A und B aufgetreten sind, liegt die Vermutung nahe, daß die Bildung im ursächlichen Zusammenhang mit der Vorbestrahlung steht /3-1/. Wahrscheinlich beeinflusst der Zustand des dünnen, während der Bestrahlung gebildeten Oxidfilmes die Mechanismen der während der Transiente fortgesetzten Oxidation und begünstigt dabei den Übergang in weißes Oxid. Die Bildung weißen Oxides bei der Hochtemperatur-Wasserdampf-Oxidation von Zircaloy 4-Hüllrohrmaterial, das bei tieferer Temperatur in Dampf vorkorrodieren wurde, ist in out-of-pile Versuchen häufig beobachtet worden /3-2/ /3-3/ /3-4/. Auch aus Nachuntersuchungen von Hüllrohren nach Reaktoreinsatz ist sie bekannt und nach Literaturangaben in diesen Fällen im Brennstoffbereich und an Schweißstellen aufgetreten (Breakaway-Effekt, "nodular corrosion").

Zur Bestätigung der gegebenen Interpretation für das Auftreten des weißen Oxides wurde der Brennstab G2.1 axial unterhalb der Berstzone (bei Schliffebene 5) rasterelektronen-mikroskopisch untersucht und zwar in azimutalen Richtungen, in denen normales graues, weißes Oxid sowie der Übergang zu beobachten waren (Abb. 3-5 bis 3-8). Abb. 3-5 zeigt eine Stelle mit den dehnungsbedingten, axial verlaufenden Anrissen in weißem Oxid, das offensichtlich

durch eine rauhe, zerklüftete Oberfläche gekennzeichnet ist. Abb. 3-6 und 3-7 zeigen im Vergleich dreier Stellen (graues Oxid, Übergangsbereich, weißes Oxid), daß im Bereich des normalerweise gebildeten grauen Oxides die Feinstruktur der ursprünglich metallischen Rohroberfläche trotz Oxidation noch sichtbar ist: Dabei handelt es sich um azimuthal verlaufende flache Riefen in der Oxid-Oberfläche, welche die Kaltverformung oder die Schleifriefen widerspiegeln, die bei der Rohrfertigung eingebracht worden sind. Demgegenüber ist diese Oberflächenstruktur im Bereich weißen Oxides weitgehend zerstört, da dort offenbar dünne Teilschichten des Oxides in einzelnen Schuppen abgeblättert sind und den schichtförmigen Aufbau des weißen Oxides erkennen lassen. Im Übergangsbereich des beginnenden Abblätterns treten ursprüngliche und durch Abplatzungen aufgerauhte Oberflächenanteile nebeneinander auf. Auch werden feinere Anrisse durch die Oberflächenaufrauhung überdeckt (Abb. 3-7). Der schichtförmige Aufbau des weißen Oxides wird auch an den Flanken tiefer Anrisse und an der Spaltfläche eines (durch das Heraustrennen der untersuchten Probe verursachten) Bruches tief in der Oxidschicht deutlich (Abb. 3-8). Dieser Aufbau des weißen Oxides und die Abplatzungen bestätigen als Merkmale des Breakaway-Effektes die gegebene Deutung des weißen Oxides als Wachstumsform nach Verlust der Schutzwirkung einer ursprünglich kompakten, die Oxidation hemmenden Schicht. An Stellen mit weißer Färbung sind daher dickere ZrO_2 -Schichten zu erwarten. Darauf wird im folgenden Kap. eingegangen.

3.3 Oxidationszustand der Hüllrohre

3.3.1 Außenseite

Im Verlauf der Transiente hat sich im Kontakt mit dem Dampf eine haftfeste und - von den dehnungsbedingten Anrissen abgesehen - dichte Oxidschicht ausgebildet. Die aufgrund der Hüllrohrdehnung entstandenen axial verlaufenden Risse im Oxid sind in unregelmäßigen Abständen über den Umfang verteilt. Sie erscheinen im Querschliff als Kerben, breitere Mulden oder flache Gräben je nach Ausmaß der lokalen Dehnung sowie ihrer frühzeitigen Stabilisierung oder ihrer ständigen Ausweitung. Die durch Anreißen des Oxides neu exponierten Oberflächenanteile unterlagen der fortschreitenden Oxidation, während sich weiter Risse (auch innerhalb

älterem Risse) bildeten. Nach dem Bersten hat sich die Oxidschicht noch deutlich verstärkt. In den Reißbereichen (Kerbgrund) ist die Oxidation durch begünstigten Sauerstofftransport im geschädigten Oxid weiter in den metallischen Werkstoff vorgedrungen. An den stark gedehnten Stellen des Hüllrohres neigt das zerrissene Oxid - spätestens bei der metallographischen Präparation - zum Ausbrechen, so daß dort meist nur noch eine nach dem Bersten gebildete gleichmäßige Oxidschicht registriert werden kann. Beispiele für die beschriebene Ausbildung des äußeren Oxides, die im übrigen mit den Ergebnissen der Versuchsserien A, B und F übereinstimmt, sind in Abb. 3-9 bis 3-15 gezeigt.

Die darüberhinaus beobachtete, vom typischen Oxidationsverhalten abweichende Bildung dicker Oxidschichten ist in Abb. 3-9 bis 3-11 und 3-13 dargestellt. Die eng begrenzten und linsenförmig aussehenden oder weiter ausgedehnten Oxidschichtbereiche sind typischerweise durch breite Risse auseinandergezogen (Abb. 3-11). Die Hüllrohrdehnung hat sich dort offenbar konzentriert. Da es sich jedoch um insgesamt seltene lokale Erscheinungen handelt, ist daraus kein nachweisbarer Einfluß auf das Berstverhalten der Hüllrohre abzuleiten. Die einheitliche Stärke der α -Zr(O)-Schicht unter dem dicken Oxid und der im Reißgrund neu gebildeten dünnen Oxidschicht in Abb. 3-11 zeigt, daß die starke Oxidation nicht durch örtliche Temperaturspitzen sondern durch rasches Wachstum einer defekten und daher nicht schützenden Oxidschicht verursacht wird. Das bestätigt die in Kap. 3.2 gegebene Interpretation des an dieser Stelle registrierten weißen Oxides.

Durch Sauerstoffdiffusion aus dem Oxid in die Zircaloy-Matrix bildet sich die sauerstoffstabilisierte α -Zr(O)-Phase als weitere Deckschicht unter dem ZrO_2 (Abb. 3-11). Diese Schicht konnte bereits im polierten Zustand der metallographischen Schliffproben aufgrund ihrer höheren Härte sichtbar gemacht und ausgemessen werden. Beim anschließenden chemischen Polieren und Ätzen erwies sich dann allerdings eine gewisse Kantenabrundung der Proben als unvermeidlich, so daß die Schicht in diesem Präparationszustand meist nicht mehr verlässlich meßbar und photographisch unverfälscht darzustellen war. Die gebildete α -Zr(O)-Schicht ist im Verlauf der Transiente gleichmäßig gewachsen und hat im Normalfall etwa die Dicke der angrenzenden Oxidschicht erreicht. Im direkten Bereich aufgerissenen und daher rascher gewachsenen Oxides be-

sonders im Rißgrund, ist sie durch Aufzehrung von außen her etwas dünner und wellig zur Matrix abgegrenzt.

Die Dicke der ZrO_2 - und der α -Zr(O)-Schicht wurde in der Regel für jede untersuchte Schlifffebene in 4 azimutalen Richtungen des Hüllrohres direkt am Mikroskop gemessen. Die Ergebnisse wurden mit der Dicke fotografisch abgebildeter Schichten verglichen. Die registrierten Schichtdicken sind in Tab. 3.1 zusammengestellt. Zur Orientierung werden Azimutwinkel zwischen einer Kerbmarkierung (am unteren Brennstab-Stopfen) und der betreffenden Stelle des Stabes angegeben; bei Blick von oben auf den Stab gilt der Uhrzeigersinn. Die Meßwerte sind für Stellen typisch, die möglichst wenig durch Rißbildung im Oxid beeinflußt sind. Offenbar sind die Schichtdicken hauptsächlich von der lokalen Temperatur abhängig, wie der Vergleich mit den ebenfalls in der Tabelle angegebenen Temperaturwerten zeigt. Diese Abhängigkeit ist, wie in Abb. 3-16 nachgewiesen trotz relativ großer Streuung gegeben. In diesem Diagramm ist zum Vergleich das für die Versuche der Serien A, B und F früher ermittelte Streuband eingetragen /3-1/. Offensichtlich ist in der Regel das Ausmaß der Hüllrohr-Außenoxidation der G-Stäbe mit dem der bisher untersuchten Brennstäbe vergleichbar. Die Ausnahme bilden die lokalen Erscheinungen der verstärkten Oxidation aufgrund starker Dehnung an der Berststelle sowie der Bildung weißen Oxides (Breakaway-Effekt).

3.3.2 Innenseite

In Höhe des Risses ist die Oxidation der Hüllrohr-Innenseite deutlich ausgeprägt. Das Oxid bildet trotz stellenweise recht rauher Oberfläche eine kontinuierliche Schicht; die darunterliegende α -Zr(O)-Schicht ist gleichmäßiger und etwa ebenso stark. Die für die Außenoxidation typischen Anrißkerben im Oxid werden innen nicht entsprechend deutlich beobachtet. Jedoch kann nach der Morphologie eine gewisse Oxidation schon vor dem Bersten des Hüllrohres meistens nicht ausgeschlossen werden. Eine solche ist während der Vorbestrahlung und der Transiente im Kontakt mit dem Brennstoff zu erwarten. Offenbar überwiegt jedoch die Oxidation nach dem Bersten des Hüllrohres, die durch den eingedrungenen Dampf verursacht wird. Überraschenderweise ist in Höhe des Berstbereiches die gesamte Innenoxidation stärker als die Oxidation an der jeweiligen Stelle

der Außenseite. Die Abb. 3-12 und 3-13 zeigen im direkten Vergleich von Außen- und Innenseite Beispiele für dieses Ergebnis, das für alle untersuchten Brennstäbe der G-Serie die Regel ist. Die Ursache der im Vergleich zur Außenseite verstärkten Innenoxidation, die auch für die Stäbe der F-Serie, jedoch nicht für die der A- und B-Serien beobachtet wurde, ist ungeklärt. Ein Zusammenhang mit der Vorbestrahlung liegt jedoch nahe. Es ist wahrscheinlich, daß (entsprechend der Argumentation in Kap. 3.2 hinsichtlich des Auftretens von weißem Oxid) eine während Vorbestrahlung und Beginn der Transiente gebildete defekte, und daher weniger schützende, Oxidschicht die weitere Dampfoxidation nach dem Hüllrohrbersten beschleunigt hat. Damit wäre auch die vielfach gemachte Beobachtung erklärbar, daß die innere α -Zr(O)-Schicht dünner als die äußere zu sein scheint (Siehe Tab. 3.1).

In den anderen, von der Berststelle weiter entfernten Schliffebenen hingegen ist auf der Innenseite in der Regel eine geringere Oxidation im Vergleich zur Außenseite nachgewiesen worden (Abb. 3-14 und 3-15). Die Dicke der Schichten nimmt mit zunehmendem Abstand von der Berststelle ab (Abb. 3-14). Für das Beispiel dieses Hüllrohres ist in 6 cm Abstand von der Berstöffnung die Oxidschicht innen noch dicker als außen und in etwa 16 cm Abstand ist innen noch Oxid nachweisbar. Diese Ergebnisse variieren im Vergleich der einzelnen Brennstäbe: Meist ist in etwa 10 cm Abstand von der Berstöffnung kaum noch eine kontinuierliche ZrO_2 -Schicht nachweisbar, allenfalls noch ein dünner Saum von α -Zr(O)-Phase bzw. nur ein durch aufgenommenen Sauerstoff verändertes Matrixgefüge im inneren Randbereich. Auch eine azimutale Variation der Innenoxidation wurde nachgewiesen (Abb. 3-15). Die Abnahme der Oxidation mit zunehmendem Abstand von der Berstöffnung ist auf Dampfverarmung der Atmosphäre zurückzuführen, die Anteile an Füllgas und zunehmende Mengen freigesetzten Wasserstoffs enthält.

Die für die Hüllrohrinnenseite gemessenen ZrO_2 - und α -Zr(O)-Schichtdicken sind ebenfalls in Tab. 3.1 zusammengestellt.

3.4. Gefüge und dessen Auswertung auf die lokal erreichte Maximaltemperatur

Der Gefügestand der Zircaloy-Hüllrohre wurde vorwiegend unter-

sucht, um daraus Rückschlüsse auf die während der Transiente erreichte Höchsttemperatur zu ermöglichen. Die im Temperaturbereich von etwa 800-1050°C praktikable Methode erlaubt eine Gegenprüfung der Thermoelement-Meßergebnisse und darüberhinaus eine Abschätzung der lokal erreichten Temperatur und ihrer axialen und azimutalen Variation.

3.4.1 Zum Verfahren der Temperaturabschätzung

Nach dem Zircaloy-Sauerstoff-Zustandsdiagramm ist 820-970°C der ($\alpha+\beta$)-Zweiphasenbereich für den nicht-oxidierten Werkstoff. Näherungsweise gilt dieser Bereich auch noch für die Wandmitte wenig oxidierter Rohre. Als Temperatur/Gefüge-Näherungsbeziehung wird die Gleichung $T_{\max} \text{ |}^\circ\text{C|} = 820 + 150 \cdot f_{\beta,\max}$ zwischen der Maximaltemperatur T_{\max} und dem maximalen Volumenanteil $f_{\beta,\max}$ der β -Phase im Gefüge benützt.

Die hauptsächliche Schwierigkeit des Verfahrens besteht darin, den korrekten Volumenanteil der β -Phase zu erkennen, der bei der Maximaltemperatur vorhanden war, da sich bekanntlich die β -Hochtemperaturphase bei der anschließenden Abkühlung umwandelt. Daher werden die auszuwertenden Gefüge-Mikroaufnahmen zur Kontrolle des Verfahrens mit entsprechenden Standard-Aufnahmen von Proben verglichen, die im out-of-pile Laborversuch bei konstanter und bekannter Temperatur oxidiert worden sind bzw. während der Oxidation einer Temperaturtransiente bekannten Verlaufs unterworfen waren /3-2, 3-3/.

Solche Vergleichsproben haben gezeigt, daß sich der Gleichgewichtsanteil der β -Phase beim Erhitzen rasch einstellt. Bei der Abkühlung der β -Phase entsteht das nadelige α' -Gefüge. Konkurrierend dazu tritt auch die $\beta \rightarrow \alpha$ -Umwandlung durch Wachstum und Sauerstoffaufnahme bereits vorhandener α -Bereiche auf, wenn Abkühlung aus dem ($\alpha+\beta$)-Gebiet, geringe Kühlgeschwindigkeit bzw. starke Verformung des Ausgangsgefüges diesen Umwandlungstyp begünstigen. Bei erneuter, stärkerer Erhitzung verschwinden die Merkmale des ursprünglichen zugunsten des für die absolut höchste Temperatur typischen Gefüges. Außerhalb des ($\alpha+\beta$)-Zweiphasenbereichs läßt das Gefüge andere Hinweise auf seine Bildungstemperatur erkennen. Im oberen Stabilitätsbereich der α -Zircaloy-

Phase ($< 820^{\circ}\text{C}$) tritt Rekristallisation und starkes Kornwachstum auf. Im unteren β -Gebiet (ca. $970-1050^{\circ}\text{C}$) findet rasches Kornwachstum statt; im Gegensatz dazu wird ein solches Wachstum im zweiphasigen Gefüge durch die fein verteilte α -Phase stark verzögert. Insgesamt ist das Zircaloy-Gefüge in einem Bereich zwischen etwa 950 und 1000°C besonders temperaturempfindlich und die Abschätzung entsprechend verlässlich. Dagegen sind Gefüge mit geringem β -Anteil bzw. starker Verformung weniger zuverlässig auszuwerten, wenn der Volumenanteil der β -Phase schwer erkennbar ist. Der Fehler der absoluten Temperaturbestimmung wird bei korrekter Gefügebeurteilung auf weniger als $\pm 30^{\circ}\text{C}$ geschätzt. Im relativen Vergleich verschiedener Gefüge untereinander sind über diese Genauigkeit hinaus noch wesentlich geringere Temperaturunterschiede nachweisbar.

3.4.2 Ergebnisse der Gefügebeurteilung und Temperaturabschätzung

In Mikroaufnahmen mit Hellfeld-Beleuchtung bzw. in polarisiertem Licht wurde das durch chemisches Polieren und Ätzen entwickelte Gefüge der Hüllrohr-Querschliffe dargestellt. Eine Reihe ausgewählter Gefügebilder ist in Abb. 3-17 bis 3-23 zusammengefaßt.

Abb. 3-17 zeigt in Polarisation Übersichtsaufnahmen über den Umfang des Hüllrohres G 1.4 dicht unter der Berststelle; Abb. 3-18 zeigt in Hellfeld-Detailaufnahmen die Rißflanken und das der Berststelle gegenüberliegende Gefüge des Brennstabes G 3.1. Die für die Gefüge jeweils angegebenen Temperaturintervalle sind das Ergebnis der Auswertung 500fach vergrößerter Aufnahmen auf die lokal erreichte Maximaltemperatur. Die zur Gefügeinterpretation herangezogenen Merkmale sind im vorangegangenen Kap. 3.4.1 beschrieben. Die Grenzen der genannten, nicht einheitlich breiten Temperaturbereiche sollen andeuten, welche absolute Verlässlichkeit den Angaben beigemessen wird. In beiden Beispielen sind azimutale Temperaturunterschiede über den Hüllrohrumfang nachgewiesen worden.

Die Temperatur-Interpretation wird durch den komplizierten Einfluß der Dehnung auf das Gefüge erschwert. Die Hüllrohre zeigen auch an Stellen starker Wandstärke-Schwächung und im Berstbereich kein Verformungsgefüge aus langgestreckten Körnern. Da die Verformung hauptsächlich im $(\alpha+\beta)$ -Zweiphasenbereich stattgefunden

hat, ist anzunehmen, daß sich die β -Phase bei zusammenhängender Ausbildung als Matrix stärker verformt hat als die darin verteilten Inseln ursprünglicher α -Phase. Dynamische Erholung während der Dehnung bzw. anschließende Rekristallisation nach dem Bersten haben zum beobachteten isotropen Gefüge geführt. Die in Abb. 3-17 gezeigte örtliche Kornvergrößerung bei nur mittlerer Dehnung ist auf die relativ niedrige Temperatur zurückzuführen, bei der das Kornwachstum nicht durch wesentliche Anteile der β -Phase im Gefüge behindert war. Der eng begrenzte Übergang zwischen feinkörnigem und grobem Gefüge kann daher als Indiz für das Grenzgebiet zwischen dem α - und dem $(\alpha+\beta)$ -Zweiphasenbereich gelten. Unwahrscheinlich im Vergleich zu der gegebenen Deutung wäre dagegen ein derart wirksamer Temperaturunterschied über kurze Distanz. Auch der im oberen $(\alpha+\beta)$ -Bereich an der Grenze zum β -Gebiet beobachtete empfindliche Einfluß der Temperatur auf das Gefüge führt zu eng begrenztem Übergang von feinkörnigem zu grobem Gefüge (Widmannstätten-Gefüge). Im Fall der Abb. 3-19 ist der Übergang im Gefüge und in stärkerer Vergrößerung der grobkörnige Bereich dargestellt. Die azimutalen Temperaturdifferenzen betragen nur etwa 40K. Abb. 3-20 zeigt das isotrope Gefüge einer Rißspitze in Höhe maximaler Umfangsdehnung. Abb. 3-21 zeigt ebenfalls isotrope Körner, die jedoch (in Polarisation) Orientierungsbeziehungen innerhalb langgestreckter Bereiche und damit noch den Einfluß der starken Verformung erkennen lassen. Für weitere Gefügebilder und ihre Temperaturabschätzung wird auf den Bericht über die Versuchsserie F verwiesen /3-3/.

Da die Brennstäbe in der Regel in Höhe der Meßpositionen der Thermoelemente T 136 und T 131 untersucht worden sind und der Berstbereich einzelner Stäbe zufällig in der Nähe weiterer Meßstellen lag, ist für diese Stellen ein direkter Vergleich der Temperaturabschätzung aus dem Gefüge mit der Messung möglich. Die Reihe der G1-Versuche war wie die bisher untersuchten Brennstäbe der A-, B- und F-Serien mit Thermoelementen der Befestigungsversion A bestückt: Das Ni-NiCr Thermoelement mit Inconel Hülle wurde in eine Platinhülle eingeschoben, die an einer abgeflachten Verlängerung durch Punktschweißung mit dem Hüllrohr verbunden wurde. Für die weiteren Versuche der G-Serie wurde die Befestigung dadurch abgewandelt (Version B), daß das geschlossene Ende der Platinhülle direkt auf das Hüllrohr gepunktet wurde. Als additive Korrektur der Meßwerte wurde für Version A

50 - 75 K (in Abhängigkeit von der Stableistung) verwendet, während für Version B die Korrektur 10K beträgt.

Abb. 3-22 und 3-23 zeigen in der Übersichtsaufnahme die Anschweißstellen eines A- und eines B-Thermoelementes und in Polarisation und Hellfeld Vergrößerungen des Gefüges in unmittelbarer Nähe, aber außerhalb der Wärmeeinflußzone der Schweißpunkte. Für das in Abb. 3-22 gezeigte Beispiel ergibt die Gefügetemperatur 920-950°C einen Wert, der höher als die direkte Meßtemperatur ist und geringfügig unter der korrigierten Temperatur liegt. Im Fall der Abb. 3-23 liegt die Gefügetemperatur mit 940-970°C deutlich höher als die direkt gemessene und die korrigierte Temperatur. Beide Temperaturabschätzungen nach dem Gefüge sind als verlässlich zu beurteilen, da sich das Gefüge in diesem Temperaturbereich sehr empfindlich ändert und die Beurteilung nicht durch hohe Dehnung beeinträchtigt ist.

In Tab. 3.2 ist für Stellen, bei denen der direkte Vergleich möglich war, die gemessene und korrigierte Maximaltemperatur der aus dem Gefüge abgeschätzten gegenübergestellt. Insgesamt ergibt sich eine recht zufriedenstellende Übereinstimmung. Die Meßtemperatur nach Korrektur liegt häufig innerhalb oder dicht außerhalb des aus dem Gefüge abgeschätzten Bereiches. Insgesamt sind jedoch als Tendenz signifikante Abweichungen erkennbar. Die relativ große Temperaturkorrektur für Version A Thermoelement scheint zu hoch zu sein. Dies entspricht früheren Ergebnissen der A-, B- und F-Serien: Für die Stäbe der F-Serie /3-1/ war geschlossen worden, daß die Temperaturkorrektur im Mittel um etwa 30K zu hoch sei. Demgegenüber sind die Gefügetemperaturen der mit B-Thermoelementen bestückten Stäbe meist höher als die mit 10K korrigierten Meßwerte. Daraus kann geschlossen werden, daß diese Korrektur wahrscheinlich zu gering ist oder daß möglicherweise ungenügender Wärmekontakt oder sogar das Abreißen einzelner Thermoelemente während des Versuches für eine zu niedrige Temperaturanzeige bei einzelnen Versuchen verantwortlich sein könnten.

Die im Versuch nicht direkt meßbare Bersttemperatur ist nach der Anzeige benachbarter Thermoelemente interpoliert worden. Die Genauigkeit dieser Methode ist darüberhinaus durch azimutale Temperaturdifferenzen zum Berstzeitpunkt begrenzt. Das Verfahren der Temperaturabschätzung erlaubt darüber und über die Bersttemperatur keine direkten Aussagen, wenn nach dem Bersten ein

weiterer Temperaturanstieg zu verzeichnen war. In die folgende Zusammenstellung sind die Brennstäbe mit Bersttemperaturen über 800°C aufgenommen worden:

Versuch	G1.3	G2.1	G2.2	G3.1	G3.2
T_B [°C]	890	869	846	900	838
T_M [°C]	840-890	940-970	800-850	850-900	840-870

(T_B = aus Meßwerten interpolierte und korrigierte Bersttemperatur, T_M = geschätzte Maximaltemperatur an der Berststelle). Daraus ergibt sich, daß die Temperatur an der Berststelle nur im Versuch G2.1 noch wesentlich angestiegen ist, während der Vergleich im übrigen die Bersttemperatur bestätigen kann. Tab. 3.3 vergleicht die Temperaturangaben für die Berststelle aller untersuchten Stäbe.

Im Vergleich aller Stäbe der G-Serie wird nach den Ergebnissen Gefügeinterpretation die Verteilung der Hüllrohrtemperatur wie folgt beurteilt: Zunächst ist davon auszugehen, daß zum Zeitpunkt des Beulens - möglicherweise noch bis zum Bersten - am Ort der späteren Berststelle die relativ höchste Temperatur herrschte. Die zunehmende Entkopplung der sich abhebenden Hülle vom Brennstoff und ihr thermischer Kontakt zum relativ kalten inneren Dampfleitungsrohr verhindern offenbar trotz anhaltender nuklearer Erhitzung im Verlauf der Transiente oft ein weiteres Steigen der Temperatur an der Berststelle. Für die Berstflanken werden in Höhe der maximalen Dehnung die relativ niedrigsten Höchsttemperaturen registriert. Noch im Bereich der Berststelle sowie unmittelbar darüber und darunter sind bereits wesentlich höhere Temperaturen nachgewiesen. Weitab von der Berststelle kann die Temperatur weiter überschwingen. Die höchsten Temperaturen treten vorwiegend im Azimutbereich der Berststelle auf. In den untersuchten Schliffebenen werden im Extremfall keine nachweisbaren Temperaturunterschiede bzw. azimutale Differenzen bis maximal etwa 90 K (Stab G2.2, Ebene 3) registriert. Im Mittel betragen diese Differenzen, auch für die Berststelle, etwa 30 K. Die Ergebnisse der Temperatur-Abschätzung sind in Tab. 3.1 zusammengestellt.

3.5 Mikrohärtemessungen

Ziel der Härtemessungen war es ursprünglich, das Gefüge und den Oxidationszustand der Hüllrohre zu charakterisieren. Bekanntlich ist die Härte eines Werkstoffes von seiner Verformung bzw. den Gefügeständen der Erholung und Rekristallisation abhängig und daher geeignet, den Werkstoffzustand nach lokaler Verformung zu untersuchen. Für Zircaloy ist darüberhinaus bekannt, daß $(\alpha+\alpha')$ - bzw. α' -Gefüge (durch Rückumwandlung der β -Phase in $\alpha+\beta$ bzw. β -Gefügen entstanden) höhere Härte aufweisen als α -Gefüge. Daher war zu vermuten, daß die in der Transiente erreichte Temperatur die Härte mitbeeinflusst. Während die bei der Oxidation gebildeten, im vorliegenden Fall dünnen, sauerstoffreichen Schichten ZrO_2 und α -Zr(O) meßtechnisch nicht zugänglich sind, war zu erwarten, daß der in die Matrix eindiffundierende Sauerstoff durch erhöhte Härte in der Diffusionszone indirekt nachgewiesen werden kann.

Angesichts der genannten Ziele wurde das Profil der Mikrohärtigkeit über die Hüllrohrwand gemessen. Für jede untersuchte Probenstelle wurden 3 Profilvereihen aufgenommen, die aus Meßpunkten in regelmäßigen Abständen von ca. 25-30 μm bestanden, so daß die Wandstärke die Gesamtzahl der Eindrücke bestimmte. Die Messungen wurden an mechanisch polierten Schliffproben nach dem Vickers-Verfahren mit 25 g Last (MHV 25) durchgeführt.

Für die nur vorbestrahlten und keiner Transiente unterworfenen Brennstäbe G1.6 und G3.6 wurden Messungen an je einer Querschliffebene (Ebene 5) durchgeführt. Der Brennstab G1.5 wurde an insgesamt 5 Stellen in 3 Querschliffebenen untersucht (in Berstrichtung und gegenüber), die Brennstäbe G2.1 und G3.3 in jeweils 2 Schliffebenen an 3 Stellen.

Auf die Darstellung der Einzelmeßwerte über ihre Position in der Hüllrohrwand wird in diesem Bericht verzichtet. Aufgrund der großen Streuung der Einzelwerte sind trotz der Vielzahl von Einzelmessungen die gewonnenen - durch Glättung ausgeglichenen - Härteprofilkurven nicht als statistisch ausreichend gesichert zu betrachten. Auf die Darstellung des entsprechenden Befundes bei der F-Serie wird verwiesen /3-1/.

Im Vergleich der Profilkurven untereinander sind einheitliche Tendenzen kaum erkennbar (Abb. 3-24). Höhere Härte im äußeren

und inneren Randbereich, die durch oxidationsbedingt höheren Sauerstoffgehalt erklärbar wäre, deutet sich nur in einigen Profilen an, während sich für andere ein flacher Härteabfall von der inneren zur äußeren Oberfläche der Rohrwand ergibt, der jedoch angesichts der Streuungen nicht als gesichert zu beurteilen ist. Höhere Härte in Rißnähe als Folge starker Dehnung wird im Vergleich der jeweils zwei Profile für G1.5 in Schliffebene 3, für G2.1 in Ebene 1 und für G3.3 in Ebene 4 registriert. Die höhere Härte der nur vorbestrahlten Stäbe ist auffällig.

Betrachtet man die statistische Gesamtheit der Messungen zu einem Härteprofil, erhält man den Mittelwert der Härte über die Hüllrohrwand. Diese Mittelwerte sowie Angaben der Meßposition und des untersuchten Brennstabes sind in Tab. 3.4. zusammengestellt. Zum Vergleich sind die Ergebnisse früherer Messungen am Hüllrohr-Ausgangsmaterial, an Hüllrohren der A- und B-Stäbe sowie von G-Stäben, die am selben Gerät in entsprechender Weise durchgeführt worden sind, in die Tabelle aufgenommen. (Die Absolutwerte aller Messungen sind, wie Vergleichsmessungen mit anderen Geräten ergeben haben, einheitlich zu hoch, wahrscheinlich um ca. 15%). Es zeigt sich, daß die Härte im vorbestrahlten Zustand wesentlich über der des Ausgangszustandes liegt. Als Ursache hierfür können nur Bestrahlungsdefekte vermutet werden, da eine wesentliche Sauerstoffaufnahme bei ca. 150°C maximaler Hüllrohrtemperatur während der Vorbestrahlung auszuschließen ist, und da keine Verformung stattgefunden hat. Im Verlauf der Transiente hat sich die Härte offenbar wieder auf das Niveau des Ausgangszustandes reduziert. Der breite Streubereich der Härtemittelwerte für die einzelnen Positionen entspricht dem der A-, B- und F-Stäbe.

3.6 Ergebnisse der Versuchsserien C, E und BSS und Vergleich aller Serien

Im Verlauf der Nachuntersuchung der Brennstäbe der F- und G-Serien war festgestellt worden, daß kein wesentlicher Einfluß des Abbrandes auf das Berstverhalten besteht. Mit reduziertem Aufwand wurde daher die Nachuntersuchung der Brennstäbe mit geringem Abbrand (C-Serie: 2.500 MWd/t_U, E-Serie 8.000 MWd/t_U) und die der elektrisch beheizten Brennstabsimulatoren (BSS-Serie) auf die Bestä-

tigung der bisherigen Befunde bzw. den Nachweis neuer Aspekte im Vergleich aller Versuchsserien konzentriert. Da sich ein separater Bericht über die Ergebnisse als nicht erforderlich erwiesen hat, werden diese im folgenden zusammengefaßt.

3.6.1 Oxidationsverhalten

Im vorbestrahlten Zustand ist, wie die Untersuchung der Abbrandstäbe C6 und E6 ergab, kein Unterschied des Verformungsgefüges im Vergleich zu den F- und G-Abbrandstäben erkennbar (Abb. 3-25). Auf geringfügige Oxidation ist nur aus der hellgrauen Färbung der Stäbe zu schließen.

Die einer Transiente unterworfenen Stäbe zeigen mehr oder weniger matte, hell- bis dunkelgraue Färbung und z.T. schwache bräunliche bis blaugraue Verfärbungen am oberen und unteren Ende der Brennstoffsäule. Hellgraue Bereiche bzw. deutlich weißes Oxid sind insgesamt an der unteren Schweißstelle, unter dem Brennstoff, im Brennstoffbereich, vor allem im Berstbereich und darüber sowie über dem Brennstoff nachgewiesen worden. Insbesondere zeigt Stab C3 weißes Oxid (Abb. 3-26) trotz des geringen Abbrandes und einem relativ niedrigen Temperaturniveau der anschließenden Transiente. Nur die Stäbe C4 und E3 haben kein weißes Oxid gebildet, wie auch alle Brennstabsimulatoren mit Ausnahme von BSS 28. Der in Kap. 3.2 diskutierte Zusammenhang mit der Vorbestrahlung ist somit für das Auftreten weißen Oxides bestätigt. Offenbar genügt geringe Vorkorrosion während der kurzzeitigen Bestrahlung der C- und E-Stäbe schon, um diese lokale Erscheinung zu begünstigen. Das Auftreten eines kleinen Fleckes weißen Oxides an der Berststelle des Simulators BSS 28 zeigt jedoch, daß auch starke Dehnung zum Übergang in weißes, stöchiometrisches Oxid ohne Schutzwirkung führen kann.

Die Querschliff-Untersuchung der Stäbe auf das Ausmaß und die Morphologie der Oxidation der Hüllrohr-Außenseite bestätigt die Ergebnisse der anderen Versuchsserien in allen Aspekten. Die Abhängigkeit der Oxidschichtdicke von der örtlich erreichten Temperatur als wichtigstem Parameter entspricht dem in Abb. 3-16 für die G-Serie dargestellten Streuband. Deutlich dickere Schichten treten nur örtlich, im Zusammenhang mit Rißbildung durch

starke Dehnung und aufgrund des Breakaway-Effektes an Stellen mit weißem Oxid auf.

Für die Hüllrohr-Innenoxidation ist ein gradueller Unterschied zu den Stäben mit hohem Abbrand (F- und G-Serie) nachgewiesen: Die Innenkorrosion ist für die C- und E-Stäbe - auch im Berstbereich - in der Regel geringer als die Oxidation der Außenseite (Abb. 3-27). Das gilt auch für die den nichtvorbestrahlten A- und B-Stäben vergleichbaren Brennstabsimulatoren. Bei der für alle Stäbe geringen chemischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle war die beobachtete Oxidation im Berstbereich überwiegend auf den nach dem Bersten eingedrungenen Dampf zurückzuführen. Daher war eigentlich generell eine geringere Innenoxidation im Vergleich zur Außenseite zu erwarten. Die verstärkte Innenoxidation der F- und G-Hüllrohre wurde auf die Bildung weniger schützender, defekter Oxidschichten zurückgeführt: Ausschlaggebend hierfür ist offenbar nicht allein die Atmosphäre (aus Füllgas, flüchtigen Spaltprodukten, Dampf und gebildetem Wasserstoff) sondern eine oxidative Vorschädigung im Verlauf der Vorbestrahlung. Die geringere Vorkorrosion der C- und E-Stäbe scheint demgegenüber noch nicht zu beschleunigter Oxidation während der Transiente zu führen.

3.6.2 Gefüge- und Temperaturinterpretation

Das Gefüge der Zircaloy-4-Hüllrohre der C-, E- und BSS-Stäbe ist durch die örtlich erreichte Höchsttemperatur und die Dehnung gekennzeichnet und zeigt keine Besonderheiten im Vergleich zu den Stäben der bisher untersuchten Serien. Im Beispiel der Abb. 3-28 sind Gefügebilder aus einer Schliffebene des Brennstabes E3 in Nähe der Berststelle zusammengefaßt. Die daraus ermittelten Angaben der lokalen Maximaltemperatur sind ein Nachweis der azimuthalen Temperaturverteilung im Zeitpunkt der Temperaturumkehr bei Reaktor-Abschaltung. Auf diese Weise wurden im Extremfall azimuthale Temperaturdifferenzen bis ca. 100K registriert wie in Abb. 3-29 für eine Schliffebene des Stabes C1 und in Abb. 3-30 für den Simulator BSS 12 dargestellt. Im anderen Extremfall sind in einzelnen Schliffebeneen keinerlei azimuthale Temperaturdifferenzen nachweisbar (Abb. 3-31). Für die Berststellen aller vorbestrahlten Brennstäbe ergibt sich eine mittlere azimuthale Tempera-

turdifferenz von ca. 30 K während diese mit ca. 65 K für die Brennstabsimulatoren deutlich höher liegt. Allerdings muß ungeklärt bleiben, ob diese Temperaturdifferenzen auch den Verhältnissen zum Berstzeitpunkt entsprechen.

Abb. 3-32 und 3-33 zeigen Gefügebilder an Thermoelement-Meßstellen als Beispiele für die Temperatúrauswertung im direkten Vergleich mit den Meßergebnissen. (Die in Abb. 3-33 auffällige Grobkornbildung an der unteren Grenze des $(\alpha+\beta)$ -Zweiphasenbereiches wurde bereits erwähnt (Kap. 3.4.2). In Tab. 3.2 sind für die Brennstäbe der G-, C- und E-Serien sowie die Brennstabsimulatoren alle Meßstellen, an denen Gefügaufnahmen ausgewertet wurden, aufgenommen. Im Vergleich der gemessenen und korrigierten mit den aus dem Gefüge abgeschätzten Maximaltemperaturen ergibt sich eine recht zufriedenstellende Übereinstimmung. Insgesamt sind allerdings noch geringe systematische Abweichungen erkennbar: Für die Stäbe G1.1 bis G1.4, bei denen die Thermolemente nach Version A befestigt wurden, erhält man im Mittel sehr gute Übereinstimmung mit den als richtig vorausgesetzten Gefügetemperaturen, wenn angenommen wird, daß die Meßkorrektur nur 30 K betragen sollte. Für die übrigen Stäbe, bei denen die nach Version B befestigten Thermolemente mit nur 10 K korrigiert sind, verschwindet die (ursprünglich entgegengesetzte) mittlere Abweichung der Gefügetemperaturen überraschenderweise ebenfalls dann, wenn 30 K Meßkorrektur angenommen wird. Aus der Gefügebewertung ist somit insgesamt kein Einfluß der Thermolementbefestigung auf die gemessene Hüllrohrtemperatur nachzuweisen. Eventuelle systematische Fehler der Temperaturabschätzung beeinflussen nur den Absolutwert dieser einheitlichen Korrektur von 30 K, während unsystematische Interpretationsfehler des Gefüges zur restlichen Streuung beitragen.

Im Gegensatz zu den Temperaturmeßstellen (Tab. 3.2) sind für die Berststellen größere Abweichungen zwischen den Resultaten aus Messung und Gefüge zu diskutieren. Die Ergebnisse sind für alle vorbestrahlten Stäbe und die Brennstabsimulatoren in Tab. 3.3 zusammengestellt. Während für einzelne Stäbe die korrigierten und auf die Berststelle interpolierten Maximaltemperaturen gut mit dem Gefüge an der Berststelle harmonieren, ergeben sich für andere größere Abweichungen. Im Mittel ist die durch das Gefüge angezeigte Maximaltemperatur niedriger (um maximal 140 K) als das Ergebnis aus der Messung. Auch mit der oben vorgeschlagenen einheitlichen Korrektur

von 30 K sind die Diskrepanzen nicht wesentlich zu mildern. Für die Maximaltemperatur zeigt sich, deutlicher als dies für die Bersttemperatur gelten muß, die Problematik der Temperaturinterpolation (bzw. der für die C- und E-Stäbe außer E3 erforderlichen Extrapolation): Zu den unsystematischen Fehlern aufgrund der Interpolation und der azimuthalen Temperaturdifferenzen kann dann ein systematischer Fehler beitragen, wenn der Temperaturanstieg nach dem Bersten, der in Nähe des Berstbereiches gemessen wurde, nicht typisch für die direkte Berststelle ist. Zumindest an einigen der Berststellen ist die Temperatur nach dem Bersten nicht mehr so stark angestiegen wie in der Umgebung durch die Temperaturmessung angezeigt wurde. Ursachen dafür können thermische Entkopplung zum Brennstoff and Annäherung an das kühlere Dampf-führungsrohr sein. Mit dieser plausiblen Deutung sind die registrierten Diskrepanzen zu erklären, so daß Zweifel an der korrekten Interpolierbarkeit der Maximaltemperatur auf die Berststelle zumindest für einzelne Stäbe angebracht sind.

Da die Bersttemperaturen nur bei einigen Stäben nach dem Bersten nicht mehr überschritten wurden, ist eine Gegenprüfung der Bersttemperatur durch das Gefüge oft nur indirekt möglich. Als Alternative zum Meßergebnis wird unter Einbezug der Gefügebeurteilung folgende Bersttemperatur definiert (Tab. 3.5): Der zum Berstzeitpunkt direkt angezeigte Meßwert wird für alle Thermoelemente (Version A und B) einheitlich durch Addition von 30 K korrigiert, wie bisher auf die Berststelle interpoliert und mit der aus dem Gefüge abgeschätzten Maximaltemperatur verglichen. Der niedrigere der beiden Werte wird als die Bersttemperatur (T_B) bezeichnet:

$$T_B = T_B^{M,30K} \quad \text{für} \quad T_B^{M,30K} < T_M^G$$

$$= T_M^G \quad \text{für} \quad T_B^{M,30K} > T_M^G$$

Diese Bersttemperatur basiert nur dann auf der Temperaturmessung (deren Korrektur aus der Gesamtheit aller Gefügebeurteilungen für TE-Meßstellen resultiert), wenn das Ergebnis nicht dem Gefüge der Berststelle widerspricht. Führt dagegen die Interpolation auf die Berststelle zu einer Temperatur, die höher ist als das Berststellengefüge anzeigt, dann wird die Gefüge-Maximaltemperatur als

realistischere Bersttemperatur gewählt.

Die Gesamtheit der so definierten Bersttemperaturen (Tab. 3.5) steht nicht im Widerspruch zum Kollektiv der allein aus der Messung abgeleiteten Werte, obwohl sich vereinzelt größere Differenzen ergeben (Abb. 3-34). In der Auftragung gegen den Berstdruck ergibt sich ein sehr ähnliches, eher etwas engeres Streuband. Als "Ausreißer" mit relativ niedrigen Bersttemperaturen werden - wie bisher - die Stäbe E5, G1.2 und G1.5 erkannt, die während annähernd konstanter Temperatur geborsten sind, sowie der Stab A1.1 mit sehr eng begrenzter Beule aufgrund untypisch steilen Neutronenflußprofiles. Darüberhinaus liegen z.B. die Stäbe A2.3, B3.2, C5, F3 und G3.1 an der unteren Grenze des Streubandes. Da bei diesen Stäben die Temperatur an der Berststelle nach dem Bersten nicht mehr gestiegen ist, kann vermutet werden, daß sie während langsamem Temperaturanstieg geborsten sind, was bekanntlich im Vergleich mit steilen Transienten zu niedrigeren Bersttemperaturen führt.

3.6.3 Mikrohärte

Mikrohärteprofile wurden für den Brennstab E5 und den Simulatorstab BSS12 aufgenommen, sowie für die keiner Transiente unterworfenen "Abbrandstäbe" C6 und E6. Da die Härteprofile selbst keine neuen Gesichtspunkte ergeben haben, wurden lediglich die Mittelwerte der Profilserien in Tab. 3.4 mit aufgenommen.

In Tab. 3.6 sind diese Ergebnisse im Vergleich aller Stäbe und des Hüllrohr-Ausgangszustandes zusammengestellt. Daraus ergibt sich ein Anstieg der Härte vom Ausgangszustand zu einem von der Vorbestrahlungsdauer praktisch unabhängigen Niveau von ca. 300-320 HV 0.025. Die Ursache ist in den bereits beim geringen Abbrand der C-Stäbe wirksamen Strahlungsdefekten zu sehen. In der anschließenden Temperaturtransiente heilen offenbar diese Defekte wieder aus. Das gemeinsame, breite Streuband aller Ergebnisse resultiert aus den variablen und überwiegend verfestigenden Einflüssen der Oxidation, des β -Phasenanteils im Gefüge und der Verformung, die sich im Verlauf der Temperaturtransienten ergeben und der Entfestigung überlagern (Abb. 3-35).

3.7 Zusammenfassung und Schlußfolgerungen

- Während der Vorbestrahlung hat nur eine geringfügige Oxidation der Zircaloy-Hüllrohre stattgefunden. Das Gefüge zeigt die für die Rohrherstellung typische Verformung.
- Die variierende Färbung der Hüllrohr-Außenoberfläche nach der Transiente ist oxidationsbedingt. Das bei einem Teil der vorbestrahlten Brennstäbe registrierte, bereichsweise Auftreten weißen Oxides wird als Folgeerscheinung der "Vorkorrosion" während der Bestrahlung diskutiert und ist durch das Abblättern von Oxid-Teilschichten gekennzeichnet. Die dehnungsbeeinflusste Dampf-Oxidation der Hüllrohr-Außenseite ist ansonsten im Erscheinungsbild und im Ausmaß vergleichbar mit den Ergebnissen der nicht vorbestrahlten Brennstäbe und von out-of-pile-Untersuchungen.
- Zur Oxidation der Hüllrohr-Innenseite tragen der Brennstoff und - auf den unmittelbaren Berstbereich begrenzt und dort überwiegend - der nach dem Bersten von außen eingedrungene Dampf bei. Für Stäbe mit längerer Vorbestrahlungsdauer wird im Bereich des Risses - im Gegensatz zu den nicht vorbestrahlten Stäben - stärkere Innenoxidation im Vergleich zur Außenseite registriert und versuchsweise mit der Bildung weniger schützender, gestörter Oxidschichten gedeutet. Mit zunehmendem Abstand von der Berstöffnung reduziert sich generell die Oxidation auf ein geringfügiges Ausmaß mit nicht mehr nachweisbarer ZrO_2 -Schicht.
- Das Hüllrohrgefüge wird - von der Oxidation abgesehen - hauptsächlich durch die lokal erreichte Höchsttemperatur und die lokale Dehnung beeinflusst. Spezielle Merkmale des Gefüges können erklärt werden. Die Temperaturabschätzung nach dem Zustand des Gefüges wird in Möglichkeiten und Grenzen diskutiert. Sie bestätigt weitgehend die Thermolement-Messungen und die Temperaturprofile. Im Mittel liegen die Ergebnisse allerdings etwas niedriger (ca. 40 K) als die korrigierten Meßwerte der Version A - Thermolemente, dagegen in der Tendenz etwas höher als die der Version B (ca. 20 K). Azimutale Temperaturdifferenzen bis ca. 100 K wurden registriert. Einflüsse der Vorbestrahlung auf die Verteilung der Hüllrohrtemperatur sind nicht nachgewiesen.

- Die Mikrohärteprofile über die Hüllrohrwand der vorbestrahlten und einer Transiente unterworfenen Brennstäbe lassen sich nicht generell mit den lokalen Werten der Dehnung, der erreichten Temperatur und dem Ausmaß der Oxidation korrelieren und deuten. Die Mittelwerte über die Rohrwand liegen für alle einer Transiente unterworfenen Stäbe in einem gemeinsamen Streuband um das Niveau des Rohrmaterials im Ausgangszustand. Die Mikrohärte im vorbestrahlten Zustand liegt aufgrund von Strahlungsdefekten - ebenfalls einheitlich - wesentlich höher.

3.8 Literatur

- /3-1/ P. Hofmann, C. Petersen, G. Schanz, H. Zimmermann,
In-pile-Experimente zum Brennstabverhalten beim Kühlmittelverluststörfall. Ergebnisse der zerstörenden Nachuntersuchungen der Versuchsserie F (22 000 MWd/t_U), KfK 3288, März 1982.
- /3-2/ S. Leistikow, G. Schanz, H. v. Berg,
Kinetik und Morphologie der isothermen Dampf-Oxidation von Zircaloy-4 bei 700-1300°C, KfK 2587 (1978)
- /3-3/ S. Leistikow, G. Schanz, H. v. Berg,
Untersuchungen zur temperatur-transienten Dampfoxidation von Zircaloy-4-Hüllrohrmaterial unter hypothetischen DWR-Kühlmittelverlust-Störfallbedingungen, KfK 2810 (1979)
- /3-4/ G. Schanz, S. Leistikow,
ZrO₂-Scale Degradation during Extended Zircaloy-4 High Temperature Steam Exposure; Microstructural Mechanisms and Consequences for PWR Safety Analysis, Proc. ANS Top. Meeting on "Reactor Safety Aspects of Fuel Behavior", Sun Valley, Idaho, USA, August 2 - 6, 1981
La Grange Park, I 11: ANS 1981, Vol. 2, 342 - 53

Tab. 3.1 Nachuntersuchung der in-pile Experimente der G-Serie, PNS 4237

Zusammenfassende Angaben zur abgeschätzten Hüllmaterialtemperatur anhand des Gefüges und zur Dicke der α -Zr(O)- und der ZrO₂-Schichten.

Schliffebene Azimut- winkel	gesch. Temp. nach Gefüge (°C)	Dicke der α -Zr(O) u. ZrO ₂ -Schicht (μ m)				Bild-Nr. der Heißen Zellen	Abb.-Nr. im Bericht
		Aussen		Innen			
		α -Zr(O)	ZrO ₂	α -Zr(O)	ZrO ₂		
<u>G1.1:</u>							
Ebene 1:		2-4	4-5	-	1-4	1/3,5,6	
	880-910					1/8,9,11,12	
Ebene 3:							
100°	930-960					3/16	
170°	920-950					3/18	
260°	900-930	3-4	5-6	-	-	3/3-5,12,13	
340°	910-940					3/17	
<u>G1.2:</u>							
Ebene 1:	910-940	4-5	5-8	-	1	1/3,5,7,9	
Ebene 3:	880-920	3-4	4-10	2-3	5-10	3/5,7-10,13,15	
Ebene 4:		4-5	5-8	-	-	4/5-7	
110°	900-930					4/8,9	
280°	940-970					4/11	
<u>G1.3:</u>							
Ebene 1:							
140°	920-950	3-4	4-6	-	<2	1/2-4,10	
320°	900-930	3-4	4-6	-	<2	1/5-7,9	
Ebene 3:	860-900	2-3	4-8	1-2	4-10	3/3-8,11	
Ebene 4:	880-920	1-3	3-8	1	3-12	4/4-8,11,12	
Ebene 5:	840-880	2-6	3-14	2-5	4-14	5/4-9,11,12	
Ebene 6:	880-920	3-4	4-7	-	-	6/4-9,11,12	
<u>G1.4:</u>							
Ebene 1:		3-4	4-6	3-4	1-2	1/5	
20°	920-950					1/10	
200°	920-950					1/7,8	3-22
Ebene 3:		2-3	2-7	1-2	2-8	3/6-11	3-12
170°	800-840					3/13	
350°	820-860					3/15	
Ebene 4:		2-3	2-6	1-4	4-10	4/4-8	
170°	830-880					4/10	
350°	860-890					4/13	
Ebene 5:		3-5	4-6	<1	1-2	5/4-6	
80°	910-940					5/10	
260°	890-920					5/8	

Tab. 3.1 - Fortsetzung 1

Schliffebene Azimut- winkel	gesch. Temp. nach Gefüge (°C)	Dicke der α -Zr(O) u. ZrO ₂ -Schicht (μ m)				Bild-Nr. der Heißen Zellen	Abb.-Nr. im Bericht
		Aussen		Innen			
		α -Zr(O)	ZrO ₂	α -Zr(O)	ZrO ₂		
<u>G1.5:</u>							
Ebene 1:		3-4	3-6	1	1-4	1/3,4,6,7	3-15
0°	960-990					1/11,12	3-19
180°	920-950					1/8,10	
Ebene 3:		3	2-6	2	5-10	3/4,5,7	
0°	890-930					3/9	
180°	860-890					3/12	
Ebene 5:		3-4	2-4	2	2-6	5/5,6,9	
0°	860-900					5/15,16	3-20
180°	850-880					5/12	
Ebene 6:							
0°	840-890?					6/7	3-21
180°	820-870					6/8	
Ebene 7:		4	3-8	1	<2	7/3,4,6,7	
0°	900-930					7/11	
180°	880-910					7/9	
<u>G2.1:</u>							
Ebene 1, a ^x :							
0°		3-4	9-12	<1	16	1/11,12	3-11
90°	980-1010	3	6	<1	8	1/16	
180°		4	18	<1	10		
270°	920-950	2-3	20-24	1	1-10	1/7-9,14	3-11
Ebene 1, b ^x :							
0°		4	12	1	12		
90°	980-1010	2-4	3-6	1	6-10	1/25-27,31	
180°		4	18	<1	12		
270°	940-970					1/28	
(x: 1, a = 550 mm über Unterkante Brennstab; 1, b = 546 mm über UKB).							
Ebene 3:							
30°		4	6	4	<2		
120°	920-950	4-6	6-16	3-6	6-10	3/4-7,12	
210°		5	16	<2	<2		
230°		4-5	16-33!			3/9,10	
300°	920-950	5	18	4	-	3/13	
<u>G2.2:</u>							
Ebene 1:		2	2-3	1-3	3-5	1/2-5	3-14
90°			<36			1/6	
170°	840-870					1/8,9	
350°	820-860					1/10	
Ebene 3:		2-5	1-4	1-5	4-16	3/5-12	3-13
10° (RiB)	900-930					3/17	
190°	800-850		<28			3/13,15,16	
Ebene 4:		1-3	1-6	1-2	1-8	4/5-8,11,12	
10° (RiB)	800-850					4/13	
190°	830-880					4/15,16	
Ebene 5:		2-3	2-4	1	2-7	5/4-7	3-14
20°	810-860					5/11	
200°	810-860					5/9,10	

Tab. 3.1 - Fortsetzung 2

Schliffebene Azimut- winkel	gesch. Temp. nach Gefüge (°C)	Dicke der α -Zr(O) u. ZrO ₂ -Schicht (μ m)				Bild-Nr. der Heißen Zellen	Abb.-Nr. im Bericht
		Aussen		Innen			
		α -Zr(O)	ZrO ₂	α -Zr(O)	ZrO ₂		
<u>G3.1:</u>							
Ebene 1:							
80°	920-950	2-3	2-6	2-4	3-7	1/2-5,7,8	
260°	910-940	3	4	2	-	1/9	
Ebene 3:							
120°	850-900	1-2	1-2	1-2	1-3	3/11-14	3-18
300°	890-920	2-3	2-5	1	2-10	3/5-8,16	3-18
Ebene 4:							
120°	980-1010	3-5	4-10	3-5	8-16	4/9-12,14	
300°	930-960	2-4	3-6	1-2	4-8	4/4-7,15	
Ebene 5:							
140°	940-970	3-4	4-7	2	1-3	5/4-7,9,10	3-23
320°	910-940	4	4	2	3	5/11	
<u>G3.2:</u>							
Ebene 1:							
110°	920-950	3-4	2-4	2-4	-	1/2-4,10	3-9
160°			22			1/12,13	
270°			30			1/5-7	3-9
310°	900-930					1/8,9	3-9
						1/14	
Ebene 3:							
90°	860-890	1-2	1-2	1	4-8	3/8-11,13,14	
270°	840-870	2	1-2	1	2-3	3/6,7,17	
Ebene 5:							
	840-880	1-4	2-5	1-3	4-10	5/4-7,10,11, 14-16	
<u>G3.3:</u>							
Ebene 1:							
240°	870-900	1-3	2-6	2	-	1/4-7,9-11	3-10
290°			2-20			1/3	3-10
			3-9			1/2	
Ebene 3:							
			3-18			3/3-7,9	3-10
Ebene 4:							
	850-900	1	1-3	1	1-8	4/7-12,14-18	
Ebene 5:							
	850-900	1-3	2-7	1-3	2-12	5/5-8,11-13	
Ebene 6:							
	900-930	3-4	3-4	1-2	-	6/4-10	

Tab. 3.2: Vergleich von gemessenen und aus dem Gefüge abgeschätzten Werten der Hüllrohr-Maximaltemperatur

Vers.- Nr.	TE- Nr.	Azimet- winkel	Meßwert [°C]	Korrekt. [K]	T _{max} , Mess. [°C]	T _{max} , Gefüge [°C]	Schliff Nr.	Azimet- winkel
G1.1	136	45°	894	72	966	880-910	1	versch.
	131	105°	939	72	1011	930-960	3	100°
G1.2	136	47°	881	75	956	910-940	1	47°
	133	227°	843	75	918	890-920	3	190°
	131	107°	889	75	964	900-930	4	107°
G1.3	136	313°	885	60	945	900-930	1	320°
	131	13°	875	60	935	890-920	6	30°
G1.4	136	200°	900	52	952	920-950	1	200°
	133	20°	835	52	887	860-890	4	350°
	131	260°	898	52	950	890-920	5	260°
G1.5	136	41°	893	10	903	960-990	1	0°
						920-950	1	180°
	131	101°	805	10	815	880-910	7	180°
						900-930	7	0°
G2.1	136	240°	886	10	896	920-950	1	270°
	134	120°	942	10	952	920-950	3	120°
G2.2	136	188°	823	10	833	840-870	1	170°
	133	8°	930	10	940	900-930	3	8°
	131	248°	811	10	821	810-860	5	200°
G3.1	136	83°	897	10	907	920-950	1	80°
	131	143°	905	10	915	940-970	5	140°
G3.2	136	117°	875	10	885	920-950	1	110°
	131	177°	830	10	840	860-900	5	200°
G3.3	136	65°	850	10	860	880-910	1	60°
	131	245°	874	10	884	900-930	6	240°
C1	136	135°	971	10	981	970-1000	1	135°
	131	195°	1007	10	1017	990-1020	3	195°
C2	136	68°	873	10	883	910-940	1	68°
	131	128°	927	10	937	930-960	4	128°
C3	131	53°	747	10	757	< 800	2	53°
C4	131	126°	912	10	922	900-930	2	160°
C5	131	52°	909	10	919	920-950	2	52°
E1	131	154°	920	10	930	980-1010	2	154°
E2	131	280°	963	10	973	970-1000	2	280°
E5	131	339°	923	10	933	910-940	5	330°
BSS12	136	327°	979	10	989	980-1010	1	340°
	131	27°	853	10	863	910-940	6	340°
BSS22	132	52°	866	10	876	860-900	1	90°
BSS25	133	312°	800	10	810	800-840	1	310°
BSS26	132	173°	837	10	847	820-860	1	170°
BSS28	132	25°	1013	10	1023	970-1000	1	25°

Tab. 3.3: Temperaturangaben für die Berststelle der vorbestrahlten Stäbe und der Brennstab-simulatoren.

T_M = Maximaltemperatur, T_B = Bersttemperatur, $\Delta T_{azi.}$ = azimutale Differenz der T_M -Werte in Berstebene, TE-Werte extrapoliert bzw. interpoliert.

Versuch- Nr.	Gefügeanalyse		T_B [°C]	TE - Messung		extr.	interp.
	T_M [°C]	$\Delta T_{azi.}$ [K]		T_M [°C]			
G1.2	880-910	10	730	920			x
G1.3	840-890	35	890	940			x
G1.4	800-840	20	785	910			x
G1.5	860-900	15	780	850			x
G2.1	940-970	40	869	900			x
G2.2	800-850	30	846	890			x
G3.1	850-900	30	900	900			x
G3.2	840-870	20	838	840			x
G3.3	850-900	0	750	930			x
C1	860-900	10	900	1020	x		
C2	930-960	0	945	945	x		
C3	unter 800	?	749	760	x		
C4	860-890	30	815	917	x		
C5	880-910	20	916	919	x		
E1	930-960	80	910	930	x		
E2	880-920	50	708	970	x		
E3	950-980	50	860	960			x
E4	930-960	60	781	1000	x		
E5	950-980	20	856	930	x		
F1	850-900	50	890	960			x
F2	850-900	50	893	970			x
F3	830-880	60	932	940			x
F4	810-860	25	835	975			x
F5	800-860	0	880	950			x
BSS12	860-910	100	842	850			x
BSS22	860-900	55	862	876			x
BSS25	810-850	60	747	810			x
BSS26	840-900	50	795	881			x
BSS28	910-940	60	967	998			x

Tab. 3.4: Mikrohärte der Zircaloy-4-Hüllrohre; Mittelwerte aus den über die Rohrwand im Querschliff aufgenommenen Härteprofilen.

Brennstab	Schliff-Nr.	Azimuth- winkel	Anzahl d. Messungen	Mittelwert [HV 0,025]
G1.1	1	0°	69	230,6
"	3	0°	69	221,8
G1.5	3	0°	28	274,8
"	3	180°	63	229,7
"	5	0°	24	239,3
"	5	180°	66	238,6
"	7	0°	65	232,5
G2.1	1	90°	54	243,4
"	1	270°	21	249,5
"	3	150°	64	224,3
G3.3	4	0°	21	245,4
"	4	210°	60	232,6
"	6	300°	59	252,1
BSS12	1	160°	57	253,4
"	4	340°	30	257,5
"	4	160°	54	226,7
"	6	160°	54	229,1
E5	5	0°	60	250,3
"	7	330°	45	239,9
"	10	60°	36	267,8
"	10	240°	12	269,3
"Abbrandstäbe" (vorbestrahlter Zustand)				
G1.6	5	0°	72	296,5
G3.6	5	180°	70	308,9
C6	6	0°	69	317,8
E6	5	180°	72	319,4

Tab. 3.5: Temperaturangaben für die Berststellen der Brennstäbe aus Messung und Gefügebeurteilung.

T_M^M = Maximaltemperatur nach Messung
 T_B^M = Bersttemperatur nach Messung
 $\Delta T^M = T_M^M - T_B^M$ = gemessener Temperaturanstieg nach Bersten
 T_M^G = Maximaltemperatur nach Gefüge
 $T_B^{M,30K}$ = gemessene und mit +30K korrigierte Bersttemperatur
 T_B^G = $T_B^{M,30K}$ für $T_B^{M,30K} < T_M^G$
 T_B^G = T_M^G für $T_B^{M,30K} > T_M^G$ Bersttemperatur nach Gefügebeurteilung
 T_B^{Red} = $T_M^G - \Delta T^M$ = reduzierte Bersttemperatur nach Gefüge

Stab Nr.	T_M^M [°C]	T_B^M [°C]	ΔT^M [K]	T_M^G [°C]	$T_B^{M,30K}$ [°C]	T_B^G [°C]	T_B^{Red} [°C]
A1.1	896	810	86	930	786	786	844
A2.1	905	820	85	840	752	752	755
A2.2	950	860	90	870	815	815	780
A2.3	1015	1015	0	870	970	870 x	870
B1.1	900	900	0	855	855	855 x	855
B1.2	1000	915	85	890	870	870	805
B1.3	905	845	60	840	800	800	780
B1.5	930	910	20	870	865	865	850
B1.6	875	825	50	800	780	780	750
B1.7	890	840	50	?	860	860?	?
B3.1	891	825	66	830	780	780	764
B3.2	915	915	0	830	870	830 x	830
C1	1020	900	120	880	920	880 x	760
C2	945	945	0	945	965	945 x	945
C3	760	749	11	<800	769	769?	?
C4	917	815	102	875	835	835	773
C5	919	916	3	895	936	895 x	892
E1	930	910	20	945	930	930	925
E2	970	708	262	900	728	728	638
E3	960	860	100	965	880	880	865
E4	1000	781	219	945	801	801	726
E5	930	856	74	965	876	876	891
F1	960	890	70	875	845	845	805
F2	970	893	77	875	848	848	798
F3	940	932	8	855	887	855 x	847
F4	975	835	140	835	790	790	695
F5	950	880	70	830	835	830 x	760
G1.2	920	730	190	895	685	685	705
G1.3	940	890	50	865	860	860	815
G1.4	910	785	125	820	763	763	695
G1.5	850	780	70	880	800	800	810
G2.1	900	869	31	955	889	889	924
G2.2	890	846	44	825	866	825 x	781
G3.1	900	900	0	875	920	875 x	875
G3.2	840	838	2	855	858	855 x	853
G3.3	930	750	180	875	770	770	695
BSS12	850	842	8	885	862	862	877
BSS22	876	862	14	880	882	880 x	866
BSS23	840	815	25	?	835	835?	?
BSS24	958	958	0	?	978	978?	?
BSS25	810	747	63	830	767	767	767
BSS26	881	795	86	870	815	815	784
BSS28	998	967	31	925	987	925x	894

x: T_B als T_M^G abgeschätzt

Tab. 3.6: Mikrohärte des Hüllmaterials (im Querschliff) im Vergleich verschiedener Zustände und Versuchsserien.

Zustand, Versuchsserie	Zahl der Meßserien	Zahl der Einzelmessungen	Mikrohärtewerte [HV 0,025] der Meßserien Minimum/Mittelwert/Maximum
Ausgangszustand	1	75	/261,6/
Vorbestrahlter Zustand			
C	1	69	/317,8/
E	1	72	/319,4/
F	2	144	322,7/324,0/325,3
G	2	142	296,5/302,7/308,9
gesamt	6	427	296,5/315,1/325,3
Nach LOCA-Transiente			
BSS	4	195	226,7/241,7/257,5
A,B	21	1052	234,0/249,8/286,0
E	4	153	239,9/256,8/269,3
F	6	295	232,0/245,0/269,5
G	13	663	221,8/239,6/274,8
gesamt	48	2358	221,8/246,3/286,0

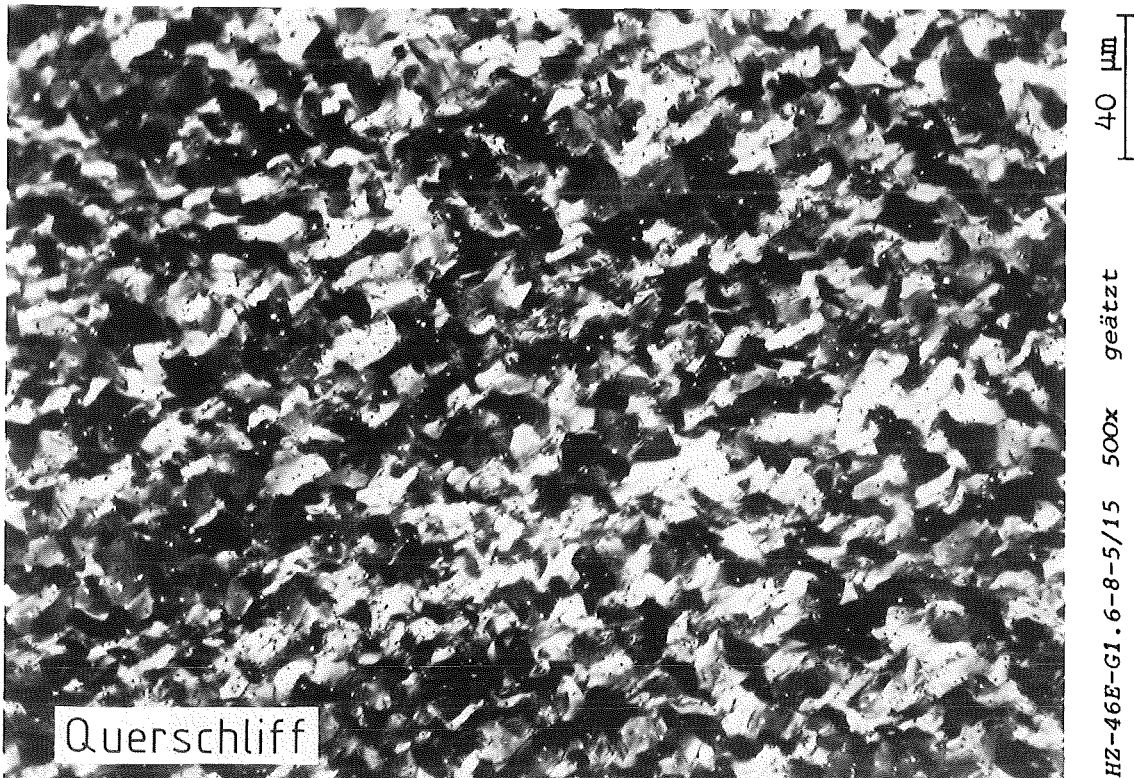


Abb.3-1
Zircaloy 4-Gefüge des Stabes G1.6
im vorbestrahlten Zustand

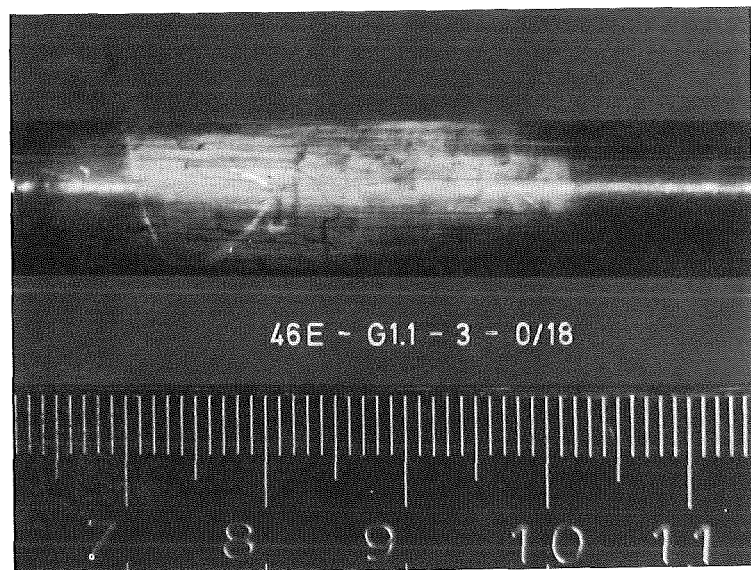
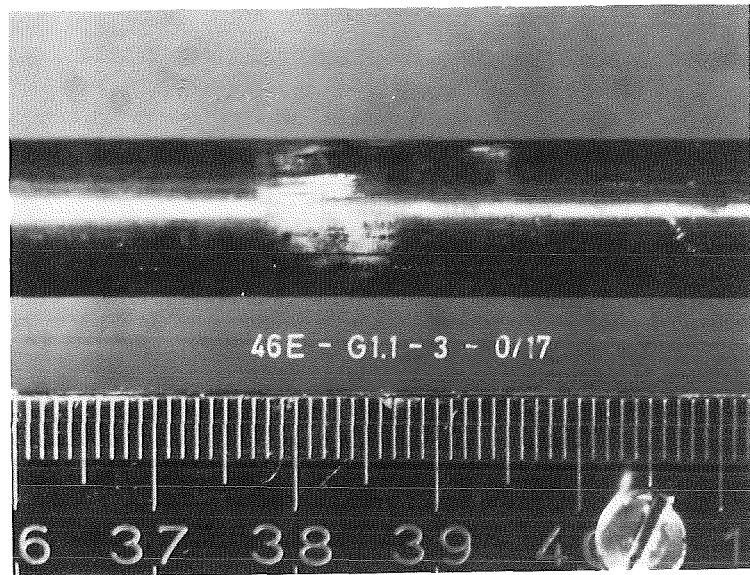
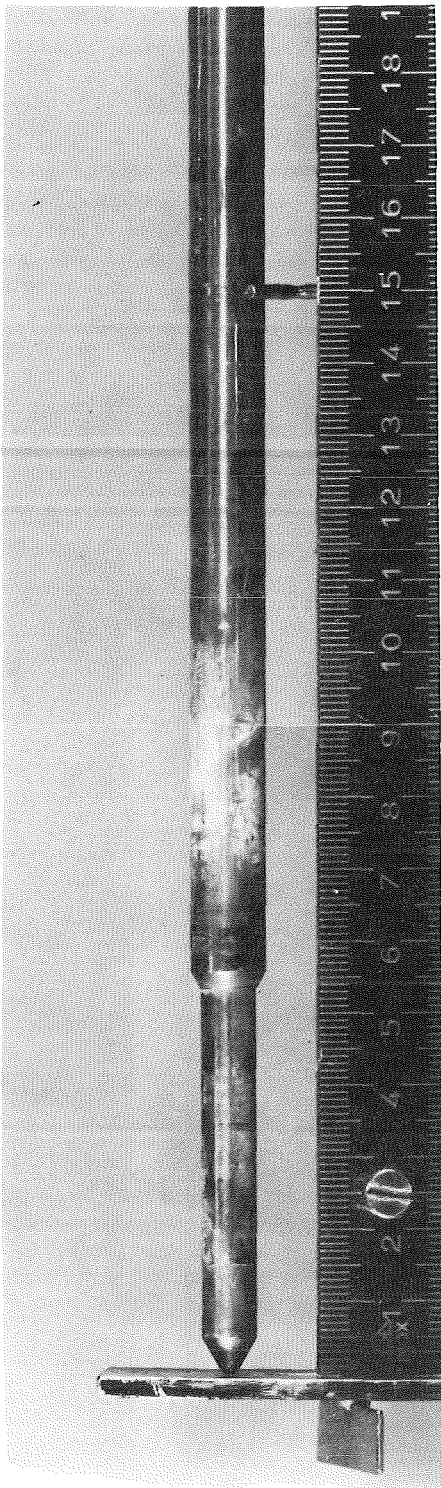


Abb.3-2

Hell gefärbte Bereiche des Brenn-
stabes G1.1 (nicht geborsten)

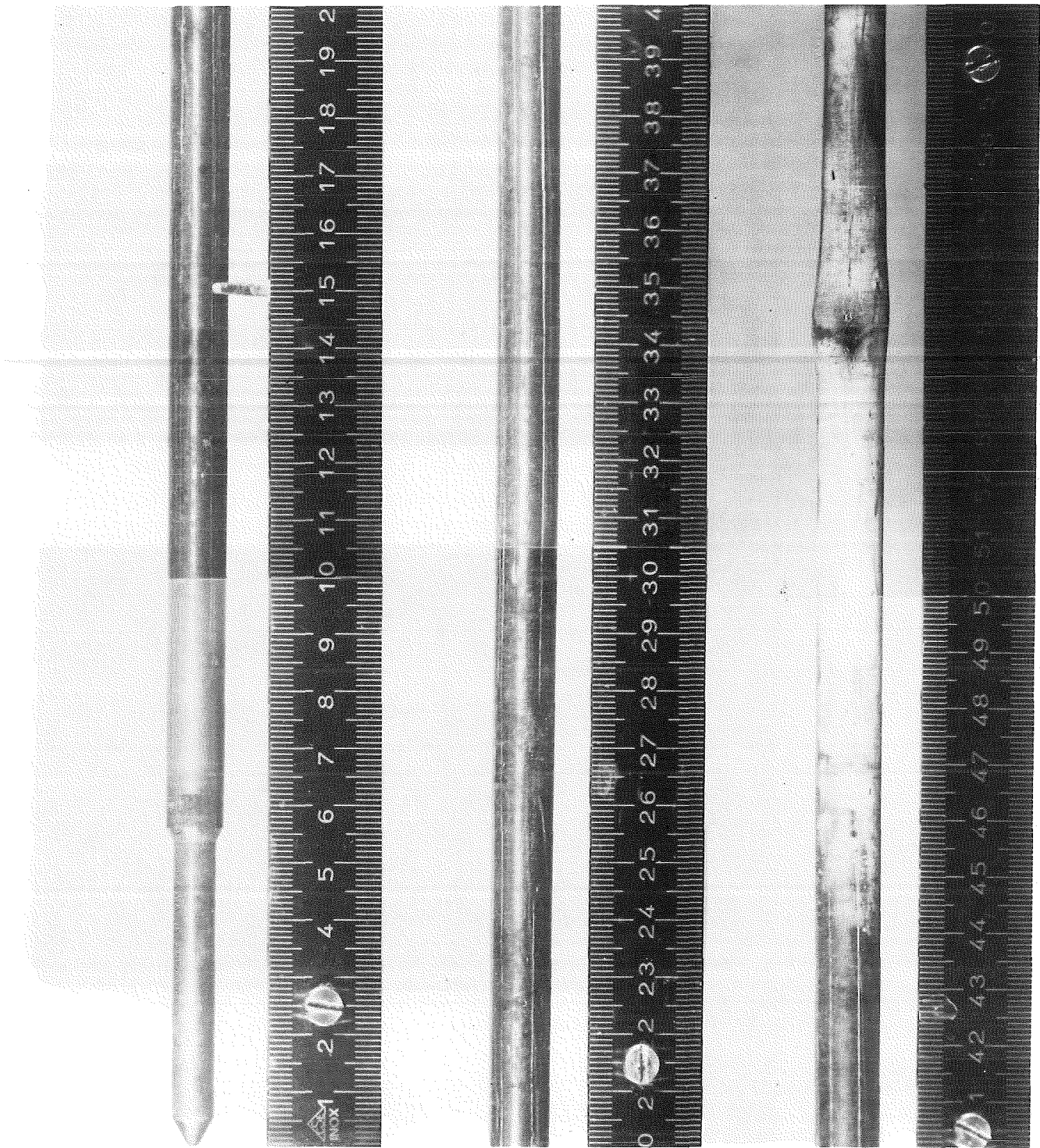


Abb.3-3

Ansicht des Brennstabes G2.1 mit hell gefärbter Zone ("weißes Oxid")

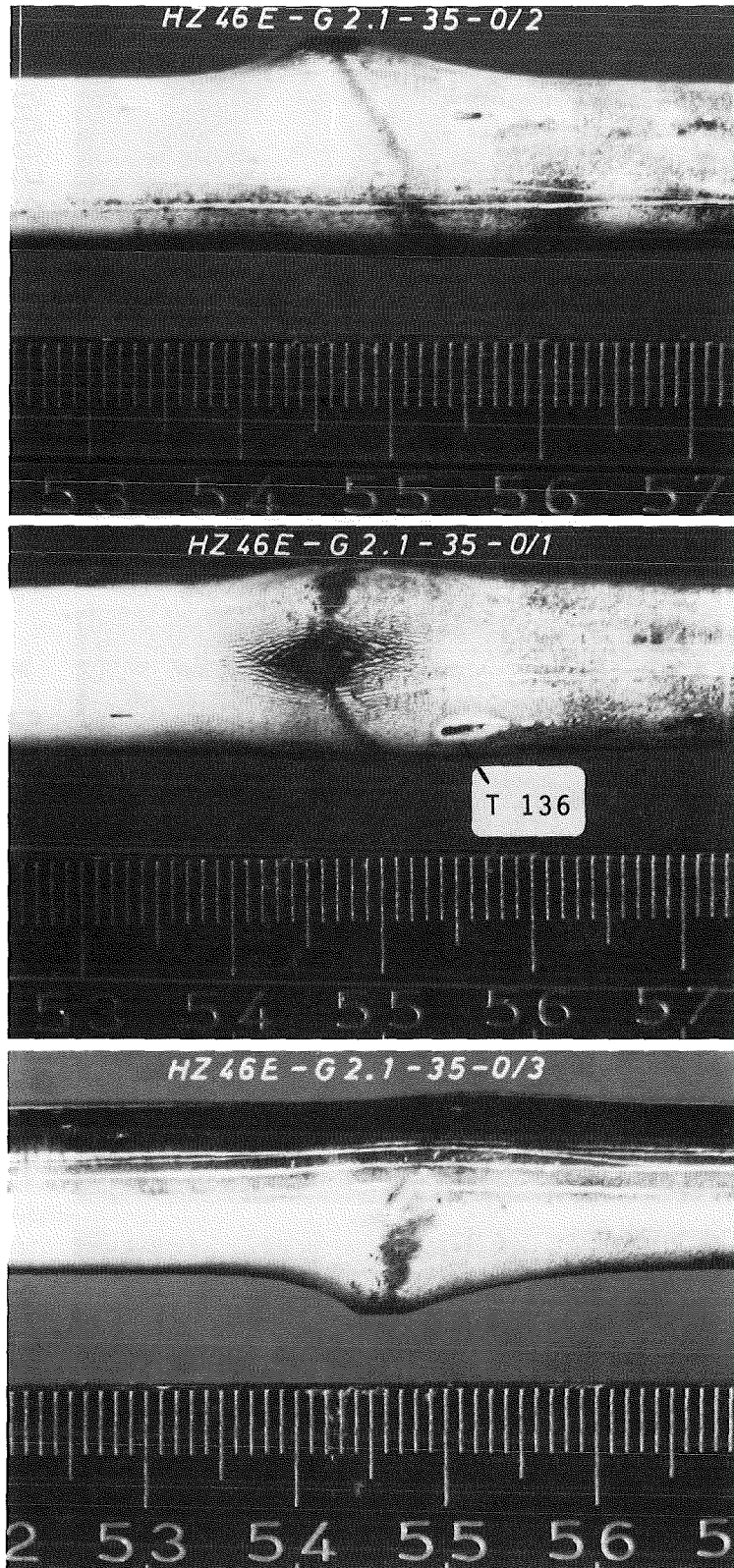
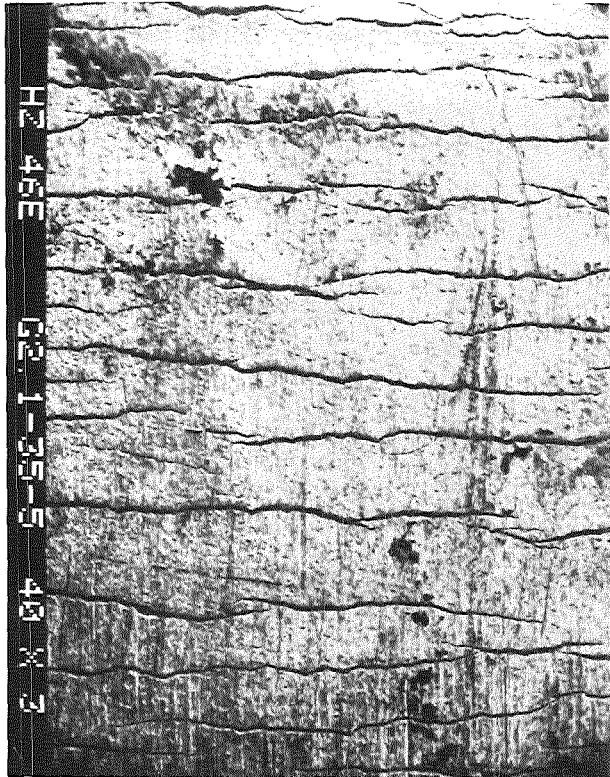


Abb.3-4

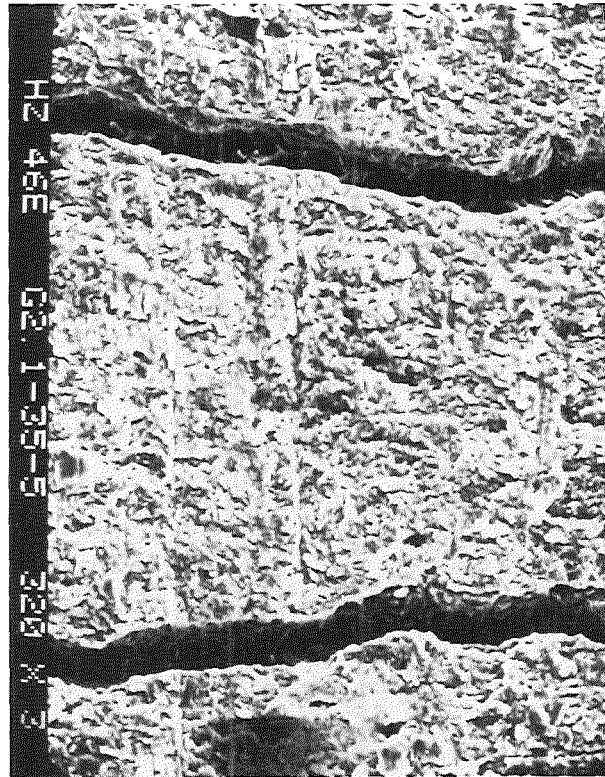
Weißes Oxid im Berstbereich des
Brennstabes G2.1

Axialrichtung \longleftrightarrow



500 μm

40 x



100 μm

320 x

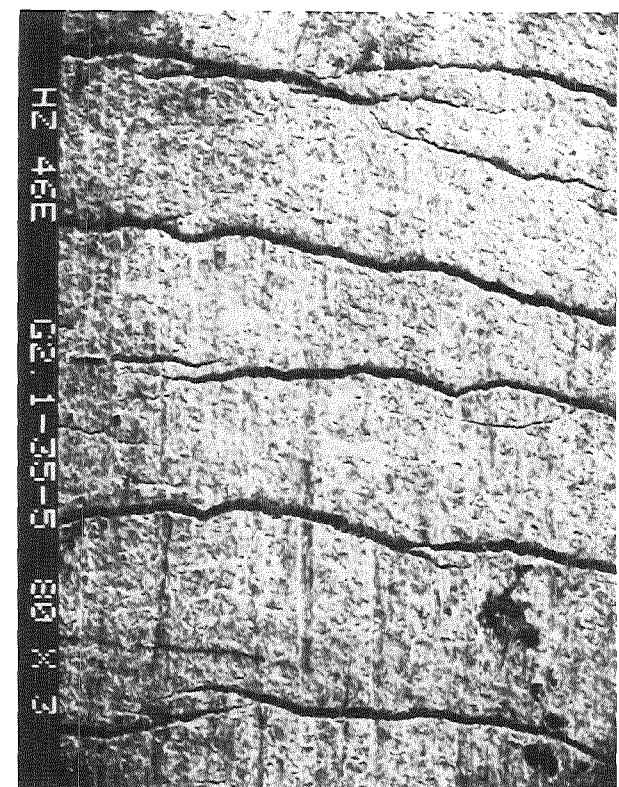
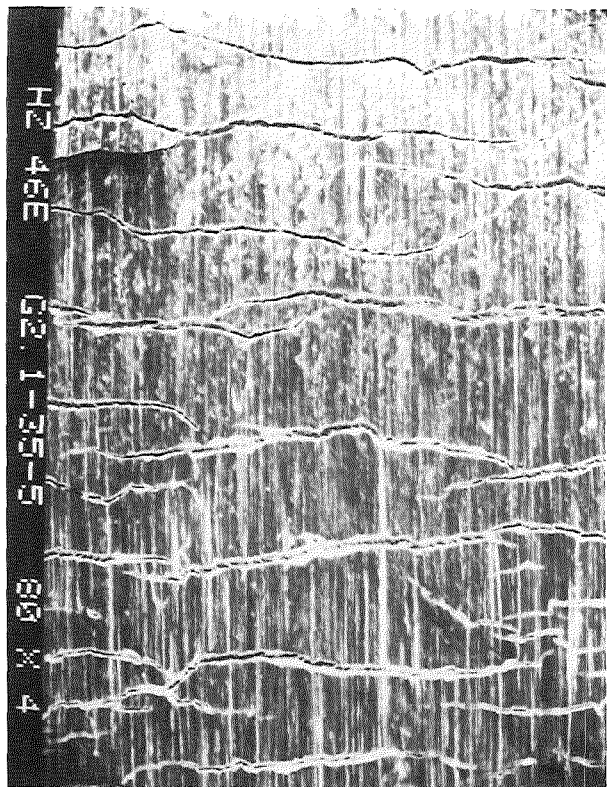
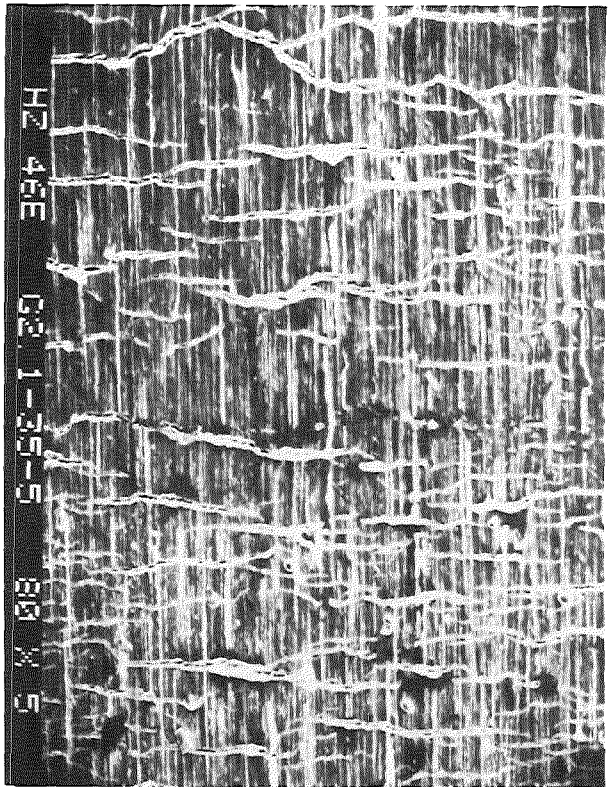


5 μm

5000 x

Abb.3-5: REM-Aufnahmen der Außenoberfläche des Stabes G2.1.
Vergrößerungsserie einer Stelle mit weißem Oxid

Axialrichtung \longleftrightarrow



normales (graues) Oxid

Übergangsbereich

weißes Oxid

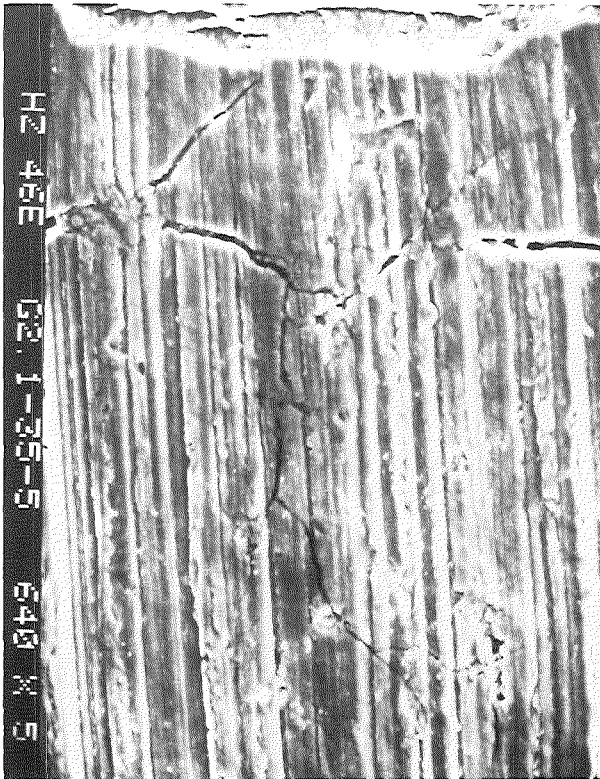
250 μm



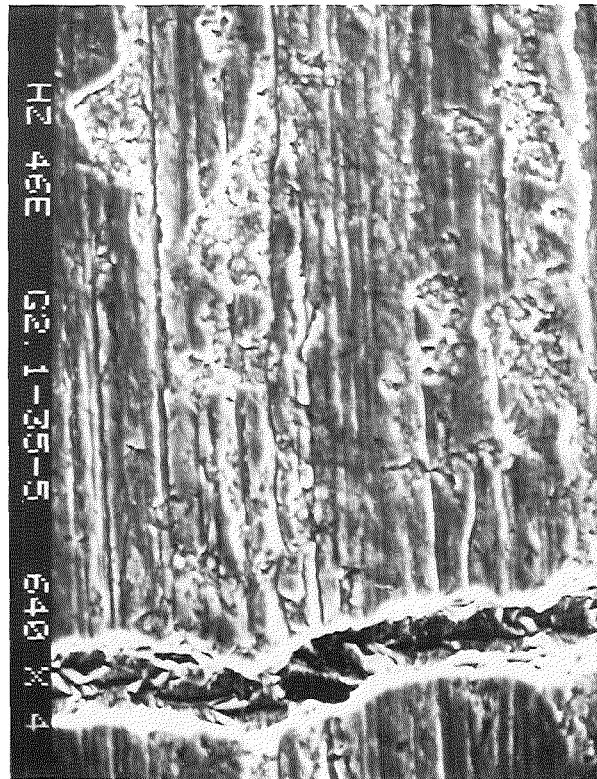
Abb.3-6: REM-Aufnahmen der Außenoberfläche des Stabes G2.1. Übergang von grauem in weißes Oxid, Vergr. 80x (vgl. Abb.3-7)



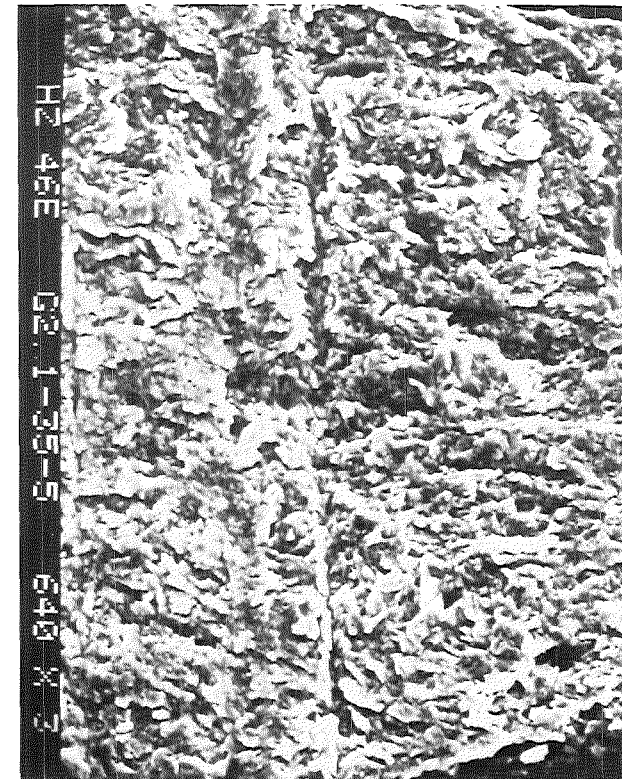
Axialrichtung \longleftrightarrow



normales (graues) Oxid



Übergangsbereich



weißes Oxid


50 μm

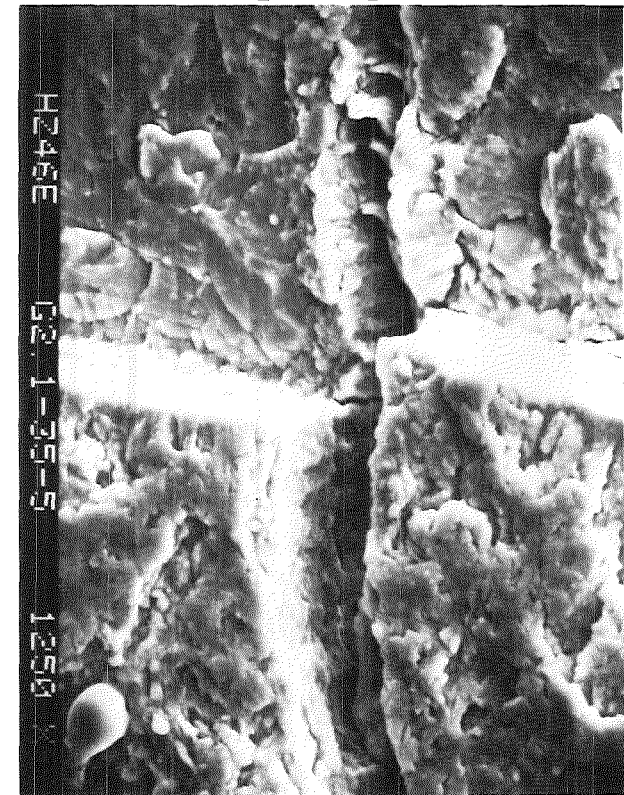
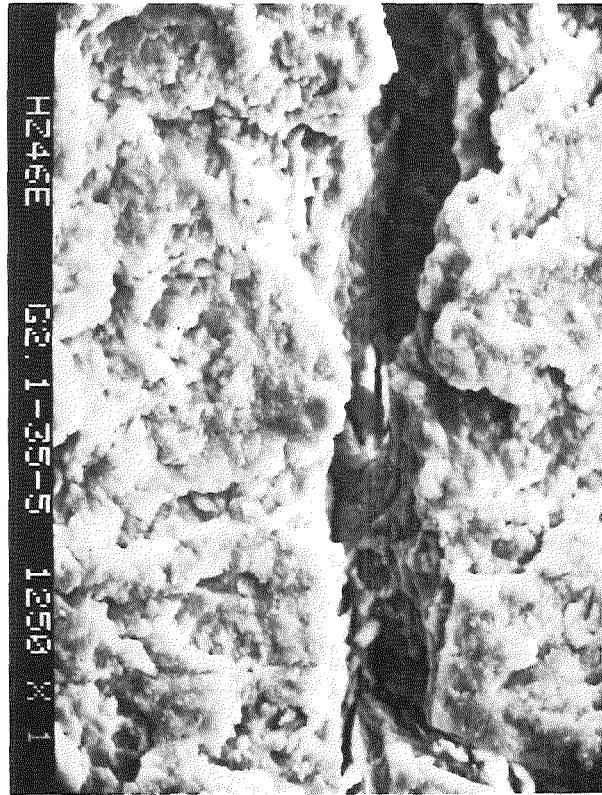
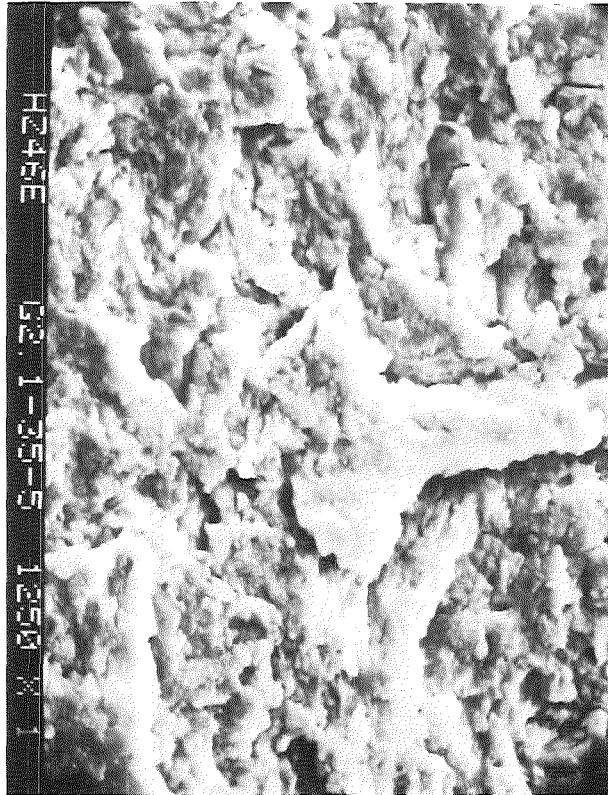


KfK IMF II

Abb.3-7: REM-Aufnahmen der Außenoberfläche des Stabes G2.1
Übergang von grauem in weißes Oxid, Vergr. 640x (vgl. Abb.3-6)

Axialrichtung 

20 μm 



Oberflächenstelle
ohne Anriß

Oberflächenstelle
mit axialem Anriß

Bruchfläche einer abge-
spalteten Oxid-Teilschicht

Abb.3-8: REM-Aufnahmen der Außenoberfläche des
Brennstab-Hüllrohres G2.1 mit weißem Oxid, Vergr. 1250x

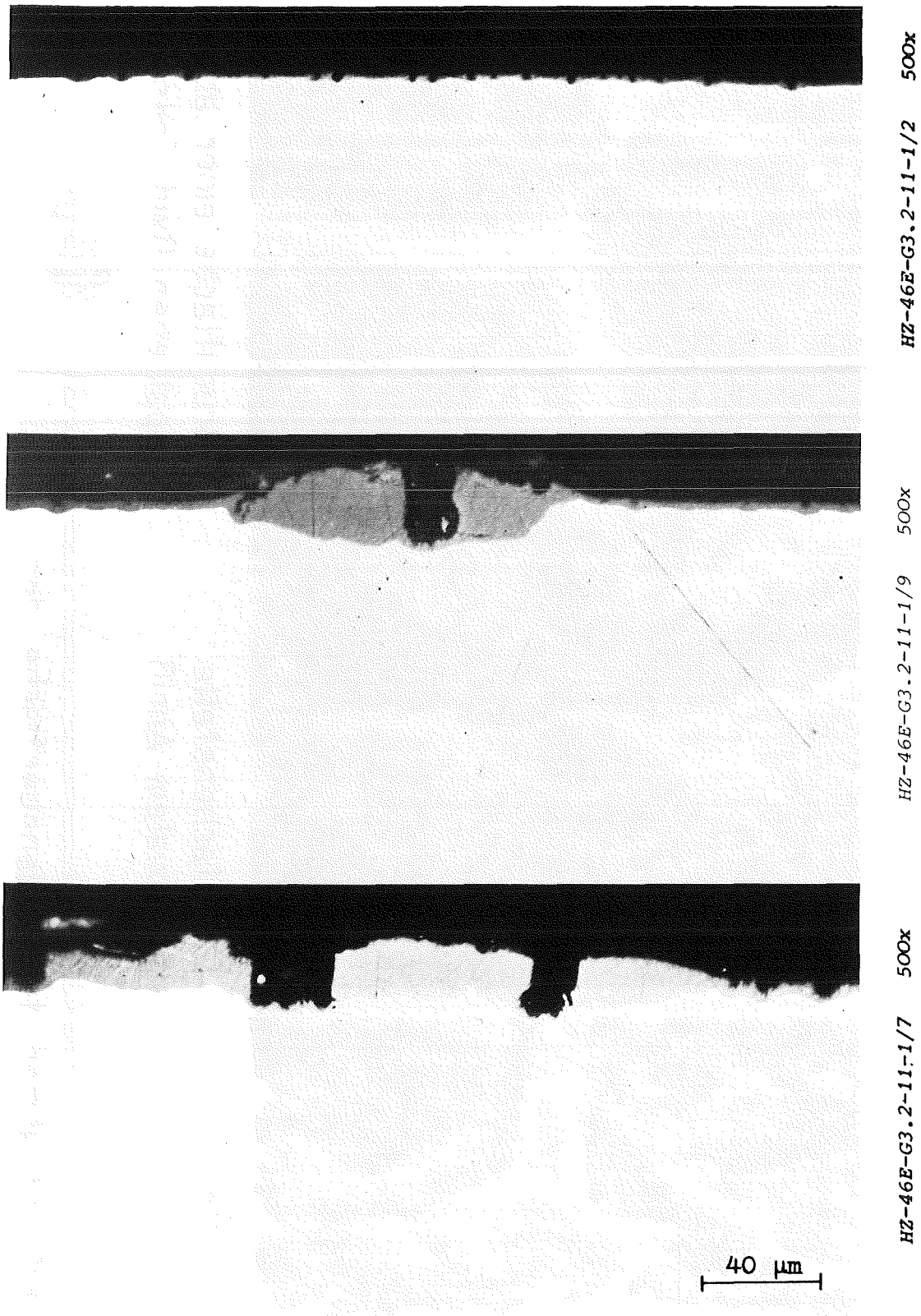
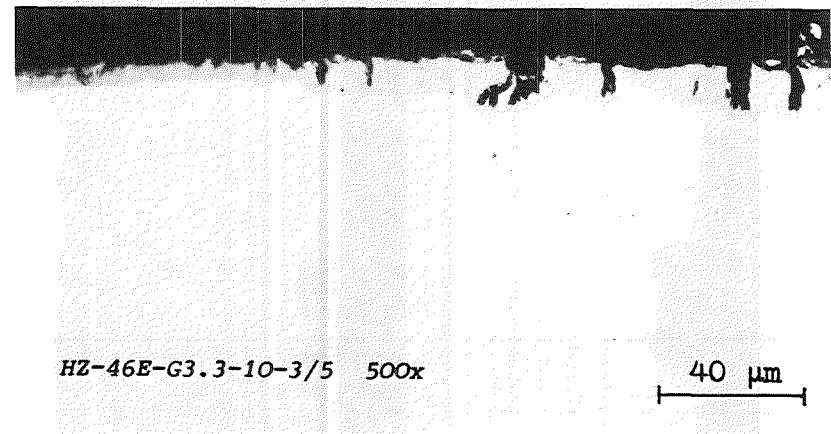
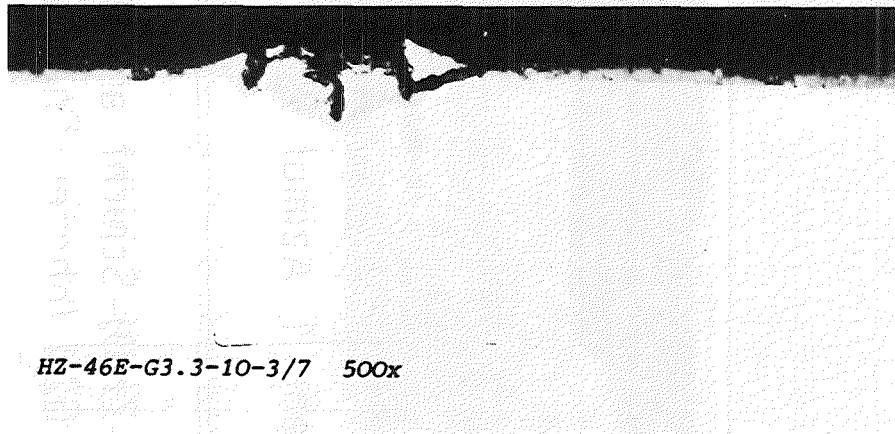
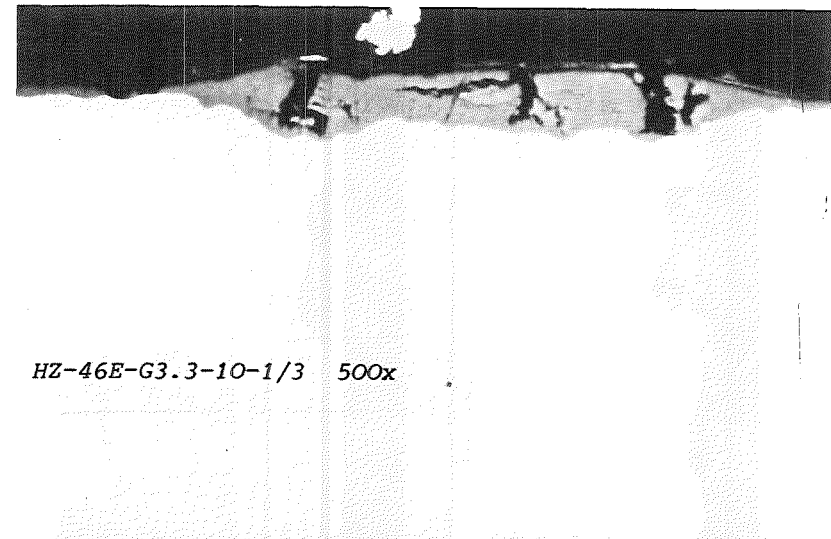
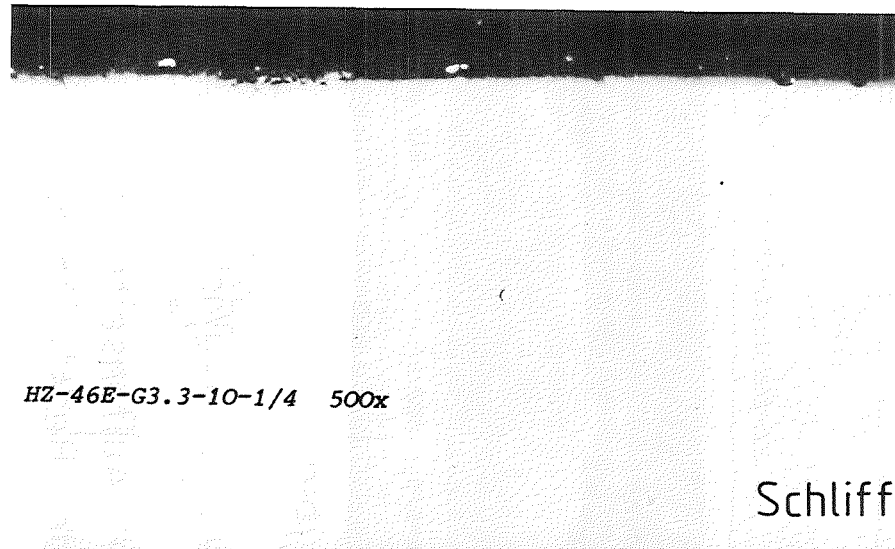


Abb.3-9



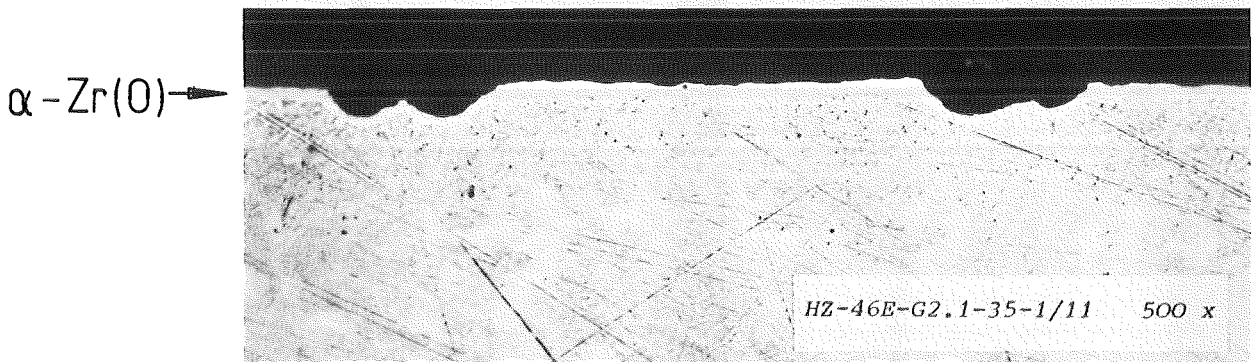
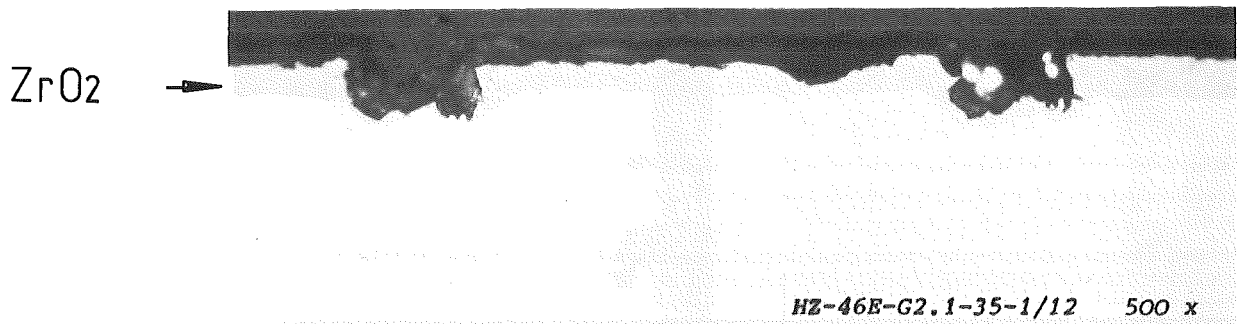
Normale und örtlich verstärkte äußere Oxidschicht
des Brennstabes G3.2 (in Schliffebene 1)
mit dehnungsbedingten Anrissen



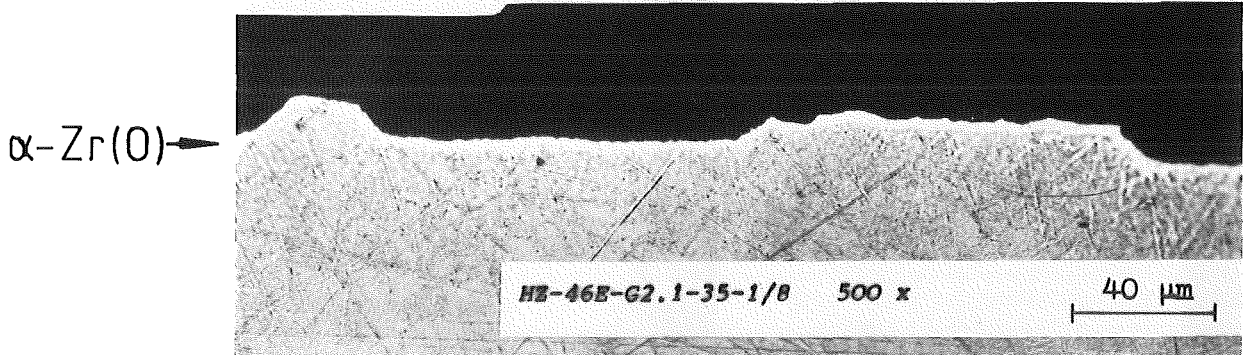
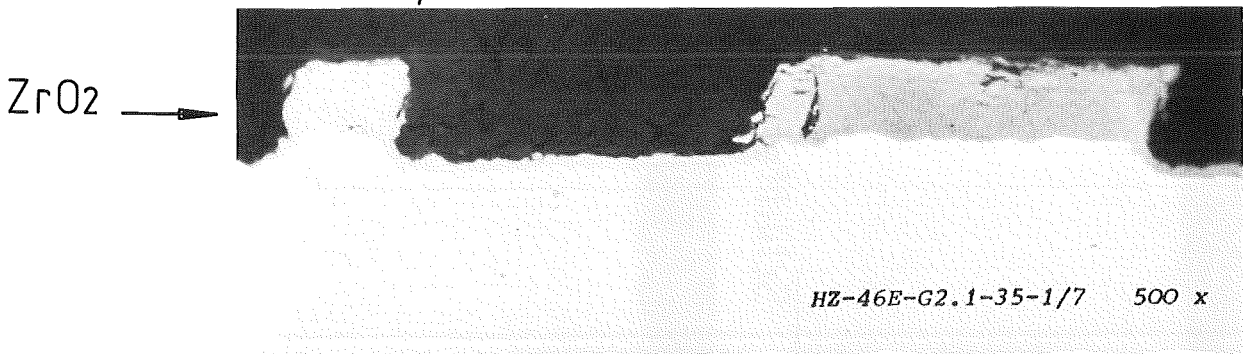
Schliffebene 3

Abb.3-10

Normale und örtlich verstärkte äußere Oxidschicht in 2 Ebenen des Brennstabes G3.3



Ebene 1, Azimut 0°

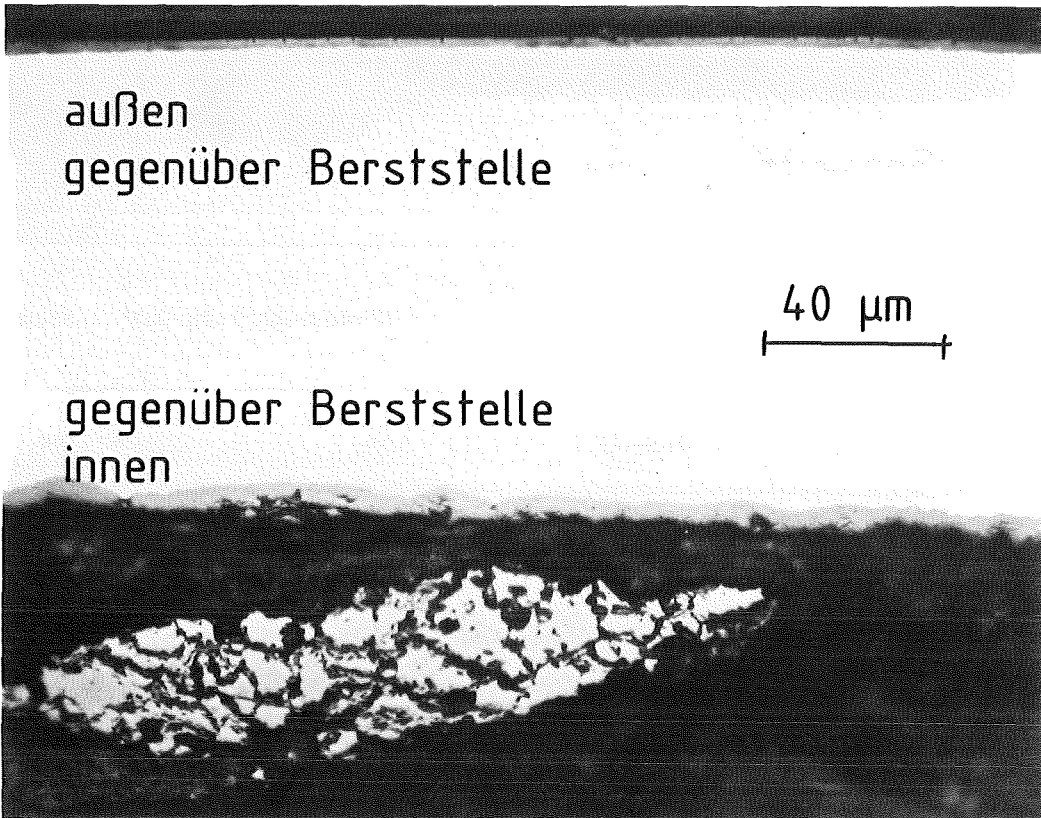
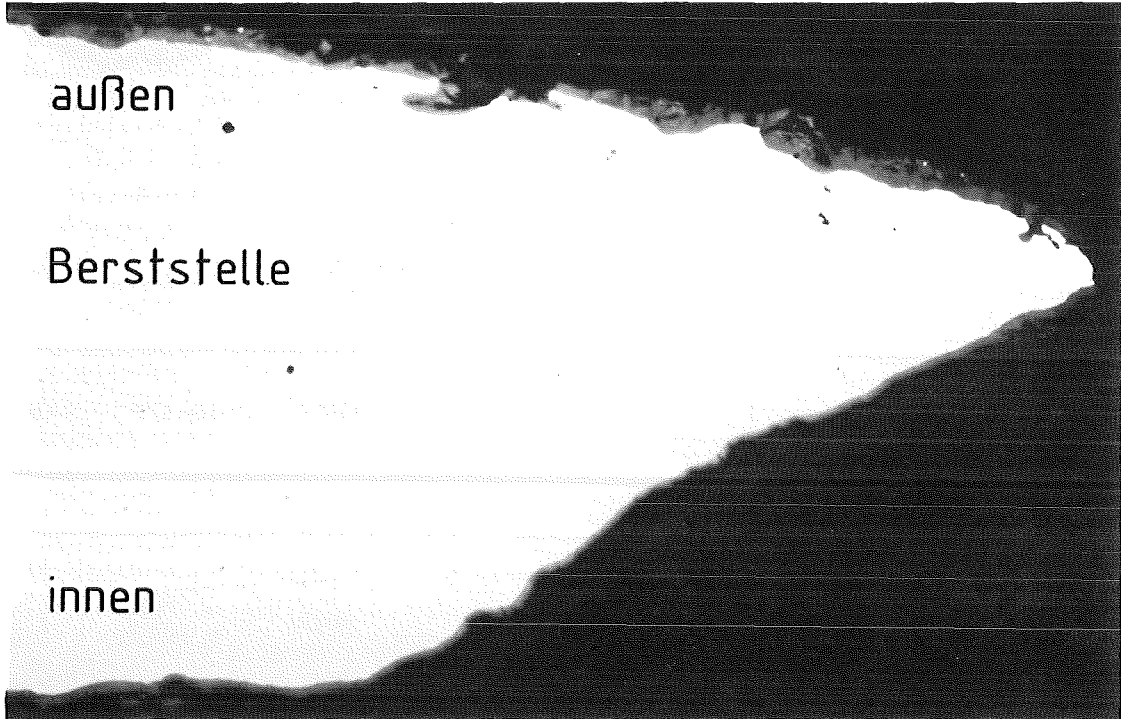


Ebene 1, Azimut 270° (Rechts)

Abb.3-11

ZrO₂- und α-Zr(O)-Schicht an der Außenseite des Brennstabes G2.1 (oberes Ende der Berstöffnung), Bereich weißen Oxids

HZ-46E-G1.4-7-3/6 500x



HZ-46E-G1.4-7-3/8 500x
HZ-46E-G1.4-7-3/10 500x

KfK IMF II

Abb.3-12

Vergleich der äußeren und inneren Oxidation des Zry. des Brennstabes G1.4 in Höhe der Berstöffnung



Abb.3-13



Vergleich der äußeren und inneren Oxidschicht in Richtung des Risses und gegenüber. Brennstab G2.2, oberes Reißende (vgl. Abb.3-15)

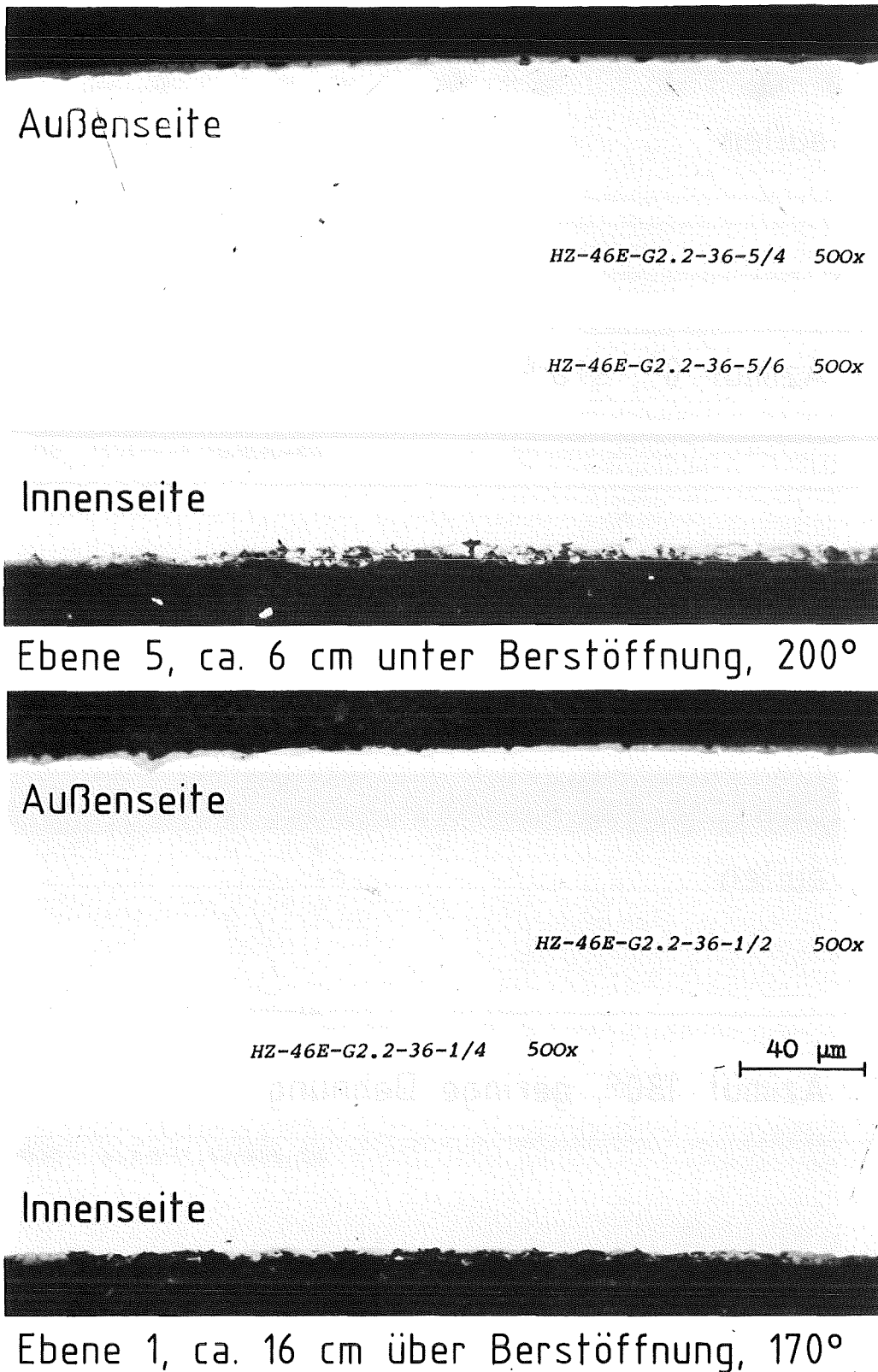


Abb.3-14



Vergleich der äußeren und inneren Oxidschicht für zwei Schliffebenen außerhalb der Berstzone des Brennstabs G2.2. Einfluß des Abstandes von der Berstöffnung

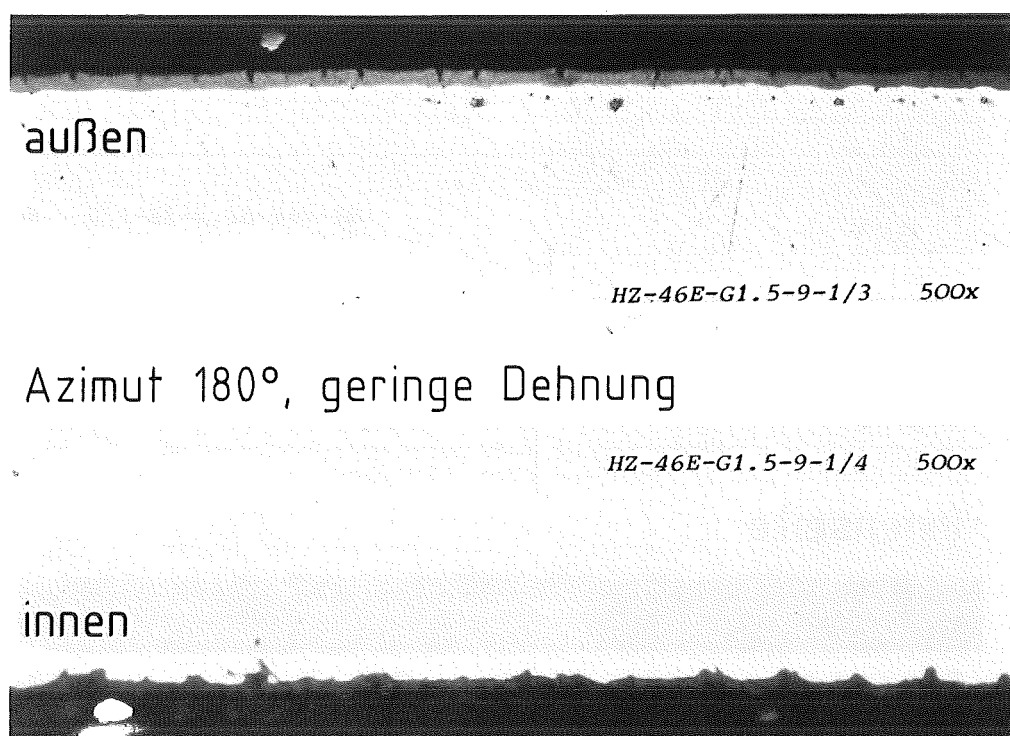
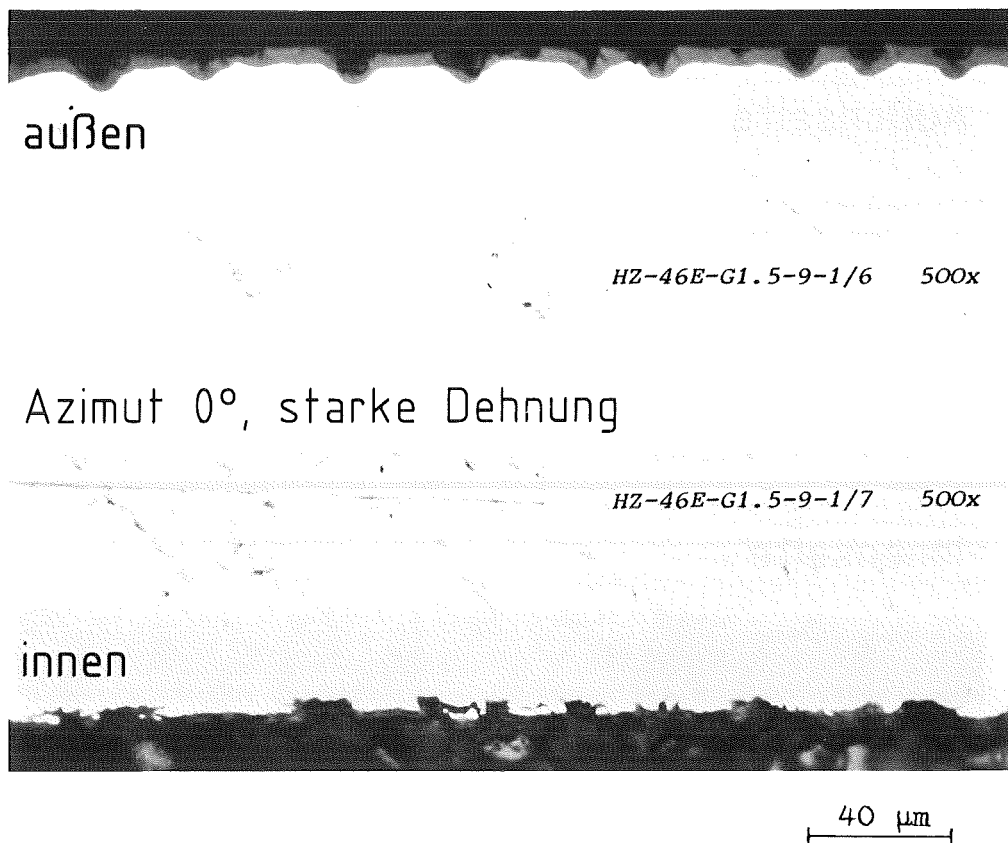


Abb.3-15

Außenoxidation und geringfügige Innenoxidation
ca. 8 cm oberhalb der Berststelle des Brenn-
stabes G1.5

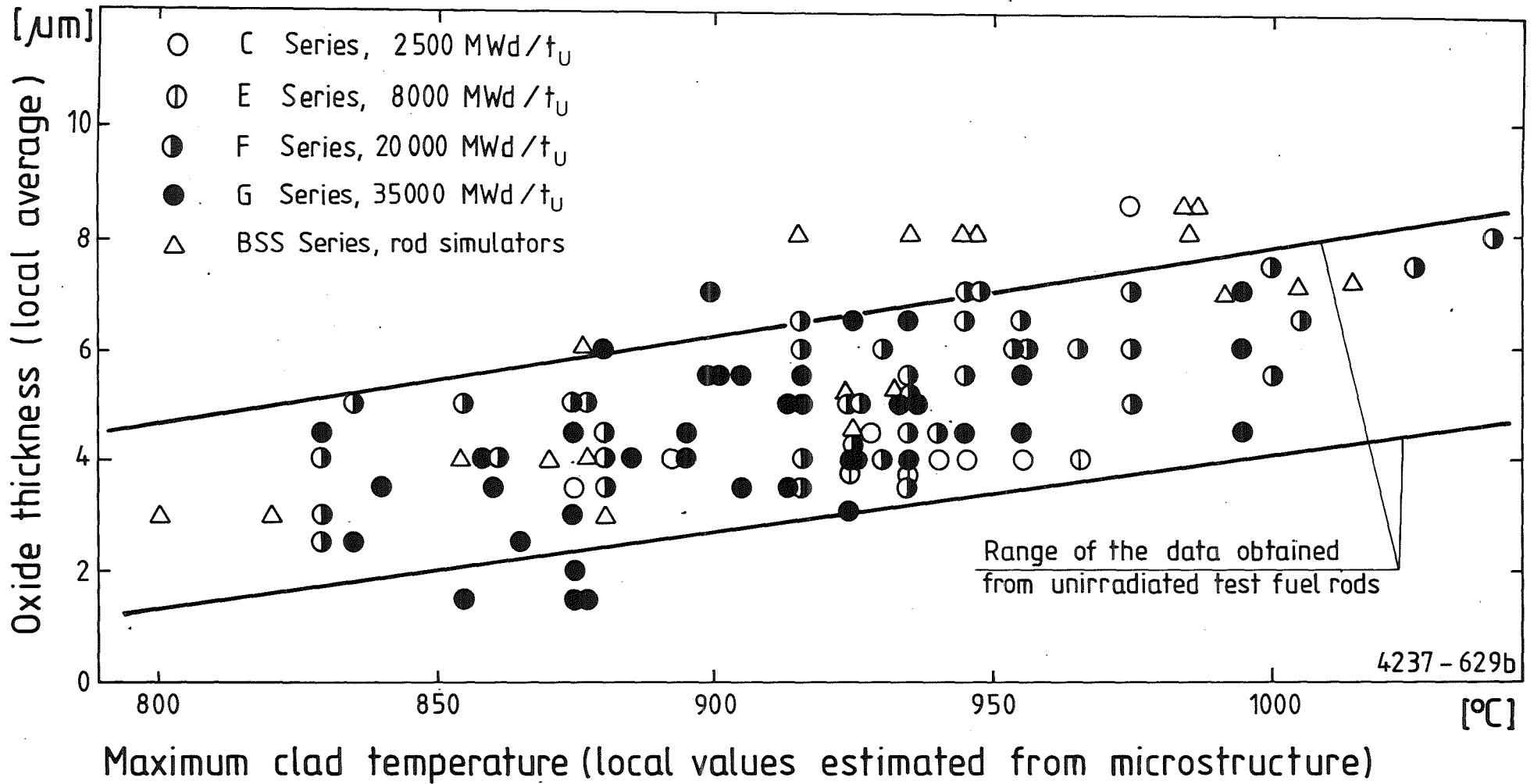
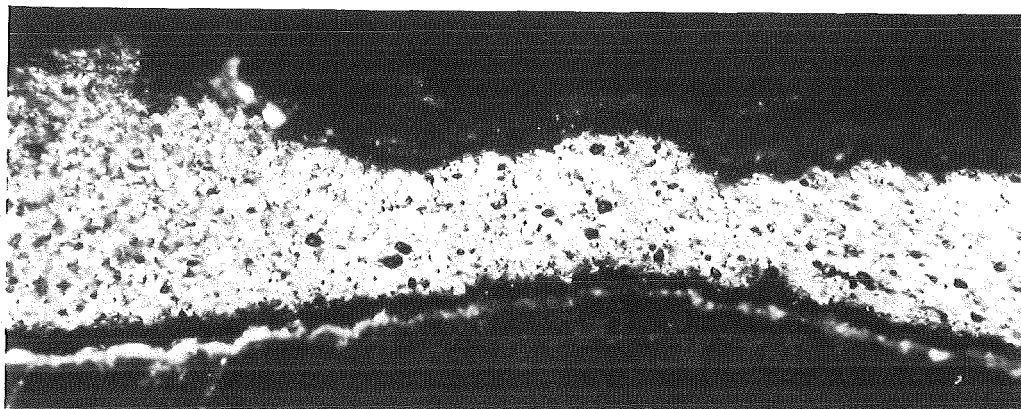


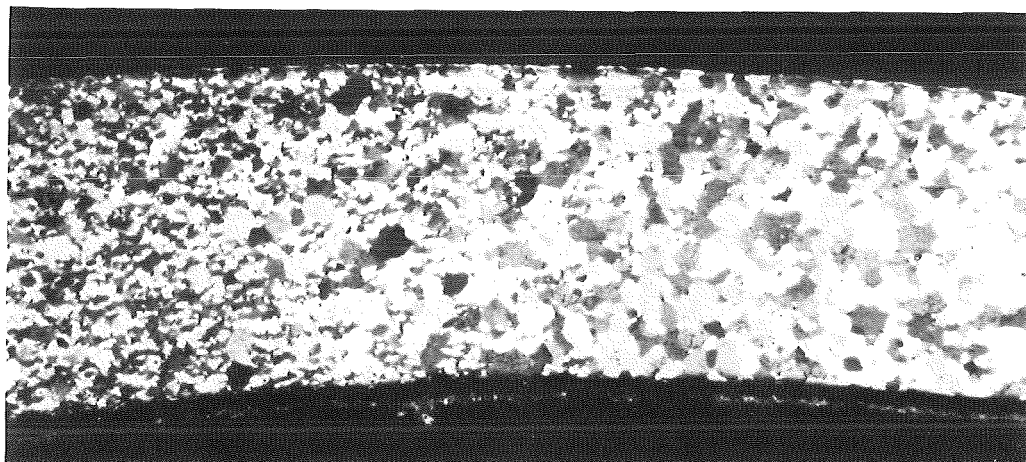
Abb.3-16

FR 2 In-pile tests Steam oxidation of the cladding outer surface.



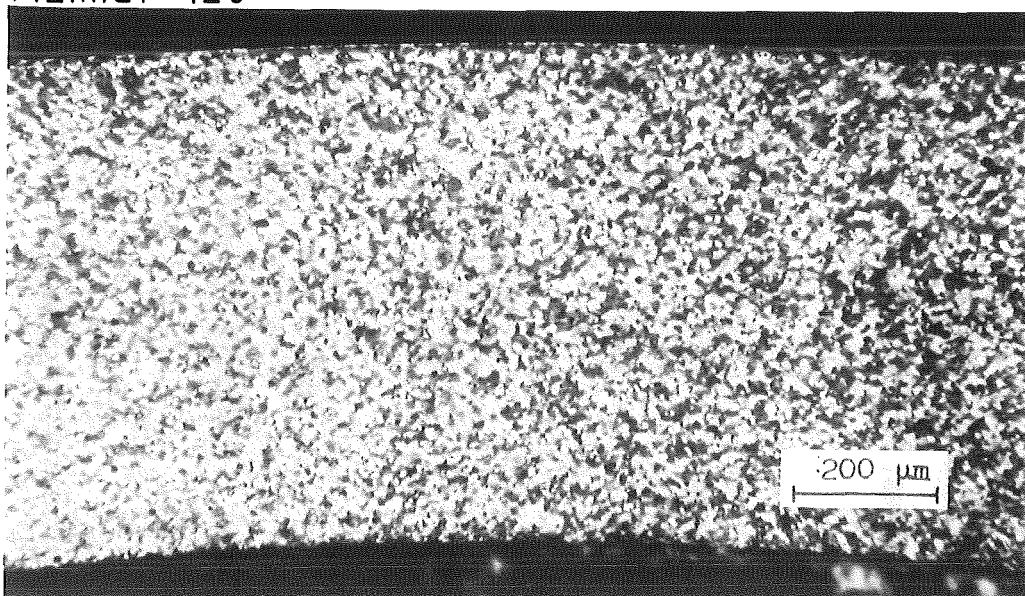
Azimut 170°

HZ-46E-G1.4-7-4/9 100x geätzt



Azimut 120°

HZ-46E-G1.4-7-4/11 100x geätzt



Azimut 350°

HZ-46E-G1.4-7-4/12 100x geätzt



Abb.3-17

Gefüge des Zircaloy 4-Hüllrohres G1.4, dicht unterhalb der Berststelle, mit örtlicher Kornvergrößerung, geätzte Probe, Übersichtsaufnahmen in Polarisation

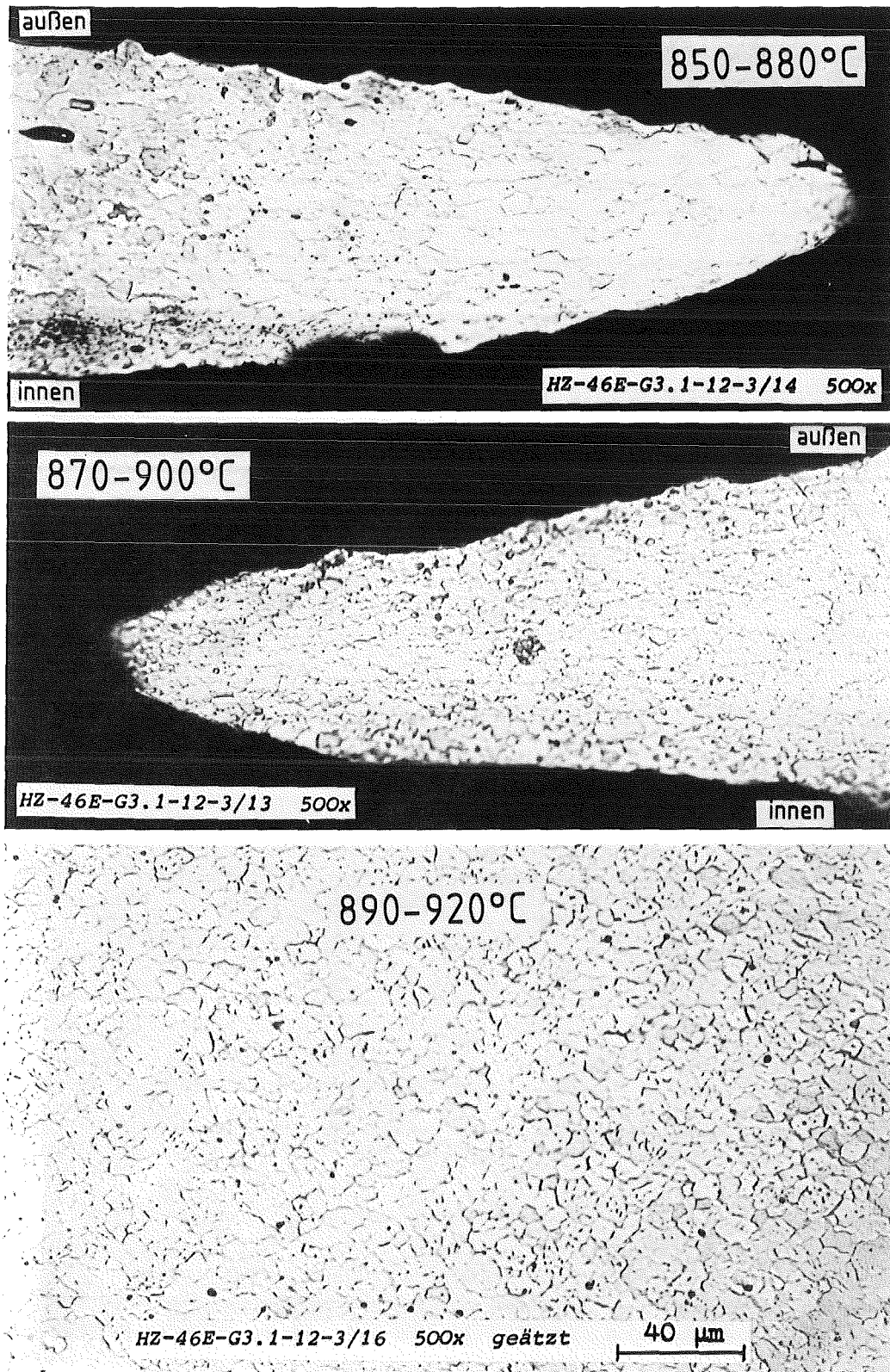
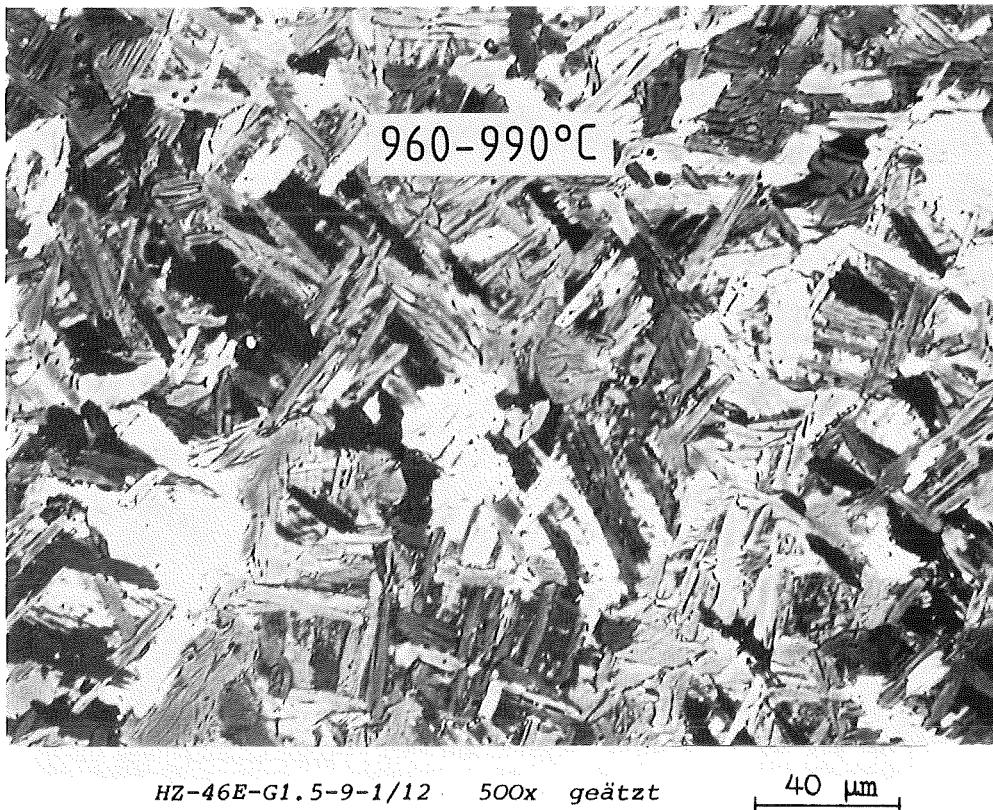
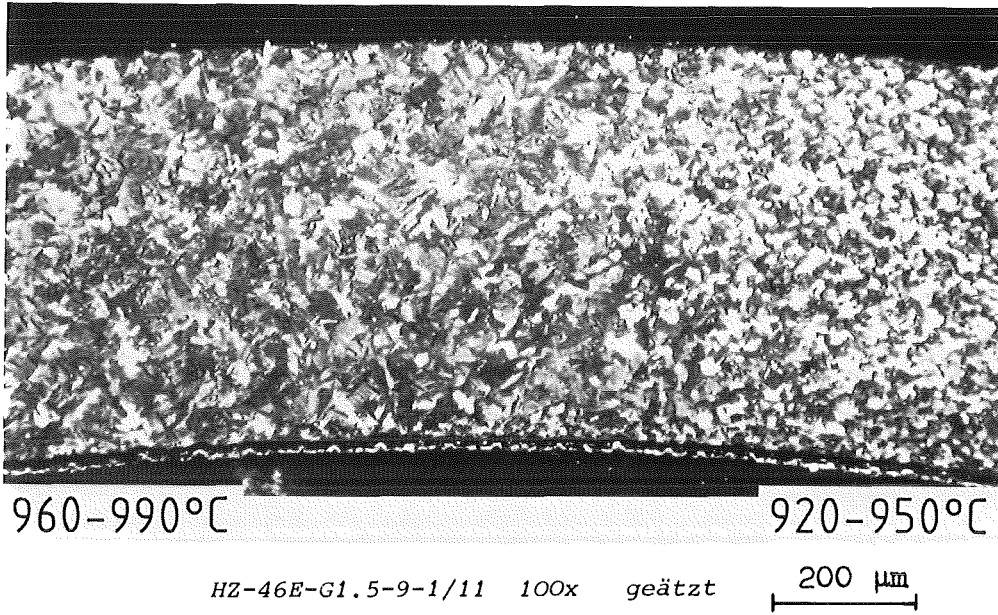


Abb.3-18

KJK IMF II

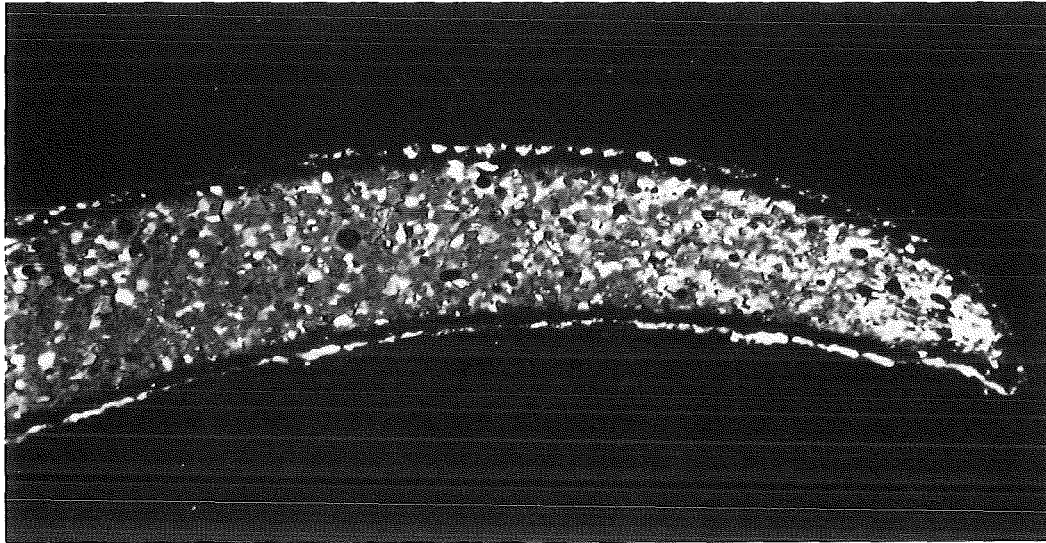
Gefüge des Zircaloy 4-Hüllrohres G3.1 an der Berststelle und gegenüber mit Angabe der abgeschätzten Temperatur; geätzte Aufnahmen, Hellfeld



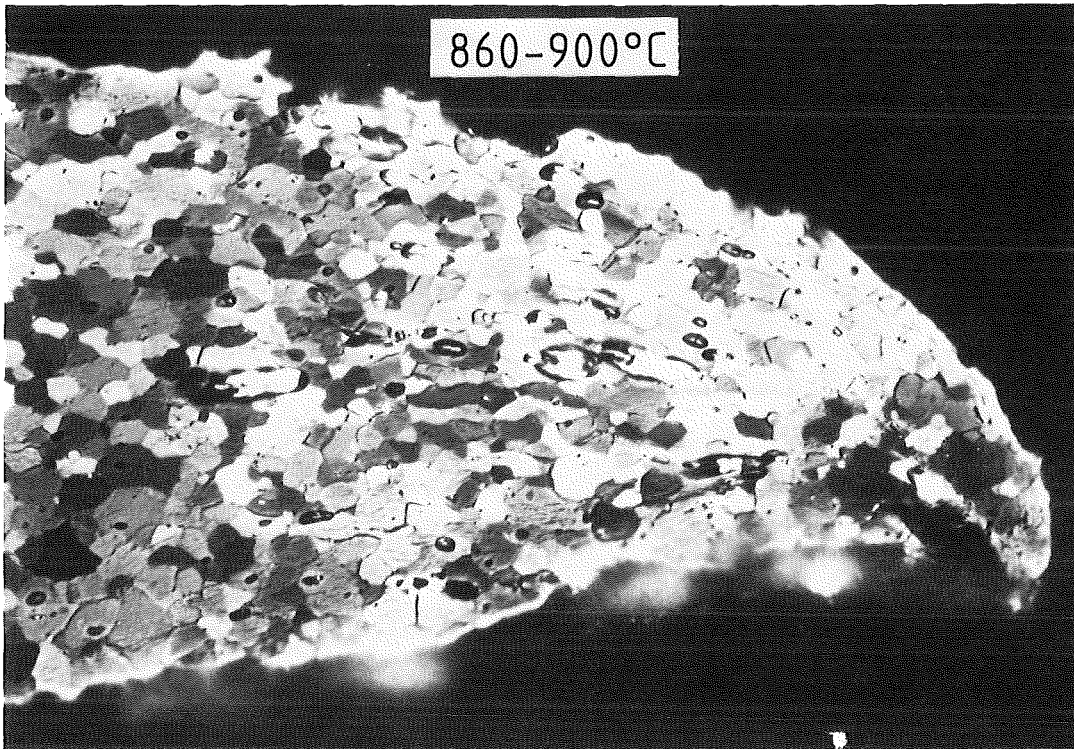
KfK IMF II

Abb.3-19

Übergang von feinkörnigem α -Zircaloy-Gefüge ($\alpha+\beta$) zu grobspießigem α' -Widmannstätten-Gefüge (ehem. β); Brennstab G1.5, Schliffebene 1



HZ-46E-G1.5-9-5/14 100x geätzt 200 μ m

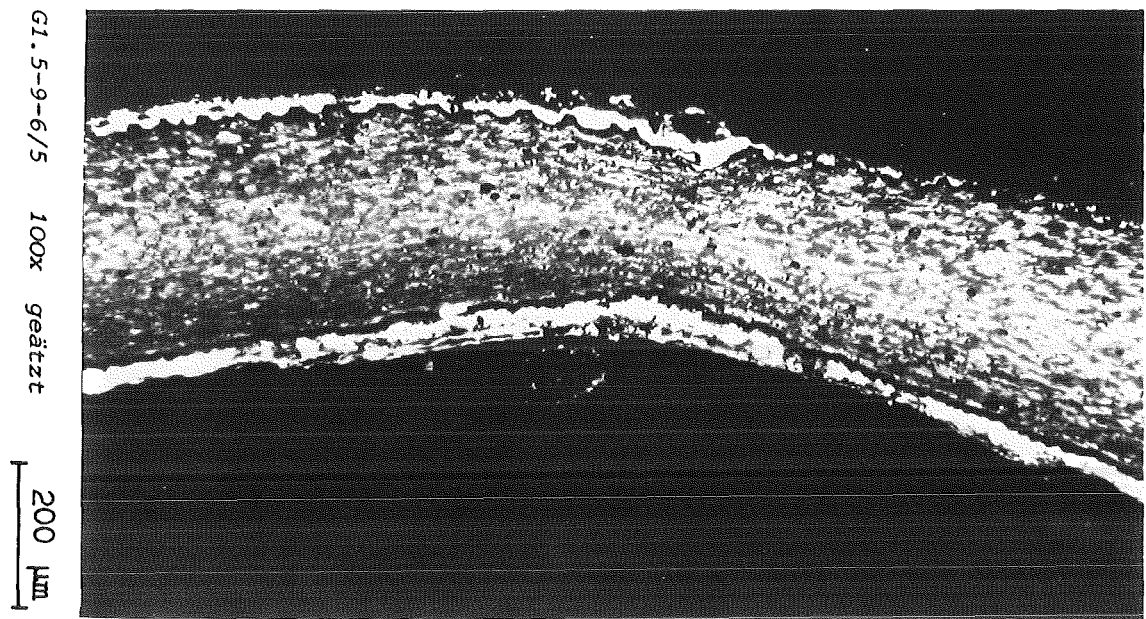


HZ-46E-G1.5-9-5/15 500x geätzt 40 μ m

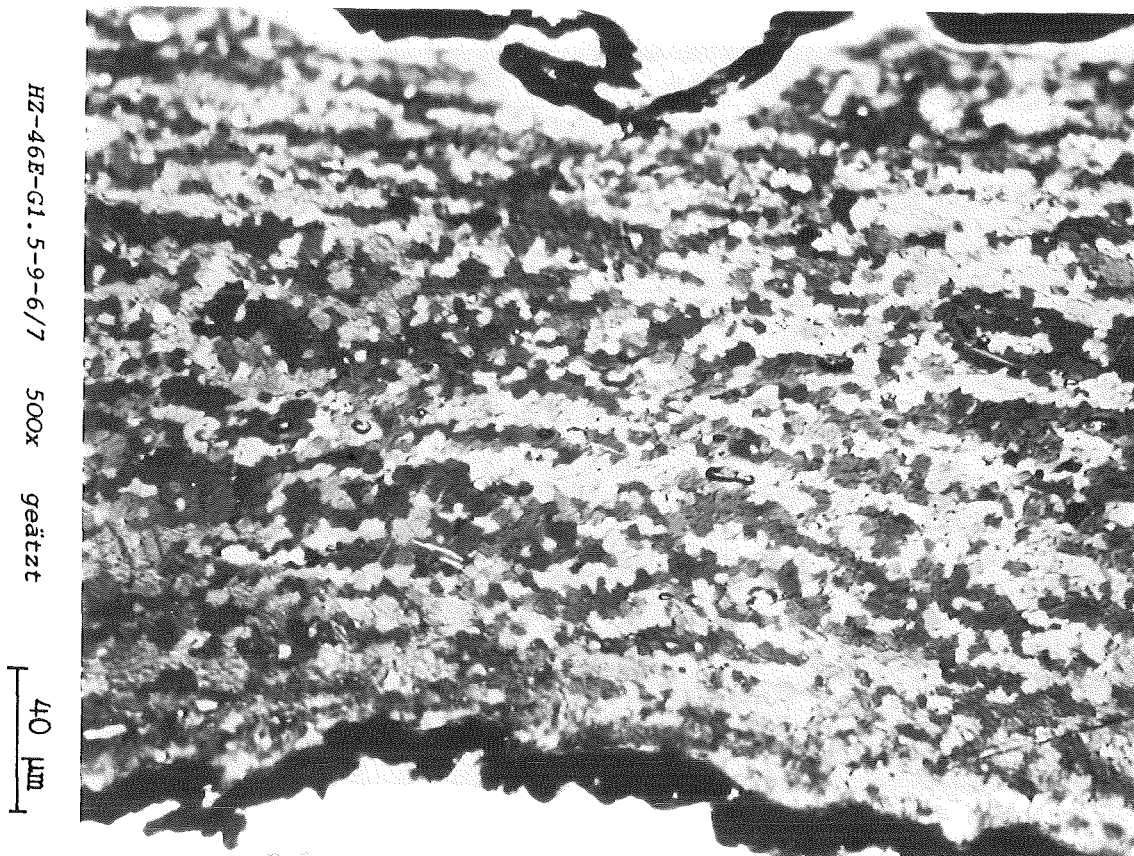
Abb.3-20



Rekristallisiertes Zircaloy 4-Gefüge
an der Berstöffnung des Stabes G1.5



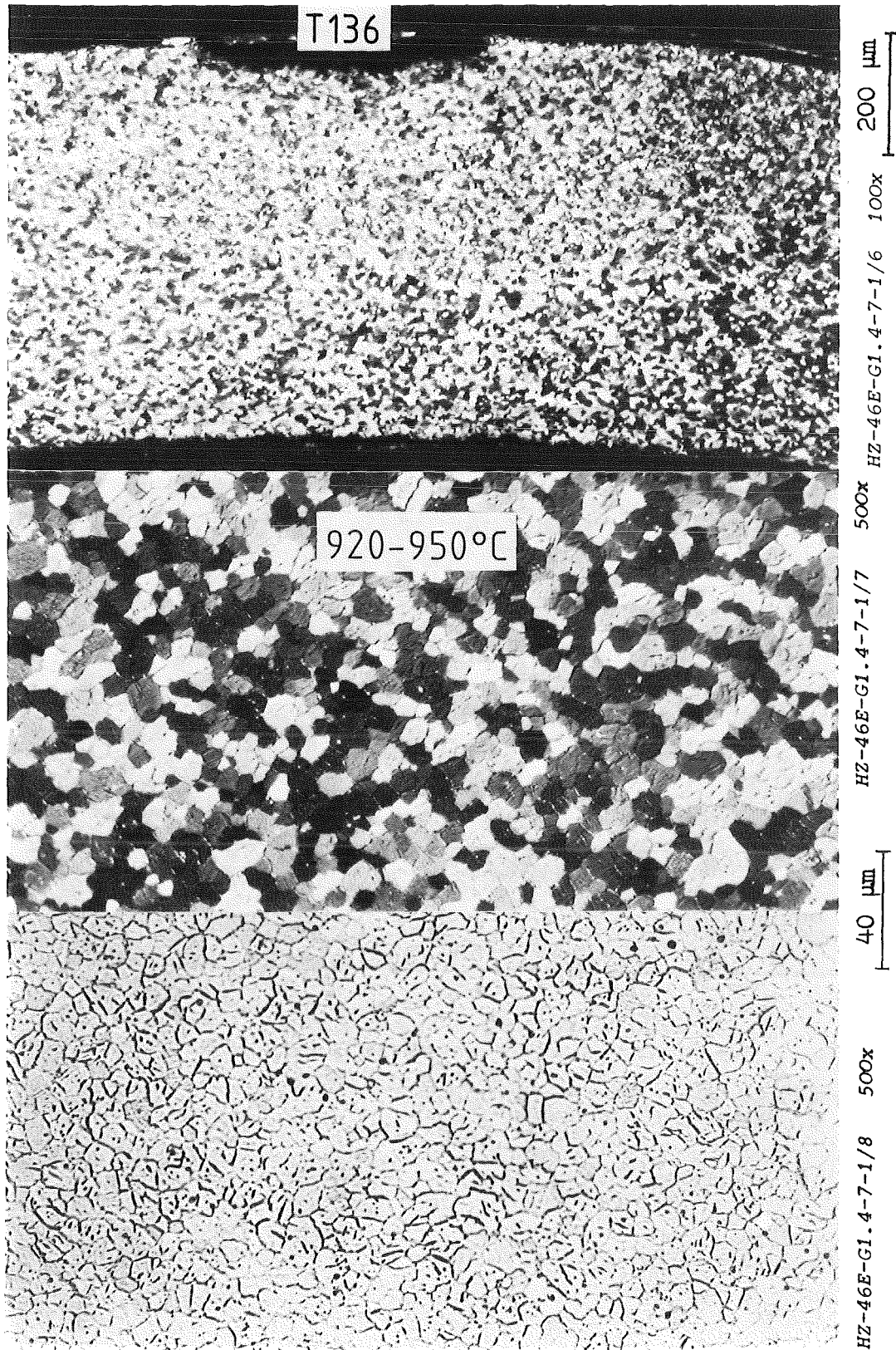
840-890°C



KfK IMF II

Abb.3-21

Feinkörniges Rekristallisationsgefüge nach starker Verformung, unterhalb der Berststelle des Zircaloy 4-Hüllrohres G1.5



KfK_{IMF II}

Abb.3-22

Abschätzung der erreichten Maximaltemperatur aus dem Gefüge an der Thermoelement-Meßstelle; Stab G1.4.

TE-Ergebnis= $900+52=952^{\circ}\text{C}$, TE-Befestigungs-Version A.

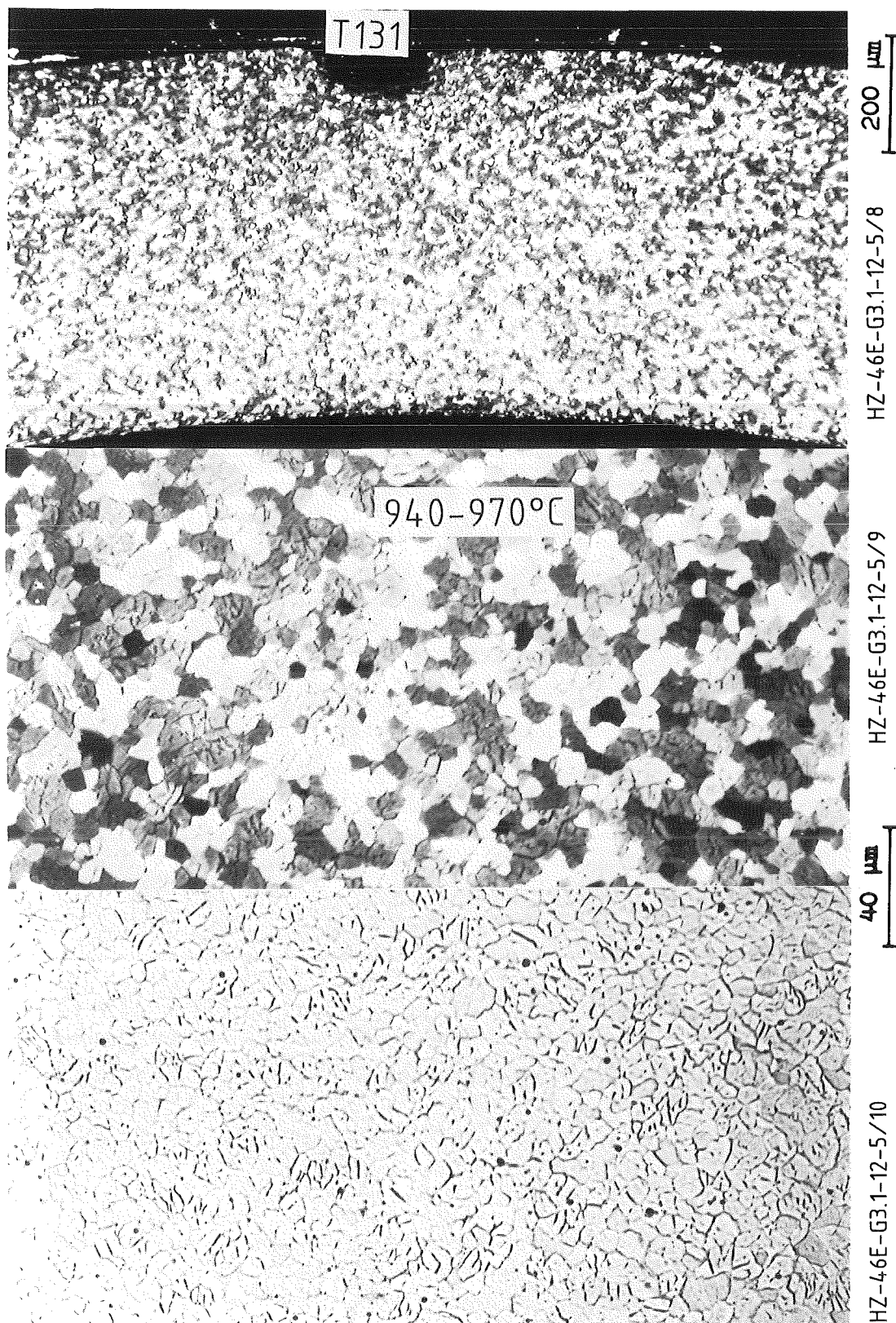
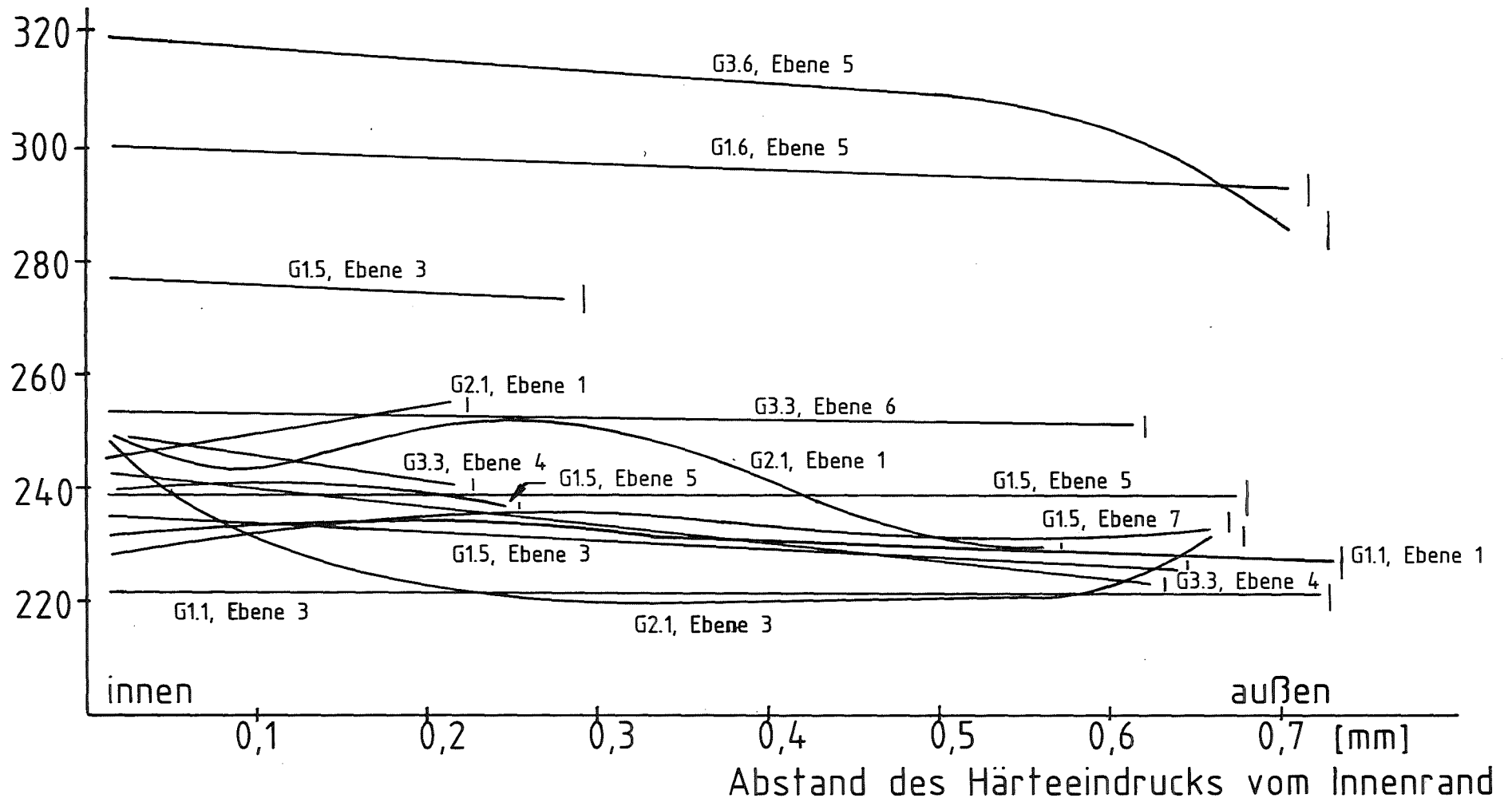


Abb.3-23



Abschätzung der erreichten Maximaltemperatur aus dem Zircaloy 4-Gefüge an der Thermoelement-Meßstelle; G3.1. TE-Ergebnis=905+10=915°C, TE-Befestigungs-Version B.

Mikrohärte [HV0,025]



86



Abb.3-24

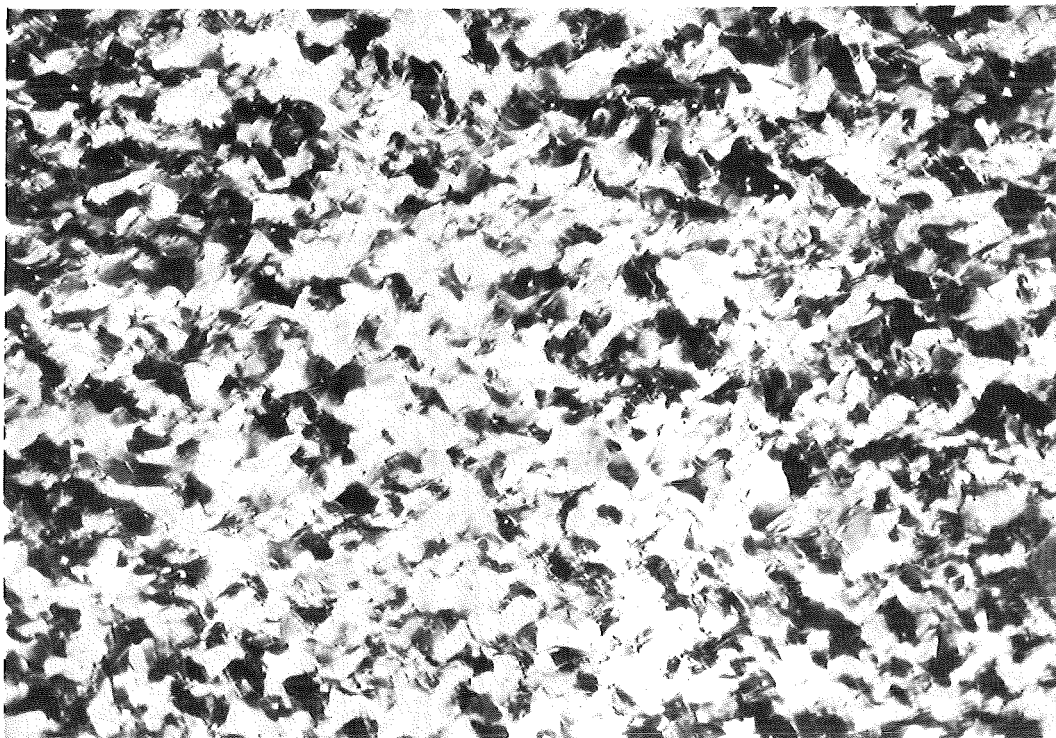
Vergleich der aufgenommenen Mikrohärteprofile der Brennstabserie G



40 μm

HZ-46B-C6-62-5/10 500x getzt

Längsschliff



40 μm

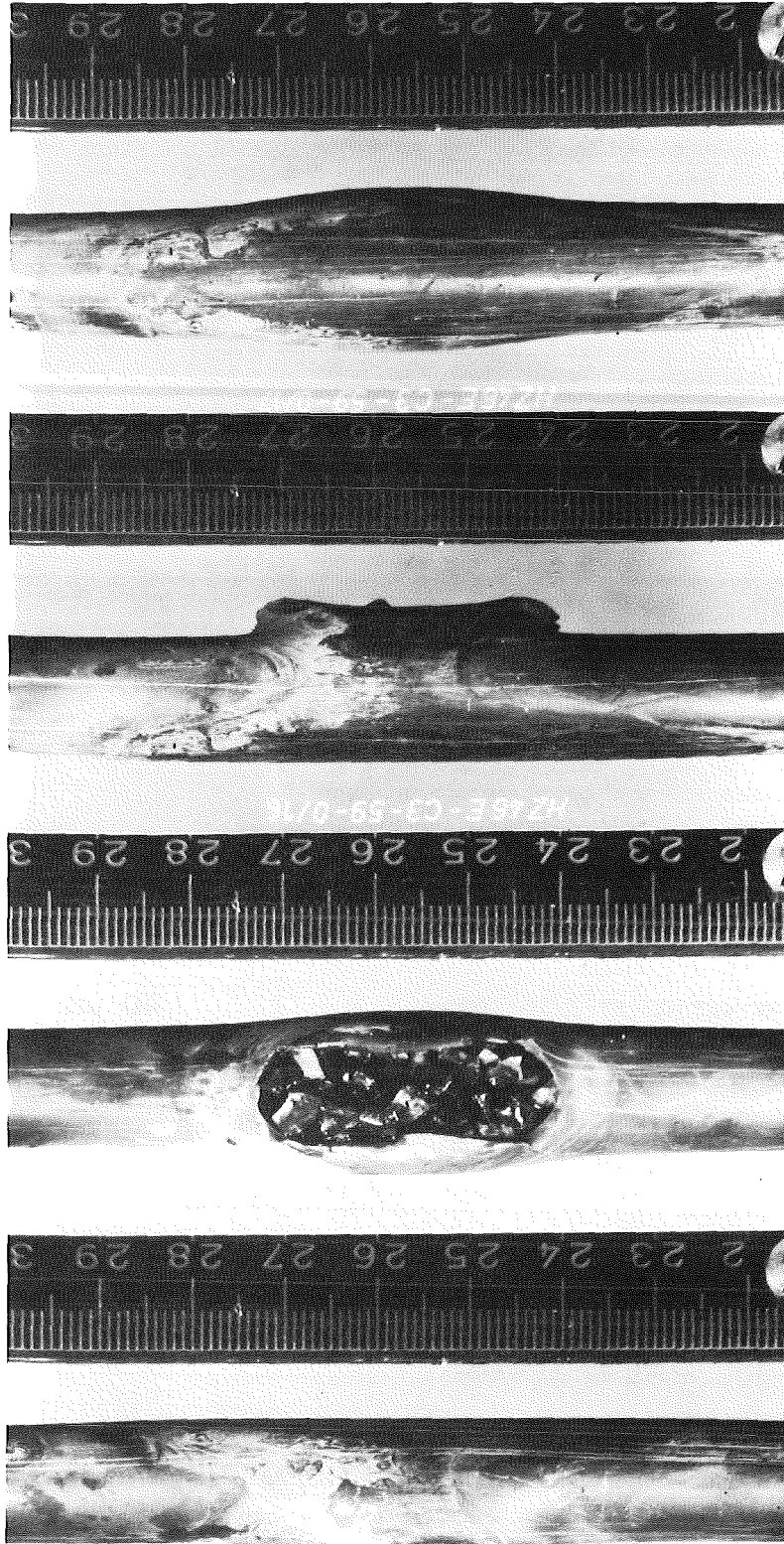
HZ-46B-C6-62-6/12 500x getzt

Querschliff

KfK IMF II

Abb. 3-25

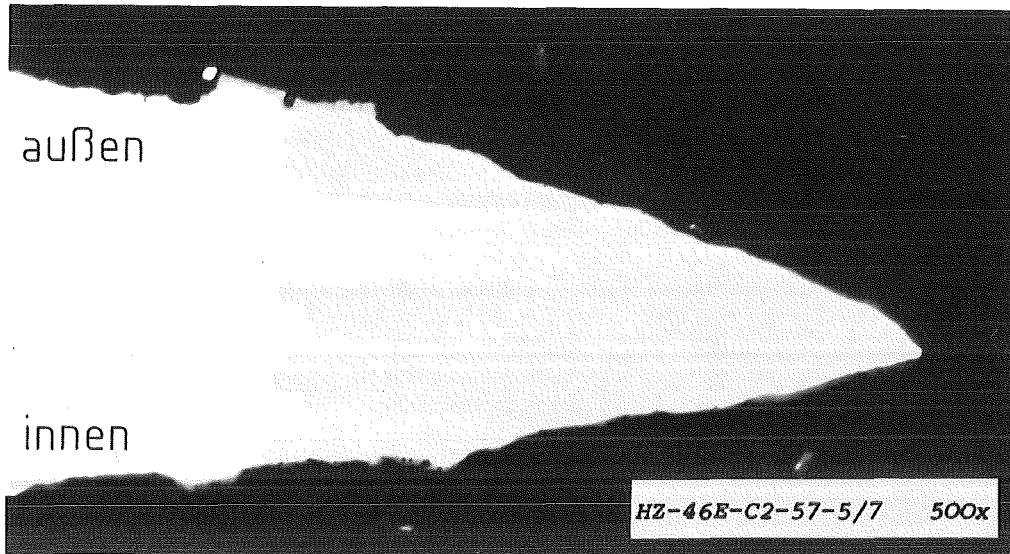
Zircaloy 4-Gefüge des Stabes C6
im vorbestrahlten Zustand



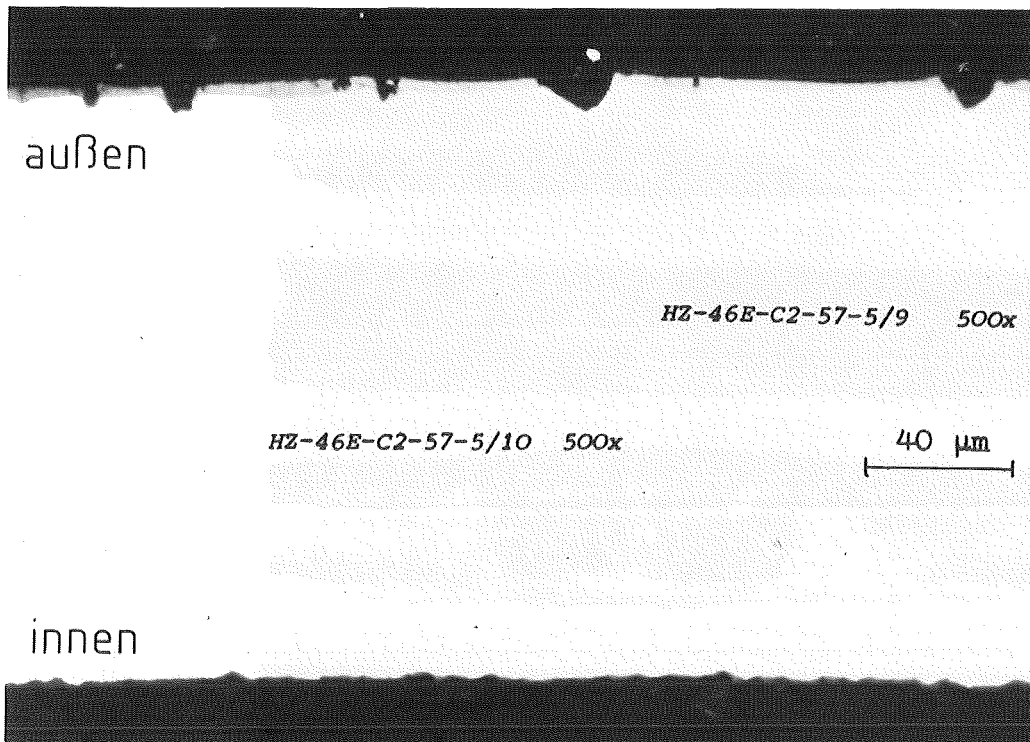
KJK
MF II

Abb.3-26

Weißes Oxid an der Berststelle des Brennstabes C3



Berstflanke



gegenüber der Berststelle



Abb.3-27

Oxidschicht in Höhe der Berststelle
des Brennstabes C2

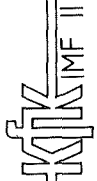
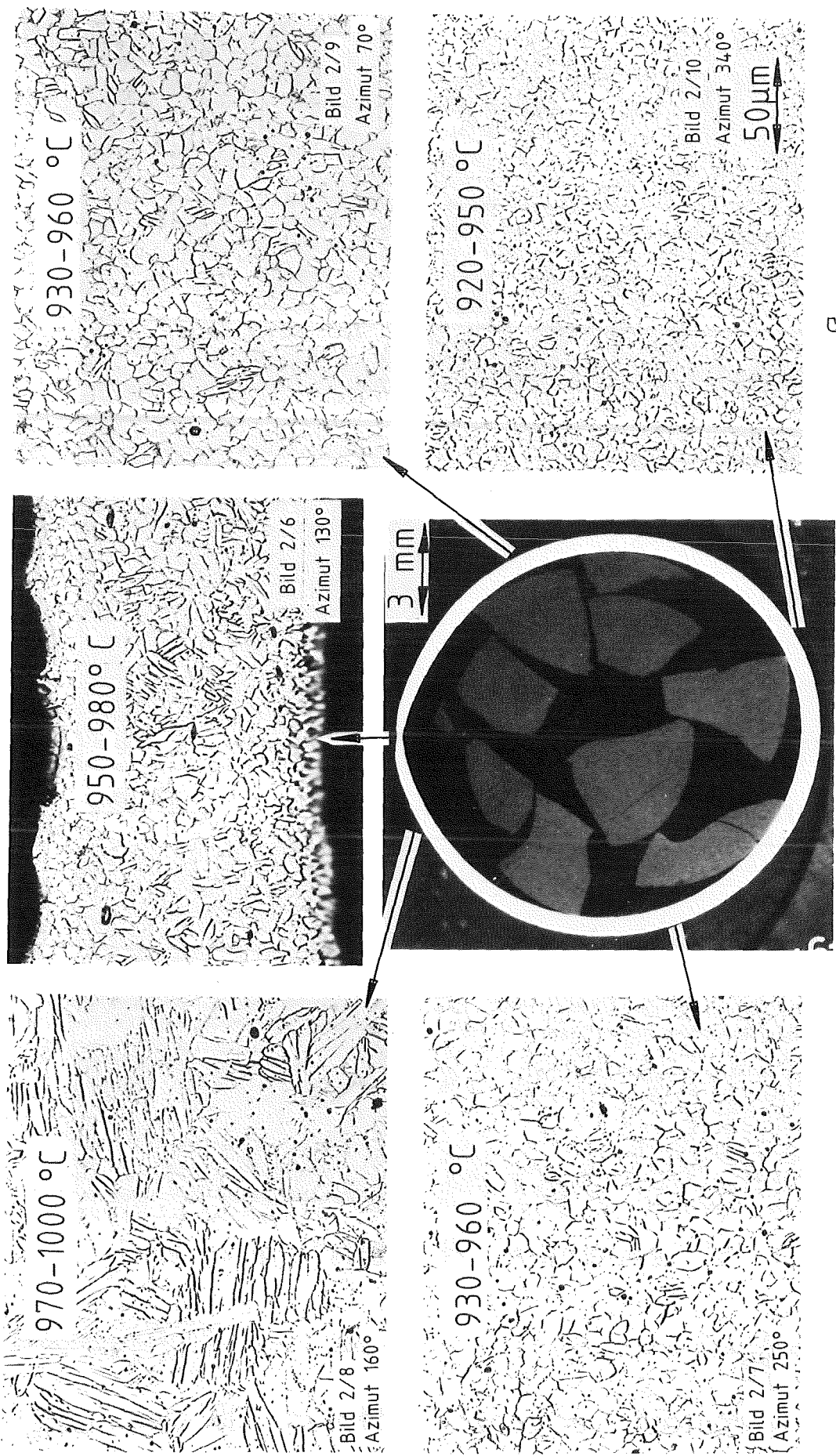
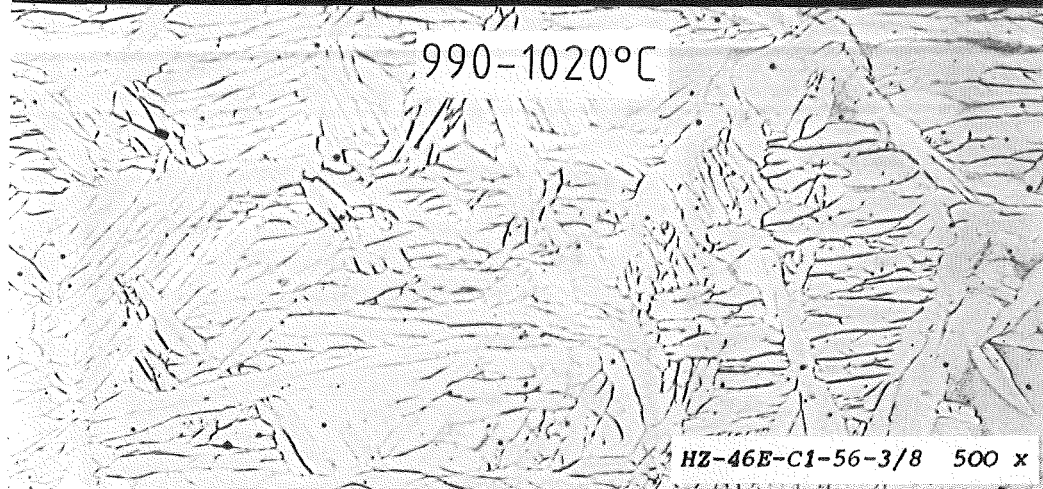
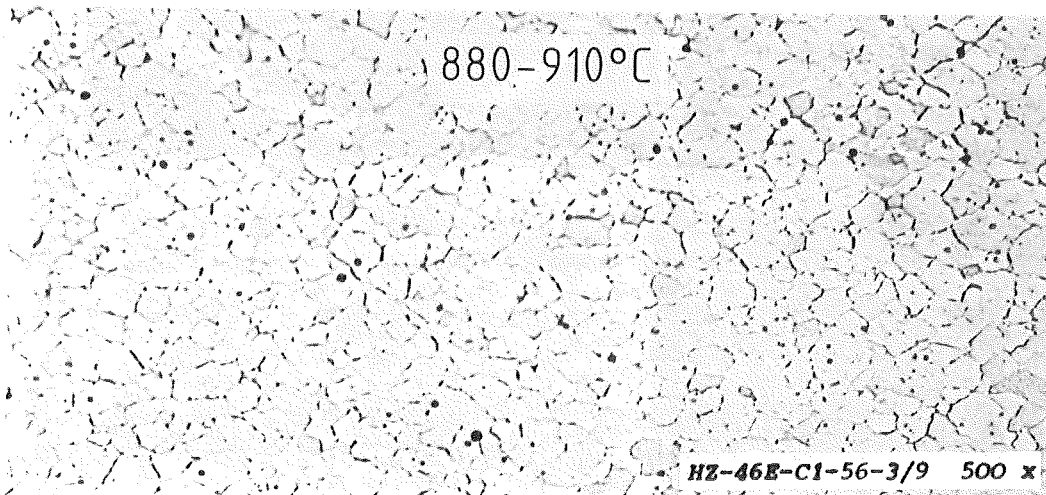


Abb.3-28

Azimutale Temperaturverteilung in Nähe der Berststelle des Brennstabes E3



Azimut 195° (bei TE-Meßstelle)

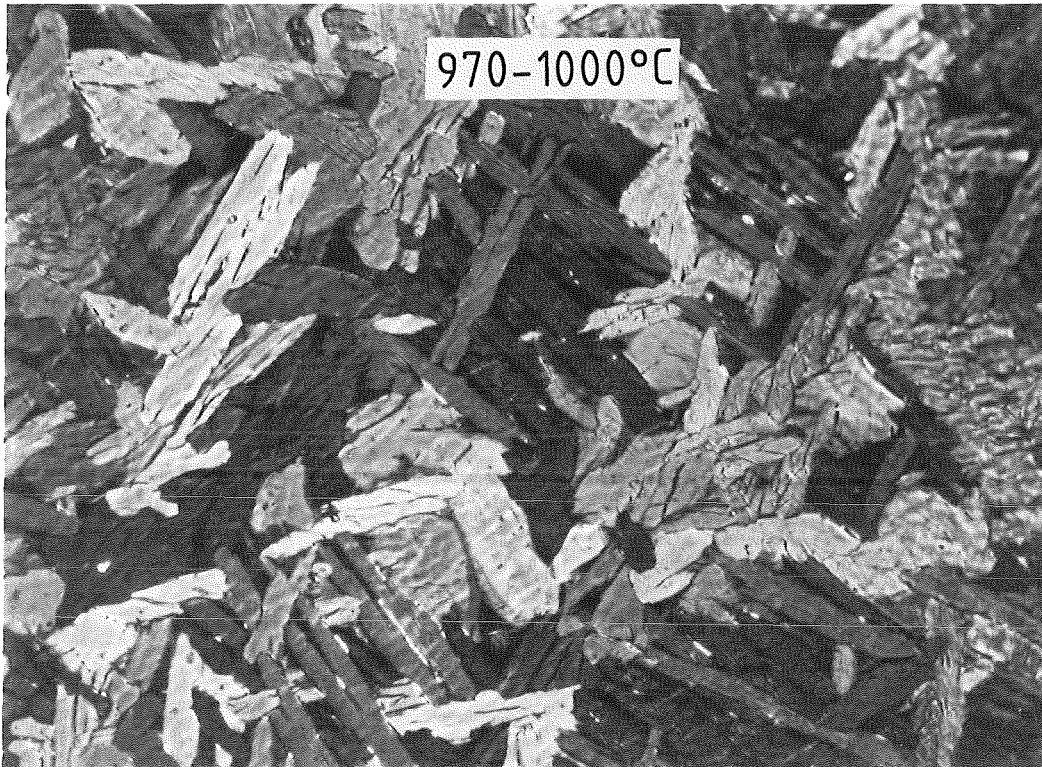


Azimut 15° (gegenüber TE-Meßstelle u. Riβ)

ktk_{IMF II}

Abb.3-29

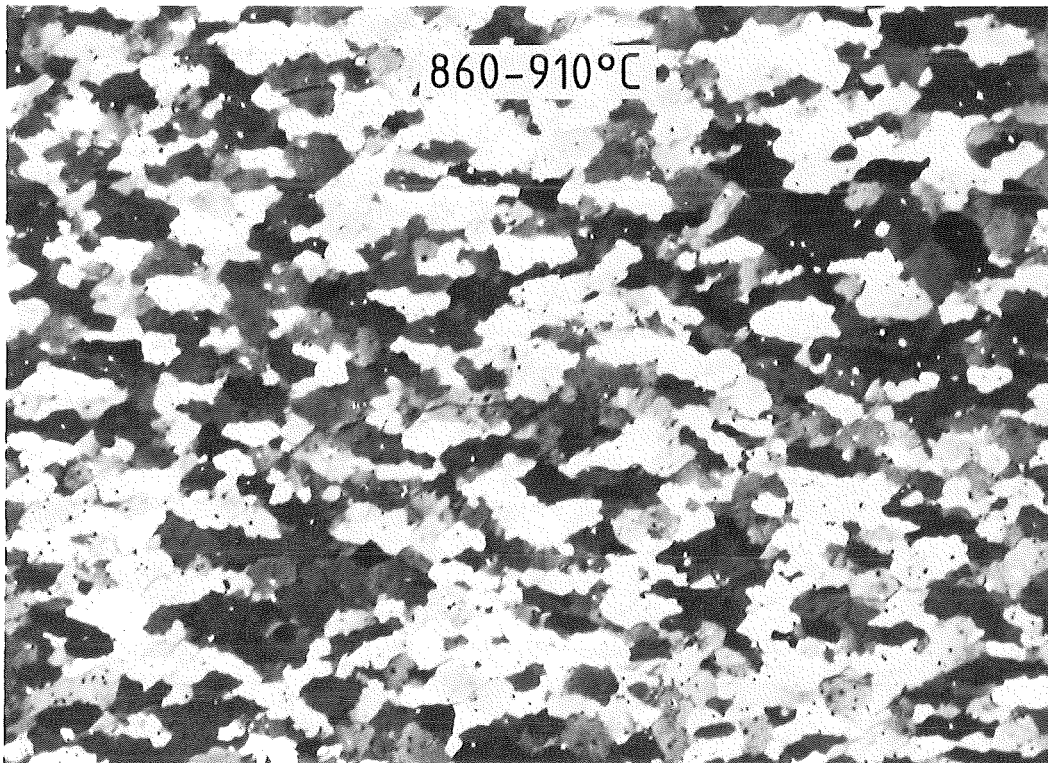
Hohe azimutale Temperaturdifferenz 15 mm über dem oberen Ende der Berstöffnung des Stabes C1; TE-Ergebnis=1007+10=1017°C



40 μm

HZ-46E-BSS 12-O-4/21 500x

gegenüber der Berstöffnung



40 μm

HZ-46E-BSS 12-O-4/18 500x

in Nähe der Berstöffnung

KfK IMF II

Abb.3-30
Hohe azimutale Temperaturdifferenz (ca. 100°C)
in der Berstebene des Brennstabsimulators BSS12

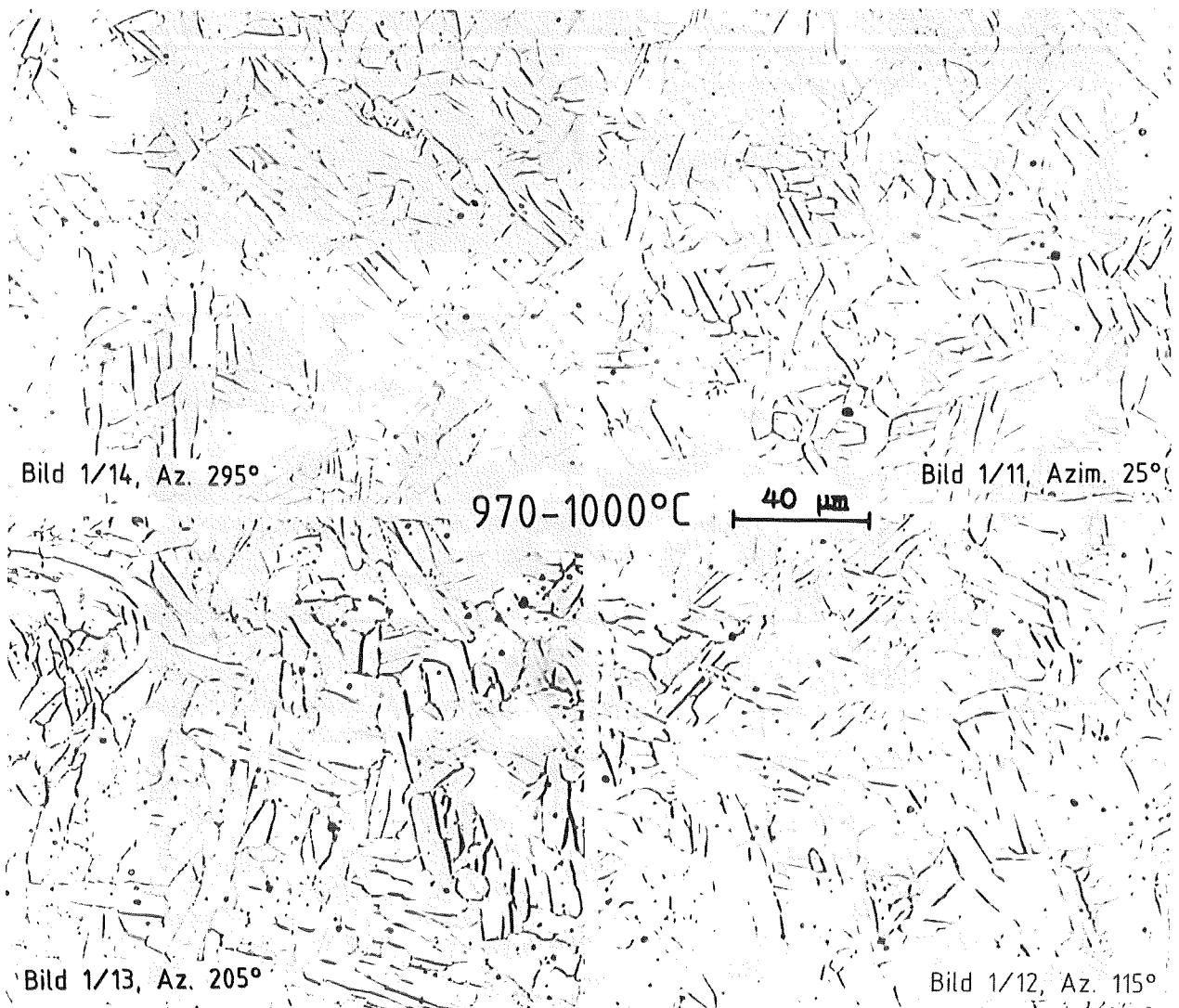
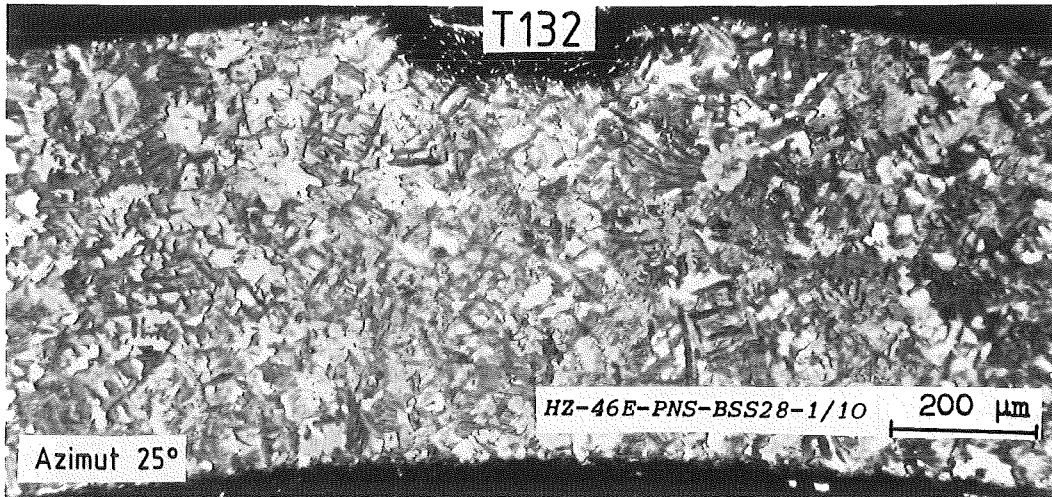


Abb.3-31

KfK IMF II

Schnittebene ohne azimutale Temperaturdifferenz
Brennstabsimulator BSS 28, Schliff 1, in Meßebene
des Thermoelementes T132, Meßergebnis=1013+ 10=1023°C

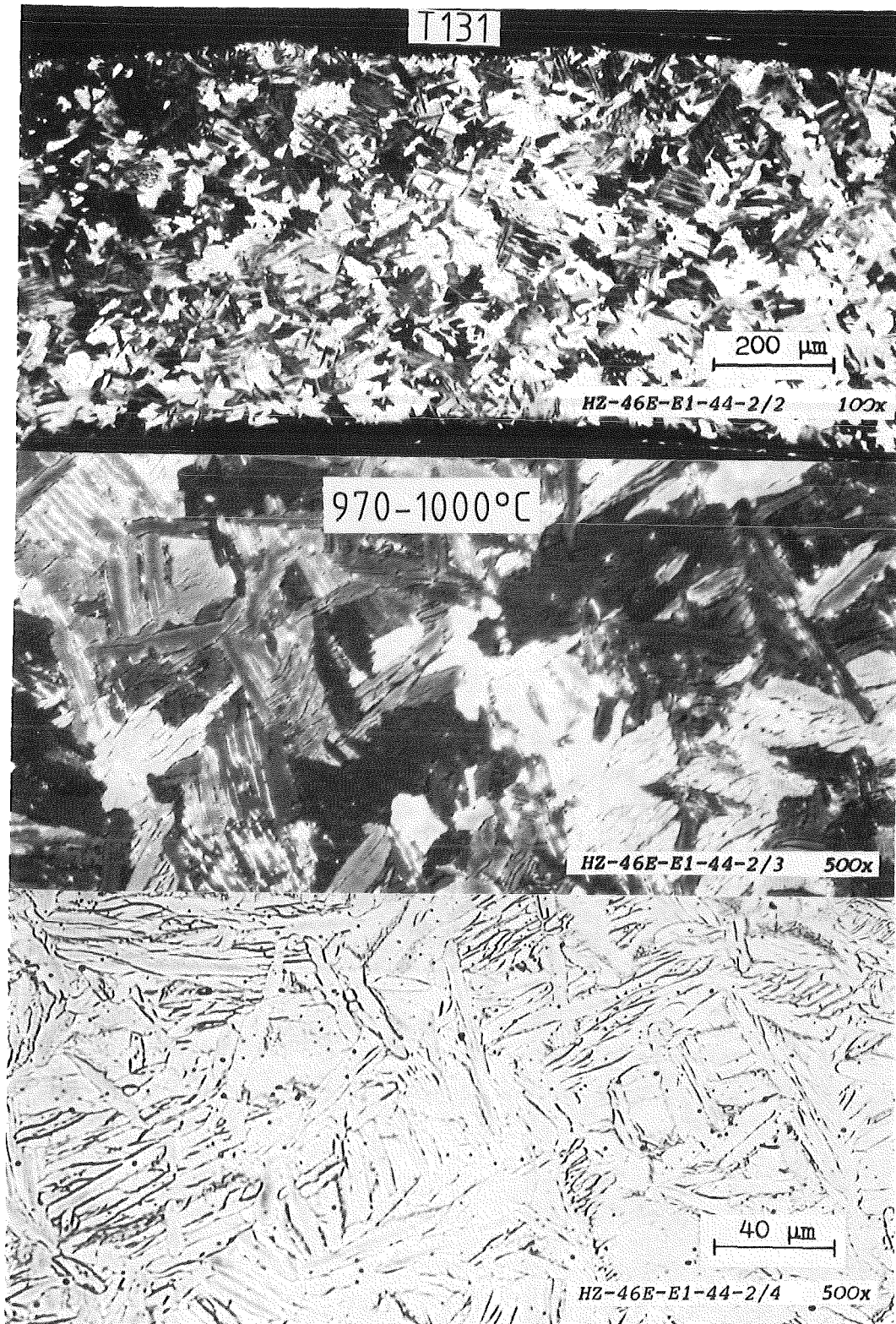
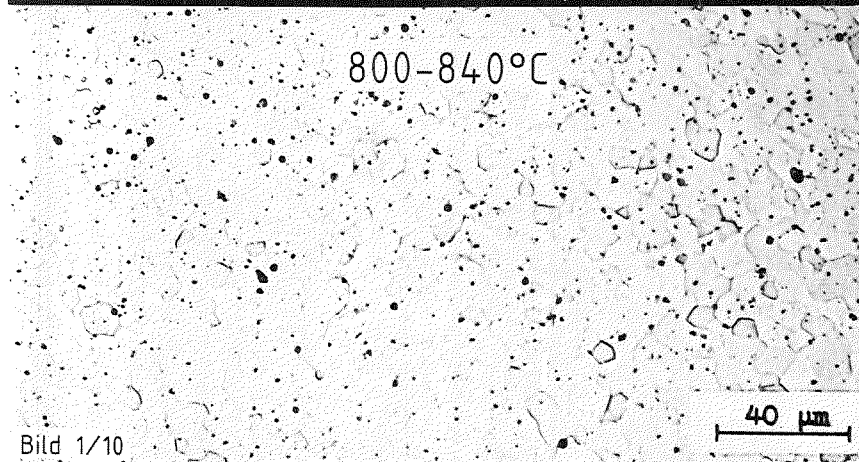


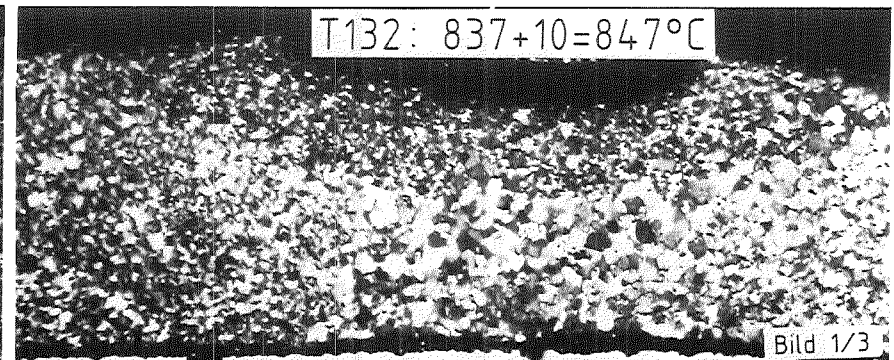
Abb.3-32

KJK IMF II

Vergleich zwischen der aus dem Gefüge abgeschätzten Maximaltemperatur und dem Meßergebnis. Anzeige des Thermoelementes = $920 + 10 = 930^{\circ}\text{C}$; Brennstab E1



BSS 25, AZIMUT 310° , GEGENÜBER DER BERSTSTELLE



BSS 26, AZIMUT 170° , (IN RICHTUNG RISS,) 5mm ÜBER RISSENDE

kfk_{IMF II}

Abb.3-33: Vergleich zwischen der Messung und der Gefügeabschätzung der Maximaltemperatur an zwei TE-Meßpositionen der Stäbe BSS 25 u.26

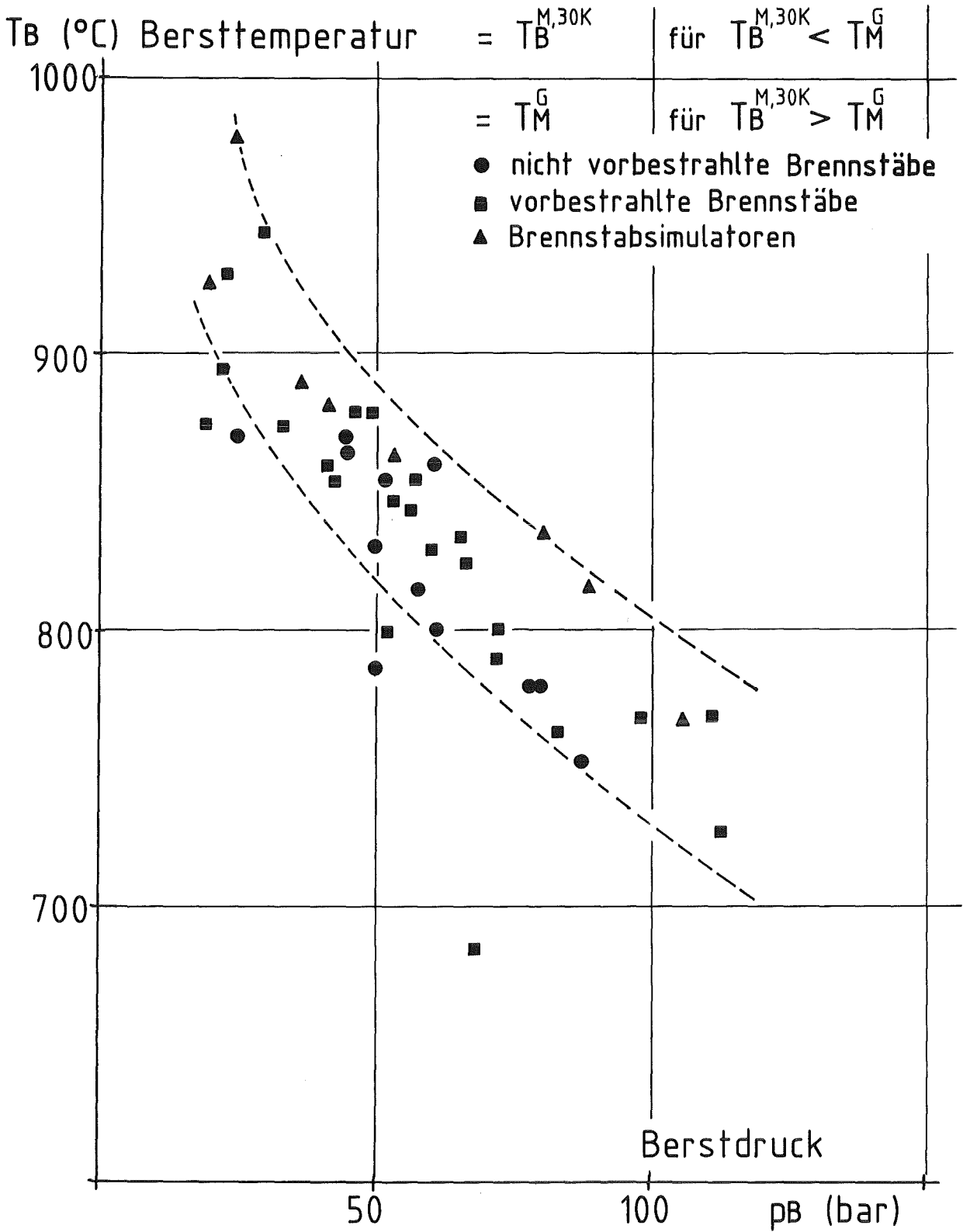


Abb.3-34



Bersttemperaturen der Brennstäbe und Simulatorstäbe gemäß Zircaloy 4-Gefüge und Temperaturmessung

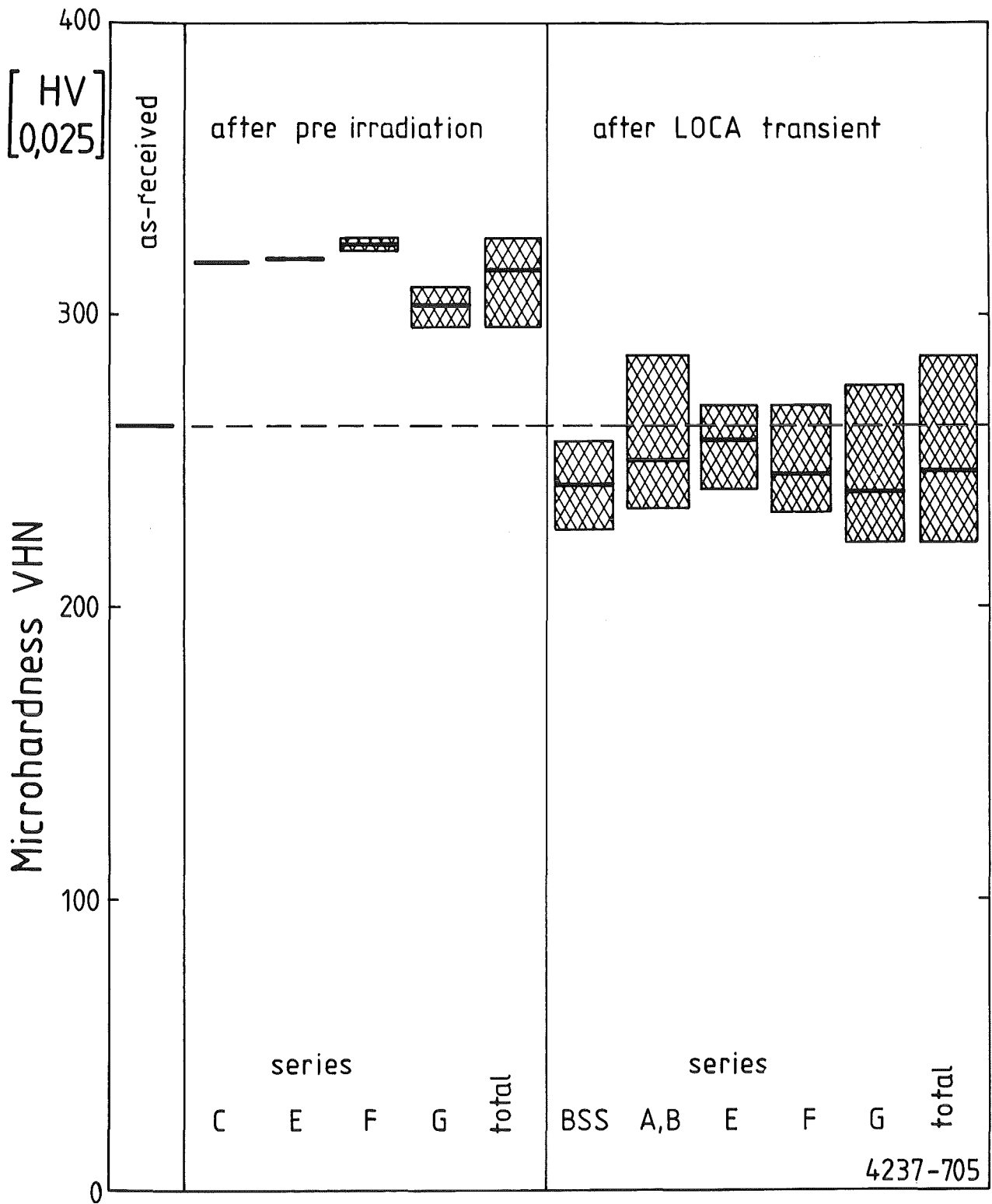


Abb.3-35: Mikrohärte der Hüllrohre nach der Vorbestrahlung, der LOCA- Transiente und im Vergleich zum Rohr- Ausgangszustand



4. Beurteilung der Hüllrohrinnenkorrosion

4.1 Allgemeines

Zircaloy (Zry) besitzt eine sehr große Affinität zum Sauerstoff und ist daher in der Lage, den leicht überstöchiometrischen Oxidbrennstoff (UO_{2+x}) unter Bildung von sauerstoffstabilisiertem $\alpha\text{-Zr(O)}$ und metallischem Uran zu reduzieren. $\alpha\text{-Zr(O)}$ ist thermodynamisch stabiler als überstöchiometrisches bzw. stöchiometrisches UO_2 . Unter normalen Reaktorbetriebsbedingungen sind die Hüllmaterialtemperaturen jedoch so niedrig, daß aufgrund der langsamen Reaktionsgeschwindigkeit, die chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO_2 und Zry vernachlässigbar sind. Das gilt jedoch nicht bei einem Kühlmittelverluststörfall (LOCA), bei dem die normale Hüllmaterialtemperatur deutlich überschritten werden kann. Bei einer LOCA-Transiente kann es daher - neben der Oxidation der Hüllrohr-Außenoberfläche durch den Wasserdampf - auch zu einer Oxidation der Hüllrohr-Innenoberfläche durch das UO_2 kommen. Das Ausmaß der Zry-Oxidation hängt aber - neben der Temperatur und Zeit - entscheidend vom Festkörperkontakt zwischen dem Brennstoff und Hüllmaterial ab. Bei direktem Festkörperkontakt sind die UO_2/Zry -Reaktionen erheblich stärker als bei Reaktionen, die über die Gasphase ablaufen. Da es bei einem LOCA im allgemeinen zum Abheben der Hülle vom Brennstoff kommt, kann der Sauerstoff nur über die Gasphase vom UO_2 zum Zry transportiert werden. Aus diesem Grunde, sowie wegen der relativ kurzen Zeitdauer einer LOCA-Transiente, sind die chemischen Wechselwirkungen zwischen dem UO_2 und Zry nicht besonders ausgeprägt. Die entstehenden Oxidschichten auf der Hüllrohr-Innenoberfläche werden daher sehr dünn sein.

Während der Bestrahlung entstehen infolge Kernspaltung des Urans Spaltprodukte. Ein Teil der leicht flüchtigen und gasförmigen Spaltprodukte wird aus dem UO_2 freigesetzt und kann mit dem Zircaloy-Hüllmaterial chemisch reagieren. Es ist deshalb, besonders bei mittel- und hochabgebrannten Brennstäben,

mit einem Einfluß der Spaltprodukte auf das Verformungs- und Berstverhalten der Hüllrohre zu rechnen. Entsprechende Einflüsse von Spaltprodukten - insbesondere durch Jod - auf die mechanischen Eigenschaften von Zircaloy wurden bei in-pile Rampenexperimenten und out-of-pile-Experimenten festgestellt. Speziell durch die Wirkung von Jod kann es zu einem beschleunigten, verformungsarmen Versagen der Zircaloy-4-Rohre kommen /4-1, 4-2, 4-3/. Voraussetzung dafür ist aber sowohl eine ausreichend hohe Jodkonzentration an der Hüllrohrinnenoberfläche als auch eine bestimmte kritische tangential Zugbeanspruchung des Hüllrohres /4-3/.

4.2 Chemisches Verhalten des Brennstoffes

Die Ergebnisse der Nachuntersuchungen der nicht vorbestrahlten und der vorbestrahlten Brennstäbe bestätigen die oben gemachte Vermutung. Es findet während der LOCA-Transiente nur eine sehr schwache oder überhaupt keine Oxidation des Zircaloy-Hüllrohres durch das UO_2 statt /4-4, 4-7/. Ganz allgemein ist die durch das UO_2 verursachte Oxidation der Hülle nicht mehr eindeutig feststellbar, da nach dem Bersten Wasserdampf in den Brennstab eindringt und mit dem Zircaloy reagiert. Eine Oxidation des Zry-4-Hüllrohres von innen konnte nicht in allen untersuchten Schliffebenen festgestellt werden, insbesondere nicht an den von der Berststelle am weitesten entfernten Schliffebenen (>100 mm). Sehr wahrscheinlich wird der in den geborstenten Brennstab eindringende Wasserdampf bereits in der Umgebung der Berststelle durch das Zry und UO_2 gebundenen oder das Hüllmaterial hat zum Zeitpunkt, da der Wasserdampf diese Ebenen erreicht, infolge Abschreckung (Fluten) des Brennstabes, eine zu niedrige Temperatur. Die Dicke der Oxidschichten auf der Hüllrohrinnenseite (1-16 μ m) ist im allgemeinen größer als die auf der Hüllrohraußenseite und ist azimuthal und axial nicht gleichmäßig. Im Hinblick auf das Verformungs- und Berstverhalten der Zircaloy-4-Hüllrohre konnte bisher kein Einfluß des UO_2 -Brennstoffes festgestellt werden /4-4, 4-5, 4-7/.

4.3 Chemisches Verhalten der Spaltprodukte

Bei den hier vorbestrahlten Brennstäben wurde aufgrund von Analogiebetrachtungen zu in-pile Rampenexperimenten und out-of-pile-Untersuchungen angenommen, daß es bei den LOCA-Transienten möglicherweise auch zu einem verformungsarmen Versagen der Hüllrohre infolge Jod-Spannungsrißkorrosion kommt. Die out-of-pile-Untersuchung haben eindeutig gezeigt, daß es oberhalb einer bestimmten Jodkonzentration bis zu etwa 850°C zu einem verformungsarmen Versagen des Zircaloy kommen kann /4-1, 4-2, 4-3, 4-6/. Die Berstdehnungen der jodenthaltenden Hüllrohre sind dann erheblich kleiner als die der jodfreien Vergleichsproben. Abbildung 4-1 zeigt die Abhängigkeit der Berstdehnung von der Temperatur für jodenthaltende und jodfreie Rohrproben. Während die jodfreien Referenzproben infolge plastischer Verformung versagen, ist die jodinduzierte Rißbildung und Rißausbreitung für das verformungsarme Versagen der jodenthaltenden Rohrproben verantwortlich. Aus diesem Grunde wurde angenommen, daß bei in-pile LOCA-Experimenten mit hochabgebrannten Brennstäben die flüchtigen Spaltprodukte ebenfalls einen Einfluß auf die Berstdehnung bis ca. 850°C ausüben würden.

Zur Beurteilung eines möglichen Jodeinflusses auf die Hüllrohrberstdehnung bei in-pile LOCA-Experimenten ist die Kenntnis sowohl des Jodangebotes als auch des Jodbedarfes, der erforderlich ist um Spannungsrißkorrosion zu bewirken, von Bedeutung.

Abb. 4-2 zeigt den Einfluß der Anfangsjodkonzentration auf die Berstdehnung bei 700 und 800°C. In einem bestimmten temperaturabhängigen Bereich der Jodkonzentration kommt es zu einer starken Reduzierung der Berstdehnung. Das Versagensverhalten ändert sich von duktil zu verformungsarm ("spröde"). Die kritische Jodkonzentration bei der sich das Versagensverhalten ändert hängt stark von der Temperatur ab /4-3/. Um die Jodkonzentration vergleichen zu können wurde diese für einen hochabgebrannten Brennstab mit 35 000 MWd/t_U abgeschätzt /4-6/. Vergleicht man die kritische

Jodkonzentration der Laborexperimente mit dem Jodangebot in einem Brennstab der Versuchsserie G, so erkennt man, daß ein Jodeinfluß nur bis etwa 700°C erwartet werden kann (Abb. 4-2). Bei höheren Temperaturen ($> 700^{\circ}\text{C}$) ist das Jodangebot im Brennstab kleiner als die erforderliche Jodkonzentration, die zum verformungsarmen Versagen des Hüllrohres infolge jodinduzierter Spannungsrißkorrosion führt /4-3, 4-6/.

Die vielen kleinen Anrisse in der Hüllrohrinnenoberfläche der LOCA-getesteten Brennstäbe geben einen Hinweis, daß Jod oder andere flüchtige reaktive Spaltprodukte nicht in ausreichender Konzentration an der Hüllrohrinnenoberfläche vorhanden waren. Abb. 4-3 zeigt Ausschnitte der Hüllrohrinnenoberfläche von verschiedenen Brennstäben. Es kommt zwar zur Rißbildung, die Risse propagieren jedoch nicht tiefer in das Hüllmaterial. Ähnliche Beobachtungen wurden bei out-of-pile Experimenten gemacht, wenn die Jodkonzentration kleiner als die kritische war. Die Jodkonzentration reicht dabei aus Anrisse in der Hüllrohrinnenoberfläche zu induzieren, die jedoch nicht zum Versagen führen, da sie infolge Jodmangel nicht wachsen können. An Stellen der Brennstäbe wo keine oder nur eine geringe plastische Verformung stattfand, oder in Brennstäben mit geringem Abbrand, war keine Rißbildung in der Hüllrohrinnenoberfläche festzustellen (Abb. 4-3).

In Abb. 4-1 ist die Berstdehnung von in-pile LOCA-getesteten Brennstäben in Abhängigkeit der Temperatur aufgetragen. Obwohl bei den Nachbestrahlungsuntersuchungen kein Einfluß von Jod auf das Dehnungsverhalten der Hüllrohre festgestellt werden konnte, sind die Berstdehnungen der LOCA-getesteten Brennstäbe - mit einer Ausnahme - im Bereich der jodenthaltenden Laborproben. Dies gilt sowohl für die FR2 als auch in der PBF durchgeführten Experimente. Der Grund für die relativ niedrigen Berstdehnungen liegt in den z.T. großen azimuthalen Temperaturdifferenzen im Hüllrohr. Je größer die Temperaturdifferenz desto kleiner die Umfangsdehnung /4-7/. Alle LOCA-getesteten Zircaloy-Hüllrohre versagten duktil.

Abschließend kann man daher feststellen, daß unter LOCA-Bedingungen, aufgrund der hohen Bersttemperaturen ($> 700^{\circ}\text{C}$), kein Einfluß von Jod oder anderen flüchtigen Spaltprodukten auf die Verformung zu erwarten ist, trotz des hohen Abbrandes der Brennstäbe von $35\ 000\ \text{MWd}/t_{\text{U}}$. Oberhalb 700°C ist das Jodangebot im Brennstab kleiner als der Jodbedarf. Es können sich deshalb nur Anrisse in der Hüllrohrinnenoberfläche bilden, die jedoch nicht zu einem verformungsarmen, rißbedingten Versagen führen.

4.4 Zusammenfassung und Schlußfolgerung

- Die Innenkorrosion der Zircaloy-Hüllrohre durch den Brennstoff während der Vorbestrahlung und LOCA-Transiente ist entweder nicht feststellbar oder nur sehr gering. Die nach der LOCA-Transiente auf der Hüllrohr-Innenoberfläche festgestellten Oxidschichten entstehen durch den nach dem Bersten des Hüllrohres in den Brennstab eindringenden Wasserdampf.
- Eine Hüllrohr-Innenoxidation durch den eindringenden Wasserdampf konnte nicht an allen untersuchten Schliffebenen festgestellt werden. An Schliffebenen die mehr als 100 mm von der Berststelle entfernt sind, wurde keine Oxidschicht auf der Hüllrohr-Innenoberfläche beobachtet. Sehr wahrscheinlich wird der in den geborstenen Brennstab eindringende Wasserdampf bereits vor Erreichen der untersuchten Schnittebene chemisch abgebunden. Eventuell hat aber auch das Hüllmaterial am Zeitpunkt, da der Wasserdampf die entsprechende Schnittebene erreicht, bereits eine zu niedrige Temperatur, und es finden deshalb keine chemischen Wechselwirkungen mehr mit dem Zry statt.
- Ein Einfluß von flüchtigen Spaltprodukten, besonders Jod, auf das Verformungs- und Bruchverhalten der Hüllrohre während der LOCA-Transiente war nicht festzustellen. Ein verformungsarmes Versagen der Zircaloy-Rohre war auch nicht sehr wahrscheinlich, da die Bersttemperaturen deutlich oberhalb 700°C lagen. Out-of-pile Versuche haben nämlich gezeigt, daß oberhalb 700°C das

Jodangebot im Brennstab kleiner ist als der Jodbedarf, der zum Versagen des Hüllrohres infolge Spannungsrißkorrosion führt. Metallographische Untersuchungen zeigen die Bildung von Mikrorissen in der Hüllrohr-Innenoberfläche. Ähnliche Mikrorisse wurden bei den out-of-pile Experimenten festgestellt, wenn die Jodkonzentration zu klein war.

4.5 Literatur

- /4-1/ P. Hofmann,
"Influence of iodine on the burst strain of Zry-4
cladding tubes under simulated reactor accident
condition", J. Nucl. Mat., 87 (1979) 49-69
- /4-2/ P. Hofmann, J. Spino,
"Chemical interactions between simulated fission
products and Zry-4 at elevated temperatures",
J. Nucl. Mat., 102 (1981) 117-134
- /4-3/ P. Hofmann, J. Spino,
"Determination of the critical iodine concentration
for SCC failure of Zry-4 tubing between 500 and
900°C", J. Nucl. Mat., 107 (1982) 297-310
- /4-4/ E.H. Karb, et.al.,
"KfK In-pile tests on LWR fuel rod behavior during
the heatup phase of a LOCA", KfK 3028 (1980)
- /4-5/ E.H. Karb, et.al.,
"Results of the FR 2 in-pile tests on LWR fuel rod
behavior", ANS Topical Meeting on "Reactor Safety
Aspects of Fuel Behavior", August 2-6, 1981, Sun Valley,
USA
- /4-6/ P. Hofmann, J. Spino,
"Can one expect low ductility failure of Zry-4 tubing
due to iodine-induced SCC in a LOCA transient?", *ibid*
- /4-7/ E.H. Karb, et.al.,
"LWR fuel rod behavior during reactor tests under LOCA
conditions", J. Nucl. Mat., 107 (1982) 55-77

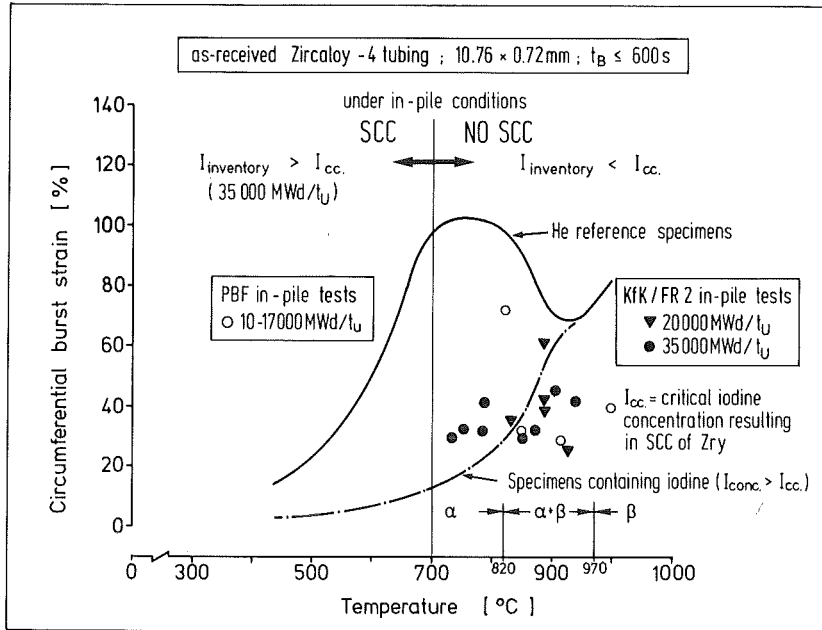


Abb. 4-1: Einfluß von Jod auf die Berstdehnung von Zircaloy-4 Hüllrohren in Abhängigkeit der Temperatur. Zum Vergleich sind Berstdehnungen von in-pile LOCA-getesteten LWR-Brennstäben eingetragen.

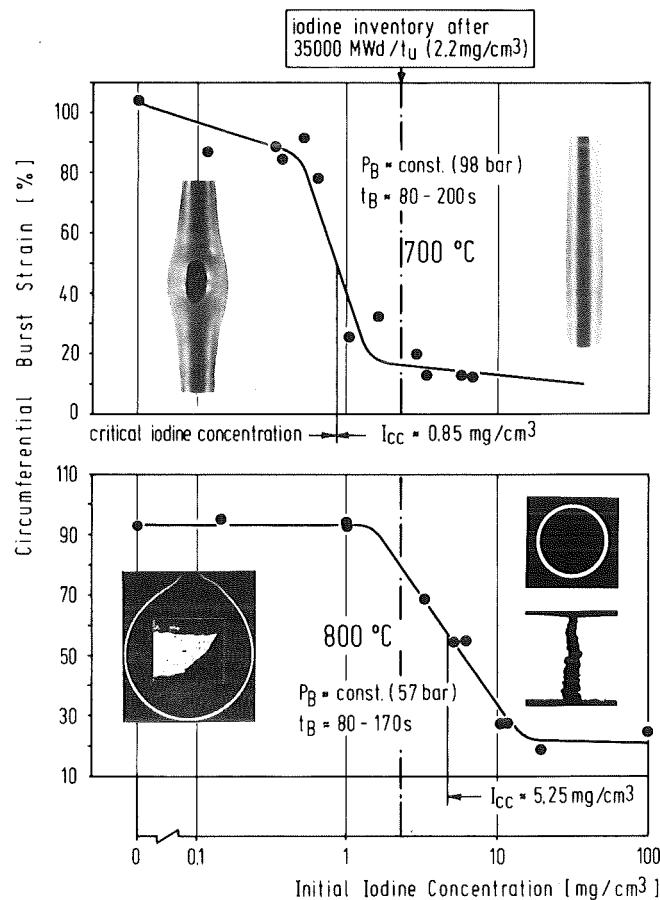


Abb. 4-2: Einfluß der Jodkonzentration auf die Berstdehnung von Zircaloy-4-Hüllrohren bei 700 und 800°C.

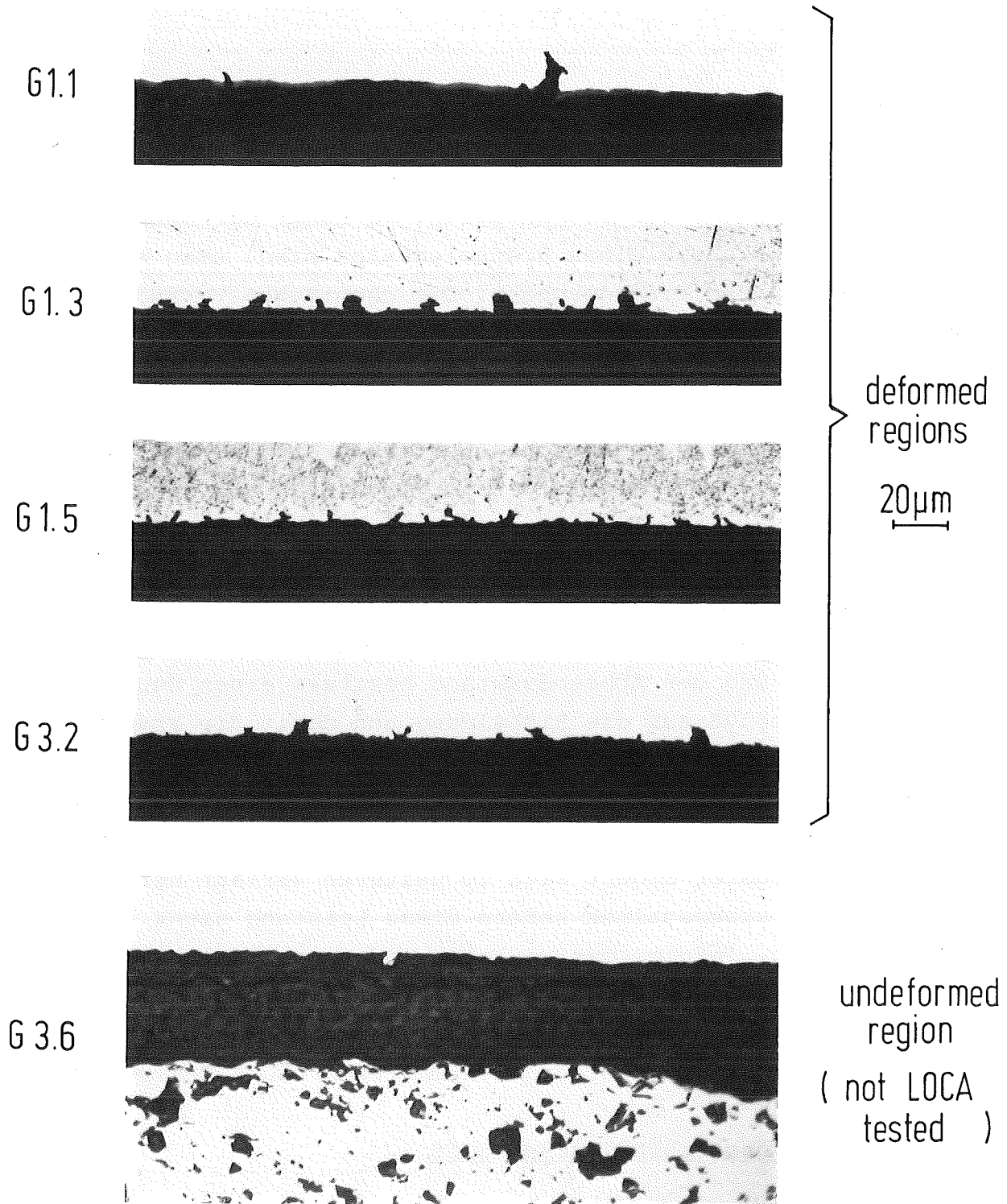


Abb. 4-3: Hüllrohrinnenoberfläche von LOCA-getesteten Brennstäben (Abbrand: 35 000 MWd/t_U): Die Bersttemperatur betrug $\geq 780^{\circ}\text{C}$. An Stellen mit großer Verformung bilden sich zahlreiche Anrisse an der Innenoberfläche, nicht dagegen an unverformten Stellen (G 3.6).

5. Mechanisches Verhalten des Brennstoffes

Während der Bestrahlung kommt es zu physikalischen und chemischen Veränderungen des Brennstoffes. Je höher der Abbrand und je höher die Leistung eines Brennelementes sind, umso ausgeprägter sind diese Veränderungen. Die chemischen Veränderungen im Brennstoff werden hauptsächlich durch die entstehenden Spaltprodukte, die physikalischen Veränderungen dagegen durch das Auftreten eines starken Temperaturgradienten im UO_2 bewirkt. Infolge der geringen thermischen Leitfähigkeit des UO_2 und der sich dadurch ausbildenden Temperatur- und Spannungsgradienten kommt es zu einer ausgeprägten Rißbildung im Brennstoff, die je nach Stableistung teilweise wieder ausheilen kann. Das Ausmaß der Rißbildung sowie das Rißmuster hängen entscheidend von der Stableistung ab. Leistungsänderungen (An- und Abfahren des Reaktors) und der Abbrandzustand besitzen einen deutlich geringeren Einfluß auf die Rißbildung und damit die Fragmentierung der UO_2 -Pellets. Das makroskopische Rißmuster in den UO_2 -Pellets wird im wesentlichen durch die maximale Stableistung bewirkt, die erstmals beim Hochfahren des Reaktors erreicht wird. Das Rißmuster ändert sich im weiteren Verlauf der Bestrahlung nur unwesentlich sofern diese Leistung nicht überschritten wird. Infolge der radialen und tangentialen Risse im Brennstoff kommt es zu einem Auseinanderfallen der Pellets, wenn die äußere Stützwirkung des Hüllmaterials verloren geht (z.B. durch Hüllrohraufweitung während einer LOCA-Transiente).

5.1 Nicht vorbestrahlter Brennstoff

Bei den LOCA-Experimenten mit nicht vorbestrahltem Brennstoff wurde keine Vorkonditionierung der Brennstäbe bei normaler Reaktorbetriebs-Stableistung vorgenommen. Die Pellets sind daher zu Beginn der LOCA-Transiente noch intakt. Um die Nachzerfalls-Wärmeleistung zu simulieren, wird eine Stableistung von ca. 45 W/cm eingestellt. Diese Stableistung ist zu gering, um eine typische Fragmentierung des Brennstoffes zu erhalten.

Während der LOCA-Transiente zerbrechen die UO_2 -Pellets deshalb überhaupt nicht oder nur in wenige große Bruchstücke /5-1, 5-2/. Zu welchem Zeitpunkt während der LOCA-Transiente der unbestrahlte Brennstoff in Stücke zerbricht, ist nicht eindeutig festzustellen. Da die UO_2 -Pelletbruchstücke hauptsächlich im Hüllbeulenbereich beobachtet werden, liegt die Vermutung nahe, daß die Pellets infolge mechanischer Einwirkung zu Bruch gehen. Der Brennstab wird sehr wahrscheinlich nach dem Bersten an das ihn umgebende Dampfführungsrohr geschlagen, wobei die Pellets zerbrechen. Mechanische Spannungen in den UO_2 -Pellets, die durch den Temperaturgradienten im Brennstoff entstehen, spielen bei dem Bruchverhalten der nicht vorbestrahlten und nicht vorkonditionierten Pellets während der LOCA-Transiente (Versuchsserie A und B) offenbar eine untergeordnete Rolle.

5.2 Vorbestrahlter Brennstoff

Während der Vorbestrahlung kommt es zu der oben beschriebenen typischen Rißbildung in den UO_2 -Pellets. Die Schlifffilmbildungen vom Brennstoff des nicht LOCA-getesteten Referenzstabes G 1.6 mit einem Abbrand von 35 000 MWd/ t_U lassen sehr deutlich das Rißmuster erkennen (Abb. 5-1). Darüber hinaus erkennt man teilweise in den Bruchstücken die Bildung von Mikrorissen. Diese Mikrorisse führen während der LOCA-Transiente z.T. zu einem weiteren Zerbrechen der Brennstoffpartikel. Daß die zusätzliche Fragmentierung aber sehr gering ist, ergeben die Siebkurven des Brennstoffes, die keine signifikanten Unterschiede in der Partikelgröße und -Verteilung zwischen den LOCA-getesteten und den nicht LOCA-getesteten Referenzstäben erkennen lassen /5-1/.

Während der LOCA-Transiente kommt es zu einem Abheben des Hüllmaterials vom Brennstoff, da keine chemische oder mechanische Bindung zwischen dem Brennstoff und Hüllmaterial existiert. Dadurch kommt es zu einem Zusammenbrechen der Brennstoffsäule und einer Ansammlung der Brennstoffpartikel in der Beulenzone

(Abb. 5-2, 5-3). Zu welchem Zeitpunkt das Ansammeln der Partikel im Beulenbereich erfolgt, hängt unter anderem von der mechanischen Beanspruchung des Brennstabes während der Transiente ab. Teilweise wird sie erst nach dem Bersten des Hüllrohres erfolgen. Die Brennstäbe der Versuchsserie G ergeben keinen Hinweis, daß die Brennstofffragmentierung und die Ansammlung der Partikel im Beulenbereich einen Einfluß auf die Größe und Gestalt der Beule hatte /5-3/.

5.3 Zusammenfassung und Schlußfolgerung

Während der Vorbestrahlung kommt es zu einer ausgeprägten Rißbildung in den UO_2 -Pellets. Der Brennstoff zerfällt dadurch in unterschiedlich große Bruchstücke, und es kann daher beim Verlust der äußeren Stützwirkung durch das Hüllrohr zu einem Zusammenbrechen der Brennstoffsäule kommen. Während der LOCA-Transiente sammeln sich daher die Pelletfragmente im Beulenbereich an. Die Beulenform und -größe wird durch die Brennstoffpartikel jedoch nicht beeinflusst.

5.4. Literatur

- /5-1/ E.H. Karb, et.al.
 KfK 3346 (1983)
- /5-2/ L. Sepold, et. al.,
 KfK 3098 (1981)
- /5-3/ P. Hofmann, et.al.
 KfK 3288 (1982)

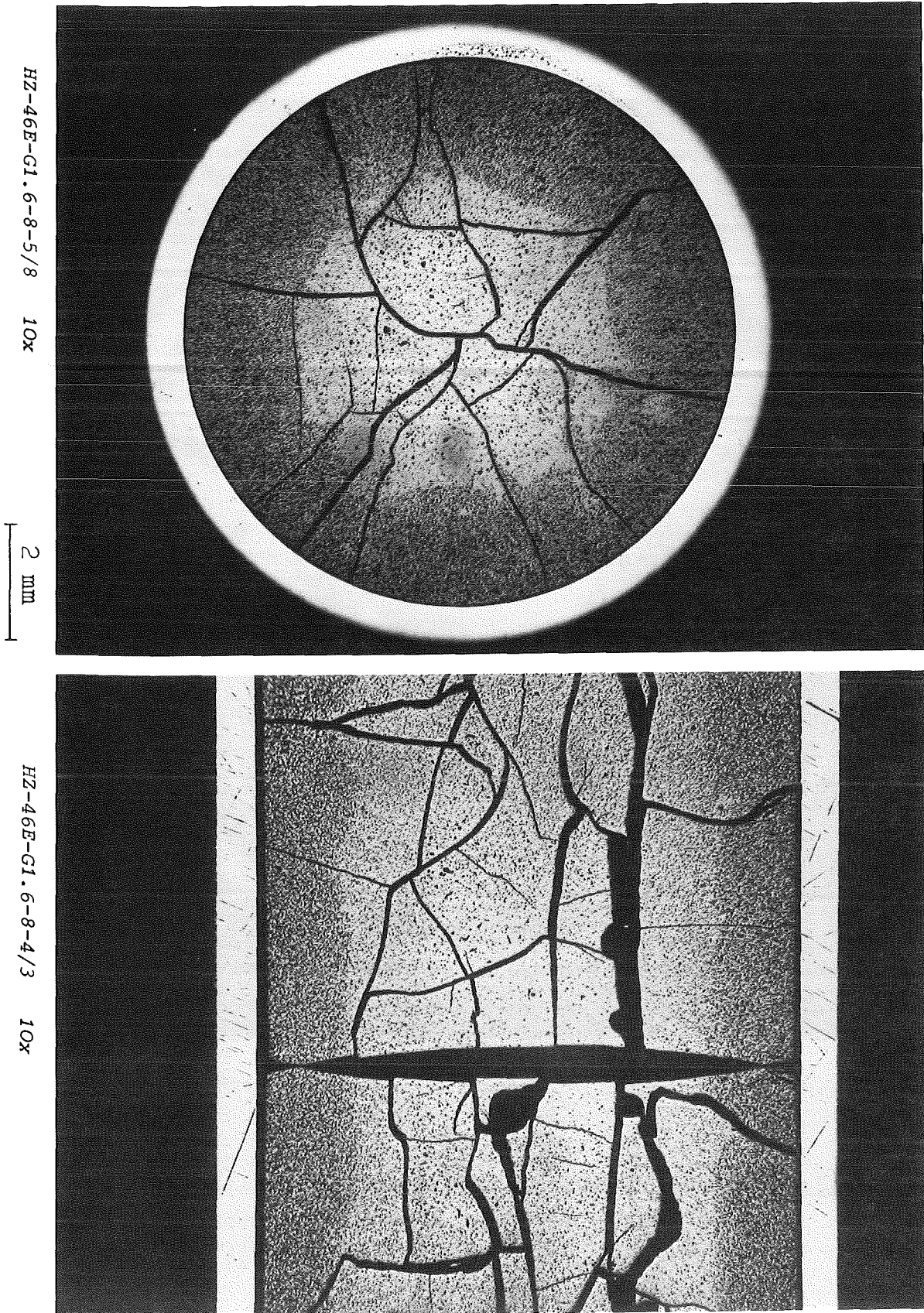


Abb. 5-1: Quer- und Längsschliff des vorbestrahlten Brennstabes G 1.6 ($35\ 000\ \text{MWd}/t_U$), der nicht LOCA-getestet wurde. Durch die starke Rißbildung zerfällt der Brennstoff in unterschiedlich große Bruchstücke.

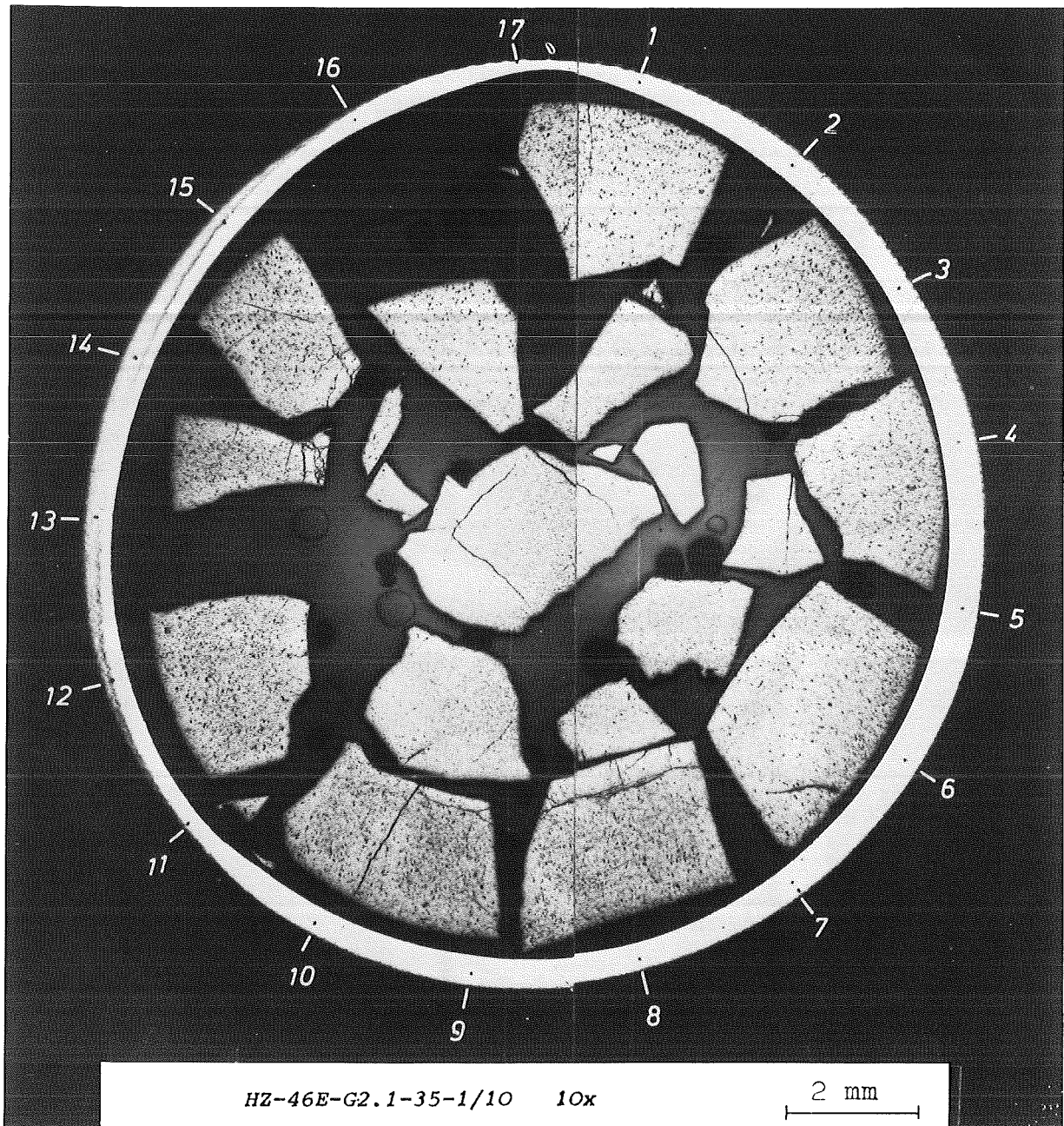


Abb. 5-2: Querschliff des LOCA-getesteten Prüflings G 2.1 (35 000 MWd/t_U) in der Nähe des Berstbereiches. Die Fragmentierung der UO₂-Pellets erfolgt während der Vorbestrahlung.



Abb. 5-3: Fragmentierung der UO₂-Pellets und lose Ansammlung im Berstbereich des Prüflings G 3.2 (35 000 MWd/t_U).

6. Spaltgasverhalten und Brennstoffvolumenänderungen

6.1 Untersuchungsmethoden

Aus der Brennstoffdichte vor und nach Bestrahlung ergibt sich die prozentuale Volumenänderung zu

$$\frac{\Delta V}{V_0} = 100 \left(\frac{\rho_0}{\rho_1} - 1 \right)$$

- V_0 Porenvolumen vor Bestrahlung
- ρ_0 Brennstoffdichte vor Bestrahlung
- ρ_1 Brennstoffdichte nach Bestrahlung.

Die Dichte des Brennstoffes wurde nach dem Auftriebsverfahren in Tetrachlorkohlenstoff bestimmt.

Die Spaltgasbestimmungen wurden von KTB/HZ in den Heißen Zellen ausgeführt. Die aus dem Brennstoff freigesetzte Menge wurde nach Anbohren des Stabes unter Vakuum und Absaugen des gesamten Gases gaschromatographisch bestimmt ("freies Spaltgas").

Zur Bestimmung des zurückgehaltenen Spaltgases wurden an verschiedenen axialen Positionen der Brennstoffsäulen Proben entnommen. Die Bestimmung erfolgte in zwei Stufen. Zunächst wurde der Brennstoff in einer Kugelmühle gemahlen und das dabei freigesetzte Spaltgas bestimmt. Bei diesem Mahlprozeß wird der Brennstoff in Teilchengrößen mit Durchmessern unter $1 \mu\text{m}$ zerkleinert. Dabei entweicht sämtliches Spaltgas, das sich in Blasen und Poren mit Durchmessern $>0,1 \mu\text{m}$ sowie an Korngrenzen befindet. Dieses Gas wird im folgenden als "Porenspaltgas" bezeichnet. Der gemahlene Brennstoff wurde anschließend in Salpetersäure aufgelöst, wobei das Spaltgas freigesetzt wurde, das sich in bestrahlungsbedingter Lösung oder in sehr kleinen intragranularen Blasen befand ("Gitterspaltgas").

6.2 Dichteänderungen und Spaltgasverhalten während der Vorbestrahlung

Die mittleren Brennstoffdichten in den Stäben G 1.6 und G 3.6 betragen nach der Bestrahlung $10,44 \pm 0,01 \text{ g/cm}^3$ ($95,2 \pm 0,1\%TD$) bzw. $10,39 \pm 0,02 \text{ g/cm}^2$ ($94,8 \pm 0,2\%TD$). In beiden Stäben wurde eine leichte Abhängigkeit der Dichte von der axialen Position beobachtet. Diese Abhängigkeit ist in den Abbildungen 6-1 und 6-2 dargestellt. Zum unteren Brennstoffende hin, d.h. in Richtung höheren Abbrandes, nimmt die Dichte jeweils leicht ab. Abb. 6-3 zeigt die Brennstoffdichten sämtlicher nicht LOCA-getesteter Brennstäbe in Abhängigkeit vom Abbrand. Die mittlere Dichte nimmt mit einer Rate von 0,75 % pro % Abbrand ab. Eine Extrapolation der Dichte auf den Abbrand null läßt auf eine Reduktion der Herstellungsporosität unter Bestrahlung auf ca. 2 Vol.% schließen. Aus Abb. 6-3 ergibt sich eine mittlere integrale Schwellrate von 0,8 %/% Abbrand. Die maximale integrale Schwellrate (Stab E 6) liegt bei 1 %/% Abbrand.

Bei der Bestimmung der freien Spaltgase in den Stäben G 1.6 und G 3.6 wurden 8,891 bzw. 25,608 cm^3 Spaltgas gefunden, wobei die Xe/Kr-Verhältnisse 7,6 bzw. 7,9 betragen. Bei über die Brennstofflängen gemittelten Abbränden von 3,7 bzw. 4 At.% und Brennstoffgewichten von 349,7 bzw. 334 g sowie einer Gaserzeugungsrate von 0,31 Gasatomen pro Spaltung ergeben sich damit Spaltgasfreisetzungen von 2,7 % beim Stab G 1.6 und 7,8 % beim Stab G 3.6. In Abb. 6-4 sind die Spaltgasfreisetzungswerte der nicht LOCA-getesteten Brennstäbe in Abhängigkeit vom Abbrand dargestellt.

Die Bestimmung des gebundenen Spaltgases in den nicht LOCA-getesteten Brennstäben G 1.6 und G 3.6 erfolgte jeweils an drei verschiedenen axialen Positionen. Die Messungen an den G 1.6-Stäben waren offenbar Fehlmessungen, die deutlich zu niedrige Ergebnisse brachten, wie die Spaltgasbilanz ergab und wie ein

Vergleich mit den Resultaten der LOCA-getesteten Stäbe dieser Versuchsserie zeigt. Die Konzentration des gebundenen Spaltgases im Stab G 3.6 ist in Abb. 6-5 in Abhängigkeit von der axialen Position dargestellt. Die Konzentration sowohl des Gitterspaltgases als auch des Porenspaltgases nehmen in Richtung zum unteren Brennstabende, d.h. mit steigendem Abbrand, zu. Die Zunahme der Konzentration des Porenspaltgases ist dabei stärker ausgeprägt als die des Gitterspaltgases. Mehr als 85 % des gebundenen Spaltgases liegen als Gitterspaltgas vor. Abb. 6-6 zeigt die Konzentration des Gitter- und Porenspaltgases aller nicht LOCA-getesteten Brennstäbe in Abhängigkeit vom Abbrand. Beide Konzentrationen nehmen mit dem Abbrand zu. Während das Gitterspaltgas eine leicht abnehmende Zunahmerate aufweist, zeigt das Porenspaltgas eine leicht steigende Zunahmerate.

6.3 Spaltgasverhalten während der LOCA-Tests

Während der LOCA-Tests erfolgte keine meßbare Schwellung des Brennstoffes. Die an den LOCA-getesteten Stäben bei der Versuchsserie bestimmten Brennstoff-Dichtewerte entsprechen weitgehend denen der Vergleichsstäbe. Sie weichen von diesen maximal 0,4 % nach oben und maximal 0,4 % nach unten ab. Auch in der Versuchsserien C, E und F wurde keine Brennstoffschwellung während der LOCA-Tests beobachtet.

Eine Bestimmung der freigesetzten Spaltgase war an den LOCA-getesteten Stäben wegen der Hüllrohrdefekte nicht möglich. Aussagen zur Spaltgasfreisetzung während des LOCA-Tests sind daher nur bedingt möglich anhand der Messungen des zurückgehaltenen Spaltgases. Abb. 6-7 zeigt die in den Brennstäben beider G-Serien gefundene Konzentration des zurückgehaltenen Spaltgases in Abhängigkeit von der axialen Position. Für den nicht LOCA-getesteten Stab G 1.6 mußte die Konzentration des zurückgehaltenen Spaltgases auf Grund des radiochemisch bestimmten Abbrandes berechnet werden. Dabei wurde eine Spaltgas-erzeugungsrate von 0,31 Atomen pro gespaltenem U-Atom angenommen.

Unter der Voraussetzung gleichen Abbrandes und gleicher axialer Abbrandverteilung in allen Brennstäben jeder Versuchsserie sowie annähernd gleicher Spaltgasfreisetzung während der Vorbestrahlung kann man annehmen, daß während der LOCA-Tests keine merkliche Spaltgasfreisetzung stattgefunden hat.

6.4 Nachbestrahlungsglühungen

Zur Untersuchung des Spaltgasverhaltens in LWR-Brennstäben bei Kühlmittelverluststörfällen, z.B. des Typs "kleine Lecks", die mit höheren Temperaturen als bei einem LOCA verbunden sind, werden Brennstoffproben aus dem Stab G 1.6 bei verschiedenen Temperaturen zwischen 1200 und 1600°C geglüht und in bezug auf Spaltgasverhalten und Schwellung untersucht. Die Versuche mit diesen Brennstoffproben sind noch nicht abgeschlossen, so daß nur wenige vorläufige Ergebnisse berichtet werden können.

Spaltgasfreisetzung und Schwellung während der Glühungen sind in starkem Maße abhängig von der Glüh Temperatur, der Glühzeit und von Vorbestrahlungsbedingungen (Abbrand) des Brennstoffes. Abb. 6-8 zeigt die bis jetzt vorliegenden Spaltgasfreisetzungswerte der UO_2 Glühproben des Stabes G 1.6 (mittlerer Abbrand 3,7 %) als Funktion der Glüh Temperatur. Die Zeitabhängigkeit der Spaltgasfreisetzung aus dem UO_2 ist gekennzeichnet durch einen raschen Anfangsanstieg. Mit zunehmender Glühdauer verringert sich die Freisetzungsrates. Der steile Anfangsanstieg wird offenbar hervorgerufen durch Aufreißen von Korngrenzen und Entweichen des in ihnen gespeicherten Spaltgases. Die weitere Freisetzung wird dann von Diffusionsvorgängen bestimmt, durch die Spaltgas aus dem Korn an die Korngrenzen transportiert wird, von denen es dann zum größten Teil freigesetzt wird. Dieser Vorgang führt bei Glüh Temperaturen ab ca. 1500°C zu im Gefügebild deutlich sichtbaren Korngrenzentrennungen.

Die Umverteilungsvorgänge des Spaltgases lassen sich anschaulich durch die verschiedenen Gasanteile in den verschiedenen Behandlungszuständen darstellen. Abb. 6-9 zeigt die Anteile, freies Spaltgas, Porenspaltgas und Gitterspaltgas, im bestrahlten Zustand und nach verschiedenen Glühbehandlungen.

Neben den Glühbehandlungen ist der Vorbestrahlungszustand der Proben von entscheidender Bedeutung für die Spaltgasfreisetzung. Abb. 6-10 zeigt die Spaltgasfreisetzung aus Proben der Brennstäbe F 6 (mittlerer Abbrand 2,4 At.%) und G 1,6 (mittlerer Abbrand 3,7 At.%) nach jeweils 30 min Glühzeit bei verschiedenen Temperaturen. Die Spaltgasfreisetzung steigt mit zunehmendem Probenabbrand. Eine endgültige Diskussion kann jedoch erst nach Vorliegen der Ergebnisse aus den restlichen Versuchen erfolgen.

Ähnlich wie die Spaltgasfreisetzung verhält sich die Brennstoffschwellung. Auch sie nimmt zu mit steigender Glühtemperatur und -dauer sowie mit dem Abbrand.

6.5 Schlußfolgerungen

Aus den Nachbestrahlungsuntersuchungen der Brennstäbe aller Versuchsserien ergeben sich folgende Schlußfolgerungen:

- Die mittlere integrale Schwellrate während der Vorbestrahlung ist niedrig. Sie liegt zwischen 0,7 %/% Abbrand bei den Brennstäben der G-Serien mit 3,7 und 3,8 At.% Abbrand und ca. 1 %/% Abbrand bei den Stäben der C- und E-Serie mit 0,3 und 0,9 % Abbrand. Es erfolgt eine Nachverdichtung der Herstellungsporosität auf 2 Vol.%.
- Die Spaltgasfreisetzung während der Vorbestrahlung nimmt mit steigendem Abbrand zu. Es wurde eine maximale Spaltgasfreisetzung von 7,8 % nach 3,8 % Abbrand gefunden. Mehr als 85 % der erzeugten Spaltgases liegen als Gitterspaltgas im Brennstoff vor.

- Bei Kühlmittelverluststörfällen (LOCA's) treten auf Grund der relativ niedrigen Brennstofftemperaturen keine merklichen Brennstoffschwellungen und Spaltgasfreisetzungen auf. Diese Aussage ergibt sich aus den FR 2 LOCA-Experimenten. Sie wird durch die out-of-pile Glühversuche bestätigt. Die bei einem LOCA auftretenden Temperaturen sind zu niedrig, und die Zeiten, in denen Brennstoffbereiche auf Temperaturen erwärmt werden, die höher sind als die im stationären Betrieb, sind zu kurz, um diffusionsbedingte Effekte wie Schwellung und Spaltgasfreisetzung hervorzurufen.

- Bei Störfällen, die mit maximalen Brennstofftemperaturen über ca. 1400°C verbunden sind (z.B. Typ "kleine Lecks"), ist mit Brennstoffschwellung und Spaltgasfreisetzung zu rechnen. Diese Effekte sind um so stärker ausgeprägt, je höher die Brennstofftemperatur, je länger die Verweilzeit bei dieser Temperatur und je höher der Abbrand des UO₂ sind.

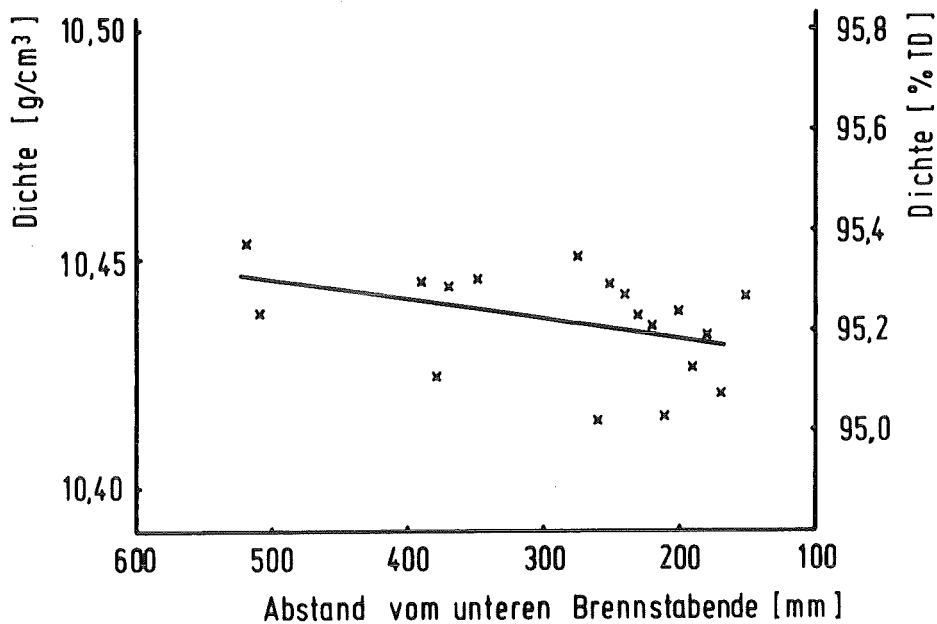


Abb. 6-1: Abhängigkeit der Brennstoffdichte von der axialen Position im Stab G 1.6.

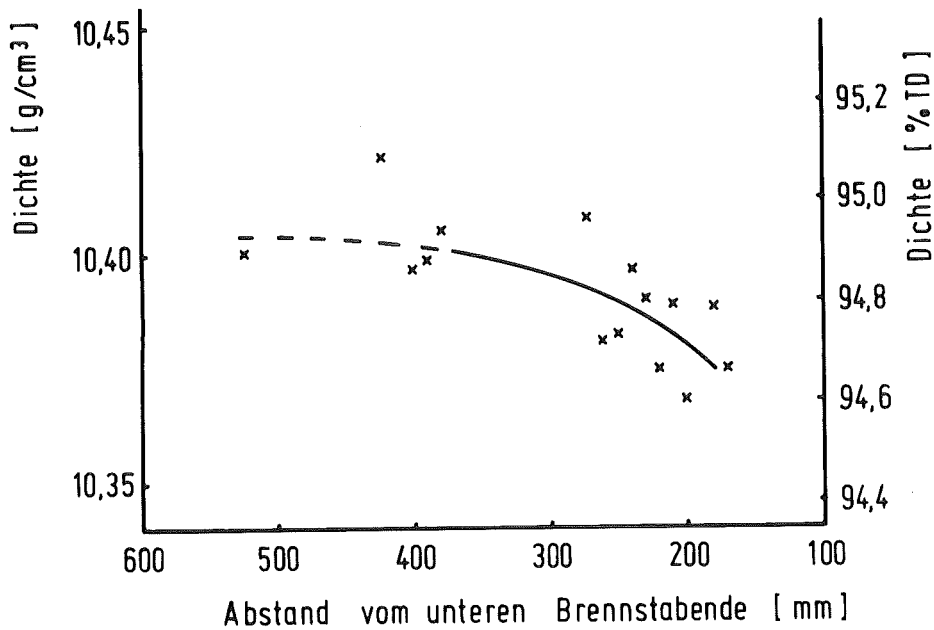


Abb. 6-2: Abhängigkeit der Brennstoffdichte von der axialen Position im Stab G 3.6.

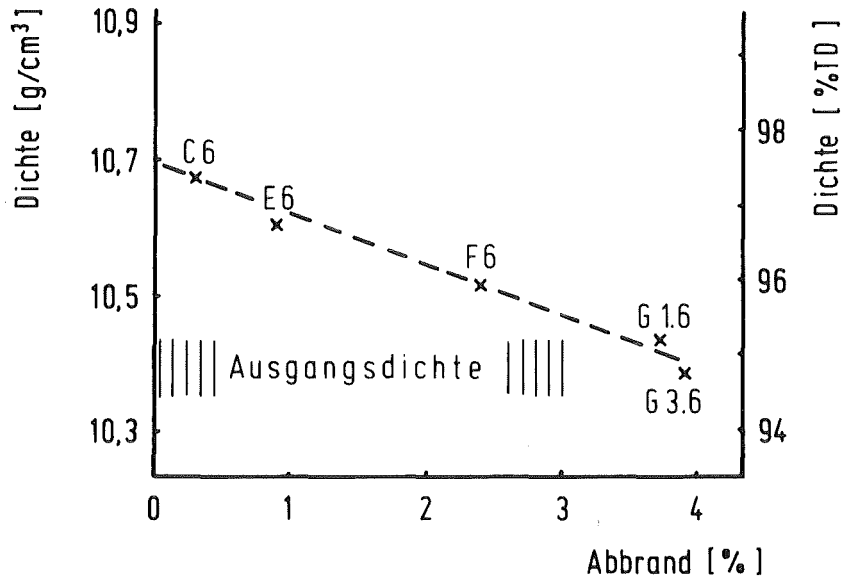


Abb. 6-3: Abhängigkeit der Brennstoffdichte vom Abbrand.

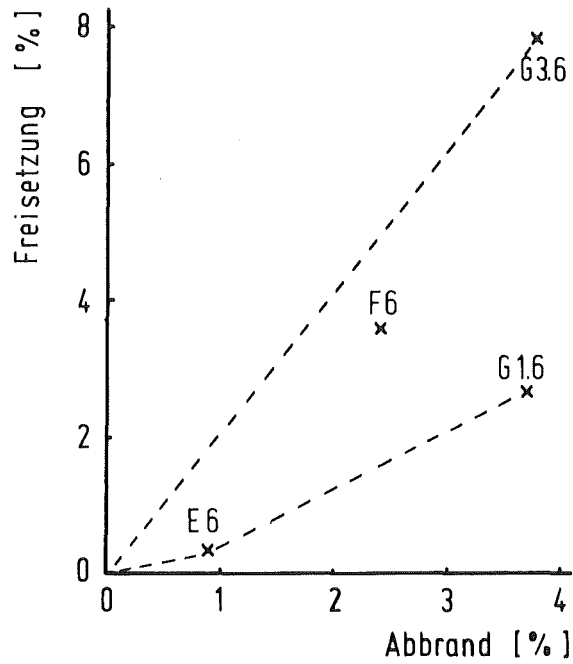


Abb. 6-4: Spaltgasfreisetzung in Abhängigkeit vom Abbrand.

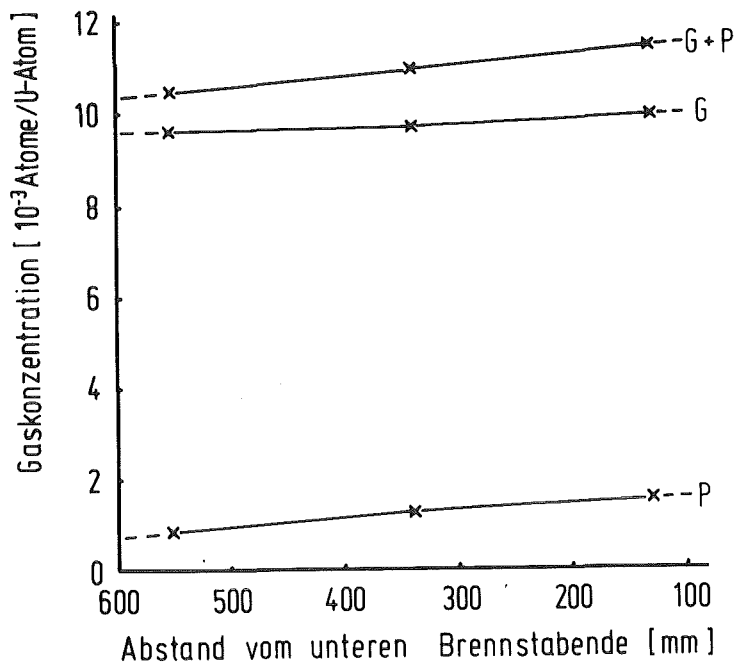


Abb. 6-5: Konzentration des gebundenen Spaltgases im Stab G 3.6 in Abhängigkeit von der axialen Position (G-Gitterspaltgas, P = Porenspaltgas).

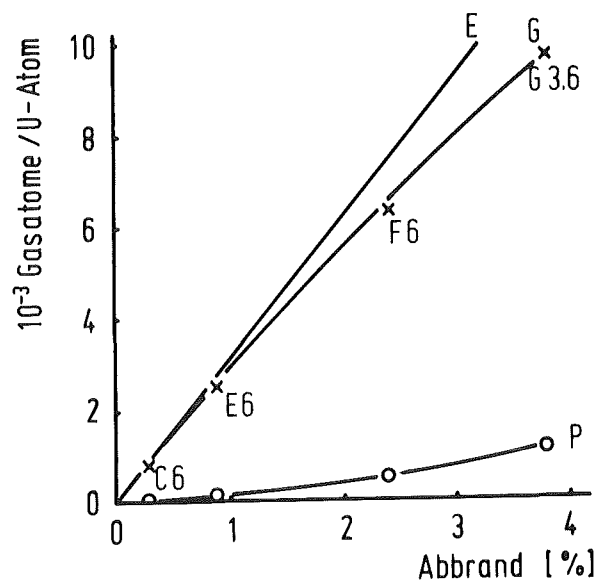


Abb. 6-6: Konzentration des Gitterspaltgases (G) und Porenspaltgases (P) in Abhängigkeit von Abbrand (E=erzeugtes Spaltgas).

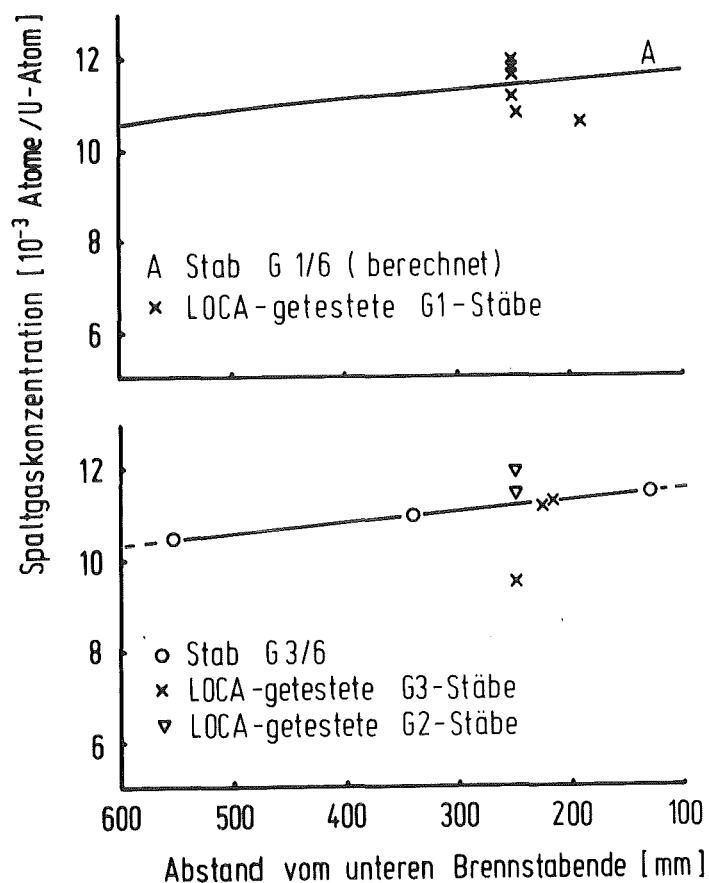


Abb. 6-7: Konzentration des gebundenen Spaltgases in den LOCA-getesteten Stäben und in den nicht den Transienten unterworfenen Vergleichsstäben der G-Serien.

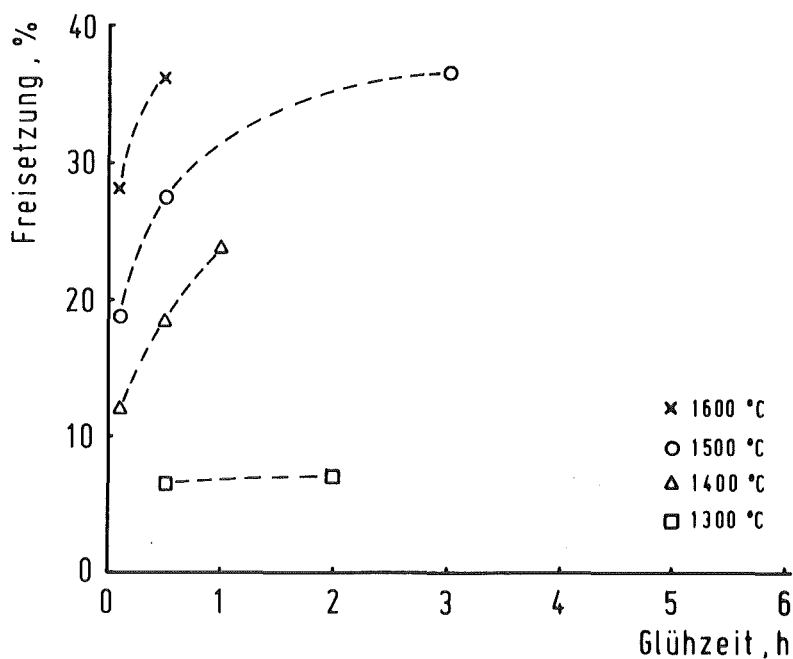


Abb. 6-8: Spaltgasfreisetzung aus den Glühproben des Stabes G 1.6 in Abhängigkeit der Glühzeit.

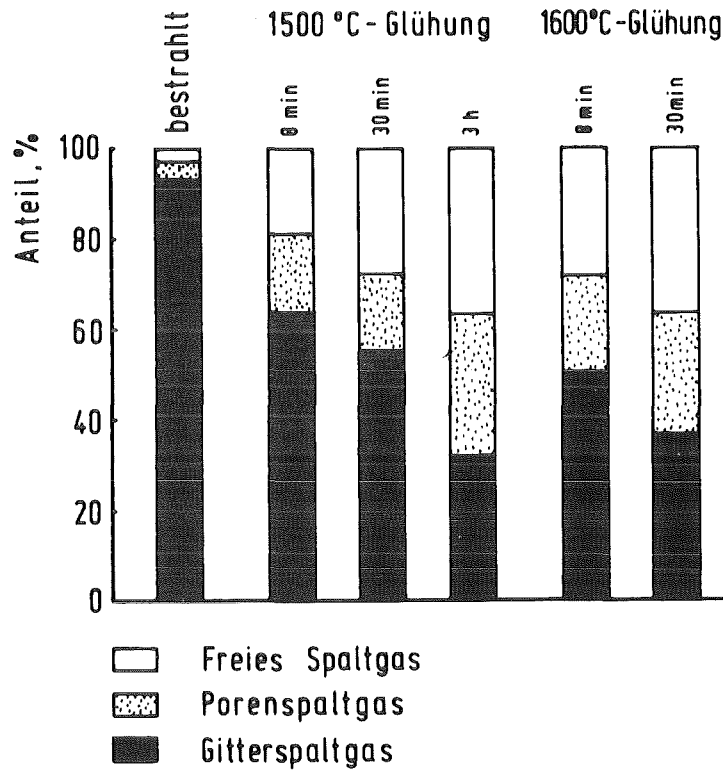


Abb. 6-9: Anteile des erzeugten Spaltgases in verschiedenen Behandlungszuständen.

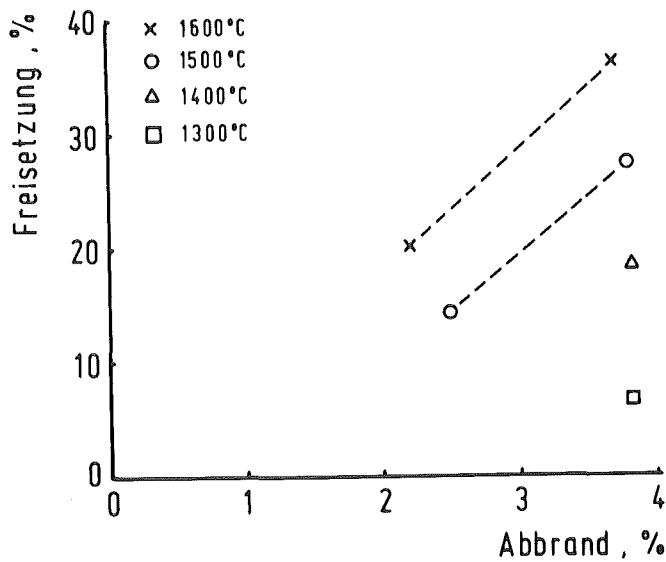


Abb. 6-10: Spaltgasfreisetzung bei Glühungen in Abhängigkeit vom Probenabbrand.