

W. Marth

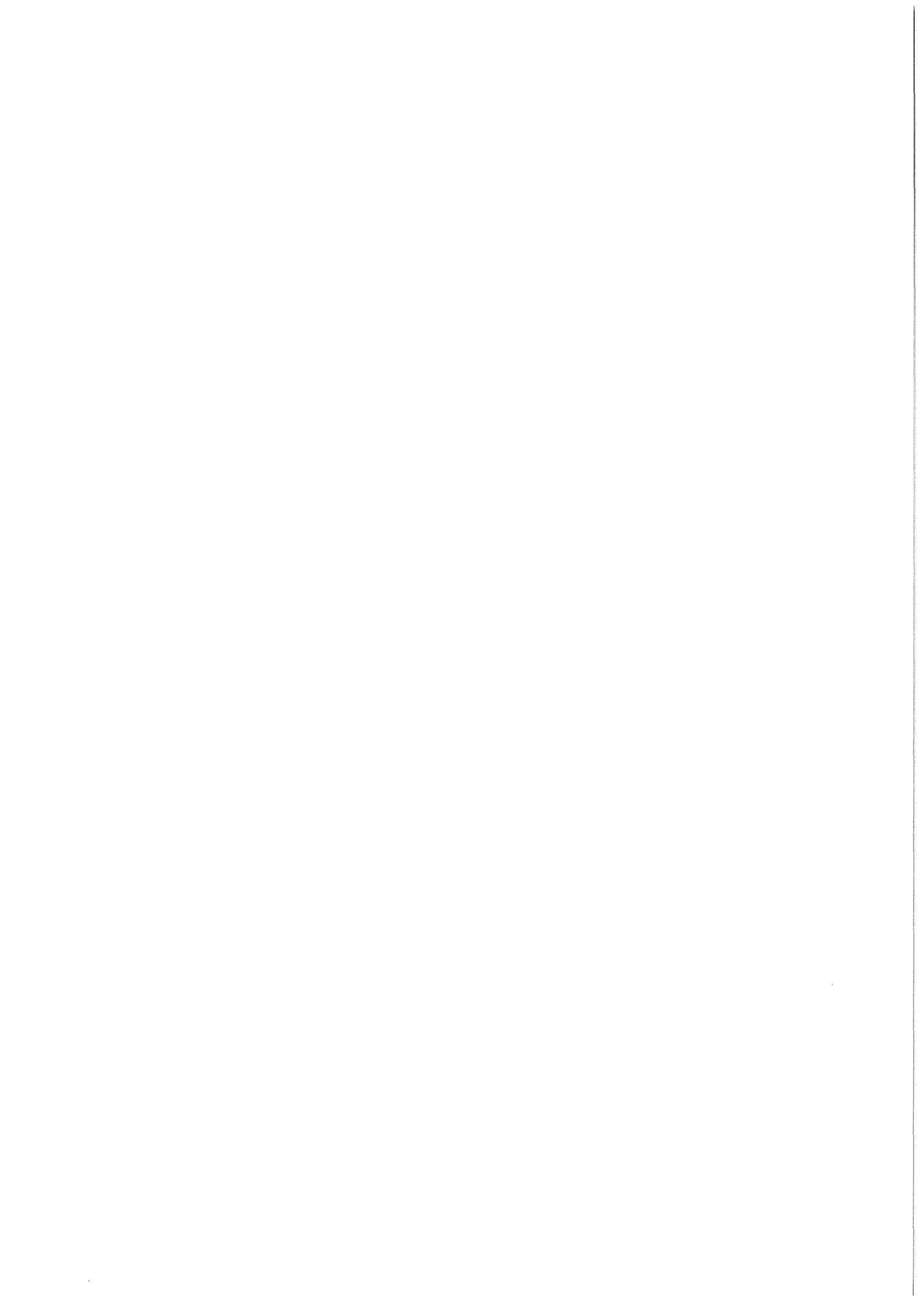
KfK 3505
August 1983

Schnellbrüter- Brennelemententwicklung

**Beiträge zum Seminar am
15./16. November 1982
im Kernforschungszentrum Karlsruhe**

**Hrsg.: W. Marth, G. Mühling
Projekt Schneller Brüter**

Kernforschungszentrum Karlsruhe



Kernforschungszentrum Karlsruhe
Projekt Schneller Brüter
KfK 3505

"Schnellbrüter-Brennelemententwicklung"

Beiträge zum Seminar am 15./16. November 1982

im Kernforschungszentrum Karlsruhe

Hrsg.: W. Marth, G. Mühling

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

Zusammenfassung:

Im vorliegenden Bericht sind die Vorträge zusammengestellt, die anlässlich eines PSB/PL Seminars "Schnellbrüter-Brennelemententwicklung" am 15./16. November 1982 gehalten wurden. Diese Vorträge geben einen Überblick über den Stand, der bisher erzielten Ergebnisse und über die im Rahmen des F+E Programmes noch erforderlichen Entwicklungsarbeiten.

Im einzelnen behandelt werden folgende Themen:

- die Anforderungen und Randbedingungen der Brennstab- und Elementauslegung für das Referenzkonzept des SNR 300 Erstcores und für zukünftige Großbrüterbrennelemente (Beiträge 1,2 und 6)
- die Herstellungseigenschaften und Charakterisierung verschiedener Brennstoffvarianten (Beiträge 3,4 und 5),
- das Betriebsverhalten, Konzeptgrenzen und Brennstabversagensmöglichkeiten (Beiträge 7 und 8)
- der Stand der Hüll- und Kastenmaterialentwicklung auch im Hinblick auf die angestrebten hohen Zielabbrände großer Brutreaktoren (Beiträge 9 und 10)
- die Ergebnisse der durchgeführten Bestrahlungsexperimente unter stationären und instationären Betriebsbedingungen sowie mit defekten Brennstäben (Beiträge 11, 12, 13 und 14).

An den Vorträgen beteiligten sich das IMF, die Fa. Interatom und das PSB/PL

Abstract:

This report is a compilation of the papers which have been presented during a seminar "Fast Breeder Fuel Element Development" held on November 15/16, 1982 at KfK. The papers give a survey of the status, of the obtained results and of the necessary work, which still has to be done in the frame of various development programmes for fast breeder fuel elements.

In detail the following items were covered by the presentations:

- the requirements and boundary conditions for the design of fuel pins and elements both for the reference concept of the SNR 300 core and for the large, commercial breeder type of the future (presentation 1,2 and 6)
- the fabrication, properties and characterization of various mixed oxide fuel types (presentations 3,4 and 5)
- the operational fuel pin behaviour, limits of different design concepts and possible mechanism for fuel pin failures (presentations 7 and 8)
- the situation of cladding- and wrapper materials development especially with respect to the high burn-up values of commercial reactors (presentations 9 and 10)
- the results of the irradiation experiments performed under steady-state and non-stationary operational conditions and with failed fuel pins (presentations 11, 12, 13 and 14).

Papers are contributed by KfK/IMF, INTERATOM and KfK/PSB/PL.

"Begrüßung und Einführung"	1
W. Marth, Kernforschungszentrum Karlsruhe Leiter des Projektes Schneller Brüter	
"Randbedingungen und Ziele der Brennelemententwicklung aus der Sicht der Kernauslegung"	4
U. Wehmann, Interatom GmbH, Bergisch Gladbach	
"Entwicklungsarbeiten zur Brennelement-Struktur"	25
K.H. Wenk, Interatom GmbH, Bergisch Gladbach	
"Brennstoffherstellung-Typenvergleich"	38
H. Wedemeyer, Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung III G. Mühling, Kernforschungszentrum Karlsruhe Projektleitung Schneller Brüter	
"Charakterisierung von Mischoxidbrennstofftabletten und deren Vorprodukten"	51
D. Vollath, Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung III	
"Untersuchungen zur Homogenität des Mischoxid in verschiedenen Stadien des Brennstoffkreislaufs"	70
H. Kleykamp und R. Pejsa Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung I	
"Anforderungen an den Brennstab und Auslegung"	81
K. Kummerer, Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung III	
"Brennstoffverhalten und Brennstabversagensmöglichkeiten"	98
W. Dienst, Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung I	

"Kombinierte mechanisch-chemische Wechselwirkung Brennstoff/Hülle"	111
O. Götzmann, Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung I	
"Stand der Hüllmaterialentwicklung für das SNR-Referenz konzept - kritische Materialprobleme"	125
W. Schneider, K. Herschbach, L. Schäfer, M. Schirra, Ch. Wassilew, K. Ehrlich, Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung II	
"Werkstoffentwicklung für höhere Abbrände"	147
K. Ehrlich, K. Anderko, Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung II	
"Stationäre Bestrahlungsexperimente"	178
D. Geithoff, Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung III	
"Brennstoff- und Brennstabbestrahlungen aus internationaler Sicht"	197
Ch. Heyne, Interatom GmbH Bergisch Gladbach	
"Bestrahlungsexperimente zum Betriebstransienten- verhalten"	215
H. Plitz, Kernforschungszentrum Karlsruhe Projektleitung Schneller Brüter D. Freund, Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung	
"Defektstabexperimente-VOLGA Programm"	225
P. Weimar, Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung III H. Kleykamp, Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Material- und Festkörperforschung I	

EINLEITUNG UND BEGRÜSSUNG

W. Marth

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Projekt Schneller Brüter

Im Namen der Projektleitung möchte ich Sie sehr herzlich zum Seminar "Schnellbrüter-Brennelemententwicklung" des Projekts Schneller Brüter begrüßen. Diese Veranstaltung ist ein internes Arbeitseminar, in erster Linie für das Kernforschungszentrum, darüberhinaus aber auch für unsere Partner Interatom und Alkem in der Entwicklungsgemeinschaft Schneller Brüter. Gäste von externen Organisationen sind uns als Zuhörer und Diskussionsteilnehmer sehr willkommen.

Der Zeitpunkt für ein solches Seminar schien uns passend, nachdem bei KNK II nunmehr der erste Kern abgebrannt ist, und, wie Sie wissen, mit dem Erreichen der runden Zahl 100.000 MWd/t ein schöner Erfolg erreicht wurde.

Die Ziele dieses Seminars sind:

- die Schwerpunkte und vorallem Grenzen des derzeitigen Brennelement-Referenzkonzepts aufzuzeigen,
- Aussagen über die Versagensursachen bei Stab und Element zu gewinnen,
- Hinweise für künftige Forschungsschwerpunkte bei Großbrütern zu erarbeiten.

Alle diese Teilziele stehen vor dem Hintergrund einer stetig schwieriger werdenden Personal- und Budgetsituation.

Immer wieder wird - auch in diesem Zentrum - über den Stellenwert der Brennelement- und Materialforschung etwa im Verhältnis zur Sicherheitsforschung spekuliert. Ich halte beide für wichtig: die Sicherheit fördert Akzeptanz des Schnellen Brüters in der Öffentlichkeit, ein ordentliches Brennelement fördert die Akzeptanz dieses Reaktorsystems beim Betreiber. Beide Gruppierungen müssen wir überzeugen, wenn unsere Forschungsarbeiten je in die technisch-wirtschaftliche Anwendung einlaufen sollen.

Das Brennelement ist, bezogen auf die Lebensdauer eines Brüterkernkraftwerks, seine teuerste Komponente; sie unterliegt während des Betriebs auch den härtesten Beanspruchungen. Trotzdem ist der Stand der Technik bereits bemerkenswert hoch. Ich möchte daraufhinweisen, daß im Verlaufe des nahezu 8-jährigen PHENIX-Betriebs lediglich 7 Brennstäbe der eigentlichen Coreladung defekt wurden, beim englischen PFR waren bisher 2 Brennstäbe undicht, die gleiche Anzahl wie bei KNK II übrigens. Erinnern wir uns demgegenüber, daß man in der Einführungsphase der Leichtwasserkernkraftwerke zuweilen mit tausenden von defekten und z.T. völlig ausgewaschenen Brennstäben zu kämpfen hatte. Die Brüterbrennelemente sind also schon recht zuverlässig - für die gegenwärtige Generation der Schnellbrüter bis ca. 300 MWe.

Für die Großbrüter, also die Reaktoren bis ca. 1500 MWe, muß noch einiges getan werden. Ihr Kostennachteil gegenüber gleichgroßen Leichtwasserreaktoren liegt im komplizierten Anlagenaufbau und im damit verbundenen Mehraufwand solcher Materialien wie Stahl und Beton. Diese inhärente Kostenpönale des Brüters versucht man zumindest teilweise durch Erhöhung des Abbrands zu egalisieren. Dementsprechend wird bei Großbrütern ein Abbrand um 150.000 MWd/t angestrebt.

Die daraus erwachsenen Belastungen des Hüllmaterials sind enorm: im Verlaufe der Standzeit wechselt jedes Gitteratom durch bestrahlungsinduzierte Stoßvorgänge ca. 150 mal seinen Platz, was mit einer Reduktion der ursprünglichen Festigkeit verbunden ist. Darüberhinaus erhöht sich der Innendruck des Spaltgases kontinuierlich und der schwellende Brennstoff kann in Kontakt mit der Hülle kommen. Diese Phänomene nehmen einen breiten Raum in diesem Seminar ein.

Daß der Gesichtspunkt der Kostenreduktion nicht nur hochwissenschaftlich sondern auch technisch-pragmatisch angegangen werden muß, ersieht man aus dem zur Ansicht ausliegenden sog. Skelett eines KNK II-Brennelement, also eines Brennelements ohne Brennstäbe. Diese Strukturteile - so konventionell sie meist erachtet werden - waren hochkompliziert zu fertigen und dementsprechend teuer. Im Verlaufe der Herstellung gab es viele Vorschläge für Vereinfachungen, etwa bei den Pflasterbefestigungen, die z.T. bereits in die Spezifikationen der Nachladung eingegangen sind.

Die Entwicklung eines kostenoptimalen Brennelements ist also eine Aufgabe, zu der alle 3 Partner der Entwicklungsgemeinschaft beizutragen haben.

Randbedingungen und Ziele der Brennelemententwicklung
aus der Sicht der Kernausslegung

U. Wehmann

INTERATOM
Bergisch Gladbach

Abb. 1 zeigt mögliche Ziele der BE-Entwicklung. Geringe Stromerzeugungskosten sind zur Zeit, da aufgrund der gestreckten Uranreserven und des geringeren Strombedarfs eine schnelle Einführung der Brüter nicht erforderlich erscheint, eine fundamentale Forderung. Bei den Brennstoffzykluskosten muß man darauf achten, daß man sich keine Anlagenpönanen einhandelt, unter denen der Brüter ja sowieso leidet. Der einfache Aufbau ist wichtig für geringe Fabrikationskosten, während geringe Stahlmasse und gute Zerlegbarkeit von Bedeutung für die Entsorgung sind. Gute Sicherheitseigenschaften sind wichtig sowohl bei Normalbetrieb im Sinne von z. B. guter Regelbarkeit und guter Verfügbarkeit wie auch bei Störfällen.

Brutvermögen und Uranausnutzung haben z. Z. einen sehr geringen Stellenwert, so daß sie nicht weiter diskutiert werden. Betrachtet werden vielmehr die Anforderungen an die BE-Entwicklung, die von den BZK abzuleiten sind. Die Parameter der BE-Auslegung, die man zum Erreichen dieses Ziels modifizieren kann, zeigt Abb. 2. Sie sind unterteilt in 4 Blöcke, nämlich Auslegungsdaten, Belastungsdaten, das Strukturmaterial und die Abstandshalterung.

Im folgenden wird zunächst etwas zum Stabdurchmesser gesagt, dann zum maximalen Abbrand mit seinen Auswirkungen auf die Kastendimensionen und das Strukturmaterial sowie zur Abstandshalterung.

Die Diskussion des Stabdurchmessers wird mit Abb. 3 begonnen, die sozusagen die Historie der Brennstoffzykluskostenentwicklung zeigt. Sie beginnt in dieser Abbildung bei 1974, wo mit 3000 DM/kg Wiederaufarbeitungskosten und einer vom Hersteller bereitgestellten Fabrikationskostenformel (absolutes

Niveau bei 3000 DM/kg) eine Kostenabhängigkeit mit einem recht flachen Minimum bei 8 mm berechnet wurde. Bei Berücksichtigung der Anlagenpönale für dickere Stäbe aufgrund des größeren Core- bzw. Tankdurchmessers verschiebt sich das Minimum noch weiter zu dünneren Stäben, und die speziellen Randbedingungen des SNR-300 führten dann zu dem Referenzwert von 7,6 mm. Ein großer Sprung erfolgte dann bei Verwendung neuerer und wie üblich höherer Wiederaufarbeitungskosten; dann änderten sich nochmals die Fabrikationskosten, zunächst im relativen Verlauf (1977 *) und dann nochmals im absoluten Niveau (1982 *). Diese letzte Kurve ist in Abb. 4 im oberen Teil wiederzufinden, sie wurde ergänzt um 3 weitere Kurven mit verschiedenen maximalen Abbränden. Angedeutet sind einige Variationen z. B. der Corehöhe, der Blankethöhe, der Hüllrohrwandstärke und der Stabzahl je Element. Diese Variationen bleiben alle deutlich unter $\pm 10\%$; bestimmend ist also der Stabdurchmesser und - wie hier angedeutet und gleich noch zu diskutieren - der Abbrand. Man sieht bei extrem hohen Abbränden einen relativ flachen Verlauf, während bis zu Abbränden von 140 oder 150 MWD/kg ein kontinuierlicher Abfall erfolgt. Es muß noch erwähnt werden, daß alle Kurven mit einem Plutonium-Preis von 50 DM/g gerechnet wurden, der sicherlich eine absolute Obergrenze darstellt. Mit kleineren Pu-Preisen würde die fallende Tendenz bei allen Kurven verstärkt werden. Wie hoch auch immer der Plutoniumpreis sein wird und welche Abbrände man wird realisieren können, der Schritt von 6 auf 7,6 mm ist sicherlich in der richtigen Richtung erfolgt. Wir müssen jedoch feststellen, daß jenseits dieses Wertes noch merkliche Verbesserungen zu erreichen sind. Im Sinne der Harmonisierung mit den Franzosen bzw. der SPX-2-Auslegung haben wir die 8,5 mm als neue Referenz übernommen, wir müssen aber auch für Vergrößerungen darüber hinaus offen sein. Dabei muß jedoch beachtet werden, daß die Anlagenpönale aufgrund größeren Core- bzw. Tankdurchmessers zum Tragen kommen wird.

Soviel zum Stabdurchmesser und nun zum Abbrand und die von ihm für die Brennelemententwicklung abzuleitenden Anforderungen. Dazu zeigt Abb. 5 die Brennstoffzykluskosten als Funktion des maximalen nominellen Abbrands bei verschiedenen Stabdurchmessern und den beiden Pu-Preisen 50 und 0 DM/g. Wir sehen in allen Fällen eine sehr steile Abnahme bis hin zu 150 bzw. 200 MWd/kg und dann einen etwas abflachenden Verlauf. Der Wert des bisherigen Referenzkerns des homogenen Arbeitskerns liegt entsprechend dem Abbrand von 70 MWd/kg weit oben bei etwa 4 DPf/kWh. Ausgehend von diesem Wert bringt eine Abbranderhöhung auf etwa 150 MWd/kg eine Halbierung und schöpft so den größten Teil der möglichen Kostenverringerung aus. Wir können deshalb den von den Franzosen angesetzten Maximalwert von 140 MWd/kg mit gutem Gewissen übernehmen. Es bleibt jedoch festzustellen, daß eine Abbranderhöhung über diesen Wert hinaus durchaus noch Kostenverringerungen bringen kann, daß also ein Zielwert von 200 MWd/kg aus Kostengründen durchaus attraktiv ist.

Wenn man eine solche Abbranderhöhung diskutiert, darf man die Konsequenzen bzw. die Anforderungen an die Element- und Kernausslegung natürlich nicht außer acht lassen, und diese Konsequenzen sollen im folgenden diskutiert werden.

Als ein Beispiel dazu, wie der Abbrand die Kerneigenschaften beeinflusst, zeigt Abb. 6 neben den Brennstoffzykluskosten den Einfluß des Abbrands auf die wichtigen Reaktivitätskoeffizienten, nämlich den VOID- und DOPPLER-Koeffizienten. Aufgrund des spektralen Einflusses der Spaltprodukte vergrößert sich der Voideffekt stark, während der Dopplereffekt ebenso stark abnimmt. Diese markanten Einflüsse zeigen, daß man sich eine deutliche Abbranderhöhung sehr gründlich u. a. mit Hilfe von Störfalluntersuchungen überlegen muß.

Mit dem Abbrand ist natürlich die Strahlenschädigung des Strukturmaterials engstens gekoppelt. Diese Kopplung zeigt Abb. 7, in der die gesamte und die energiegewichtete Fluenz sowie die Versetzungen als Funktion des Abbrands dargestellt sind. Ausgehend vom HOM1-Kern steigen die Energiedosen von 15 über 27 bis $35 \cdot 10^{22}$ MeV/cm² an, wenn der Abbrand von 70 über 140 bis 200 MWd/kg erhöht wird. Die Versetzungen erhöhen sich entsprechend von 85 über 150 bis 200.

Derartige Dosen stellen natürlich erhebliche Konsequenzen für das Strukturmaterial dar, die als nächstes diskutiert werden sollen.

Abb. 8 zeigt die radialen Dimensionen des Brennelementkastens als Funktion des Abbrands, und zwar zum einen die Kastenwandstärke und zum anderen die Weite des Spaltes, die man bereitstellen muß, um Kastenkontakt am Ende der Standzeit zu verhindern. Man sieht, daß sich die Kastenwandstärke relativ wenig ändert, jedoch je nach Kriecheigenschaften auch an die 5 mm herankommt. Die erforderliche Spaltweite dagegen steigt stark mit dem Abbrand bzw. der Dosis an, und hier macht sich der Einfluß der Schwell- und Kriecheigenschaften besonders stark bemerkbar. Die gestrichelten Linien sind mit den k-Faktoren 0,5/0,5 für Schwellen und Kriechen gerechnet worden, wie sie Ende der 70er Jahre Referenz waren. Inzwischen liegen weitere Bestrahlungsergebnisse u. a. der Franzosen für ihr dem 1.4970 kv Stahl sehr ähnliches Material vor, die eine Verringerung der k-Faktoren möglich erscheinen lassen. Es wurde hier mit einem Zielwert von 0,2/0,3 gerechnet, dessen Realisierung bis hin zu den genannten Dosen noch einen sehr großen Aufwand bedeutet.

Um sagen zu können, welche k-Faktoren für den Kasten aus Sicht der Kernausslegung angestrebt werden sollten, sollen einige integrale Kernparameter betrachtet werden (Abb. 9).

Den deutlichsten Einfluß zeigt der Kerndurchmesser, der beim Übergang von $k = 0,2$ auf $0,5$ um etwa 15 cm größer wird. Für die Anlage ist das nicht unwichtig, da sich der Tankdurchmesser um den doppelten Wert ändert. Wir sehen, daß die Zykluskosten steigen; die Brutrate sinkt aufgrund der stärkeren Verdünnung des Brennstoffs, und der Pu-Durchsatz steigt.

Als weitere Konsequenzen hoher k -Faktoren sind zu nennen: größere Kräfte zwischen den Elementen; größere frei bleibende Verbiegungen als Nachteil für die Handhabung; größere Pflasterdicke, so daß sich das von den Franzosen favorisierte Prinzip der von innen herausgedrückten Noppen höchstwahrscheinlich nicht mehr realisieren läßt.

Es ist schwer, eine obere Grenze anzugeben, die die k -Werte nicht überschreiten dürfen. Aus Sicht der Kerneigenschaften kann man einerseits sagen, daß $0,5/0,5$ sicherlich zu groß sind, daß auf der anderen Seite ein gar nicht schwellendes Material für den Kasten auch nicht erforderlich ist. Ein Zielwert von $0,2/0,3$, wie er in Abb. 9 verwendet wurde und der den Spalt bzw. die doppelte Pflasterstärke deutlich unter 10 mm hält, erscheint jedoch sinnvoll.

Nach den Materialeigenschaften muß noch die zweite wichtige Voraussetzung für das sichere Erreichen eines hohen Abbrands diskutiert werden, nämlich die Abstandshalterung des Brennstabbündels. Sie hat die Aufgabe, das Brennstabbündel sowohl zu Beginn wie auch zu Ende der Standzeit so definiert zu halten, daß keine Temperaturlimits überschritten werden. Dabei erfordert das während der Standzeit erfolgende Schwellen des Hüllrohrs, daß man zu Beginn der Standzeit ein Freivolumen bereitstellt, das bis Ende der Standzeit durch Schwellen aufgefüllt wird. Beim Gitter-Abstandshalter erfolgt das durch geeignete Festlegung des Zellkreisdurchmessers, bei dem dieses

Spiel auf einen Stab beschränkt bleibt. Beim Drahtelement können sich diese Spiele jedoch überlagern, so daß es zu Exzentrizitäten des gesamten Bündels kommen kann.

Dieses ist ein Vorteil des Gitterkonzeptes gegenüber dem französischen Drahtelement. Den wesentlichen Unterschied beider Konzepte, nämlich den Temperaturverlauf im Bündel, zeigt Abb. 10 mit einem radialen Verlauf der extremalen Hüllrohrmittentemperatur einmal durch ein Element mit Gitter und Strömungsleitblechen (den Schürzen) und zum anderen durch ein Drahtelement. Beides wurde gerechnet mit einem bestimmten Kühlmitteldurchsatz. Beim Drahtelement erfolgt ein Anstieg über mehrere Brennstabreihen hinweg bis zu 685°C , während beim Gitterelement nur ein kurzer Anstieg über eine Brennstabreihe hinweg erfolgt und weiter innen die Temperatur konstant bleibt. Sie liegt 40° niedriger als beim Drahtelement. Bei Auslegung auf gleiche Hüllrohrdehnung kann man dann natürlich den Stäben des Gitterelementes einen höheren Innendruck und somit längere Standzeiten zumuten. Wie man das quantifizieren kann, zeigt die nächste Abb. 11, wo als Funktion des Temperaturformfaktors im oberen Teil der Abbrand in relativen Einheiten dargestellt ist. Ange deutet sind das Gitterelement mit $f_T = 1,03$ und das Drahtelement mit dem Bereich $f_T = 1,12 - 1,28$. 1,12 ist der Idealfall mit gleichverteiltem Spiel, und 1,28 ist der ungünstigste Fall mit kompaktem Bündel. Die Franzosen selber gehen von einem halbkompakten Bündel aus mit $f_T = 1,21$. Ausgehend vom ungünstigsten Fall ist bei Verbesserung des Formfaktors eine stetige Abbranderhöhung bis um etwa 85 % beim Gitterelement möglich. Diese Abbranderhöhungen sind dann in entsprechende Kostenreduzierung umzurechnen, die beim Übergang vom halbkompakten Drahtelement zum Gitterelement etwa 25 % ausmachen, also sehr beträchtlich sind.

Zum Schluß werden in Abb. 12 die Anforderungen an das Brennelement eines SNR-2 und somit auch an die Brennelemententwicklung zusammengefaßt.

Das Brennelement sollte einen Stab mit mindestens 8,5 mm haben; der Abbrand sollte aus Kostengründen 140 MWd/kg SM oder mehr betragen, was Dosiswerten von $30 \cdot 10^{22}$ MeV/cm² bzw. 150 DPA und mehr entspricht; die Abstandshalterung sollte durch Gitter mit Schürzen erfolgen, und die k-Faktoren für Schwellen und Kriechen des Kastens sollten 0,2 bzw. 0,3 nicht überschreiten.

Auf der Basis dieser Randbedingungen ergibt sich ein Brennelement, das in Abb. 13 dem des HOM1-Kerns gegenübergestellt wird. Man sieht den größeren Stabdurchmesser, die Stabzahl sollte 271 bleiben, die Kastendimensionen sind trotz der höheren Dosen günstiger geworden, weil eine geringere Schwellen- und Kriechrate angenommen wurde.

Die dazugehörigen Reaktoreigenschaften zeigt die Abb. 14. Man sieht, daß die Elementzahl aufgrund der erhöhten Längleistung etwas kleiner geworden ist, so daß der Spaltzonen- durchmesser der gleiche ist. Plutonium- und Schwermetallinventar werden etwas größer; aufgrund der längeren Standzeit werden die zugehörigen Durchsätze jedoch kleiner. Der Entladeabbrand hat sich in etwa verdoppelt, und die Brutrate liegt bei 1,12, hat also noch immer einen sicheren Abstand zu 1,0.

RANDBEDINGUNGEN UND ZIELE
DER BRENNELEMENT-ENTWICKLUNG

- GERINGE STROMERZEUGUNGSKOSTEN
 - . GERINGE BRENNSTOFFZYKLUSKOSTEN
 - . GERINGE ANLAGENPÖNALEN
 - . EINFACHER AUFBAU
 - . GERINGE STAHLMASSE
 - . GUTE ZERLEGBARKEIT

- GUTE SICHERHEITSEIGENSCHAFTEN

- GUTES BRUTVERMÖGEN

- GUTE URANAUSNUTZUNG

FREIE PARAMETER DER BE-AUSLEGUNG

I. AUSLEGUNGSDATEN

- STABDURCHMESSER
- HÜLLROHRWANDSTÄRKE
- ANZAHL STÄBE
- KASTENDIMENSIONEN
 - WANDSTÄRKE
 - SPALTWEITE
- AXIALE ABMESSUNGEN
 - COREHÖHE
 - AX. BRUTMANTELDICKE

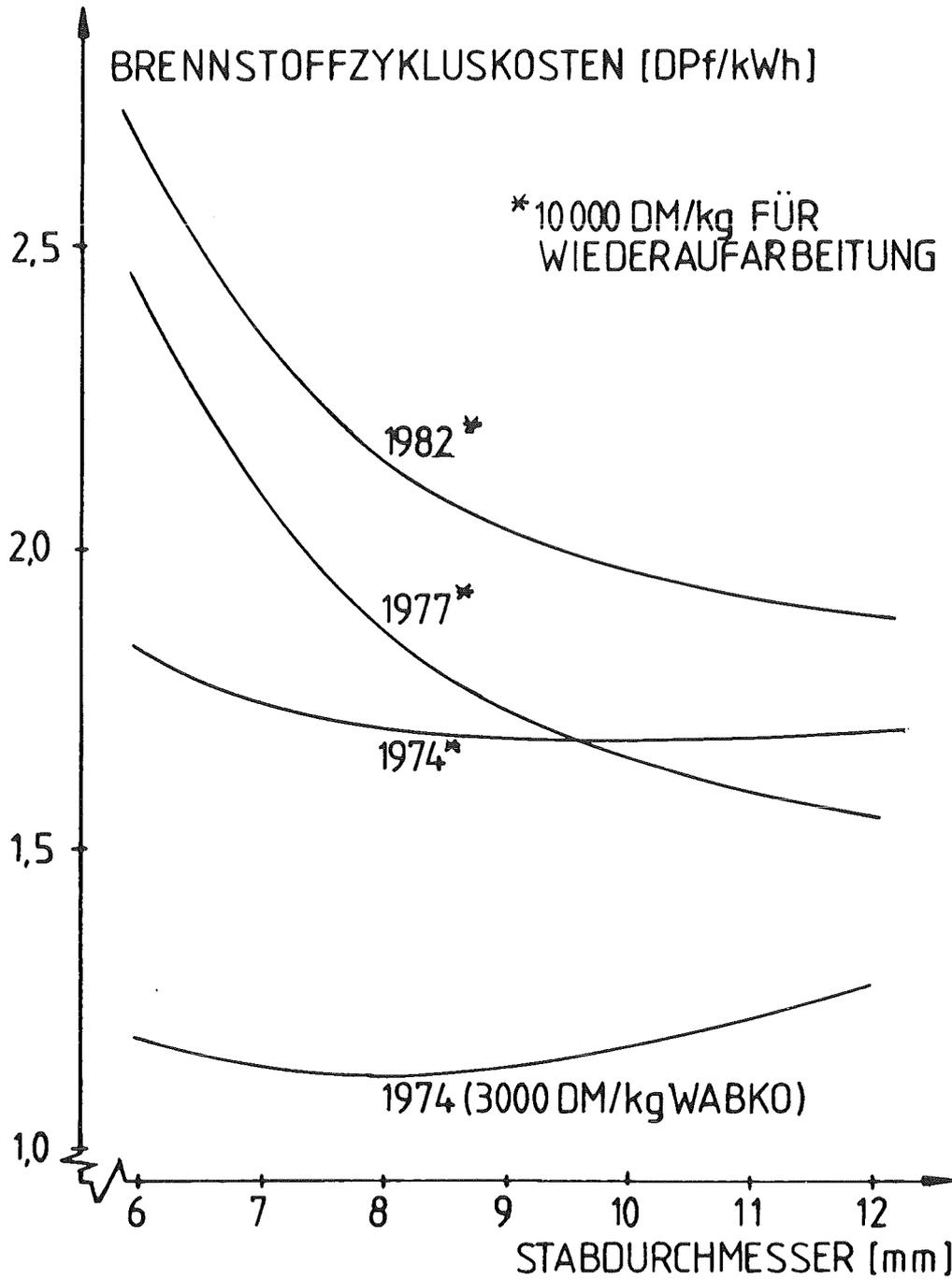
II. BELASTUNGSDATEN

- TEMPERATUREN
- MAXIMALE LÄNGENLEISTUNG
- MAXIMALER ABBRAND BZW. DOSIS

III. STRUKTURMATERIAL

IV. ABSTANDSHALTERUNG

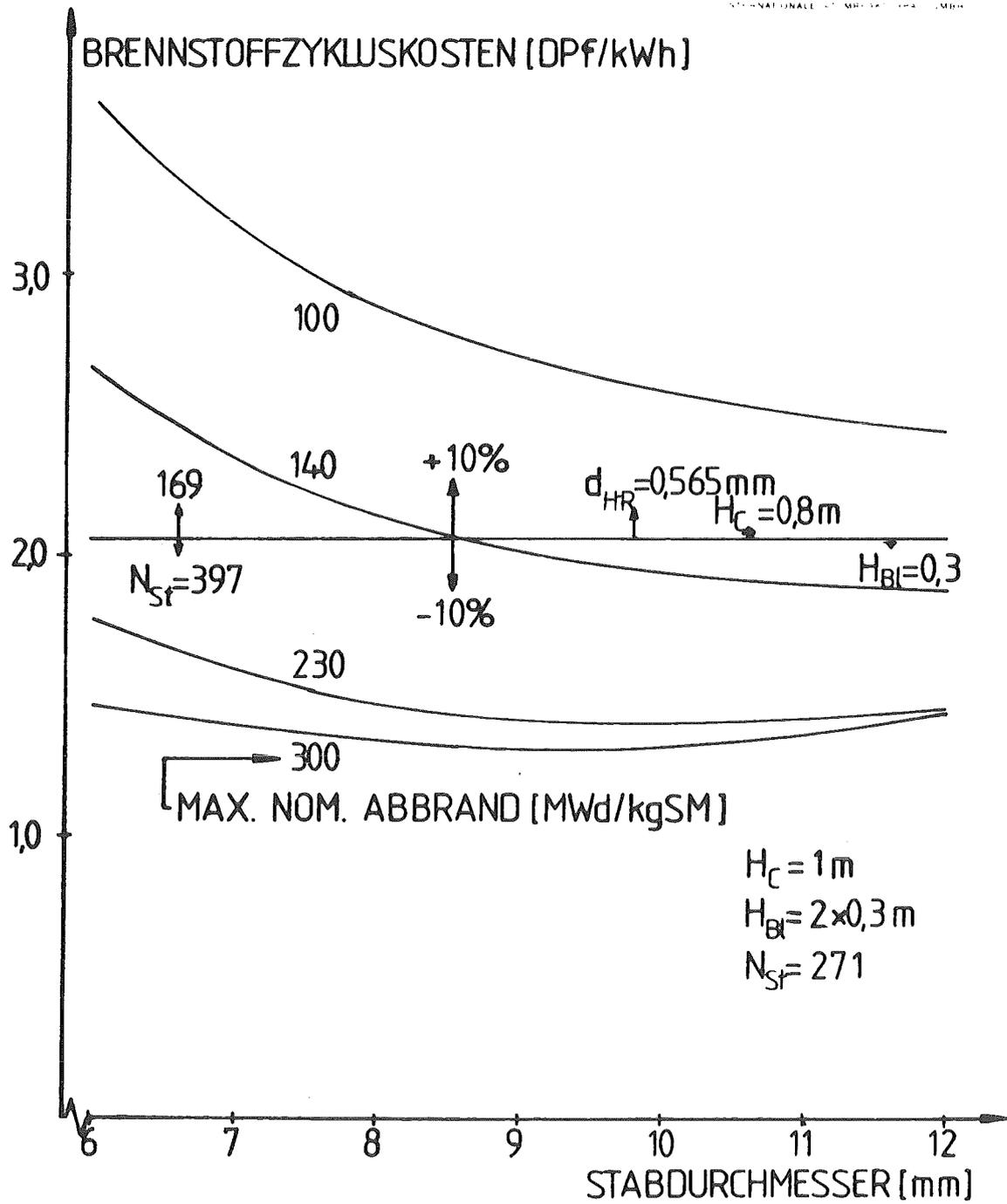
INTERATOM
INTERNATIONALE ATOMREAKTOR-AG



EINFLUSS DER FAB.-KOSTEN AUF DIE ZYKLUSKOSTEN

Abb. 3

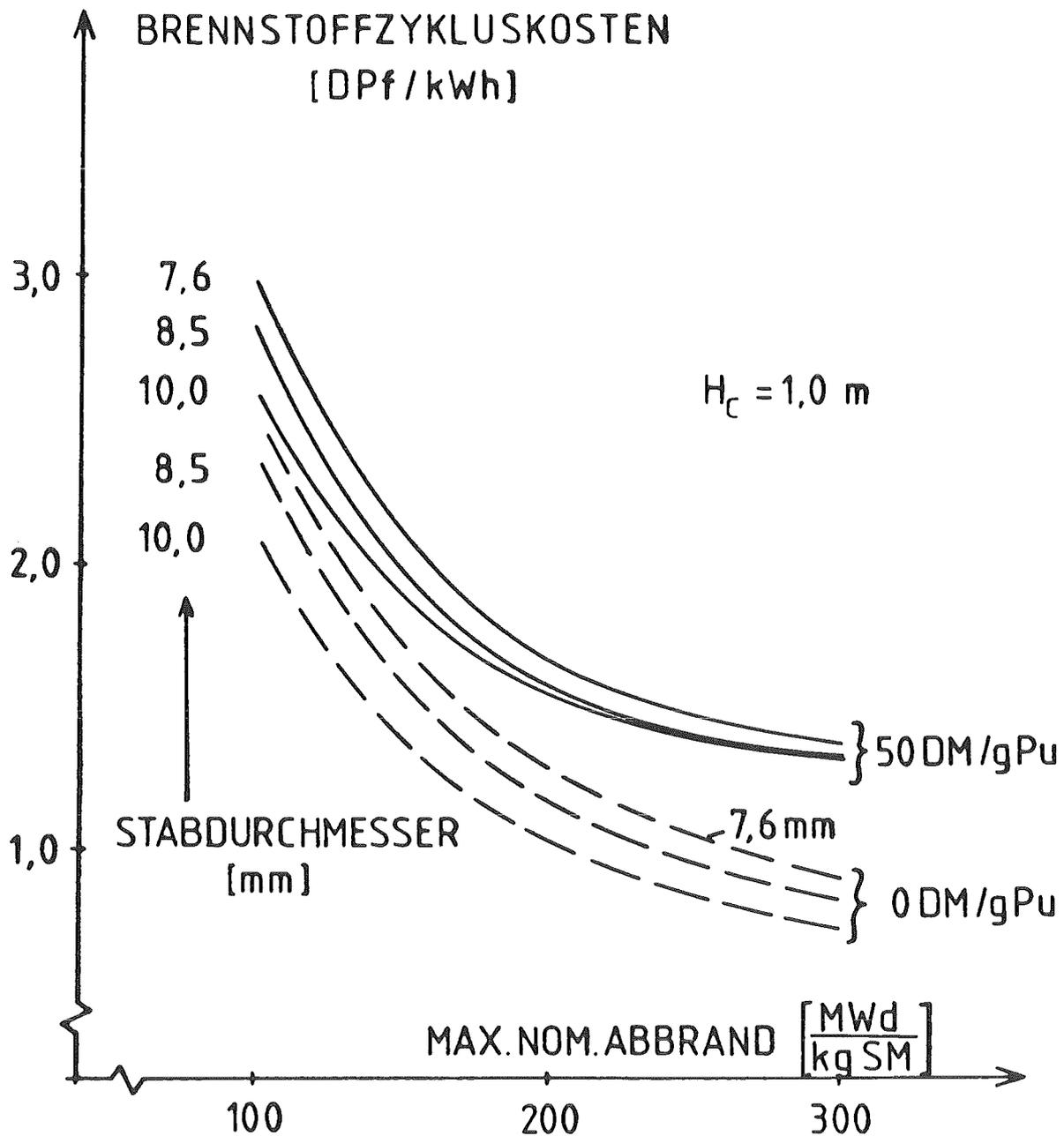
INTERATOM
INTERNATIONAL CENTRE FOR ATOMIC ENERGY



STABDURCHMESSEREINFLUSS AUF ZYKLUSKOSTEN

Abb. 4

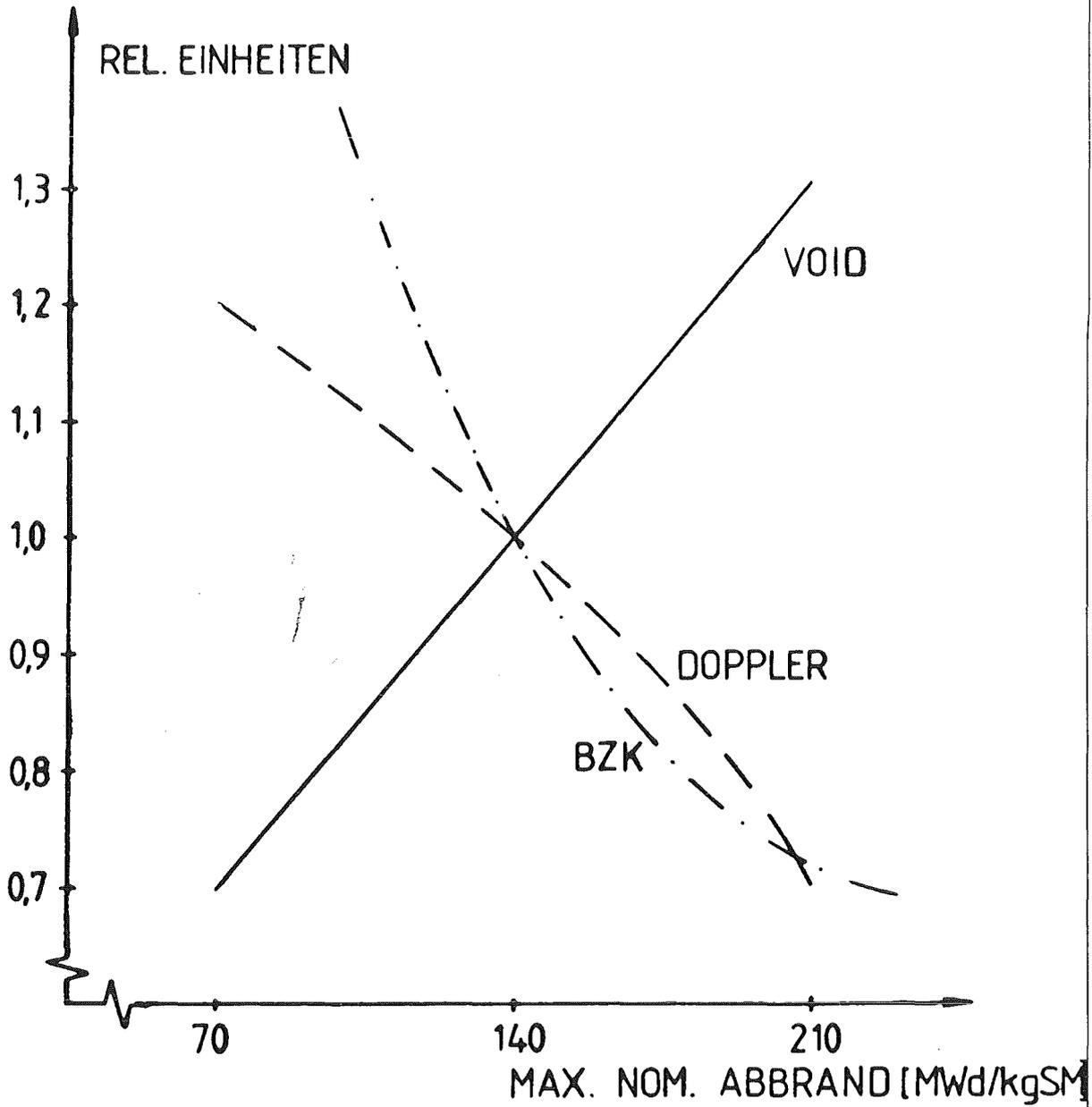
INTERATOM
INTERNATIONAL NUCLEAR REACTOR PHYSICS



ABBRANDEINFLUSS AUF BRENNSTOFFZYKLUSKOSTEN

Abb. 5

INTERATOM



EINFLUSS DES ABBRANDES

Abb. 6

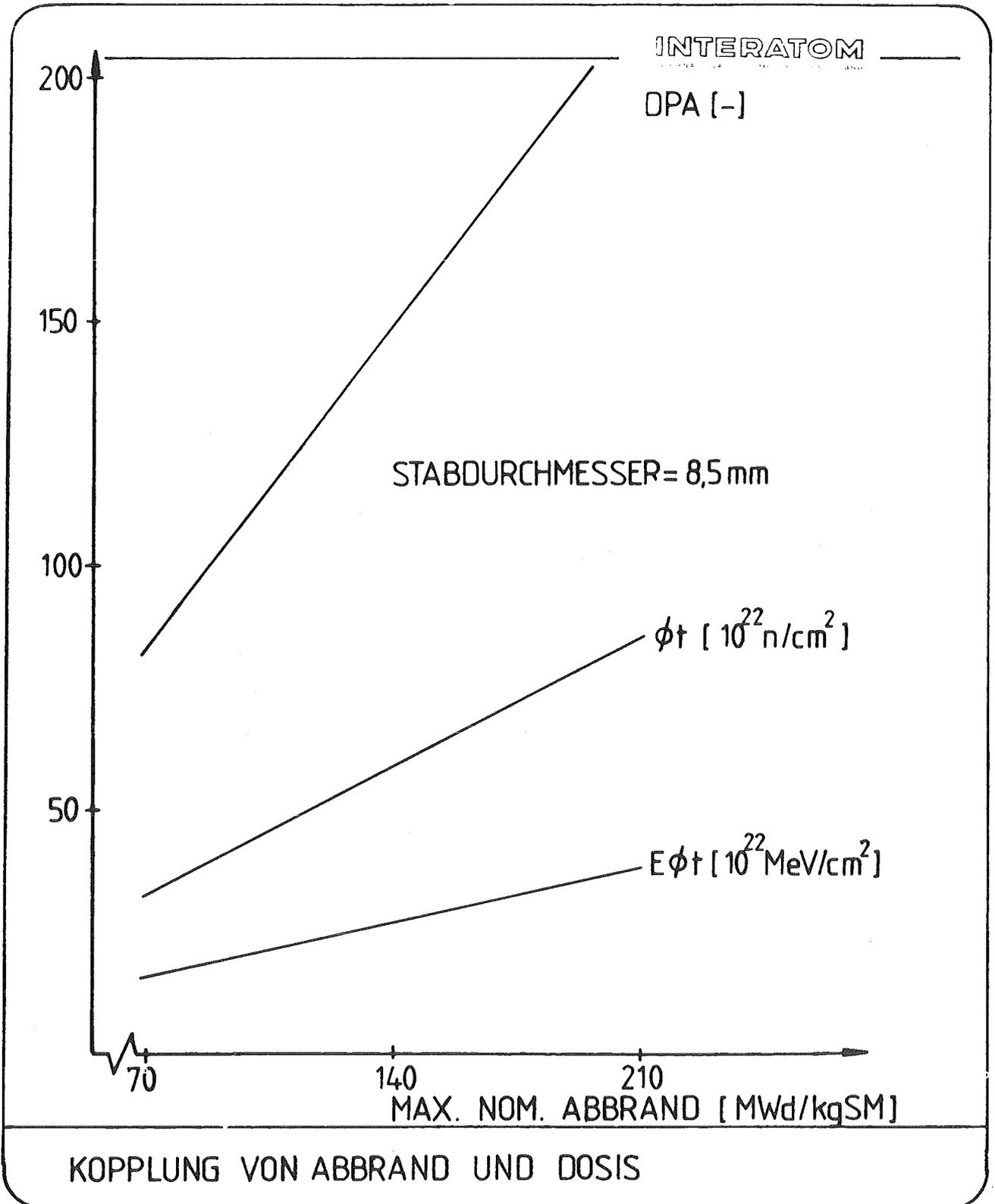
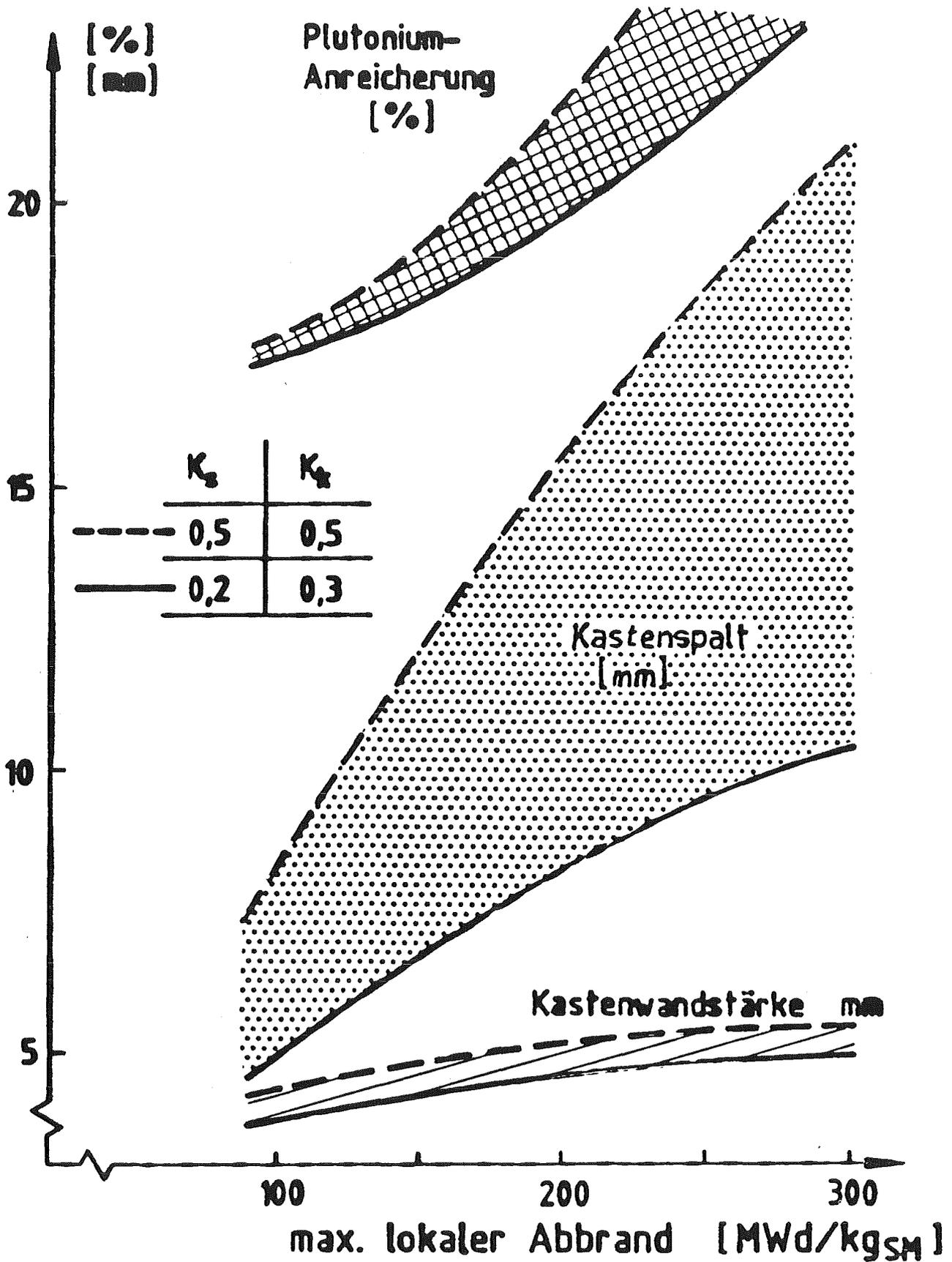


Abb. 7



EINFLUSS DES ABBRANDS AUF KASTENDIMENSIONEN

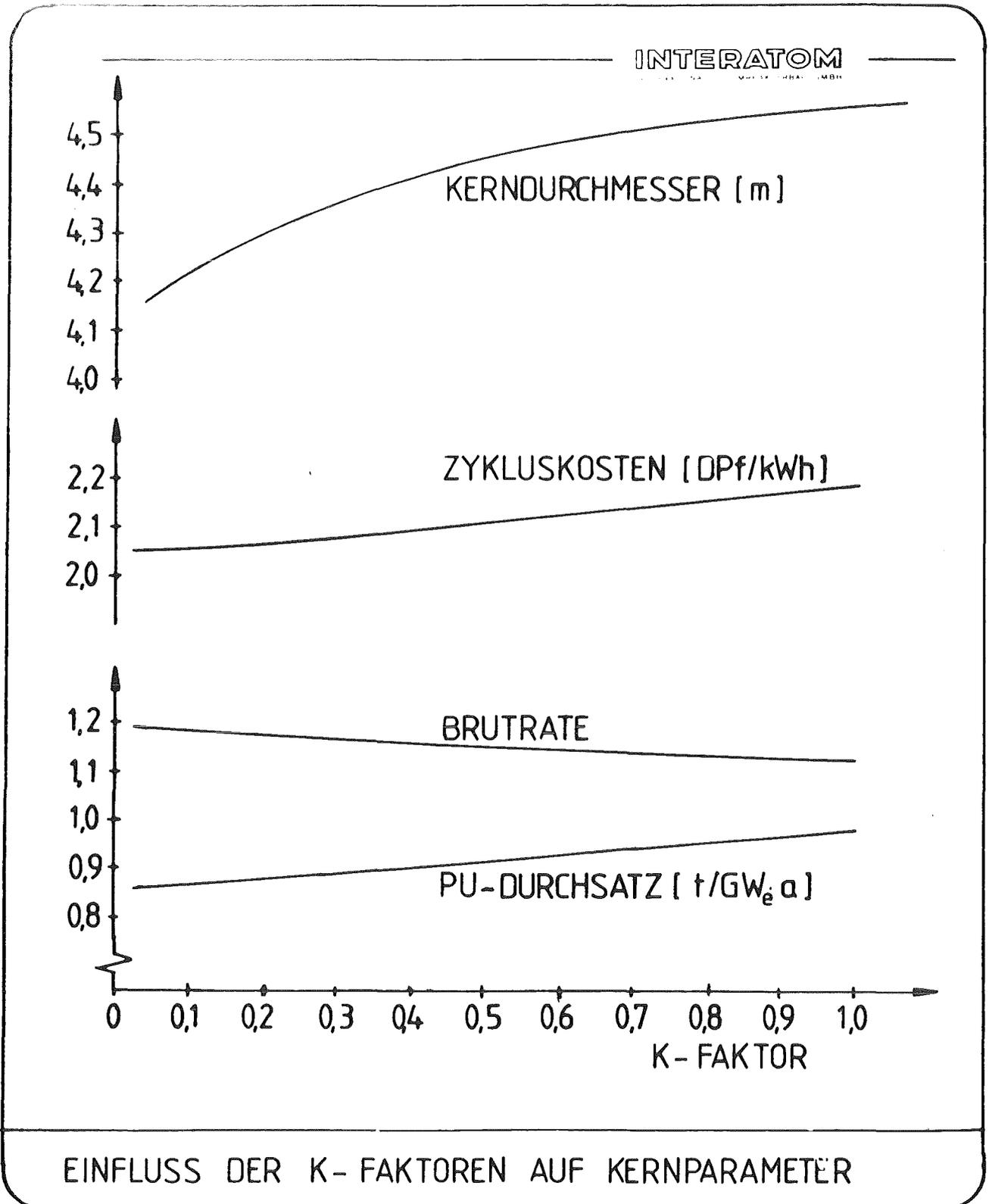
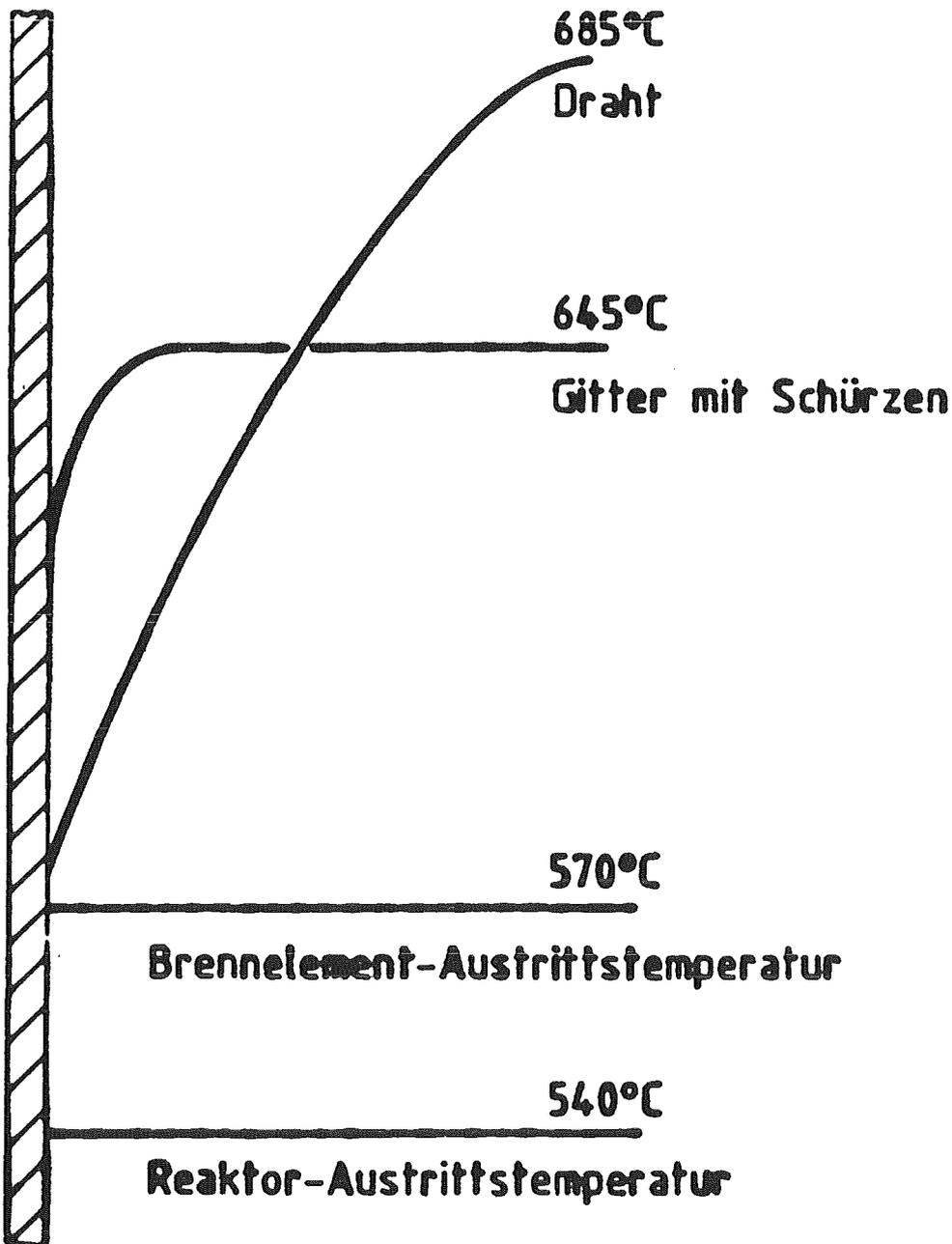
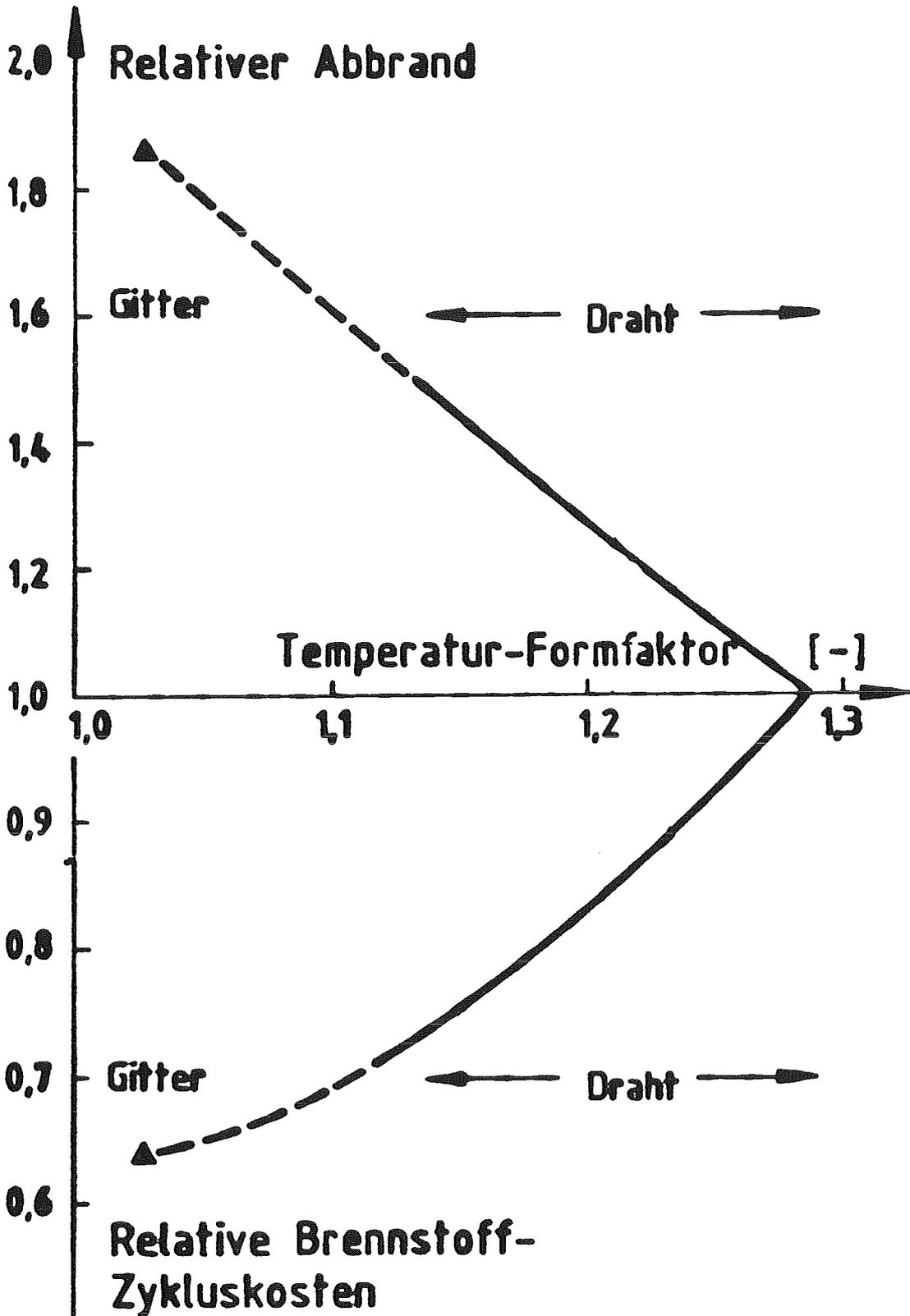


Abb. 9

Extremale Hüllrohrmittentemperatur



TEMPERATURVERLAUF IM BRENNELEMENT



ABBRAND- UND KOSTENPOTENTIAL

ANFORDERUNGEN AN DIE

BRENNELEMENT-ENTWICKLUNG

- STABDURCHMESSER $\geq 8,5$ MM
- MAX. NOM. ABBRAND ≥ 140 MWD/KG SM
- DOSISWERTE $\geq 30 \cdot 10^{23}$ MEV/CM²
- VERSETZUNGEN ≥ 150
- ABSTANDSHALTERUNG GITTER MIT SCHÜRZEN
- MATERIALEIGENSCHAFTEN
 - SCHWELLEN $K \leq 0,2$
 - KRIECHEN $K \leq 0,3$

54.05658.4

PARAMETER	EINHEIT	HOM 1 KERN 1975	BASISKERN 1982
<u>BRENNSTAB</u>			
STABDURCHMESSER	MM	7.6	8.5
HÜLLROHRWANDSTÄRKE	MM	0.5	0.565
SPALTSTOFFLÄNGE	M	0.95	1.0
BRUTSTOFFLÄNGE	M	2 x 0.50	2 x 0.30
<u>BÜNDEL</u>			
P/D	-	1.20	1.20
STABANZAHL	-	271	271
ABSTANDSHALTERUNG	-	GITTER MIT SCHÜRZEN	GITTER MIT SCHÜRZEN
<u>KASTEN</u>			
INNENSCHLÜSSELWEITE	MM	152.0	170.8
WANDSTÄRKE	MM	4.4	4.1
SPALT ZW. KÄSTEN	MM	8.0	6.0

STRUKTURMATERIAL	-	1.4970 KV	1.4970 KV

<u>MAX. NOM. BELASTUNGEN</u>			
LÄNGENLEISTUNG	W/CM	415	450
ABBRAND	MWD/KG	70	140
DOSIS	$10^{22} \frac{\text{MEV}}{\text{CM}^2}$	12	27
VERSETZUNGEN	-	80	150

PARAMETER	EINHEIT	HOM 1 KERN 1975	BASISKERN 1982
REAKTORLEISTUNG	MWTH	3420	3420
ANZAHL BRENNELEMENTE	-	492	414
ANZAHL ABSORBER	-	55	37
ANZAHL BRUTELEMENTE	-	270	120
SPALTZONENDURCHMESSER	M	4,1	4,1

PLUTONIUMINVENTAR	T	7,0	8,4
PLUTONIUM-STROM	T/A	3,5	2,0
SM-INVENTAR	T	35,9	46,6
SM-STROM	T/A	18,0	10,8

STANDZEIT	A	2	4,3
MITTL. ENTLADEABBRAND	MWd/KG	49	85
BRUTRATE	-	1,15	1,12

S N R 2 R E A K T O R D A T E N

Abb. 14

Entwicklungsarbeiten zur Brennelement-Struktur

K. H. Wenk

INTERATOM
Bergisch Gladbach

Einleitung

In Ergänzung zu dem Vortrag "Randbedingungen für die Brennelemententwicklung aus der Sicht der Kernausslegung" von U. Wehmann und gewissermaßen als Rahmen für die folgenden Beiträge zum Thema Brennstab/Brennstoff soll in dem vorliegenden Beitrag eine Übersicht über die Entwicklungsarbeiten zur Brennelement-Struktur als Träger und Umhüllung für die Brennstäbe gegeben werden.

Die Brennelement-Struktur stellt das Bindeglied dar zwischen Reaktortank und den leistungserzeugenden Brennstäben, d.h., daß sowohl die Reaktoranlage als auch die Brennstäbe die Auslegung der BE-Struktur beeinflussen, wie aber auch umgekehrt die Brennelement-Struktur Randbedingungen für Anlage und Brennstäbe vorgibt.

Brennelementaufbau

Die Abb. 1 und 2 zeigen den typischen Aufbau von Schnellbrüterelementen mit der Brennelement-Struktur, bestehend aus einem Kopfteil zur Handhabung des Elementes, aus einem Hüllkasten zur Kühlmittelführung und als Umhüllende für die Brennstäbe und aus einem Fußteil, das das Brennstab-Bündel trägt und das für den Einsatz in die Reaktorgitterplatte ausgebildet ist. Dargestellt ist in Abb. 1 das SNR 300 Mk Ia-Brennelement, wie es z. Z. in der Fertigung ist. Einen vergleichbaren Aufbau hatten die KNK II Testzonenelemente, die im August 1982 erfolgreich einen Abbrand von ca. 100 000 MWd/t_{SM} erreicht hatten.

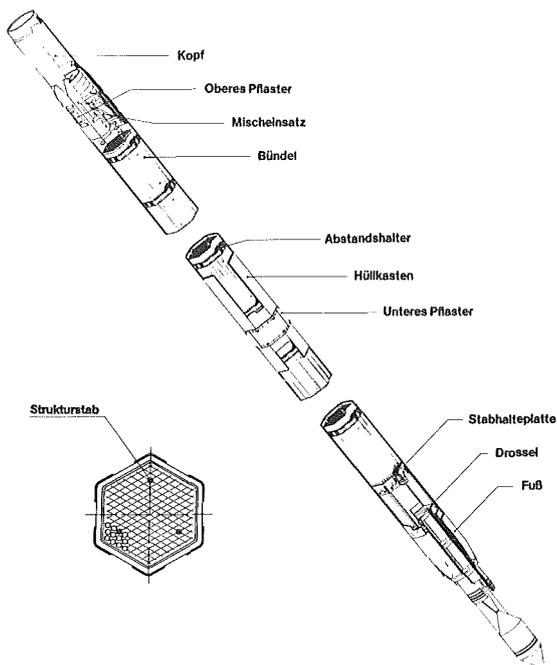


Abb. 1: Brennelementaufbau
SNR 300 Mk Ia

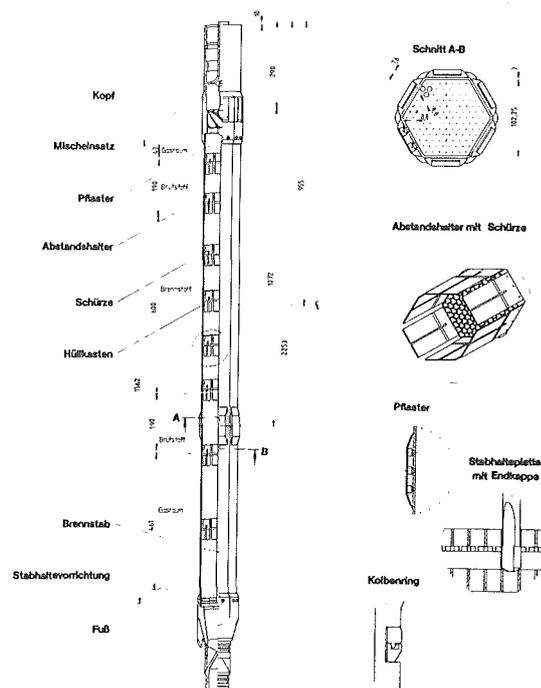


Abb. 2: Brennelementaufbau
KNK II-Nachladung
(Mk II-Konzept)

Abb. 2 zeigt den nächsten Entwicklungsschritt, das sog. Mk II-Konzept am Beispiel der KNK II-Nachladeelemente. Die äußere Elementstruktur weist keinen merklichen Unterschied zum Mk Ia bzw. KNK II-Erstkern auf. Die Änderung liegt im Brennstabbündel, und zwar einmal im Stab- \emptyset , der im Erstkern 6 mm betrug und für Mk II 7,6 mm beträgt, zum andern im Bündelaufbau. Während beim Erstkern die Brennstäbe in einem separaten Strukturskelett aus Gitterabstandshaltern und Strukturstäben gehalten wurden, erfolgt die Stabhalterung der nächsten Elementgeneration durch Abstandshalter, die über Strömungsleitschürzen im Hüllkasten integriert sind, d.h. es entfällt neben den Strukturstäben die separate Elementkomponente "Skelett". Die Fertigung der KNK II-Nachladeelemente mit der Mk II-typischen Baueinheit "Gitterabstandshalter mit Strömungsleitschürze" ist abgeschlossen, und die Elemente stehen inzwischen an der KNK-Anlage für die nächste Beladung zur Verfügung.

Vereinfachung der Brennelement-Struktur

Zur Zeit laufen die Untersuchungen zur Elementgestaltung für den 3. Kern KNK II u.a. mit dem Ziel, die Elementstruktur weiter zu vereinfachen und damit kostengünstiger auszulegen und somit einen Beitrag zu leisten, die Brennstoffzykluskosten zu senken. Denn die gesamte Schnellbrüter-Elemententwicklung muß unbedingt auf Kostenreduktion ausgerichtet sein, um den Schnellen Brüter erfolgreich auf einen Groß- oder Leistungsbrüter hin weiter zu entwickeln. Ansatzpunkte für Kostensenkungen auf der Brennelement-Strukturseite bieten sich z. B. beim Brennelement-Fuß, bei der Bündelbefestigung und beim Hüllkastenpflaster, und zwar sowohl für SNR- und KNK-Nachladungen als auch im Hinblick auf einen Großbrüter SNR 2.

Der Brennelement-Fuß des SNR Mk Ia Elementes besteht beispielsweise aus 17 Einzelteilen und 26 Verbindungselementen. Ferner erfordert die Formgebung rippenförmige Feingußteile im Bereich des unteren und oberen Fußteils. Die Weiterentwicklung benötigt nur noch 12 Teile und 9 Verbindungselemente und hat als Grundform einen einfach zu bearbeitenden Zylinder mit seitlichen Einströmöffnungen (Abb. 3).

Abb. 3:
Vereinfachungen am
Brennelementfuß

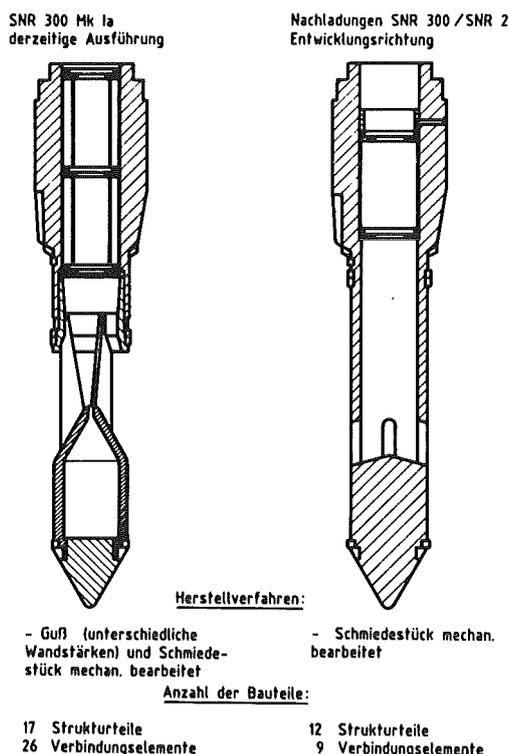


Abb. 4 zeigt Brennstabbevestigungen (Brennstabendkappen) in verschiedenen Entwicklungsstufen:

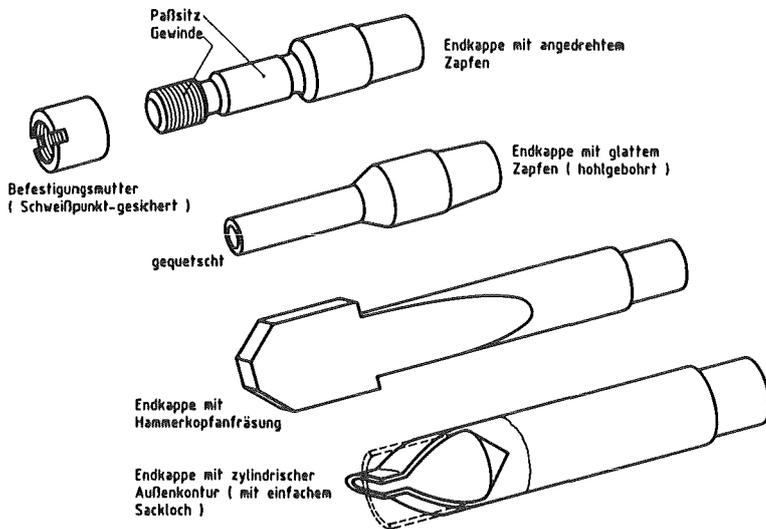


Abb. 4:
Entwicklungen von Brennstabendkappen

- die Endkappe mit Gewinde und Befestigungsmutter wurde im KNK II-Erstkern verwendet,
- die zweite, bereits einfachere Endkappe wird im SNR 300-Erstkern eingesetzt.

Beide Versionen führen zu einer nicht lösbaren Verbindung zwischen Endkappe, d.h. Brennstab und Stabhalteplatte. Die dritte und vierte Endkappenform zeigt den Übergang von einer nicht lösbaren Endkappe zu einer lösbaren Form, wobei die dritte Version in einer ähnlichen Form in den jetzt ausgelieferten KNK II-Nachladeelementen eingesetzt ist.

Die vierte Endkappenform ist wohl die einfachste Version: ein Vollzylinder mit Sackloch, wobei durch einfaches Zusammendrücken des offenen Endes die erforderliche Form hergestellt wird. Diese Form wird von INTERATOM in Abstimmung mit den Brennstabherstellern zur Erprobung im 3. Kern KNK II vorgeschlagen.

Ein weiter zu vereinfachendes Strukturteil ist das Hüllkasten-Pflaster, über das sich die Elemente gegenseitig abstützen. Die Forderung nach minimaler Kastenverformung im Pflasterbereich (d.h. hohe Quersteifigkeit), kein Selbstverschweißen der Pflasteroberflächen, niedriger Reibkoeffizient usw. führten für den Erst-

kern SNR 300 zu einem äußerst komplexen Pflasteraufbau aus versteifenden austenitischen Ringsegmenten und einer Decklage aus Stelliteblech. Alle Teile werden über eine Vielzahl von Elektrostrahlschweißnähten mit dem Hüllkasten verschweißt.

Hier zu Fertigungsvereinfachungen zu kommen, hat sich im Laufe der Serienfertigung als sehr wünschenswert herausgestellt. Es sind daher eine Reihe von Vereinfachungen in der Untersuchung, wie

- aufgeschraubte Pflaster,
- aufgepunktete Pflaster,
- komplette Pflaster/Hüllkastenabschnitte, die in den Hüllkasten eingeschweißt werden,
- direkt aus der Hüllkastenwand herausgedrückte Pflaster.

Die in den vorangehenden Abschnitten beispielhaft aufgezählten Vereinfachungen und Verbesserungen an der Brennelement-Struktur stellen Entwicklungsrichtungen dar und stehen natürlich noch nicht alle in voll erprobter Form zur Verfügung.

Die reproduzierbare technologische Machbarkeit ist dabei ein wichtiges Kriterium bei der Entscheidung, wann die eine oder andere Lösung einsatzreif ist. Die Bewährung muß dann in in-pile Testelementen nachgewiesen werden, wobei die Testmöglichkeit im KNK sehr intensiv genutzt werden sollte.

Steigerung des Elementabbrandes

Entscheidende Schritte zur Senkung der Brennstoffzykluskosten sind ganz sicher die Steigerung des Abbrandes und die weitere Vergrößerung des Brennstab- \emptyset , wobei Reaktorleistungsgrößen von 1300 - 1500 MW_{e1} zugrunde gelegt werden, was dann auch zu einer deutlichen Vergrößerung des Elementquerschnittes führt.

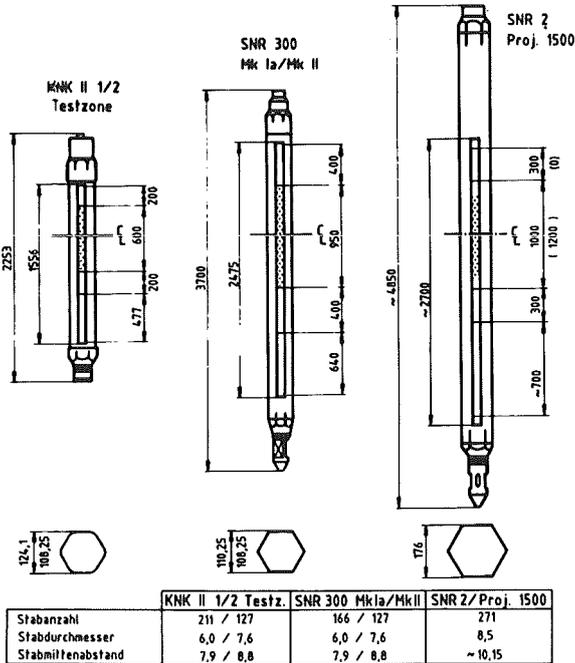


Abb. 5: Entwicklung der DEBENE-Brennelemente

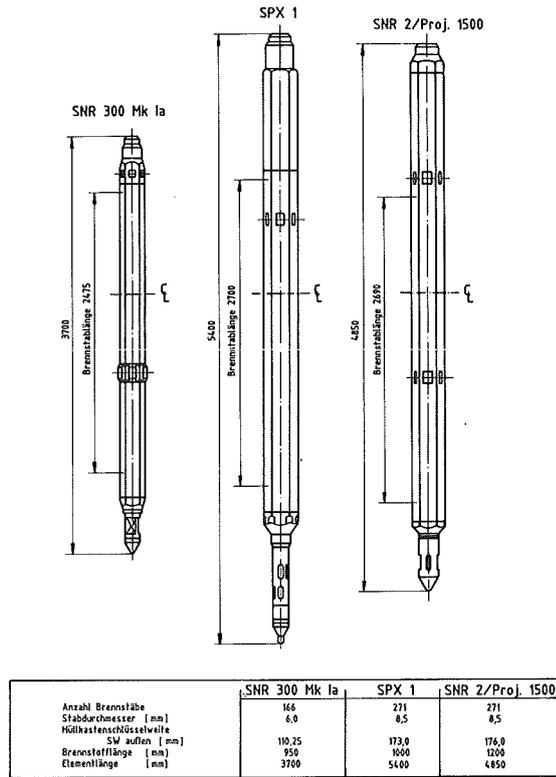


Abb. 6: Deutsch-Französische Brennelemententwicklung

Die Abb. 5 und 6 zeigen die Entwicklungsrichtungen bezüglich der Elementgröße von KNK II über den SNR 300 hin zu einem SNR 2. Stabzahlen pro Element von 127 bis zu 271 und Elementlängen von 2,30 m bis zu 4,90 m charakterisieren die Entwicklung. Außerdem wird in Abb. 6 noch auf die gemeinsame deutsch-französische Elemententwicklung hingewiesen:

SNR 300 Mk Ia mit 6 mm Stab-Ø und 166 Brennstäben/BE ist etwa vergleichbar mit dem in der Abbildung nicht dargestellten Phenixelement mit 6,6 mm Stab-Ø und 217 Stäben/Element. Der in der französischen Linie sich anschließende SPX-1 wird in der deutschen Linie übersprungen, beide Linien sollen dann im SNR 2 / Projekt 1500, in einem Element mit 8,5 mm Stab-Ø und 271 Stäben/Element münden; wobei bemerkenswert ist, daß die französische Linie im Rahmen von Untersuchungen zur Kostenreduktion zu einer merklichen Verkürzung der Elementlänge gelangte.

Zur Verdeutlichung, was der Übergang von einem SNR 300/KNK-Element zu einem SNR 2-Element für die Entwicklung der Brennelement-Struktur bedeutet, sind in Abb. 7 die Abstandshalter für Elemente mit 127 Brennstäben und Elemente mit 271 Brennstäben gegenübergestellt.

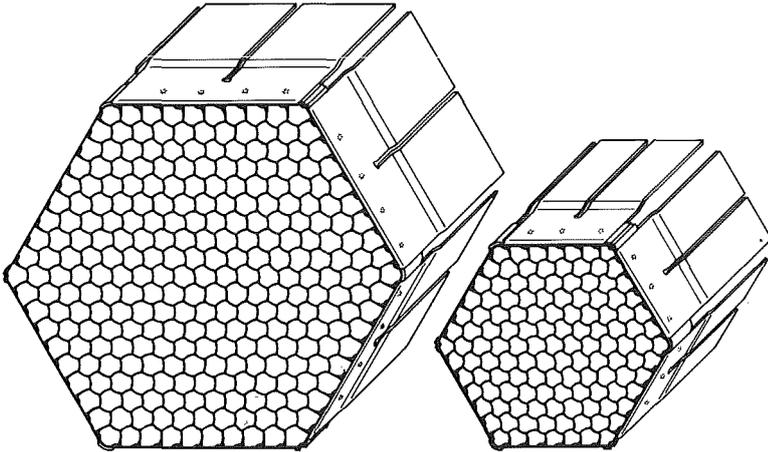


Abb. 7:

Vergleich von Abstandshaltern mit 127 Stabpositionen und mit 271 Stabpositionen.

Hier ist natürlich die Fertigungstechnologie gefordert, um überhaupt ein solch großes Netzwerk toleranzhaltig zu fertigen. Bei der fertigungstechnischen Entwicklung hin zu diesem großen Abstandshalter hat sich bereits jetzt gezeigt, daß das gewählte Fertigungsverfahren, die Funkenerosion, sehr gut geeignet ist, ein solch feines Maschenwerk herzustellen. Außerdem zeichnet sich dieser AH-Typ auch durch die individuelle Gestaltungsmöglichkeit der Randzelligeometrie aus, ein Vorteil, der ja wesentlich zum deutlich günstigeren Temperaturformfaktor des Gitter-Abstandshalter gegenüber der Drahtwendelabstandshalterung beiträgt.

Die weitere technologische Entwicklung und Erprobung dieses Abstandshalters ist ein wichtiger Entwicklungsschwerpunkt im Rahmen der SNR 2 Brennelemententwicklung.

Das hohe Abbrandziel von 140 000 MWd/t und möglichst noch darüber hinaus, stellt nicht nur an den Brennstab, sondern auch an die Brennelement-Struktur erhebliche Anforderungen, bedingt durch das neutroneninduzierte Schwellen und Kriechen des auste-

Auslegungskriterien für die Brennelement-Struktur

Aus den oben erwähnten Wechselwirkungen zwischen Brennstab, Abstandshalter und Hüllkasten resultieren Auslegungskriterien, die sich für die Brennelement-Struktur wie folgt zusammenfassen lassen:

- kein Einklemmen der Brennstäbe in Abstandshalterzellen,
- Spannungen in Abstandshalter und Hüllkasten müssen den Regeln des ASME-Code genügen,
- kein Berühren der Hüllkästen untereinander außerhalb der Pflasterebenen,
- Brennstäbe müssen sich für Reparatur und Wiederaufarbeitung aus der Elementstruktur ziehen lassen.

Brennelementzerlegung für die Wiederaufarbeitung

Das Auslegungskriterium über die leichte Zerlegbarkeit der Elemente für die Wiederaufarbeitung führt zu einem weiteren Entwicklungsschwerpunkt.

Leichte Zerlegbarkeit heißt, den Vorteil einer integrierten Gitterabstandshalterung zu nutzen und alle Stäbe in einem Arbeitsschritt aus der Elementstruktur herauszuziehen. Das setzt aber voraus, daß die durch Schwellen und Kriechen in ihrem mittleren Bereich verdickten Brennstäbe beim Herausziehen sich auch durch die unteren, d.h. kaum durch Neutronenbestrahlung vergrößerten Zellen hindurchziehen lassen.

Für die SNR Mk Ia-Elemente wurde dazu bereits ein Konzept verwirklicht, und zwar haben die Abstandshalter im unteren Elementbereich um 0,1 mm größere Zellkreisdurchmesser, als die Abstandshalter-Normalausführung. Das reicht aus, um das Stab-bündel in einem Schritt aus der Struktur zu ziehen.

Wendet man dieses Konzept auf einen SNR 2 an, so ergeben sich die in Abb. 9 dargestellten Verhältnisse. Wie man sieht, kommt es hierbei nur zu einer leichten Überlappung von ca. 0,05 mm zwischen Stab und AH-Zellen.

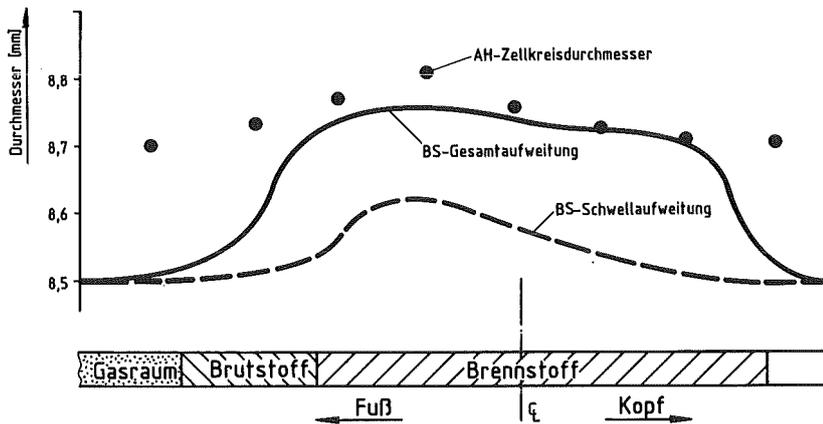


Abb. 9:
SNR 2 Brenn-
stab- und AH-
Zellkreisdurch-
messer EOL für
Abstandshalter
mit Normalzellen

Wie sich Überlappungen zwischen Stab und AH-Zelle auf die Zugkräfte auswirken, die nötig sind, um Stäbe aus den AH-Zellen herauszuziehen, wurde in Versuchsreihen an Mk Ia- und Mk II-Geometrien untersucht. Überträgt man die Ergebnisse auf SNR 2-Verhältnisse, so erhält man für einen Abstandshalter mit Normalzellen die in Abb. 10 angegebene Abhängigkeit. Hieraus würde sich z. B. bei einer Überlappung Brennstab- \emptyset /AH-Zelle von 0,05 mm eine Zugkraft von etwa 6000/7000 N ergeben, die auf den Abstandshalter wirkt, wenn alle 271 Stäbe beim Ziehen dieses Übermaß aufweisen.

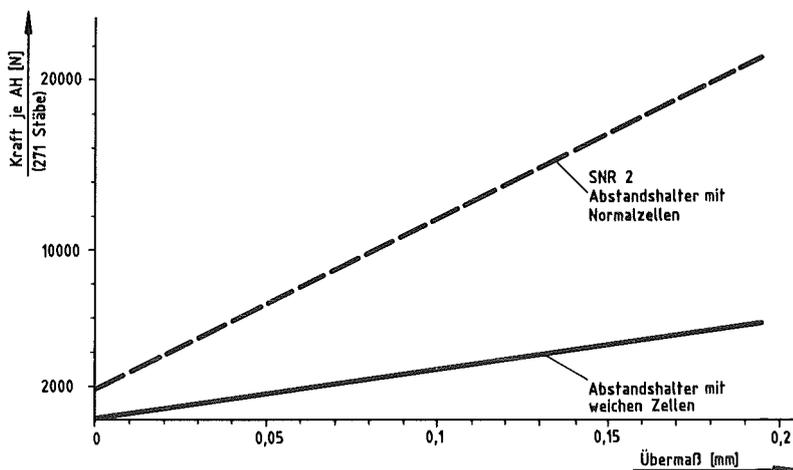


Abb. 10:
SNR 2 Zugkräfte
pro AH in Ab-
hängigkeit vom
Brennstabübermaß
(Normalzellen
und weiche Zellen)

Wie man an dieser Darstellung aber auch erkennt, wächst die Zugkraft bei größerer Überlappung stark an, d.h. wenn man z. B. mit ungünstigeren Materialkorrelationen rechnen muß, so müßte das Ausgangsspiel zwischen Stab und Abstandshalter-Zelle vergrößert werden, was natürlich auch nicht beliebig geht.

Es wird deshalb eine zweite Möglichkeit verfolgt, zu hohe Zugkräfte beim Elementzerlegen zu vermeiden. Dies ist möglich mit einem leicht modifizierten Abstandshalter, einem sog. weichen Abstandshalter. Hierbei gibt die Abstandshalter-Zelle nach beim Stabziehen, d.h., die Abstandshalter-Zelle paßt sich der Stabaufweitung an. Erste Versuche ergaben wesentlich niedrigere Zugkräfte. Man erkennt den erheblichen Unterschied zwischen dem Normal-Abstandshalter und dem weichen Abstandshalter in Abb. 10.

Man erreicht dieses Verhalten durch Verlegen der Abstandshalter-Anlagenrippen von der Mitte an den oberen Abstandshalter-Rand und durch Einschlitzen dieses Noppenbereiches.

Nicht nur bei der Abstandshalterauslegung, auch bei der Auslegung der Brennstabbefestigung muß das Zerlegen mit berücksichtigt werden, denn das Ziehen des kompletten Stabbündels aus der Elementstruktur erfolgt über die untere Stabhalterung. Abb. 11 zeigt die Entwicklung der Stabhalterung vom SNR 300 zum SNR 2:

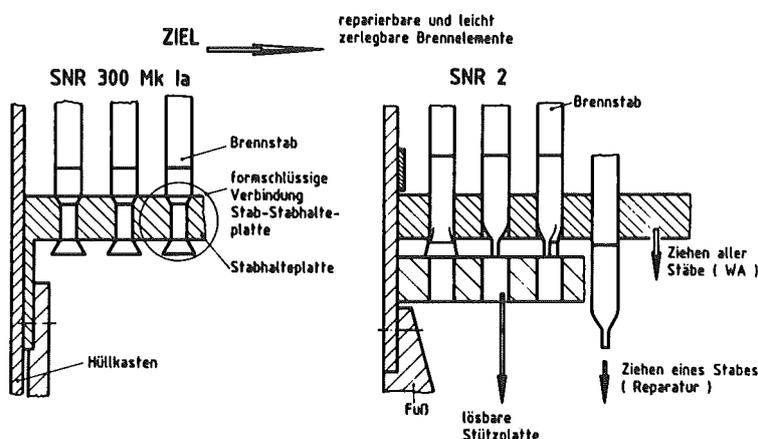


Abb. 11:
Entwicklung von Stabhalterungskonzepten

Beim SNR 300 Erstkern sind alle Stäbe formschlüssig mit einer Stabhalteplatte verbunden und werden an der Stabhalteplatte aus dem Hüllkasten gezogen.

In der Weiterentwicklung stecken die Stäbe lose in einer einfachen Fußplatte und werden durch eine lösbare Stützplatte gehalten.

Dies gibt neben einer Reihe von Vorteilen in der Fertigung und in der Elementassemblierung die Möglichkeit, die Stäbe auch einzeln aus dem Bündel zu ziehen. Hierdurch wird eine Möglichkeit geschaffen, im Rahmen der Weiterentwicklung auch an eine Reparatur, d.h. Austausch von defekten Stäben, zu denken, denn die Gitterabstandshalterung ermöglicht ja im Gegensatz zur Drahtwendelung den Zugriff zum Einzelstab. Eine Möglichkeit, wie sie bei Brennelementen für Leichtwasserreaktoren längst zur Praxis gehört.

Insbesondere beim Übergang zu Brüterelementen mit einer so hohen Stabzahl wie beim SNR 2 sollte das Ziel "Elementreparatur" nicht vergessen werden.

Für eine Reparatur sind natürlich noch eine Reihe zusätzlicher Problemkreise zu lösen: z. B. ist die Identifizierung des Defektstabes eine entscheidende Voraussetzung. Auf diesem Gebiet sollten die im Kernforschungszentrum Karlsruhe laufenden Entwicklungen intensiv weiterverfolgt und erprobt werden.

Zusammenfassung der Entwicklungsschwerpunkte:

Abschließend sind noch einmal die Entwicklungsschwerpunkte für die Brennelement-Struktur zusammengefaßt, die alle zum Ziel haben müssen, die Brennstoffzykluskosten zu senken, sowohl über Senkung der Fertigungskosten als auch über den Weg der Abbrand-erhöhung:

ENTWICKLUNGSSCHWERPUNKTE	ZIELRICHTUNG
, FERTIGUNGSTECHNISCH EINFACHE GESTALTUNG DER BRENNELEMENTKOMPONENTEN	KOSTENSENKUNG DER FERTIGUNG
, OPTIMIERUNG DES FUNKENERODIERTEN ABSTANDSHALTERS MIT STRÖMUNGSLEITSCHÜRZEN	ERHÖHUNG DES ABBRANDES
, VEREINFACHTE BÜNDELGESTALTUNG FÜR LEICHTE BRENNELEMENTZERLEGUNG	SENKUNG DER WIEDERAUFARBEITUNGSKOSTEN BEI HOHEM ABBRAND
, GESTALTUNG DES BRENNELEMENTAUFBAUS IM HINBLICK AUF EINE SPÄTERE ELEMENTREPARATUR	KOSTENEINSPARUNG, DEFEKTSTÄBE SOLLEN NICHT ZUM ERSATZ GANZER ELEMENTE FÜHREN

Brennstoffherstellung-Typenvergleich

H. Wedemeyer

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Material- und Festkörperforschung III

G. Mühling

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Projekt Schneller Brüter/Projektleitung

1. Einleitung

Die Entwicklungsarbeiten zur Herstellung des Brennstoffs für das Core des SNR-300 (UO_2/PuO_2 -Mischoxid) wurden in den Jahren 1964/65 begonnen. Ausgehend von den vorhandenen Erfahrungen der Kernbrennstoffindustrie auf dem LWR-Sektor wurden die Arbeiten schwerpunktmäßig auf die Entwicklung eines Tablettenbrennstoffs ausgerichtet und entsprechende Fertigungsverfahren unter Berücksichtigung der spezifischen Plutoniumbedingungen entwickelt. Die für die Entwicklung eines tablettenförmigen Brennstoffes wichtigen Randbedingungen wie die Auswahl möglichst einfacher Verfahrensschritte und die Verwendung eines hochsinterfähigen UO_2 -Pulvers führen zu dem Mischoxidbrennstoff des Typs Mark Ia, hergestellt durch mechanisches Mischen von UO_2 - und PuO_2 -Pulvern und anschließender Sinterung. Dieser gleichermaßen im Labor und Industriemaßstab entwickelte Mark Ia-Brennstoff wurde in den Jahren 1970-1975 in Bestrahlungsexperimenten erfolgreich erprobt. Nachdem die Bestrahlungsnachuntersuchungen im Hinblick auf die Wiederaufbereitung des bestrahlten Brennstoffs eine unbefriedigende Löslichkeit des bestrahlten Mischoxids in siedender Salpetersäure aufzeigten, ergab sich die Notwendigkeit, das bisherige Herstellungskonzept zu ändern und einen schon im unbestrahlten Zustand löslichen Brennstoff zu fertigen (Mischoxidbrennstoff Typ Mark II). Diese Forderung konnte sowohl durch die Entwicklung eines Granulierbrennstoffs (OKOM-Variante) wie durch die Entwicklung eines kopräzipitierten $(U, Pu)O_2$ -Ausgangsmaterials (AUPuC-Variante) erfüllt werden.

2. UO₂/PuO₂-Brennstoff, Typ Mark Ia

Bei der Entwicklung des UO₂/PuO₂-Brennstoffs (Typ Mark Ia) war für die Herstellung die Forderung nach Brennstofftabletten mit niederer Dichte und - im Hinblick auf den Doppler-Effekt - gleichmäßiger Plutoniumverteilung von besonderer Bedeutung. Um ein wirtschaftliches und einfaches Herstellungsverfahren, welches sich insbesondere durch eine geringe Anzahl von Verfahrensschritten auszeichnet (siehe Abb. 1), zu entwickeln, wurde von folgenden Voraussetzungen ausgegangen:

1. als eine Ausgangskomponente ist das kommerziell vorhandene, rieselfähige und hochoxydierfähige UO₂(exAUC)-Pulver zu verwenden und
2. die Mischoxidtabletten sollten durch rein mechanisches Mischen der UO₂- und PuO₂ Ausgangspulver und den üblichen Preß- und Sinterverfahrensschritten spezifikationsgerecht hergestellt werden.

Hierbei erweist sich die Rieselfähigkeit des Ausgangspulvers für die pulvermetallurgische Handhabung als besonders vorteilhaft. Da die mechanisch gemischten UO₂- und PuO₂-Pulver ihre Rieselfähigkeit behalten, entfällt die Notwendigkeit eines Granulierschrittes und ein bindemittelfreies Pressen der Pulver ist möglich. Nachteilig ist die hohe Sinterfähigkeit des Ausgangspulvers. Um "nachsinterstabile" Brennstofftabletten zu erhalten, muß entweder durch Kalzinieren des Ausgangspulvers die hohe Sinteraktivität definiert reduziert werden, oder durch Zumischen von porenbildenden Substanzen während des reduzierenden Sinterns gezielt Porosität erzeugt werden. In der Abb. 2 sind das keramographische Schlibbild und die Autoradiographie einer Mark Ia-Brennstofftablette wiedergegeben. Bei der Autoradiographie (untere Aufnahme) treten deutlich die diskreten UO₂- und PuO₂-Zonen hervor, ein Zeichen dafür, daß bei diesem Brennstofftyp nahezu keine Mischkristallbildung der eingesetzten Oxide stattfindet. Die geforderte Homogenität der Plutoniumverteilung wird jedoch entsprechend der vorgegebenen Spezifikation eingehalten.

Nach diesem Herstellungskonzept sind eine große Anzahl von Bestrahlungsexperimenten gefertigt und für Parameterstudien in den Reaktoren FR2 und BR2 bestrahlt worden. Die Mark Ia-Bündelbestrahlungen (siehe Abb. 3) in den Reaktoren BR2, DFR und Rapsodie sind grundlegend für die Herstellung des KNK II/1-Cores und für das Genehmigungsverfahren des ersten SNR-300 Cores gewesen.

Die Bestätigung dieses Konzeptes ist durch das Bestrahlungsverhalten des KNK II/1-Cores, bei welchem ca. 800 Brennstäbe einen Abbrand von 100000 MWd/t bei einer Stablängenleistung von 400-450 W/cm erreicht haben, erfolgreich demonstriert worden.

Für das erste Core des SNR-300 sind gegenwärtig nach diesem Herstellungsverfahren etwa 70% der Brennstäbe gefertigt.

3. (U, Pu)O₂-Brennstoff, Typ Mark II

Die Nachbestrahlungsuntersuchungen des UO₂/PuO₂-Brennstoffs vom Typ Mark Ia haben eine mangelnde Löslichkeit in reiner Salpetersäure unter LWR-Bedingungen ergeben. Die Umstrukturierung des Brennstoffs unter Bestrahlung reicht zur Mischkristallbildung nicht aus, sodaß unter den Bedingungen der Wiederaufbereitung ein nicht unbeträchtlicher Rückstand nach der Auflösung des Brennstoffs bleibt. Hieraus hat sich die Notwendigkeit ergeben, einen schon im unbestrahlten Zustand vollständig löslichen (U,Pu)O₂-Mischkristallbrennstoff zu entwickeln, der zudem auch eine höhere Dichte (ca.94% TD) aufweist. Die Fertigung eines solchen Mischkristallbrennstoffs (Typ Mark II) ist nach zwei, im Grundsatz bekannten Verfahren möglich, nämlich 1. durch Verwendung eines kopräzipitierten Ausgangspulvers und 2. durch intensives Mischmahlen der Ausgangskomponenten (UO₂- und PuO₂-Pulver), um durch die Zerkleinerung der Ausgangspartikel eine bessere Interdiffusion der Komponenten während des Sintervorgangs und damit eine bessere Mischkristallbildung zu erreichen. Bei der Auswahl des Verfahrens ist zunächst dem Mischmahlprozess der Vorzug gegeben worden, da dieser dem bereits entwickelten Verfahren für den Mark Ia-Brennstoff leicht angepaßt werden kann und zum anderen die Entwicklung eines neuen, naßchemischen Verfahrens zur Pulverherstellung deutlich mehr Aufwand erfordert.

3.1 (U, Pu)O₂-Brennstoff, OKOM-Variante

Um die notwendige hohe Löslichkeit für den Mischoxidbrennstoff zu erreichen ist als Alternative zum Mischbrennstoff ein "Optimalisiertes KOMahlverfahren" (OKOM) entwickelt worden (1). Dieses Verfahren besteht im wesentlichen aus einer Erweiterung des Mark Ia-Herstellungskonzeptes, wobei die Ausgangspulver einer intensiven Mischmahlung unterworfen werden und das Mahlgut anschließend durch Granulieren in ein rieselfähiges Pulver überführt wird (siehe Abb. 4).

Diese Vorbehandlung des Pulvers ermöglicht neben der Mischkristallbildung im Reduktionsinterprozess auch die Herstellung von Brennstofftabletten hoher Dichte, wie es für den Mark II Brennstoff angestrebt wird. Die Einstellung einer bestimmten, spezifizierten Dichte kann hierbei durch Zugabe eines geeigneten Porenbildners ebenfalls erreicht. In der Abbildung 5 sind das Schliffbild und die Autoradiographie einer OKOM-Brennstofftablette wiedergegeben. Insbesondere bei der Autographie fällt das Fehlen von diskreten "Plutoniuminseln" auf, ein Zeichen für den hohen Mischkristallanteil im Brennstoff, der durch das OKOM-Verfahren erreicht wird. Dementsprechend ist bei diesem Mark II-Brennstofftyp auch die Löslichkeit in siedender Salpetersäure mit 99-99,95% der eingesetzten Plutoniummenge sehr hoch. Zur Erprobung des Bestrahlungsverhaltens sind eine Reihe von Brennstäben hergestellt und erfolgreich bestrahlt worden (siehe Tabelle 1). Nach diesem Verfahren wurde bereits das Zweitcore des KNK II gefertigt.

3.2 (U, Pu)O₂-Brennstoff, AUPuC-Variante

Neben der OKOM-Variante ist für den Mark II-Brennstoff mit der Entwicklung eines kopräzipitierten Ausgangsmaterials eine zweite Verfahrensvariante entwickelt worden (2). Die Grundlage dieses Verfahrens besteht in der Fällung eines Ammonium-Uranyl-Plutonyl-Carbonats (AUPuC) als Mischkristall, welches durch Kalzination unmittelbar in (U,Pu)O₂-(Mischkristall)pulver überführt werden kann. Dieses Brennstoffpulver hat weitgehend ähnliche Eigenschaften wie das UO₂-Ausgangsmaterial: es ist sinterfähig und rieselfähig. Mit der Verwendung dieses Pulvers kann im weiteren Herstellungsverfahren auf Mahl- und Granulierschritte verzichtet werden, wodurch das sog. AUPuC-Verfahren dem Herstellungsverfahren für das Mark Ia-Konzept sehr ähnlich wird (siehe Abb. 6). Auch hier sind beim Reduktionssintern hohe Tablettendichten erreichbar, durch eine Zugabe von Porenbildnern wiederum können gezielt Dichtebereiche eingestellt werden. Da das Brennstoffpulver bereits als Mischkristallverbindung - (U,Pu)O₂ - vorliegt, wird bei dem AUPuC-Verfahren eine vollständige Löslichkeit des bestrahlten Materials in siedender Salpetersäure erreicht (> 99,9% der eingesetzten Plutoniummenge). Ein weiterer Vorteil dieses Verfahrens ist darin zu sehen, daß im gesamten Prozeßverlauf nur bereits vermischte Uran-Plutonium-Verbindungen und keine reinen Plutoniumverbindungen gehandhabt werden, was insbesondere den Empfehlungen der "International Fuel Cycle Evaluation"Konferenz (INFCE) entgegenkommt. In Abb. 7 sind das Schliffbild und die Autoradiographie einer AUPuC-

Brennstofftablette wiedergegeben. Das gegenüber der OKOM-Variante noch homogenere Erscheinungsbild der Autoradiographie deutet auf eine besonders enge Mischkristallbandbreite hin, welches bei höheren Plutoniumanreicherungen im Hinblick auf die Wiederaufbereitung von Interesse sein könnte. Bisher liegen für den AUPuC-Brennstoff nur einige Bestrahlungsergebnisse vor. Im Rahmen der Versuchsgruppe VG 7/II sind einzelne Prüflinge erfolgreich bestrahlt worden. Für das Zweitcore des KNK II und auch für die SAPHIR-Bestrahlung im PHENIX-Reaktor sind einige Brennstäbe gefertigt worden.

Zusammenfassung

Mit der erfolgreichen KNK II/1 Bestrahlung des Mischoxidbrennstoffs für das Mark Ia-Konzept (Abbrand ca. $100000\text{Mwd}/t_M$ bei 400-450 W/cm Stablängenleistung) kann die Entwicklung dieses Brennstofftyps als abgeschlossen gelten. Die serienmäßige Produktion des Tablettenbrennstoffs niedriger Dichte für das erste Core des SNR 300 verläuft reproduzierbar und spezifikationsgerecht.

Die Weiterentwicklung des Mark Ia-Brennstoffs zu einem Mischoxidbrennstoff hoher Löslichkeit (hohen Mischkristallanteils) und hoher Dichte sowie äußerst geringer Stöchiometriedrift ist mit der Entwicklung der beiden Varianten OKOM und AUPuC für den Brennstoff des Mark II-Konzepts gelungen (siehe Tabelle 2 und Abb. 8). Die bisherigen Bestrahlungsversuche sind erfolgreich verlaufen, sodaß für das Zweitcore des KNK II der OKOM-Brennstoff eingesetzt wird.

Die bisher hergestellten Brennstoffmengen der OKOM- und insbesondere der AUPuC-Variante sind jedoch noch zu gering, um belastbare Aussagen über die Reproduzierbarkeit der Fertigung treffen zu können. Noch treten durch die nicht kontinuierliche Fertigung Qualitätsschwankungen auf, die einen hohen Aufwand an Qualitätskontrollen erfordern. Die Optimierung einzelner Verfahrensschritte, wie die Verwendung von Mehrfachpreßwerkzeugen und das Maßintern der Tabletten, um das Schleifen der Tabletten zu vermeiden, wird aus Gründen der Wirtschaftlichkeit weiter verfolgt.

Literaturhinweise

- (1) P. Funke, D. Hanus, R. Löb, W. Königs:
EUR. Patentanmeldung O 036 214 (18.03.1981)

- (2) W.-G. Druckenbrodt, S. Baumann, R. Krause, W. Stoll:
Deutsche Auslegeschrift Nr. 2811959 (18.03.1978)

Anmerkung: Wir danken der Fa. ALKEM GmbH für das zur Verfügung gestellte
Bildmaterial

Tabelle 1

Hergestellte Brennstoffmengen und Brennstäbe nach dem OKOM-Verfahren

EXPERIMENT	BRENNSTOFFMENGE	BRENNSTÄBE (Anzahl)	BESTRAHLUNG Im Reaktor
VG 7/I	468 g	18	FR2
VG 7/II	364 g	14	FR2
DUELL II	742 g	15+ 1	HFR/Petten
KAKADU	1387 g	6+ 1	HFR/Petten
PHENIX	37,1 kg	127+ 8	PHENIX
SAPHIR	49,5 kg	169+ 11	PHENIX
KNK II/2	217,2 kg	1131	KNK II
KNK II/2- RINGELEMENT	36,4 kg	210	KNK II

Tabelle 2

Vergleichsdaten aus der Fertigung des Mischoxidbrennstoffs
für das Mark Ia-Konzept und das Mark II-Konzept

MATERIALEIGENSCHAFT		MARK Ia- BRENNSTOFF	Mark II- BRENNSTOFF	
			OKOM	AUPuC
Tabletten- dichte (g/cm ³)	Ohne Porenbildner	10,0 - 10,2	10,4 - 10,6	10,6 - 10,8
	mit Porenbildner Produktion für:	9,55- 9,75 SNR-300	10,2 - 10,5 PHENIX	10,3 - 10,5 PHENIX
Stöchiometriedrift (Wochendrift) O/Me		C ₁ -Anreicherung: 0,001-0,006 C ₂ -Anreicherung: 0,03 - 0,05	<0,001-0,002	<0,001
Löslichkeit C%Pu(tot)		70 - 80	99,1 - 99,95	>99,9

Abb. 1: Fliess-Schema
SBR-Tabletten-Herstellung
Mk Ia-Standard-Verfahren

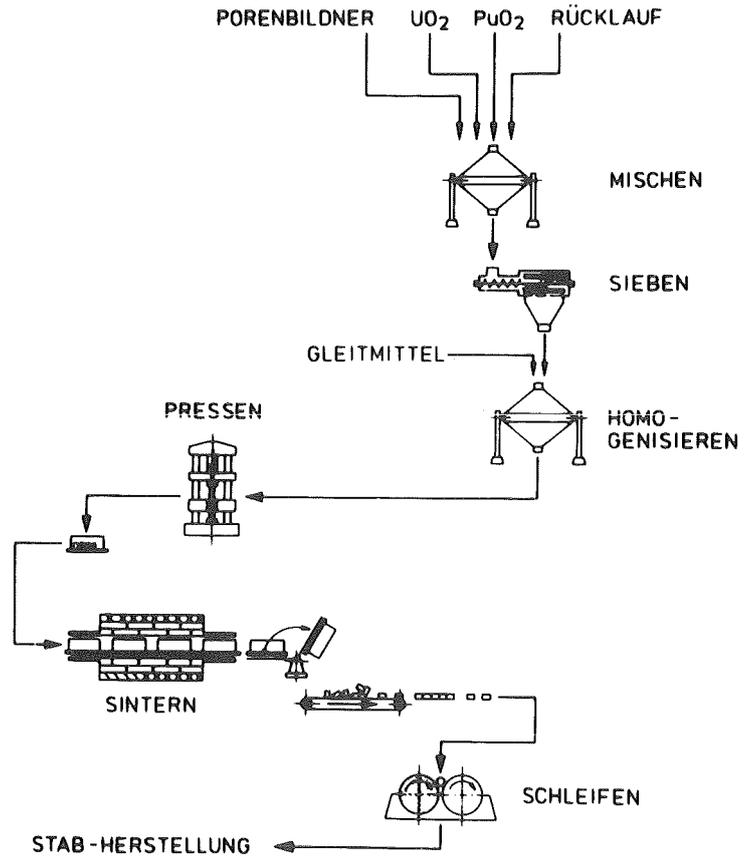
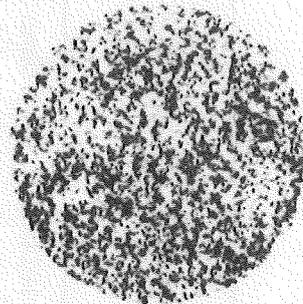
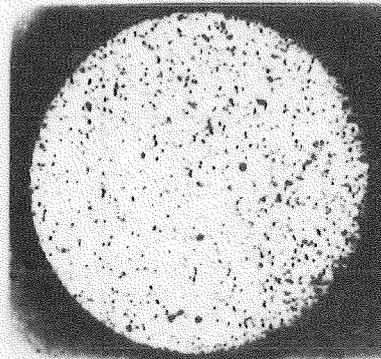


Abb. 2: Mk Ia-SNR-
Brennstoff



Mk Ia-SNR - BRENNSTOFF

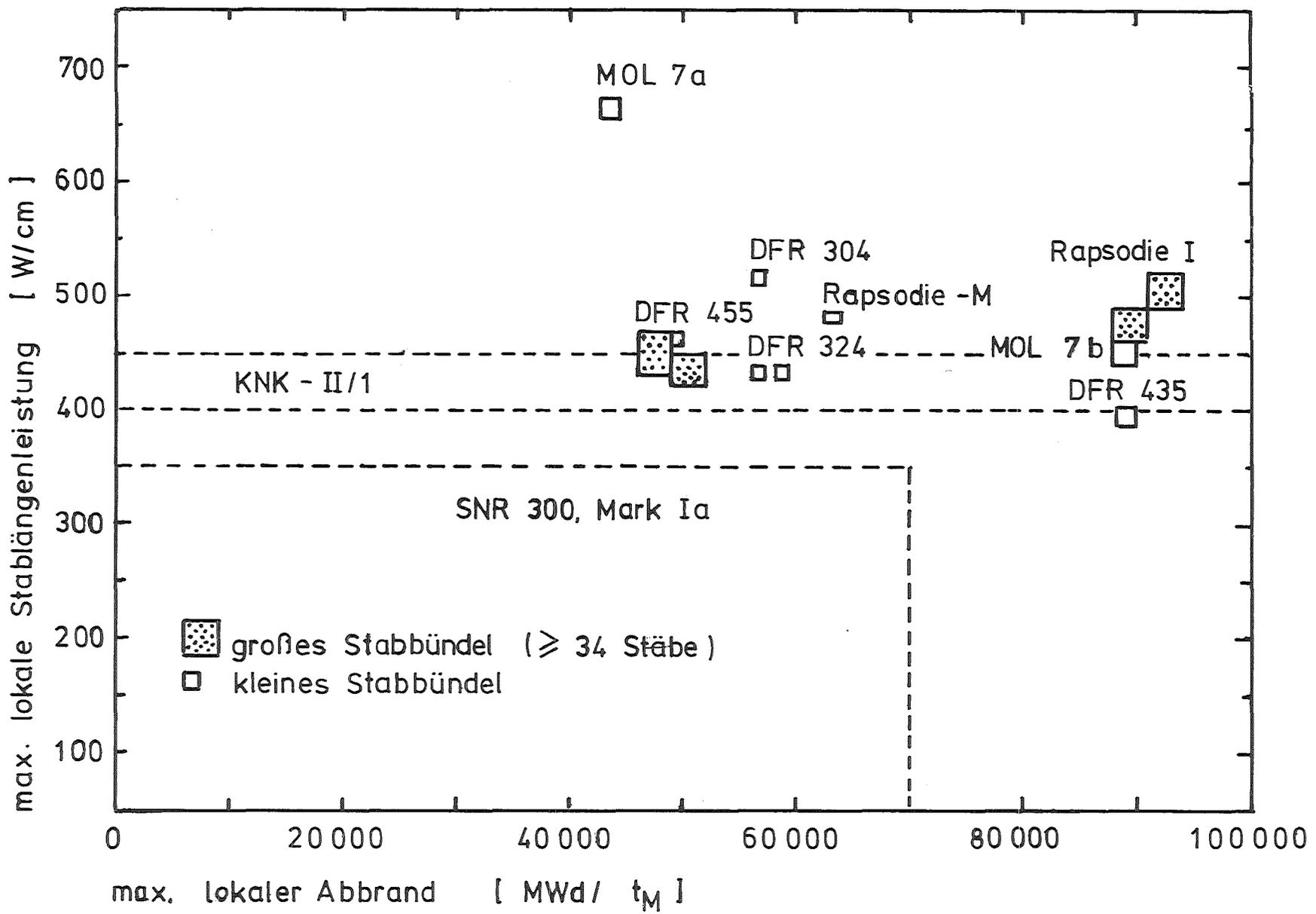


Abb. 3

MARK Ia Bündelbestrahlungen

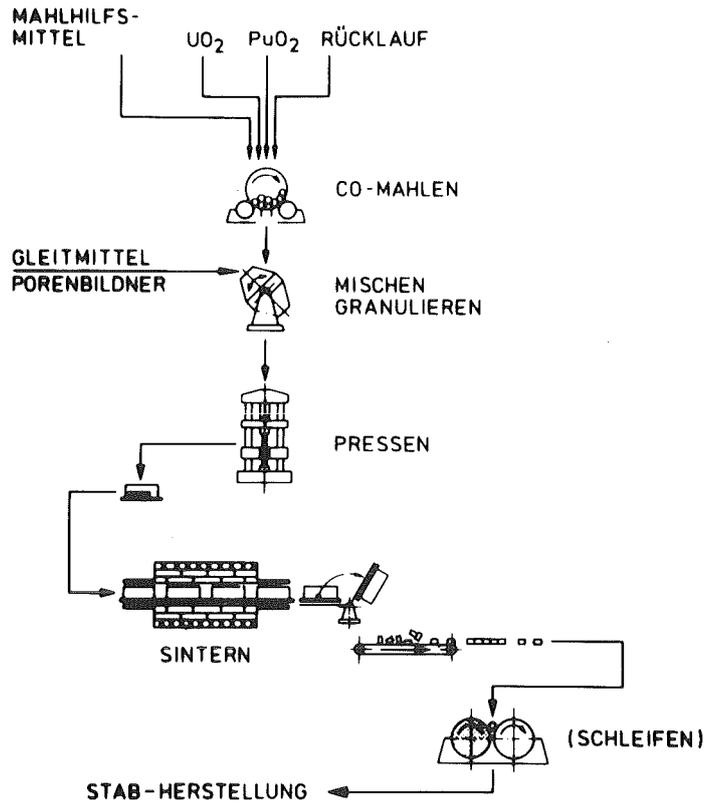


Abb. 4: Fliess-Schema
SBR-Tabletten-Herstellung
OKOM-Verfahren

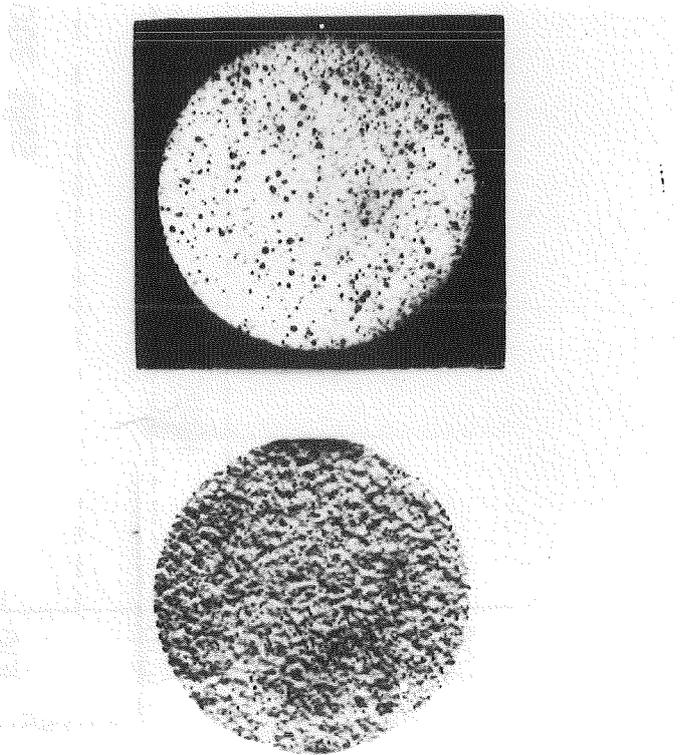


Abb. 5: OKOM-PHENIX-
Brennstoff

OKOM-PHENIX-BRENNSTOFF

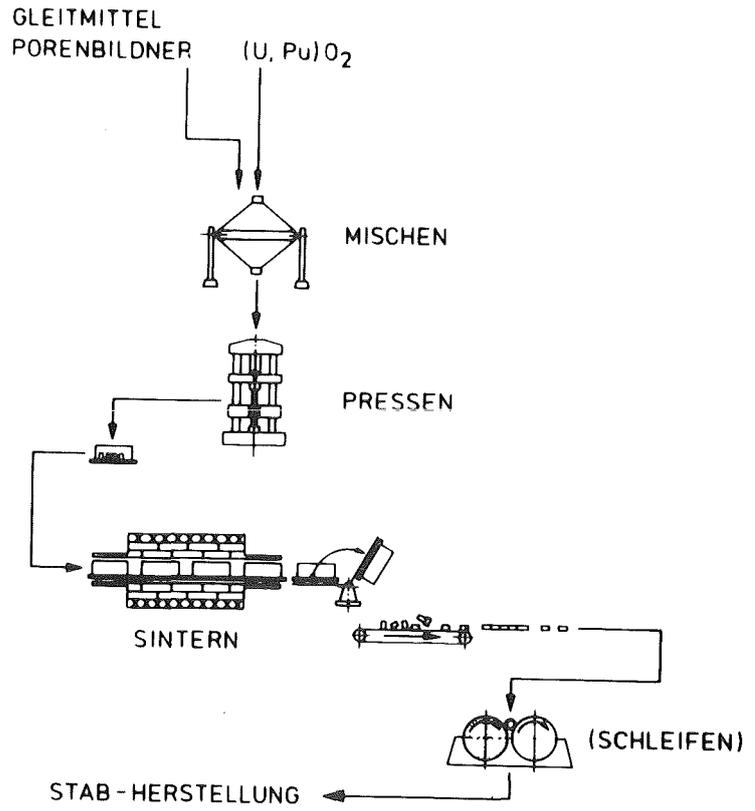


Abb. 6: Fließ-Schema
SBR-Tabletten-Herstellung
AUPuC-Verfahren

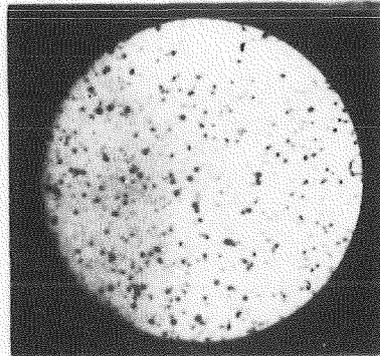
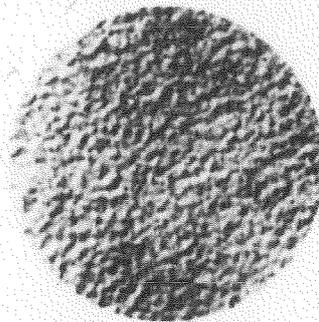


Abb. 7: AUPuC-PHENIX-
Brennstoff



AUPuC-PHENIX-BRENNSTOFF

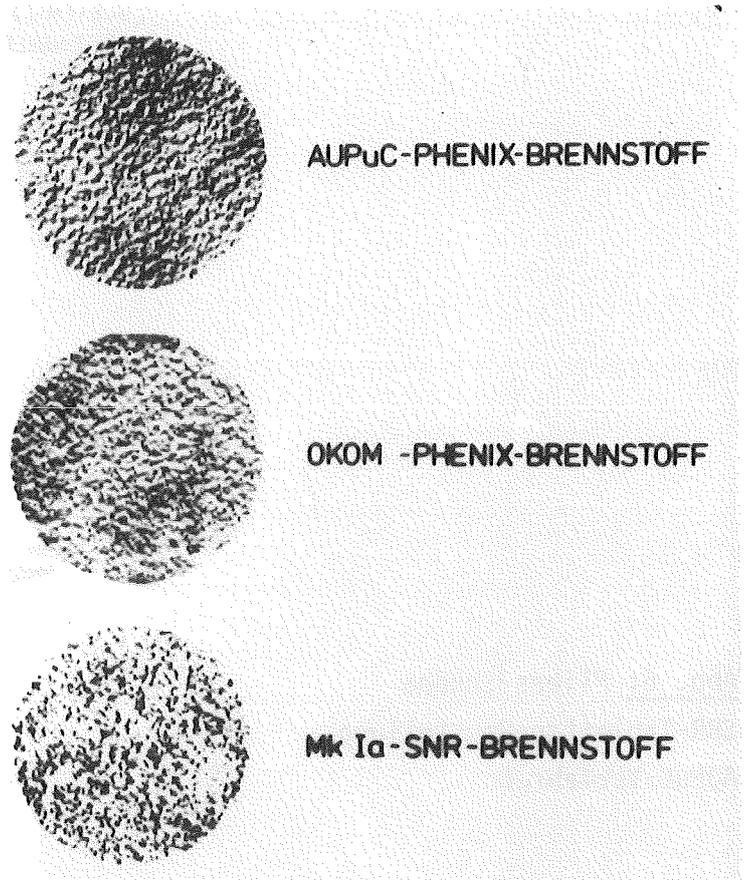


Abb. 8: Vergleich zwischen
AUPuC-PHENIX-Brennstoff
OKOM-PHENIX-Brennstoff
Mk Ia-SNR-Brennstoff

Charakterisierung von Mischoxidbrennstofftabletten und deren Vorprodukten

D. Vollath

Institut für Material- und Festkörperforschung III

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH

Postfach 3640, D-7500 Karlsruhe 1

1. Einführung

Beim Vorliegen einer gleichmäßigen und reproduzierbaren Produktqualität der Brennelemente sollte ein weitgehend störungsfreier Reaktorbetrieb zu erwarten sein. Eine gleichbleibende und reproduzierbare Qualität der Brennstofftabletten ist nur zu erwarten, wenn sich die Qualitätskontrolle über alle Stufen der Fertigung erstreckt. Ein solcher hoher Aufwand an Qualitätsprüfungen ist aber nur dann sinnvoll, wenn in den Spezifikationen auch alle Punkte festgelegt sind, die das Betriebsverhalten der Brennelemente beeinflussen. Trotz der Notwendigkeit alle für das Betriebsverhalten wesentlichen Details in den Spezifikationen festzulegen, muß eine sinnlose "Überspezifikation", die keine nachweisbaren Vorteile bringt, aber enorme Kosten verursacht, vermieden werden.

Im folgenden werden in exemplarischer Weise Ergebnisse von ausgewählten Prüfungen an Ausgangsmaterialien, Zwischenprodukten und fertigen Tabletten dargestellt. Des weiteren werden Brennstoffe verschiedener Produktionschargen gegenübergestellt. Diese Gegenüberstellung soll auf die Problematik der mangelnden Spezifikation der Brennstoffstruktur des Brüterbrennstoffes, ein Gegensatz zum Brennstoff für Leichtwasserreaktoren, aufmerksam machen.

2. Charakterisierung von Pulvern

Üblicherweise benützt man unter anderem Siebverfahren um Pulver zu charakterisieren. Des weiteren werden die Pulver vor der Verarbeitung im allgemeinen abgesiebt. Dieses Absieben erfolgt zumeist mit Wurfsieben. Hat man stark

agglomerationsfähige Pulver vorliegen, so ist das Sieben mit Hilfe von Wurfsieben sehr problematisch, da sich während des Siebens ständig neue Agglomerate bilden, die sehr schnell größer sind als die Maschenweite des Siebes. Wenn dieser Punkt erreicht wird, ist jedes Sieben beendet.

Abhilfe schafft hier die Verwendung eines Luftstrahlsiebes. Das Luftstrahlsieb (Hersteller: Alpine AG, Augsburg) arbeitet nach dem folgenden Prinzip: "Das Siebgewebe wird zunächst von einem nach aufwärts gerichteten Luftstrom durchgespült, der aus einer dicht unterhalb des Gewebes kreisenden, schlitzförmigen Düse kommt. Er hält das Siebgut in freifliegender Bewegung. Dann kehrt die Richtung des Luftstromes um, er tritt also von oben nach unten durch die Maschen und nimmt hierbei das Material, das feiner als die Maschenweite ist, mit. Das Grobgut bleibt auf dem Sieb zurück und wird am Ende des Trennvorganges gewogen. Durch den Umstand, daß das Sieb immer wieder von unten nach oben durchspült wird, unterbleibt das gefürchtete Verstopfen der Maschen." (Zitat aus /1/). Durch das Bewegen des Siebgutes in einem Luftstrom wird auch das Agglomerieren vermieden.

Die Abb. 1 /2/ zeigt nun Kurven zum Siebverhalten des Luftstrahlsiebes im Vergleich zu einem Wurfsieb (Hersteller: Retsch KG, Haan). Als Siebgut wurde UO_2 ex AUC benützt. Man sieht, daß z. B. bei Benützung eines $20 \mu m$ Siebbodens bei dem Wurfsieb praktisch kein Siebeffekt mehr erzielt wird, während sich das gleiche Pulver auf dem gleichen Siebboden im Luftstrahlsieb noch gut sieben läßt. Ebenso deutlich ist dies bei Benützung des $40 \mu m$ Siebbodens. Während beim Wurfsieb nach etwa 100 min ein nicht mehr ab-siebbarer Rückstand von etwa 12 % bleibt, geht das Pulver unter den gleichen Bedingungen innerhalb von etwa fünf Minuten bis auf einen Rückstand von etwa zwei bis drei Prozent durch das Sieb. Aus dieser einfachen Gegenüberstellung kann man deutlich die Vorzüge des Luftstrahlsiebes erkennen. Aber auch beim Luftstrahlsieb sind die Meßwerte, die man für Korngrößenverteilungen erhält, nicht immer als absolute Maße für die Größenverteilung der Sekundärkörner zu werten, da die Durchlaßkurven doch sehr stark von der Belegung des Siebbodens abhängt. Die Abb. 2 /2/ zeigt dies anhand einer Meßserie, in der ein $20 \mu m$ Siebboden mit 25, 50, 100 und 200 g UO_2 ex AUC belegt war.

Man erkennt, daß der nach 120 min Siebdauer verbliebene Rückstand zwischen 20 % (25 g) und 30 % (200 g) schwankt. Unter den gleichen Bedingungen schwankt der Rückstand bei einem Wurfsieb zwischen 95 % bei 25 g und 99 % bei 200 g. Man kann diesen Meßergebnissen entnehmen, daß man auch mit Hilfe eines Luftstrahlsiebes bei stark agglomerationsfähigen Pulvern keine exakte Siebanalyse erhält. Das Absieben des Pulvers vor einer weiteren Verarbeitung erfolgt aber bei Verwendung des Luftstrahlsiebes mindestens zehnmal schneller bei wesentlich geringeren Rückständen.

Die Lage bei der Charakterisierung von Pulvern ist auch bei Verwendung eines Luftstrahlsiebes noch immer nicht befriedigend gelöst. Der Weg der Ermittlung neuer absoluter Charakterisierungsdaten für Pulver ist von uns wegen des hohen zu erwartenden Aufwandes nicht beschritten worden. Wir haben vielmehr versucht, dem Produzenten, der ja in seinem Betrieb viel Erfahrung über das Verhalten einzelner Pulverqualitäten hat, Vergleichsparameter zur Verfügung zu stellen, die eine Aussage darüber erlauben, welcher Charge, mit der bereits Erfahrungen vorliegen, eine neue ähnelt. Dieser Vergleich wird mit Hilfe der Bildanalyse auf der Basis des Bildverarbeitungssystems PACOS /3,4/ durchgeführt.

Als Meßobjekt wurden die Sekundärkörner des Pulvers ausgewählt. Für diese Wahl sprachen die folgenden Gesichtspunkte:

- die Sekundärkörner sind im allgemeinen so groß, daß sie ohne Probleme mit Hilfe eines Lichtmikroskopes beobachtet und vermessen werden können,
- die Sekundärkörner spiegeln in ihrer Form und Größe das Agglomerationsverhalten des Pulvers wieder. Da das Agglomerationsverhalten stark von der Morphologie der Primärkörner abhängt, ist damit - in Verbindung mit der spezifischen Oberfläche - auch ein Hinweis auf die Sinterfähigkeit gegeben.

Ein entsprechendes Meßverfahren muß also die verschiedenen Pulver nach Korngröße und Kornform vermessen und diese Meßwerte mit denen vergleichen, die man an anderen Pulvern erhalten hat. Bei entsprechend gewählten Vergleichsparametern ist dann eine Zuordnung möglich /5/.

Die Klassierung der Pulver nach Form und Größe erfolgt nach einem Verfahren, das für das Bildanalysensystem PACOS entwickelt wurde /3, 4/. Dabei werden die Pulverteilchen mit Lehren (strukturierende Elemente) verschiedener Form und Größe verglichen. Führt man nun mit diesen strukturierenden Elementen in den Bildern der Präparate entweder die Bildtransformation Erosion oder Ouverture durch, und mißt anschließend die Fläche, so erhält man für jedes der strukturierenden Elemente einen Meßwertvektor. Es wurde nun ein Zuordnungsverfahren entwickelt /5/, das ein unbekanntes Pulver einem von mehreren bekannten Musterpulvern zuordnet. Dabei muß allerdings das Vermessen von Muster und Probe unter den gleichen Bedingungen erfolgen. Das Vermessen der Musterpulver muß natürlich nur einmal erfolgen, da die Meßwerte in Form einer "Musterbibliothek" in einem Rechner abgespeichert werden.

Zur Durchführung dieser Zuordnung wurden eine Reihe von Verfahren untersucht. Drei Verfahren erwiesen sich dabei als anwendbar. Diese Verfahren benützen die gleichen Meßwerte. Die Entscheidungsgrößen aller drei Verfahren wurden so normiert, daß sie Eins sind bei maximaler Ähnlichkeit und mit abnehmender Ähnlichkeit zwischen Muster und Probe immer kleiner werden. Werte kleiner als Null können nicht auftreten.

Für die Messungen zur Prüfung der Empfindlichkeit und der Trennschärfe des Klassierungsverfahrens wurden fünf Pulver benützt. Es handelt sich dabei um:

<u>Muster Nr.</u>	<u>Pulvertyp</u>
1	UO ₂ ex AUC
2	UO ₂ ex ADU
3	UO ₂ ex ADU 30 min bei 900 ⁰ C unter CO ₂ geglüht
4	UO ₂ ex ADU 60 min dto.
5	UO ₂ ex ADU 150 min dto.

Für die Messungen wurden die Pulver in einem Äthylenpolykondensat, dem ein Kolloidstabilisator zugesetzt war, suspendiert. Die Abb. 3 zeigt Photos dieser Präparate, so wie sie zur Messung herangezogen wurden. Die Abb. 4 zeigt den Satz von strukturierenden Elementen, der für die Auswertung herangezogen wurde. Von diesem Präparat wurden entsprechend dem gewählten Satz von strukturierenden Elementen die Meßwertvektoren bestimmt und in einer Datei abgelegt.

Die Auswertung der Experimente zeigte, daß mit dem entwickelten Verfahren eindeutige Zuordnungen erreicht werden können, wenn die Präparation fehlerfrei ist. Es steht damit dem Tablettenhersteller ein Verfahren zur Verfügung, mit dem er in eindeutiger Weise ein neues Pulver (oder Granulat) einem bekannten schnell zuordnen kann.

3. Charakterisierung von Tabletten und deren Grünlinge durch Messen der Schalllaufzeit

Aus der relativ einfach meßbaren Schalllaufzeit kann über die bekannten linearen Abmessungen der Probe die Schallgeschwindigkeit berechnet werden. Die Schallgeschwindigkeit ist ihrerseits abhängig von den elastischen Eigenschaften des Werkstückes. Bei dem Vorliegen von longitudinalen elastischen Wellen gibt es zwischen dem Elastizitätsmodul E und der Schallgeschwindigkeit die Beziehung

$$v_L = \sqrt{\frac{E}{\rho}}$$

wobei ρ die Dichte der Probe ist. Wird die Messung mit Hilfe von Transversalwellen durchgeführt, so muß man in der obigen Beziehung den Elastizitätsmodul durch den Schubmodul ersetzen. Durch die engen Beziehungen zwischen Schallgeschwindigkeit und den elastischen Eigenschaften eignet sich die Messung der Schalllaufzeit besonders zur Charakterisierung poröser Proben, da diese Eigenschaften stark von der Porosität und der Porenform abhängen /6/. Mit Hilfe der Schalllaufzeit können sowohl Grünlinge als auch Sinterkörper untersucht werden. Die Abb. 5 /2/ zeigt die Abhängigkeit der Schalllaufzeit von der Dichte der Probe. In diesem Diagramm wurden die Meßwerte für zwei Sorten von Grünlingen zusammengefaßt. Dabei handelte es sich um Grünlinge, die aus granuliertem Pulver ($(U, Pu)O_2$ Granulierbrennstoff-IMF) und aus nicht granuliertem Pulver (UO_2 -IMF nicht granuliert) hergestellt worden waren. Man erkennt, daß die Meßwerte für die beiden Typen von Grünlingen in zwei deutlich getrennte Streubänder zusammengefaßt werden können. Der Unterschied dieser beiden Probentypen ist dabei in erster Linie auf die sehr unterschiedliche Struktur und nicht auf den Plutoniumgehalt zurückzuführen. Der Unterschied in der Schallgeschwindigkeit dieser beiden Probentypen ist vielmehr darauf zurückzuführen, daß Proben mit eher kugeligen Poren höhere

Schallgeschwindigkeiten aufweisen als solche mit eher flachen Poren /6/. Tabletten, die aus granuliertem Pulver hergestellt wurden, weisen auch erfahrungsgemäß einen größeren Anteil flacher oder tetraedrischer Poren auf. Einzelne Proben eines anderen Herstellers liegen zwar nicht innerhalb dieser Streubänder, zeigen aber im Grunde dieselben Gesetzmäßigkeiten. Man erkennt, daß sich Veränderungen irgendwelcher Parameter in der Produktion, die zu einer Strukturänderung führen, mit Hilfe einer Messung der Schalllaufzeit empfindlich nachweisen lassen.

Ähnliche Aussagen kann man auch bei gesintertem Probenmaterial machen. Die Abb. 6 /2/ zeigt in gleicher Weise wie die Abb. 5 ein Schallgeschwindigkeits-Dichte-Diagramm für gesinterte Proben. Man erkennt, daß ähnlich wie bei den Grünlingen ein Streuband existiert, in dem die Proben liegen, die nach einem Herstellungsverfahren gefertigt wurden. Betrachtet man Proben anderer Hersteller, so erkennt man, daß deren Proben teilweise weit weg von diesem Streuband liegen. Es ist zur Beurteilung der Gleichmäßigkeit und Reproduzierbarkeit eines Fertigungsverfahrens von Interesse, wenn man erkennt, daß die Schalllaufzeit der nach dem gleichen Verfahren hergestellten Proben A, B, C, D, E in einem weiten Bereich streut. Während die Proben D und E innerhalb des gezeichneten Streubandes liegen, ist die Schallgeschwindigkeit der Proben A, B, C deutlich geringer. Eine reduzierte Schalllaufzeit weist auf eher längliche Poren hin. In vorliegendem Fall ist die Reduktion der Schalllaufzeit ein Indikator für einen mehr oder minder hohen Anteil von Mikrorissen in der Probe. Die Probe F, die ebenfalls vom Hersteller A, jedoch nach einem anderen Verfahren gefertigt, liegt ebenfalls im Bereich des Streubandes der Proben, wie sie im IMF (Institut für Material- und Festkörperforschung) gefertigt wurden.

Diese einfachen Beispiele zeigen, mit welcher großen Empfindlichkeit eine qualitative Strukturanalyse mit Hilfe einer Messung der Schallgeschwindigkeit durchgeführt werden kann. Berücksichtigt man weiterhin, daß für eine solche Messung nur wenige Sekunden benötigt werden, so kann man das Potential dieses Meßverfahrens für eine Qualitätsprüfung abschätzen.

4. Vergleich von Brennstoffen aus verschiedenen Fertigungschargen

Im folgenden sollen die Strukturen einiger Brennstoffe, wie sie für verschiedene Bestrahlungsexperimente hergestellt wurden, einander gegenübergestellt

werden. Es soll gezeigt werden, wie verschieden die Strukturen der Brennstoffe sind, die bei den Bestrahlungsexperimenten eingesetzt werden. Auch wenn in diesem Rahmen kein vollständiger Vergleich angestrebt wird, so sollte doch darauf hingewiesen werden, daß z. B. der Anteil der offenen Porosität wesentlichen Einfluß auf das Gasaustauschverhalten (z. B. Spaltgasfreisetzung) hat. Die Größe der Kanäle der offenen Porosität im Brennstoff beeinflußt das Gasaustauschverhalten über den Gaseffusionskoeffizienten γ , δ . Darüber hinaus liegt hier auch ein starker Bestrahlungseinfluß vor, da Kanäle mit kleinen Durchmessern eher durch thermal spikes geschlossen werden als größere; daneben ist die Umstrukturierung des Brennstoffes von der Porengröße abhängig. Des weiteren sollte man bei dem Vergleich von Brennstoffen aus verschiedenen Chargen noch berücksichtigen, daß bei den porösen Körpern, bei denen die Schallgeschwindigkeit hoch ist, auch die Wärmeleitfähigkeit hoch ist. Proben mit niedrigerer Schallgeschwindigkeit haben demnach auch eine schlechtere Wärmeleitfähigkeit. Die Abb. 7 zeigt einige typische Merkmale der Struktur eines Granulierbrennstoffes des Herstellers A. (Die Zuordnung von Nummern und Buchstaben zur Identifizierung der Charge ist die gleiche wie in Abb. 6). Diese Probe hat, wie auch die nächsten beiden, eine Dichte von etwa 95 % TD. Wir erkennen im Diagramm der offenen Porosität ca. $0,015 \text{ cm}^3$ offenes Porenvolumen je cm^3 Brennstoff. Die Durchmesser der Kanäle, durch die offene Porosität von außen zugänglich ist, liegen zwischen 10 und 100 nm. Die Schallgeschwindigkeit in der Tablette ist deutlich niedriger als das Streuband der Tabletten der im IMF gefertigten Tabletten. Die Keramographie zeigt eine recht gleichmäßige Struktur. Bei höherer Vergrößerung ist jedoch ein Netzwerk von Mikrorissen zu erkennen.

Im Gegensatz zu dieser Probe zeigt die nach dem gleichen Verfahren gefertigte Charge A/1D eine verschwindende offene Porosität, die Schallgeschwindigkeit liegt im Bereich des Standardstreubandes (Abb. 8). Man erkennt in der Keramographie eine etwas gröbere Struktur und auch ein weniger ausgeprägtes Netzwerk von Mikrorissen.

Eine sehr gleichmäßige Struktur hat das in Abb. 9 gezeigte Probenmaterial des Herstellers A, das nach dem Verfahren 2 hergestellt wurde. Man erkennt in der Keramographie eine sehr gleichmäßige Struktur mit sehr sauber ausgebildeten Korngrenzen. Der Anteil von Mikrorissen ist deutlich geringer

als bei den beiden vorher gezeigten Proben. Der Anteil der offenen Porosität ist mit $0,005\text{cm}^3$ je cm^3 Probenmaterial zwischen den bei den anderen Proben gemessenen Werten. Es fällt aber auf, daß bei diesem Probenmaterial die Größe der Kanäle zwischen 10 und 1000 nm liegt. Stark verschieden ist die Struktur des Probenmaterials mit ca. 93 % TD des Herstellers B. In Abb. 10 erkennen wir eine relativ große offene Porosität von ca. $0,03\text{cm}^3$ je cm^3 Brennstoff, die über Kanäle im Durchmesserbereich zwischen 100 und 1000 nm miteinander verbunden ist. Die Keramographie zeigt relativ große Poren, die die Granulatstruktur noch erkennen lassen. Bei hoher Vergrößerung erkennt man Körner stark verschiedener Größe mit teilweise stark gekrümmten Korngrenzen. Dies läßt auf Ungleichgewichtszustände schließen. Bei diesen Proben erfolgt, wie bei den anderen besprochenen Proben auch, beim Nachsintern keine unzulässige Veränderung der Dichte oder der Geometrie der Tabletten.

Zusammenfassung

In diesem Beitrag wurden neuere Verfahren zur Prüfung von Brennstofftabletten und deren Vorprodukten vorgestellt, die es dem Hersteller ermöglichen, mit relativ geringem Aufwand die Reproduzierbarkeit seiner Fertigung sicherzustellen.

Bei einer Gegenüberstellung von Charakterisierungsergebnissen, die an Brennstoffproben aus verschiedenen Chargen erhalten wurden, konnte gezeigt werden, daß heute eine Reihe von grundsätzlich verschiedenen Brennstoffen eingesetzt werden. Dies, obwohl alle diese Brennstofftabletten nach annähernd gleichen Spezifikationen gefertigt wurden. Man kann annehmen, daß die Brennstoffhersteller auf der Basis ihrer Erfahrung und der lückenlosen Dokumentation der einzelnen Fertigungsschritte heute innerhalb des gezeigten Bereiches auf Wunsch jede gewünschte Struktur einstellen können. Es ist nun an der Zeit, daß dem Hersteller entsprechende Vorgaben gemacht werden. Diese Vorgaben müssen nicht nur das stationäre Betriebsverhalten, sondern auch Betriebsrampen und Störfälle mitberücksichtigen. Erst wenn von Seiten der Auslegung solche Vorgaben gemacht werden, kann der Erfahrungshintergrund der Hersteller voll ausgenutzt werden. Diese Forderung ist nicht neu. Auf dem Gebiet der Brennstoffe für Leichtwasserreaktoren gibt es schon lange recht detaillierte Vorschriften über die Struktur der Brennstofftabletten /7, 8/. Dies muß in ähnlicher Weise auch für den Brennstoff von schnellen Brutreaktoren möglich sein.

- /1/ O. Lauer;
Feinheitsmessungen an technischen Stäuben,
Alpine AG, Augsburg (1963) p. 16
- /2/ H. Wedemeyer;
Unveröffentlichte Ergebnisse (1982)
- /3/ D. Vollath;
Praktische Metallographie 19 (1982) 7-23
- /4/ D. Vollath;
Praktische Metallographie 19 (1982) 94-103
- /5/ D. Vollath;
Unveröffentlichte Ergebnisse (1982)
- /6/ J. Boocock, A.S. Furzer, J.R. Mathews;
AERE-M 2565 (1974)
- /7/ D. Vollath, K. Kummerer; Edts.
Characterization and Quality Control of
Nuclear Fuels,
J. Nucl. Mat. 81 (1979)
- /8/ D. Vollath, K. Kummerer; Edts.
Characterization and Quality Control of
Nuclear Fuels,
J. Nucl. Mat. 106 (1982)

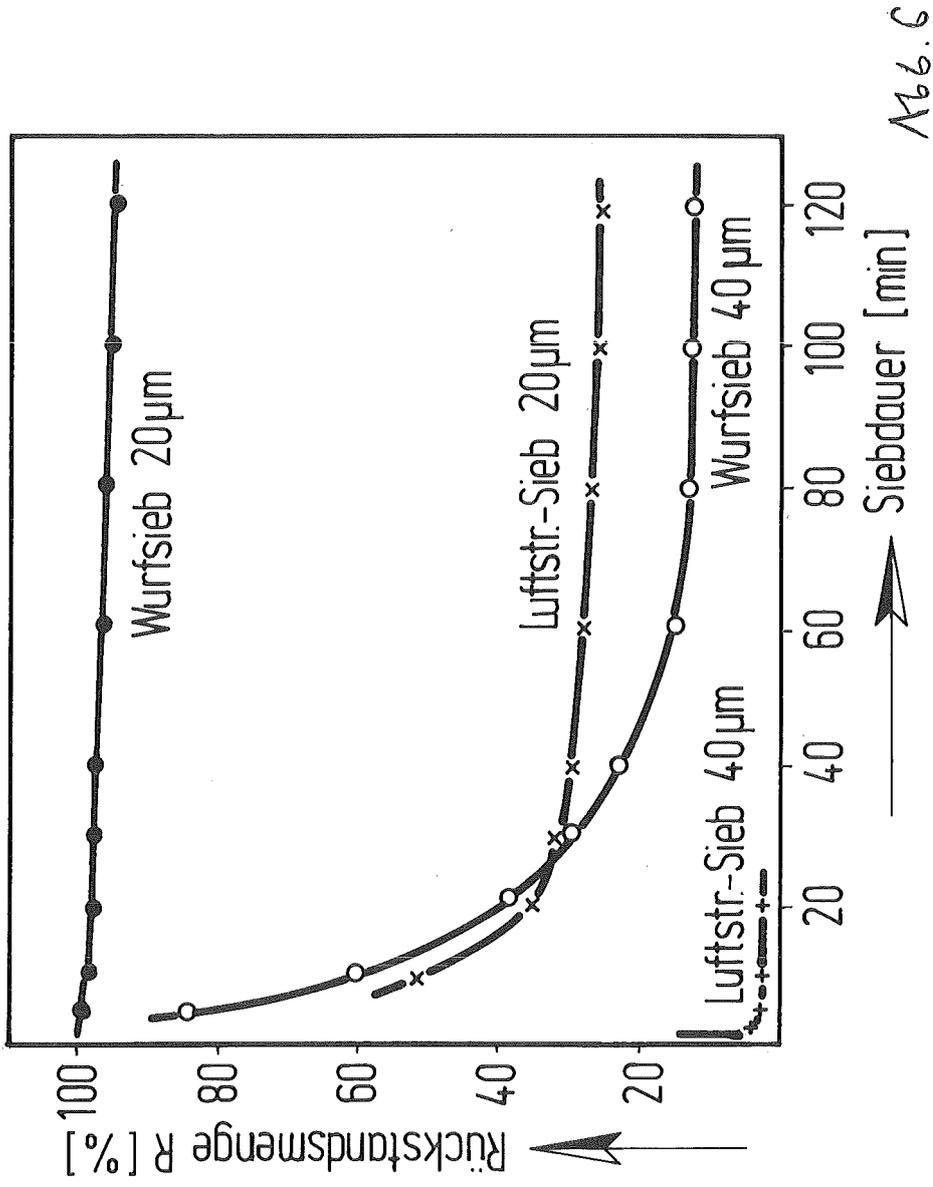


Abb. 1:2/ VERGLEICH WURFSIEB - LUFTSTRAHLSIEB

Abb. 6

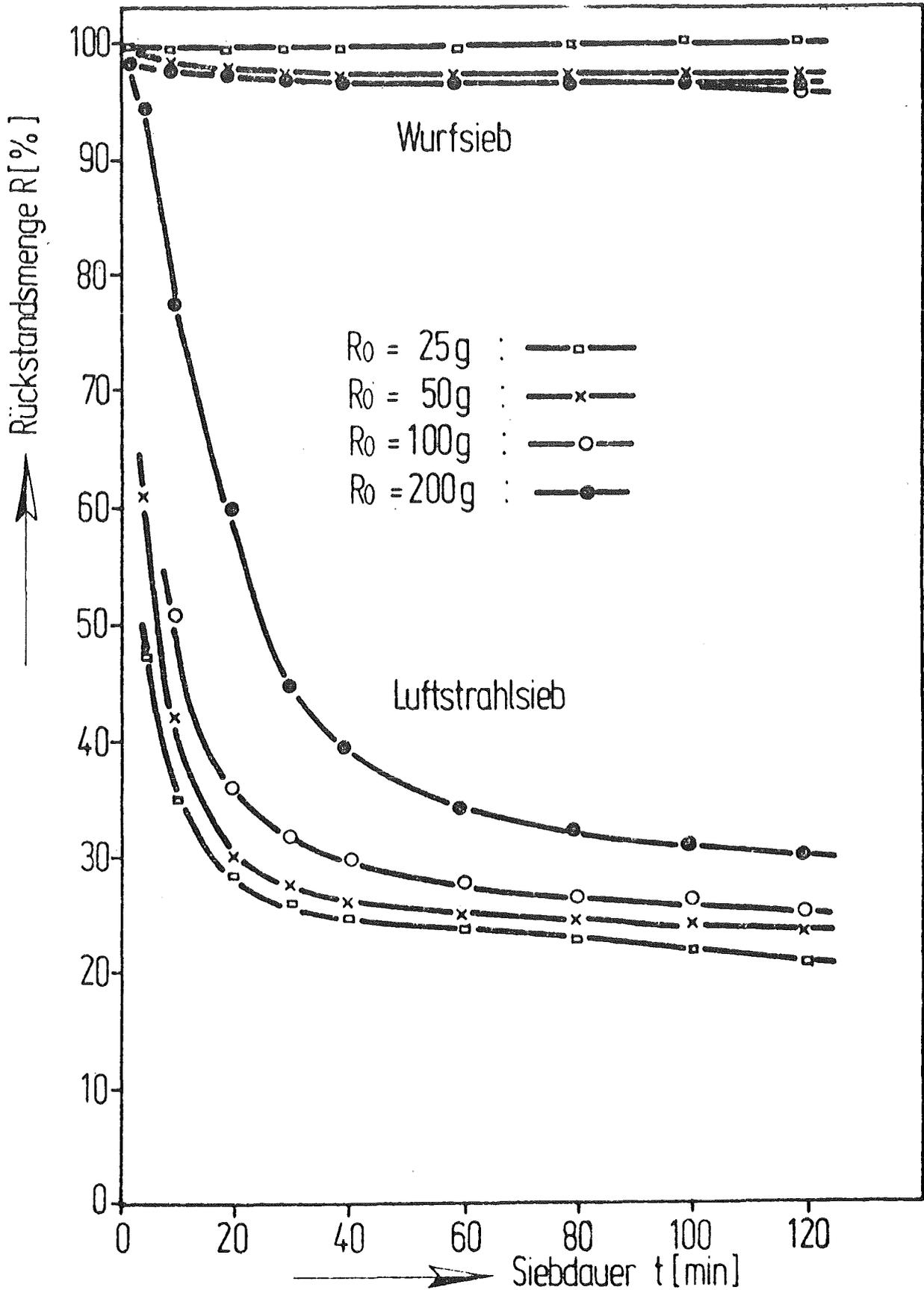
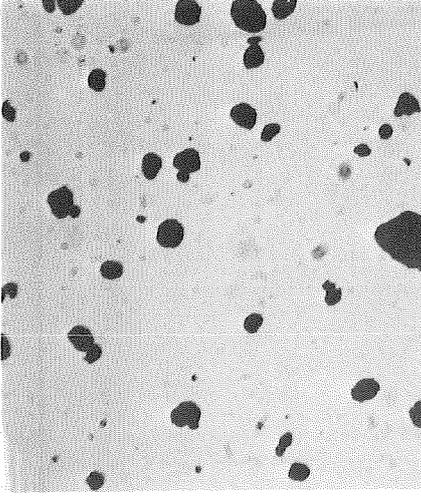
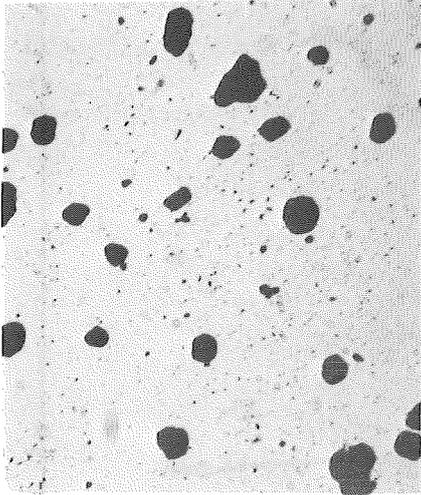


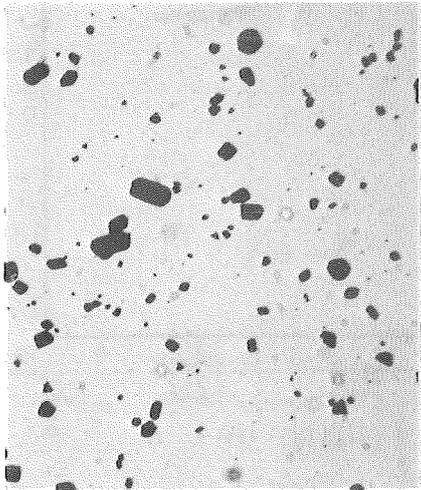
Abb. 2:/2/ Vergleich Wurfsieb - Luftstrahlsieb
Einfluß verschiedener Ausgangsmengen, Maschenweite 20 µm



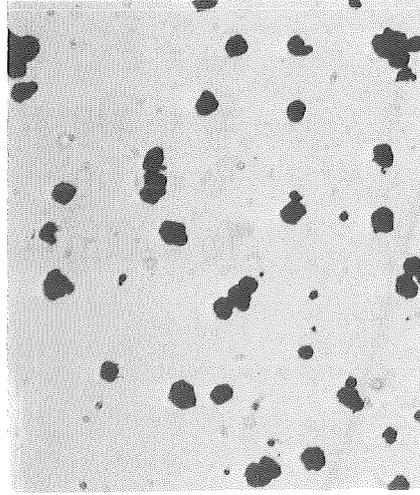
UO₂ ex ADU 30'



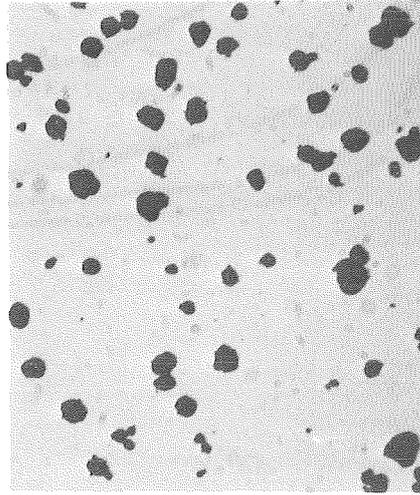
UO₂ ex ADU



UO₂ ex AUC



UO₂ ex ADU 150'



UO₂ ex ADU 60'

KJK
IMF III

Abb. 3:1/2/ Testpulversatz für die Pulvercharakterisierung

NR.	STRUKTURIERENDE ELEMENTE
1	
2	
3	
4	
5	
MESSVERFAHREN EROSION, OUVERTURE VERBUNDEN MIT FLÄCHENMESSUNG	

Abb. 4: Strukturierende Elemente für die Pulverklassierung /5/

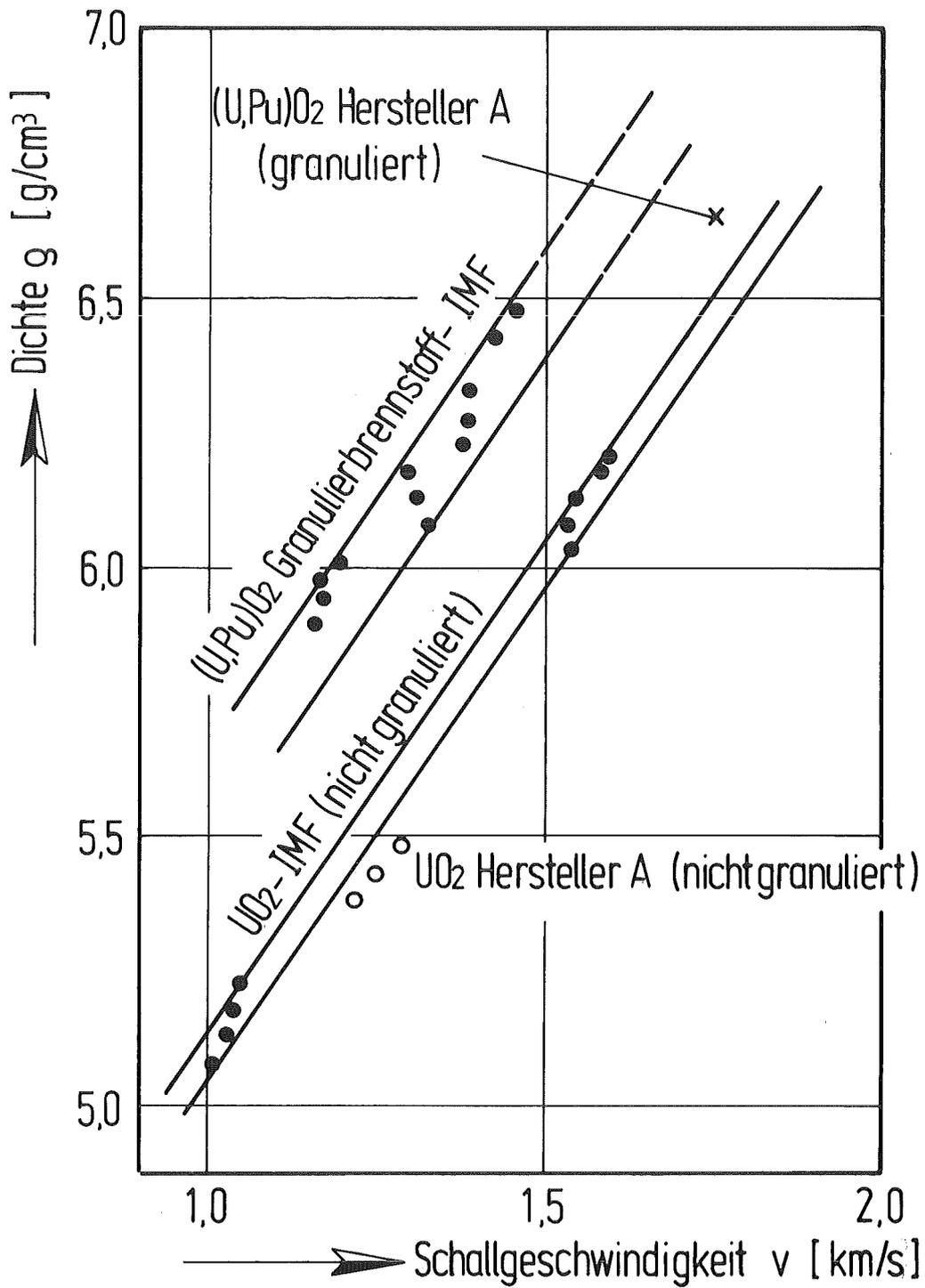


ABB 5:/2/ SCHALLAUFLAUFZEIT/DICHTE DIAGRAMM FÜR VERSCHIEDENE BRENNSTOFFTYPEN

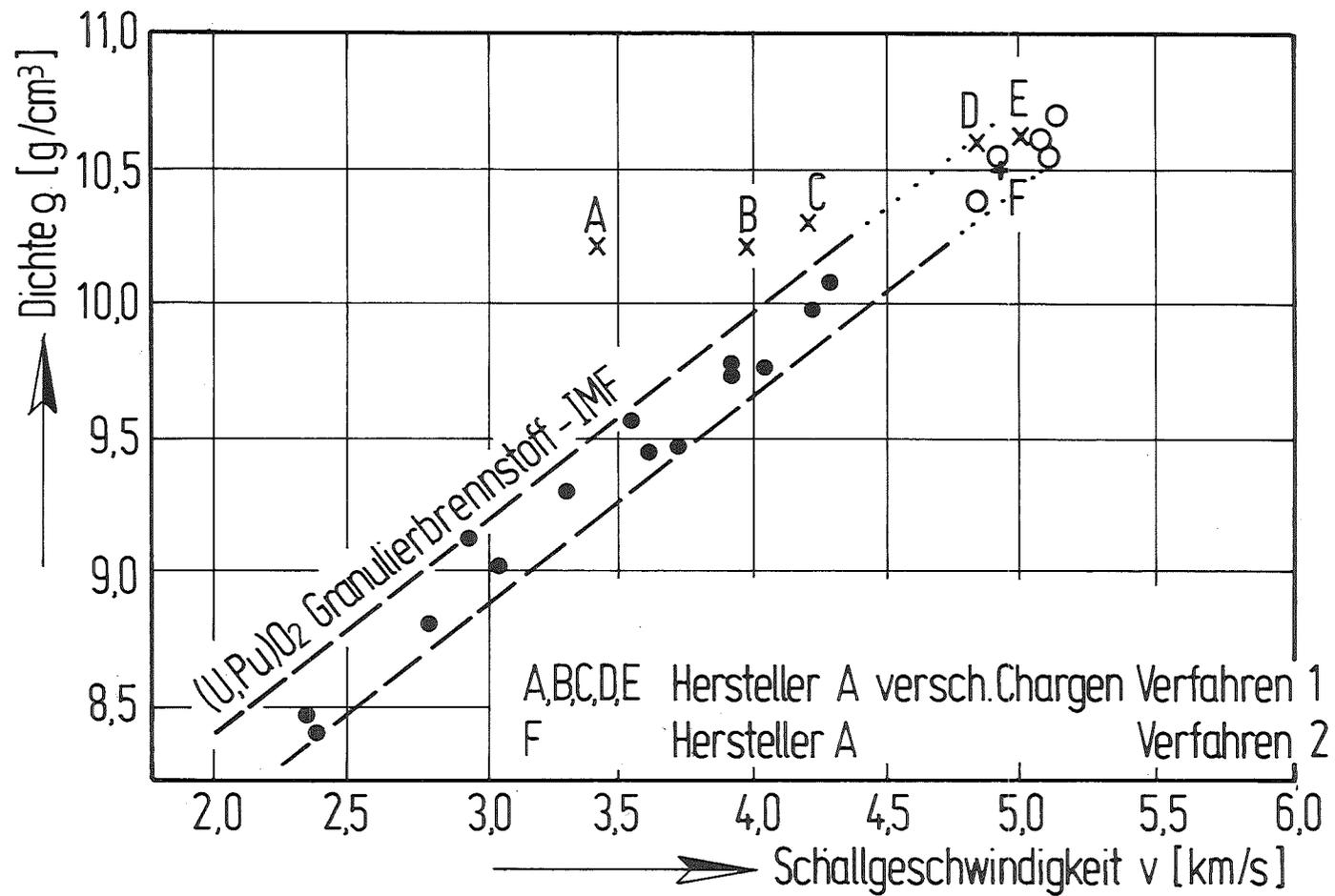


ABB. 6:/2/ SCHALLAUFLAUFZEIT/DICHTE DIAGRAMME FÜR VERSCHIEDENE BRENNSTOFFTYPEN

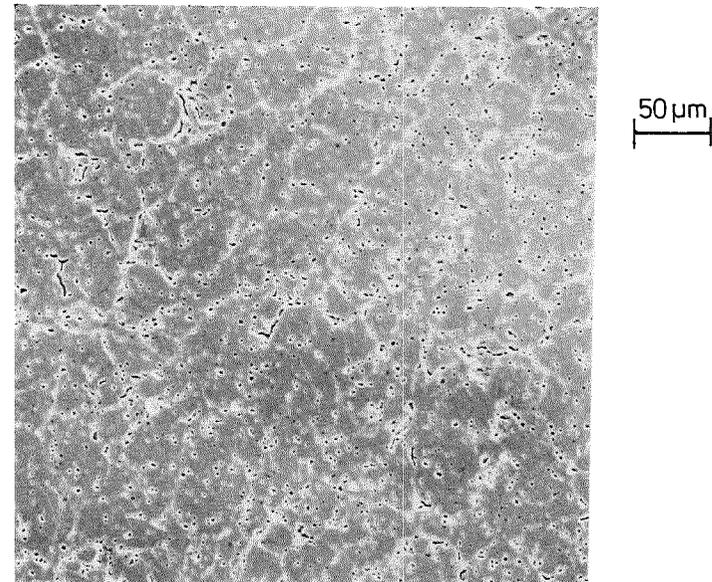
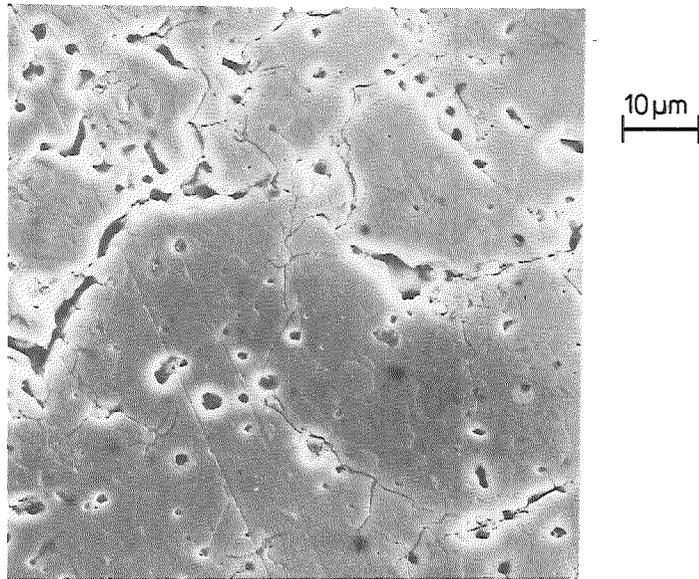
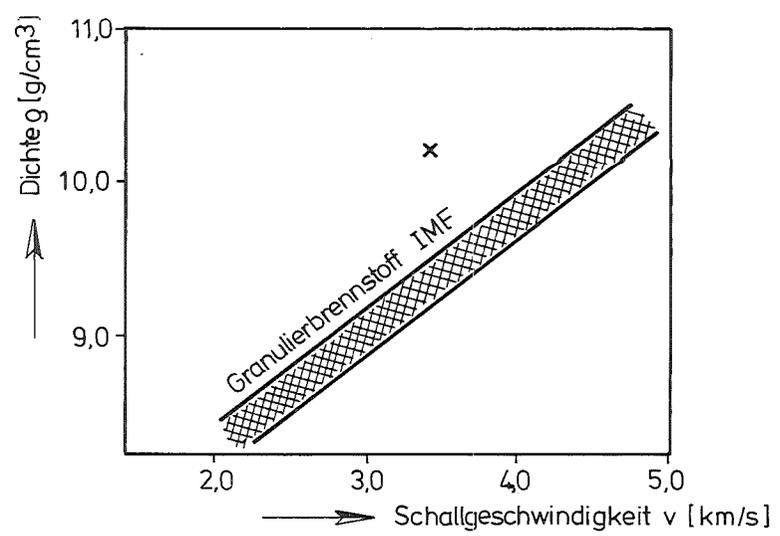
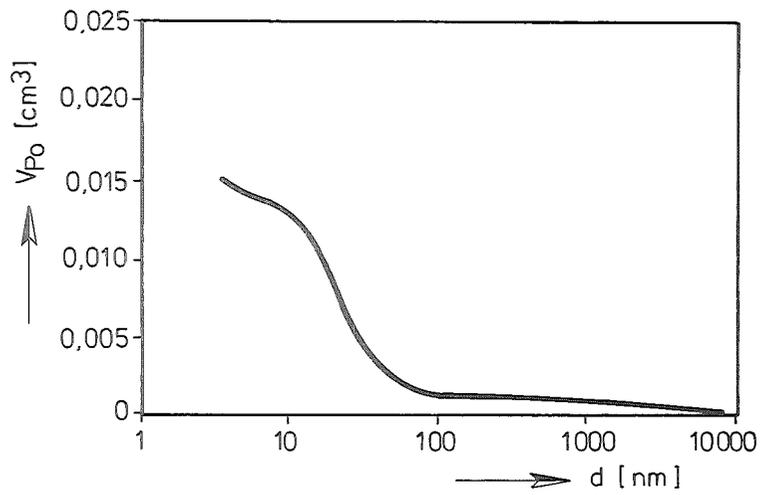
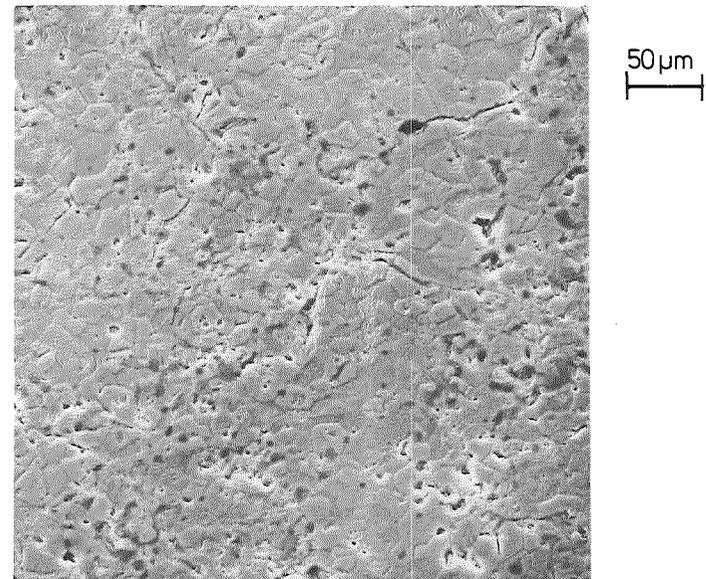
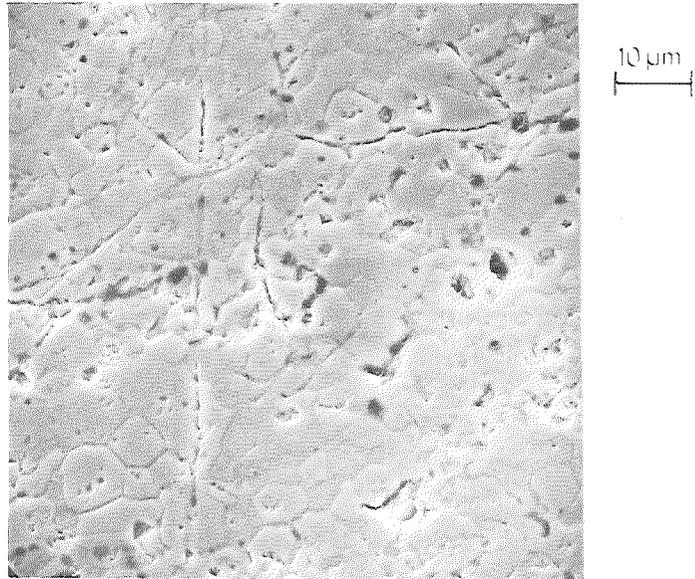
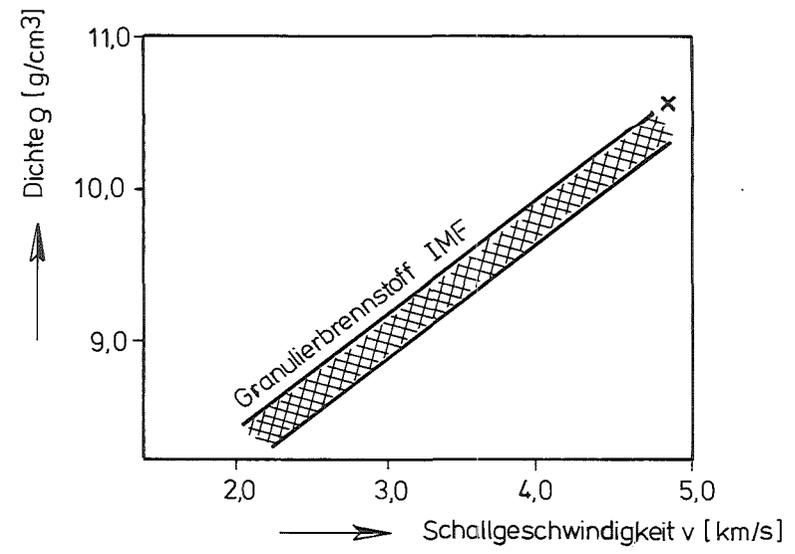
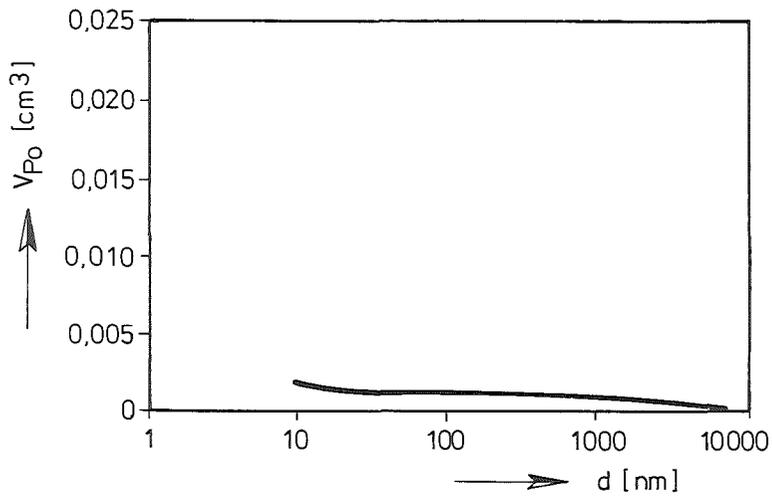


Abb. 7: Brennstoffstruktur (A/1A)



KfK IMF III

Abb. 8: Brennstoffstruktur (A/1D)

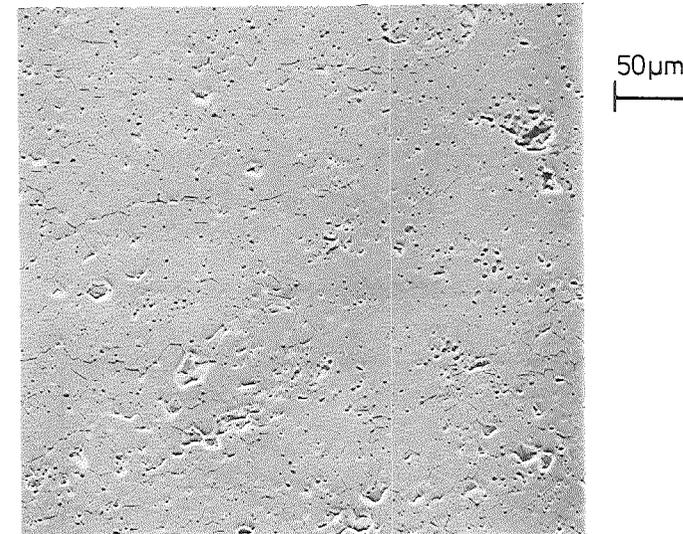
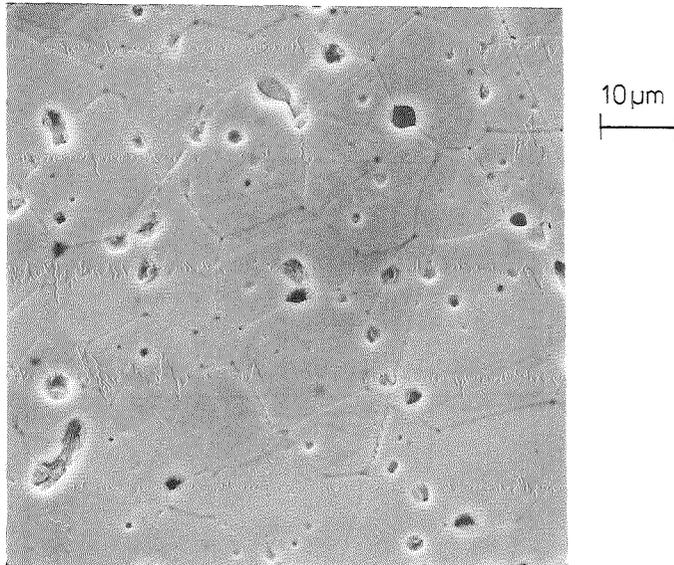
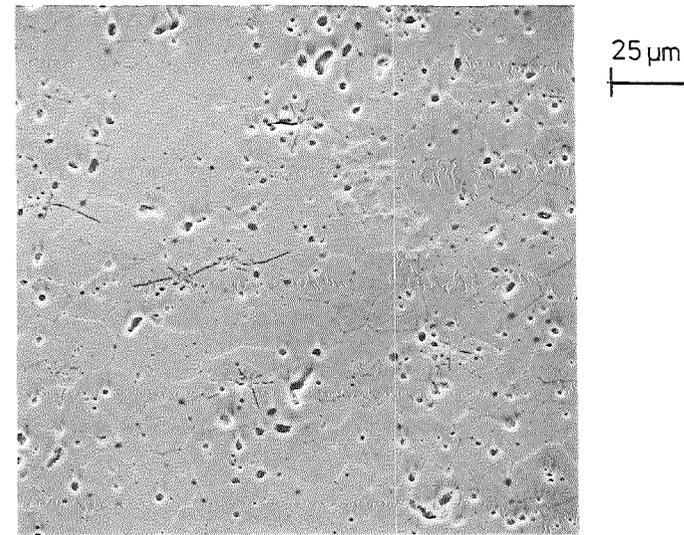
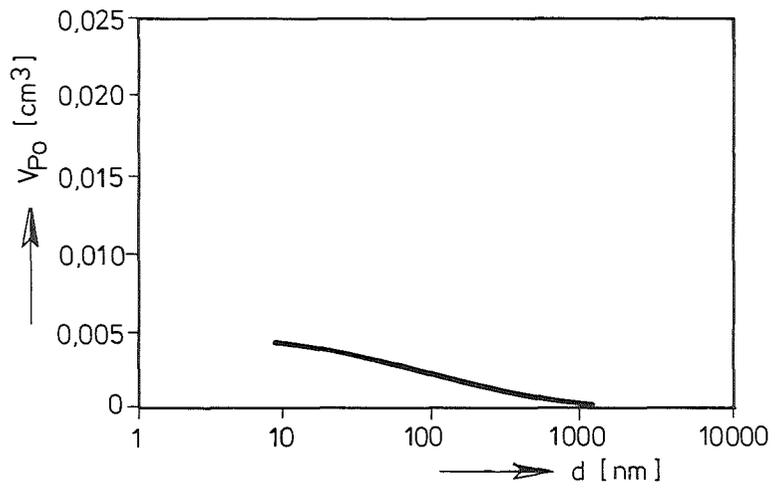


Abb. 9 : Brennstoffstruktur (A/2)

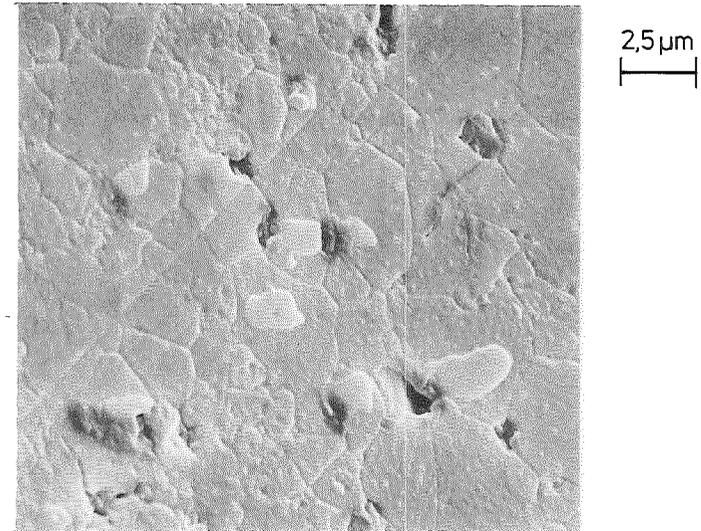
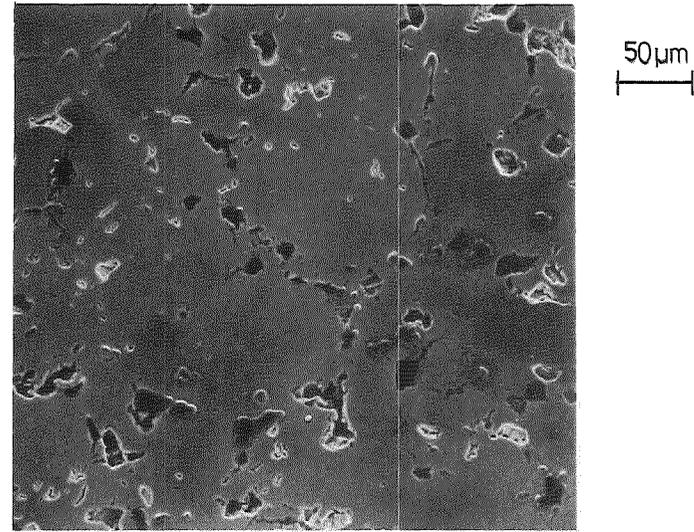
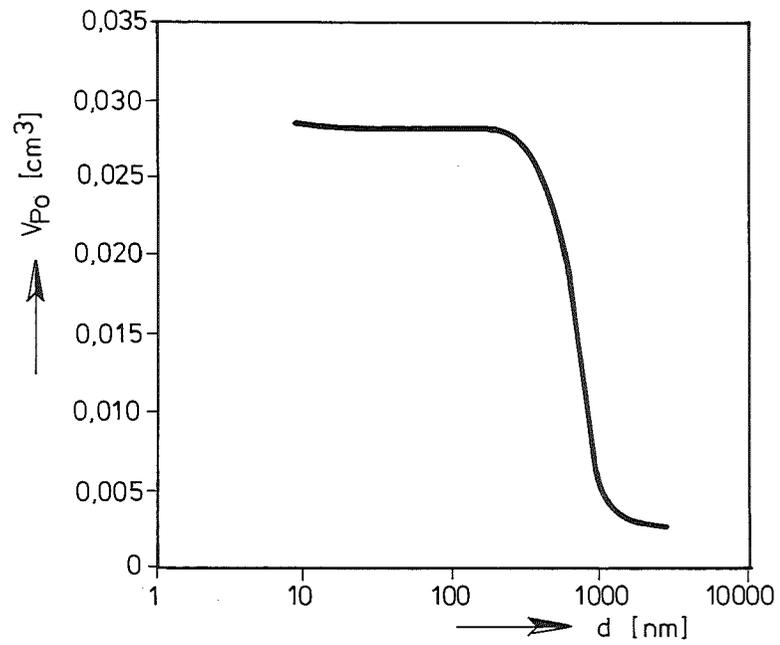


Abb. 10 : Brennstoffstruktur (B)

Untersuchungen zur Homogenität des Mischoxids in
verschiedenen Stadien des Brennstoffkreislaufs

H. Kleykamp * und R. Pejša **

Kernforschungszentrum Karlsruhe

* Institut für Material- und Festkörperforschung I

** Hauptabteilung Kerntechnische Betriebe

Postfach 3640

D-7500 Karlsruhe 1

Zusammenfassung

Die Uran/Plutonium-Homogenität und die Sauerstoff/Metall-Homogenität werden an Standard-Mischoxid für KNK-II/1 und an AUPuC-Mischoxid für das Bestrahlungsexperiment FR 2-Vg. 7/II in den verschiedenen Stadien des Brennstoffkreislaufs untersucht. Für Standard-Mischoxid wird die U/Pu-Verteilung in unbestrahlten Tabletten, in bestrahlten Brennstäben und im ungelösten Anteil bei der Wiederaufarbeitung des Brennstoffs bestimmt. Konzentration und Verteilung des im Blanket von Stäben verschiedener Bestrahlungsexperimente gebrüteten Plutoniums werden angegeben. Für AUPuC-Mischoxid werden insbesondere die O/M-Verteilung nachoxidiert unbestrahlter Tabletten, die Brennstoffumverteilung und die Bildung neuer Phasen in bestrahlten Brennstäben sowie die Zusammensetzung der Lösungsrückstände angegeben.

Abstract

The uranium/plutonium and oxygen/metal homogeneities are measured for KNK II/1 standard mixed oxides and for AUPuC mixed oxides irradiated in the FR 2-Vg. 7/II experiment within the different stages of the fuel cycle. The U-Pu distribution in unirradiated pellets, in irradiated pins and in the undissolved fraction of the fuel after the reprocessing is measured in standard mixed oxides. The concentration and the distribution of the plutonium in the blankets of pins from different irradiation experiments are given. For the AUPuC mixed oxides are determined in particular the oxygen distribution of after-oxidized unirradiated pellets, the fuel relocation and the formation of new phases in irradiated pins, and the composition of the residues from the dissolution of the fuel.

Eine gleichmäßige Verteilung des Plutoniums, Urans und Sauerstoffs in Schnellbrüter-Mischoxidtabletten ist wünschenswert für ein günstiges Bestrahlungsverhalten und notwendig für ein gutes Auflösungsvermögen des Brennstoffs in Salpetersäure nach der Bestrahlung. In diesem Beitrag wird daher die Verteilung der drei Komponenten des Mischoxidbrennstoffs in verschiedenen Stadien des Brennstoffkreislaufs, nämlich bei der Fertigung, der Nachuntersuchung bestrahlter Brennstäbe und der Wiederaufarbeitung des Brennstoffs, aufgezeigt. Das Herstellungsverfahren hat einen entscheidenden Einfluß auf das Bestrahlungs- und das Auflösungsverhalten des Mischoxids. Daher wird das Verhalten eines nach dem früheren Standardverfahren durch mechanisches Mischen hergestellten Oxids dem Verhalten eines durch Ko-Konversion gebildeten Oxids gegenübergestellt. Darüber hinaus werden experimentelle Ergebnisse mitgeteilt zur Konzentration und Verteilung des Plutoniums im Blanket von Brennstäben verschiedener Schnellbrüter-Bestrahlungsexperimente am Ende des Abbrands.

1. Die Homogenität des Brennstoffs im Kreislauf der KNK II-Erstcorebeladung

Das früher eingesetzte Standard-Fertigungsverfahren für den KNK II/1-Brennstoff zeichnet sich durch eine geringe Zahl von Einzelschritten aus, die das Mischen des Pulvers sowie das Pressen, Sintern und Schleifen der Tabletten umfassen. Das Ausgangsmaterial besteht aus UO_2 , PuO_2 und gegebenenfalls aus reaktiviertem Vorsinterprodukt $(U,Pu)O_2$. Während des Sintervorgangs der Tabletten wird eine Uran-Plutonium-Homogenisierung des Brennstoffs nicht erreicht. Die quantitative Verteilung des Urans und Plutoniums in Tabletten aus der Fertigung der Firma Alkem für die KNK II-Erstcorebeladung und die erste Nachladung ist in /1,2/ dokumentiert. Aus den Konzentrationsprofilen über dem Querschnitt der gesinterten Tabletten ergeben sich eindeutig verschiedene Stufen der Konzentration des Plutoniums, wie sie in den Ausgangspulvern vorlag. Die Verteilung des Urans und Plutoniums in unbestrahlten Tabletten aus der Fertigung der Firma Belgonucléaire wurde in Karlsruhe nicht untersucht; sie ist aber der Verteilung in den Alkem-Tabletten sehr ähnlich, wie die Ergebnisse in bestrahlten Brennstäben in den Bereichen niedriger Stabileistung zeigen.

Die Homogenisierung des Brennstoffs unter Bestrahlung und die Entmischung der Komponenten im Temperaturgradienten hängen von der Stableistung ab. In Abb.1 sind das Gefüge und die α -Autoradiographie am oberen Brennstoff-Brutstoff-Übergang eines bestrahlten Brennstabs (1B 222) aus dem Brenn-

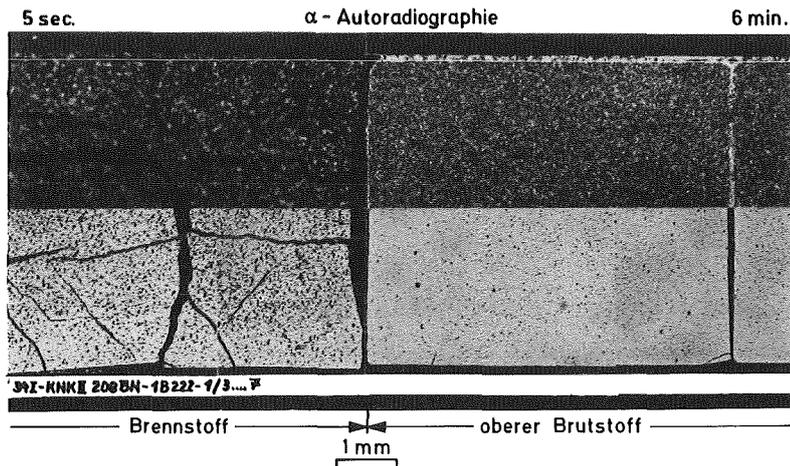


Abb.1. Gefüge (unten) und α -Autoradiographie (oben) am oberen Brennstoff-Brutstoff-Übergang des Stabes 1B 222 aus dem KNK II/1-Brennelement 208 BN, mittlerer Abbrand 1,5%.

element 208 BN der Belgonucléaire-Fertigung dargestellt. Der $U_{0,7}Pu_{0,3}O_{2-x}$ -Brennstoff hatte einen stabgemittelten Abbrand von 1,5%, der am oberen Ende bei 0,7% lag. Wegen der hier herrschenden niedrigen Stableistung von 18 kW/m ist eine Homogenisierung des Mischoxids nicht aufgetreten, wie sich aus den hellen plutoniumreichen Inseln in der α -Autoradiographie ergibt. Etwa 2 mm unterhalb des Brennstoff-Brutstoff-Übergangs (s. Abb.1) wurde die Uran- und Plutonium-Konzentration in Abhängigkeit vom relativen Brennstoffradius r/r_0 quantitativ bestimmt; sie ist in Abb.2 dargestellt. Der Brennstoff besteht aus zwei Pulverchargen, aus reinem UO_2 und PuO_2 mit geringem Mischkristallanteil, die unter Bestrahlung durch Interdiffusion nicht homogenisiert wurden. Der Abbau der Plutonium-Maxima in diesem kalten Stabbereich ist nur in sehr geringem Maße erfolgt.

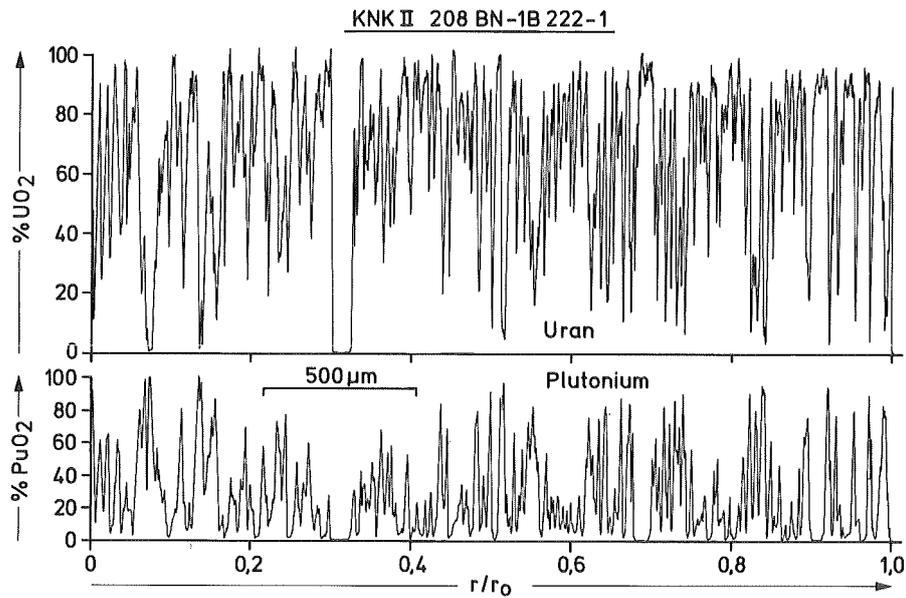


Abb.2. Konzentration des Urans und Plutoniums in Abhängigkeit vom relativen Radius des Brennstoffs in dem in Abb.1 angegebenen Brennstabbereich, lokaler Abbrand 0,7%.

Für die Auflösungsversuche des bestrahlten KNK II/1-Brennstoffs in 7N-Salpetersäure wurde ein Stab (A 1 1538) aus dem Brennelement 202 IA der Alkem-Fertigung ausgewählt, das bis zu einem mittleren Abbrand von 4,2% bei einer stabgemittelten Längenleistung von 34 kW/m, die am oberen Brennstoffende auf 17 kW/m abfiel, bestrahlt worden war. Nach der Auflösung lag ein Rückstand von 14% bezogen auf den Brennstoff vor /3/. Er enthält vorwiegend Mischoxidreste (> 97%) aus der Säulenkristallzone und aus der unrestrukturierten Zone (Abb.3). Die Plutonium-Konzentration im Rückstand beträgt etwa 30% bezogen auf dem Plutonium-Anteil im Brennstoff.

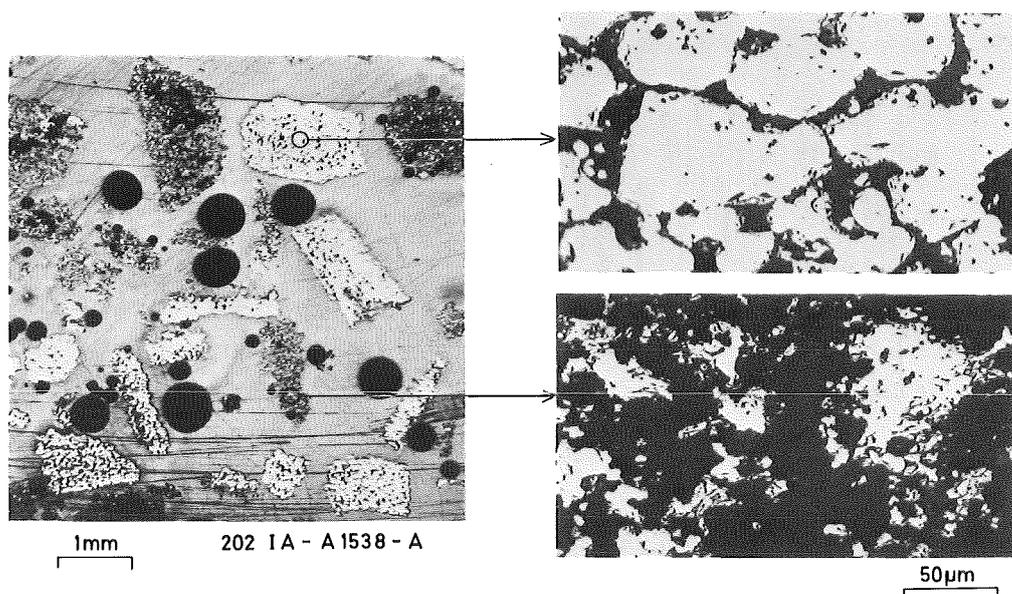


Abb.3. Brennstoff-Rückstände aus der Säulenkristallzone (oben) und aus der unstrukturierter Zone (unten) nach der Auflösung von KNK II/1-Mischoxid in $7n$ HNO_3 , Brennelement 202 IA, mittlerer Abbrand 4,2%.

Die Auflösbarkeit eines durch die Fertigung bedingten, stark U/Pu-inhomogenen Brennstoffs kann während seines Reaktoreinsatzes nur dann verbessert werden, wenn die Stableistung den Wert 25 kW/m überschreitet und somit eine genügend hohe Temperatur zur Homogenisierung des Brennstoffs vorliegt. Bei hohen Stableistungen und einem ungünstigen O/M-Ausgangsverhältnis tritt andererseits eine radiale U/Pu-Entmischung des Brennstoff mit einer Pu-Anreicherung bis zu 50% der mittleren Pu-Konzentration am Zentralkanal auf, die zu einer Verschlechterung der Auflösbarkeit führt, wenn die Pu-Konzentration den Wert 35% PuO_2 im Mischoxid übersteigt /4/. Rückstände aus beiden Bereichen des Brennstoffs wurden nachgewiesen: Mischoxid aus der Säulenkristallzone mit Werten bis 42% PuO_2 und aus der unstrukturierter Brennstoffzone mit Werten bis 100% PuO_2 (Abb.4). In geringer Konzentration ($< 3\%$) wurden Ausscheidungen der während des Reaktoreinsatzes gebildeten hexagonalen Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Legierung beobachtet, die vom Brennstoff umschlossen waren und somit in der Salpetersäure nicht aufgelöst werden konnten.

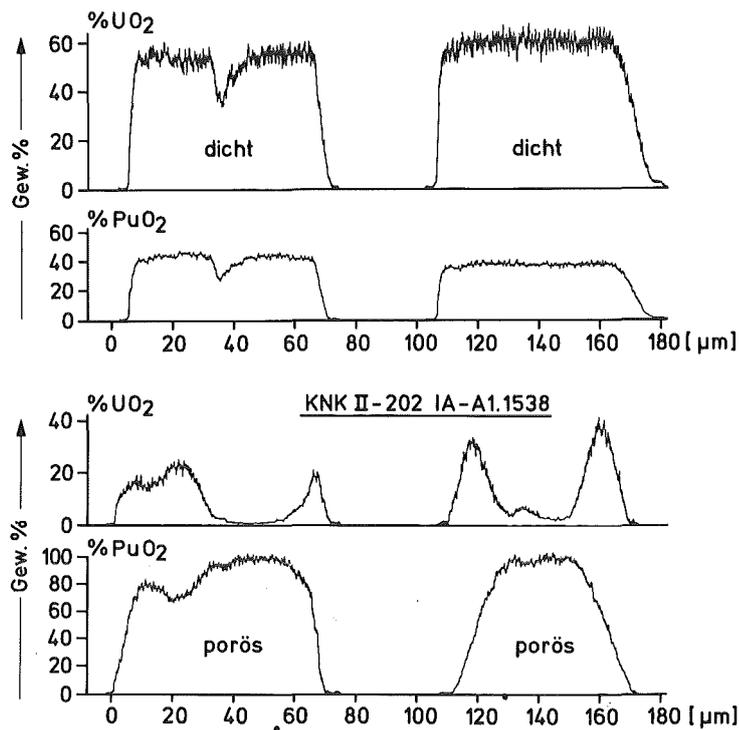


Abb.4. Konzentration des Urans und Plutoniums in den Primärpartikeln der in Abb.3 dargestellten dichten und porösen Rückstände.

2. Die Homogenität des Brutstoffs in Brennstäben verschiedener Bestrahlungsexperimente

Die Höhe des in den Blankets während des Bestrahlungsverlaufs gebrüteten Plutoniums ist ein experimentell bestimmbarer Basiswert für die Berechnung der Bruttrate in schnellen Brutreaktoren. Die Konzentration des gebrüteten Plutoniums unter Berücksichtigung des während des Betriebs wieder abgebrannten Anteils beträgt in der ersten und zweiten Tablette des oberen Blankets des Brennstabs 1B 222 aus dem Brennelement 208 BN der Belgonucléaire-Fertigung 0,7% PuO₂ bezogen auf den Brutstoff bei einer totalen lokalen Neutronendosis von $8 \cdot 10^{21}$ n/cm². Das Plutonium ist als Oxid homogen im Brutstoff gelöst. Die in der α -Autoradiographie (Abb.1) wegen der langen Belichtungszeit von sechs Minuten vorgetäuschten Inhomogenitäten existieren nicht. Es wurde keine Abhängigkeit der Plutoniumkonzentration vom Brutstoffradius festgestellt.

Für verschiedene Schnellbrüter-Bestrahlungsexperimente mit unterschiedlichem Anteil an spaltbarem Material und Abbrand wurde die Konzentration

des bei Abbrandende vorliegenden Plutoniums im Blanket am jeweils heißen Ende der Brennstäbe bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abb.5 in Abhängigkeit von der totalen lokalen Neutronendosis dargestellt. Der jeweils maximale Abbrand des Brennstabs ist zur Orientierung angegeben; dieser Parameter steht jedoch in keinem unmittelbaren Zusammenhang mit der Konzentration des gebrüteten Plutoniums. Bei hoher Dosis (z.B. Bestrahlungsexperiment Athena Vb) wurde eine meßbare Abnahme der Konzentration des gebrüteten Plutoniums in der Achse des Brutstoffs um Werte bis zu 10% gegenüber der Konzentration an der Brutstoffoberfläche nachgewiesen. Zum

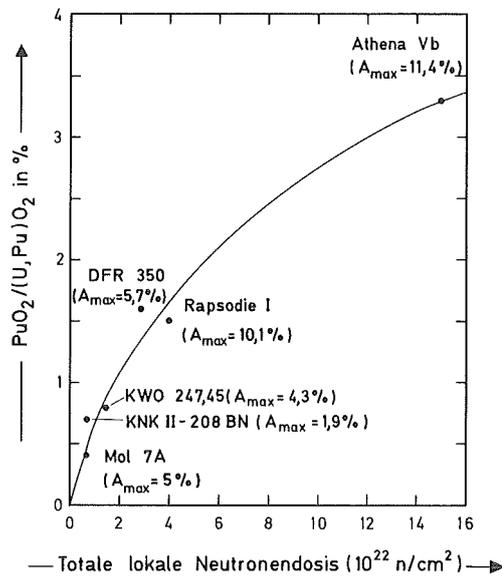


Abb.5. Gebrütetes Plutonium im Blanket der Brennstäbe verschiedener Bestrahlungsexperimente bei Abbrandende in Abhängigkeit von der Dosis; zum Vergleich: Pu-Konversion im einem LWR-Brennstab.

Vergleich ist in Abb.5 ferner die radiusgemittelte Plutonium-Konzentration in einem UO_2 -Brennstab aus einem LWR-Brennelement dargestellt /5/. Bei Abbrandende lagen für diese KWO-Bestrahlung 0,8% PuO_2 bei einer totalen Dosis von $1,4 \cdot 10^{22} \text{ n/cm}^2$ und einem LWR-typischen Neutronenspektrum vor.

3. Die Homogenität des AUPuC-Brennstoffs im Kreislauf des FR 2 Vg.7/II-Bestrahlungsexperiments

Die Forderung nach einer verbesserten Auflösbarkeit des Mischoxids bedingte die Entwicklung neuer Brennstoffe. Der durch Kofällung als Ammoniumuranylplutonylcarbonat (AUPuC) und anschließende Calcinierung hergestellte Brennstoff zeichnet sich bereits vor Bestrahlung durch eine sehr gute Uran-Plutonium-Homogenität und Auflösbarkeit aus /2/. Da das spezifizierte O/M-Verhältnis des Mischoxids von $1,97 \pm 0,01$ /6/ für die FR 2-Vg. 7/II-Bestrahlung jedoch nicht eingehalten werden konnte, wurden die gefertigten Tabletten einer Nachoxidation in einer H_2O/H_2 -Atmosphäre unterworfen. Aus dem Gefüge des $U_{0,76}Pu_{0,24}O_{2-x}$ -Brennstoffs in Abb.6 erkennt man bereits, daß die Oxidation nicht vollständig verlaufen ist. Analysen mit der Röntgenmikrosonde ergaben in der Tat eine Abnahme der relativen Konzentration des Sauerstoffs mit zunehmendem Abstand von der Brennstoffoberfläche (Abb.7). Die Abnahme folgt einer liegenden Parabel bis zur Oxidationsfront; die Konzentration des Sauerstoffs ist im Tabletteninneren konstant. Dieser Bereich wurde unter Abdeckung des äußeren durch Röntgenbeugung analysiert. Es ergab sich eine Gitterkonstante von $a = (548,1 \pm 0,2)$ pm für das kfz. CaF_2 -Gitter des Mischoxids, die einem O/M-Verhältnis von 1,905 in diesem Bereich entspricht. Setzt man Proportionalität zwischen den mit der Röntgenmikrosonde gemessenen relativen Einheiten und der Gewichtskonzentration des Sauerstoffs im Mischoxid voraus, so ergibt sich an der Tablettenoberfläche eine Konzentration des Sauerstoffs, die einem O/M-Verhältnis des Brennstoffs von 2,04 entspricht. Die Integration des O/M-Verhältnisses über das gesamte Zylindervolumen der Tablette ist wegen der unterschiedlich dicken nachoxidierten Schicht unsicher; es ergibt ein Wert von $O/M = 1,97 \pm 0,02$. Das O/M-Verhältnis wurde an der Tablettenoberfläche nach Abschleifen von etwa $100 \mu m$ von der Zylindermantelfläche ebenfalls durch Röntgenbeugung bestimmt. Der erhaltene Wert für die Gitterkonstante $a = 545,4$ pm entspricht jedoch nur einem O/M-Verhältnis in dieser Schliffebene von 2,00. Das mittlere O/M-Verhältnis läge dann niedriger.

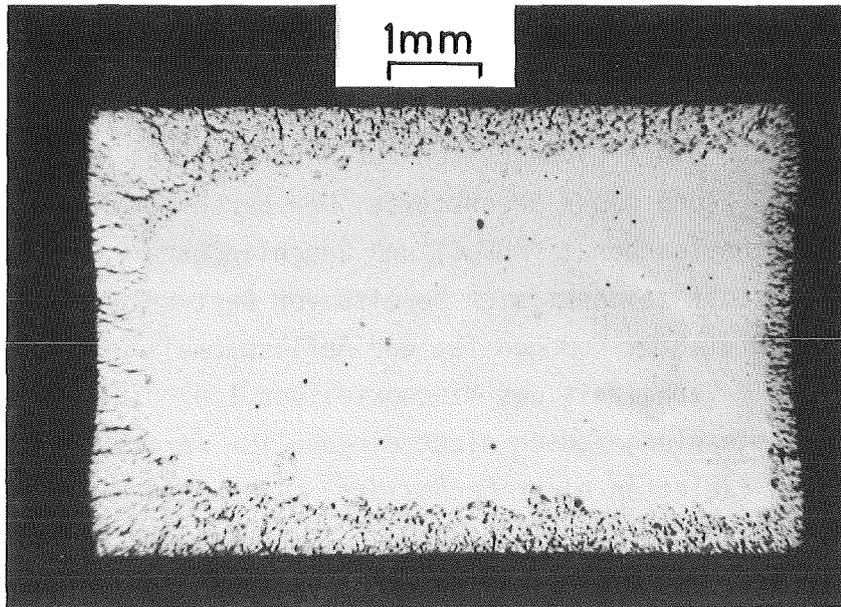


Abb.6. Gefüge einer nach dem AUPuC-Verfahren hergestellten unbestrahlten Mischoxidtablette mit $Pu/M = 0,24$.

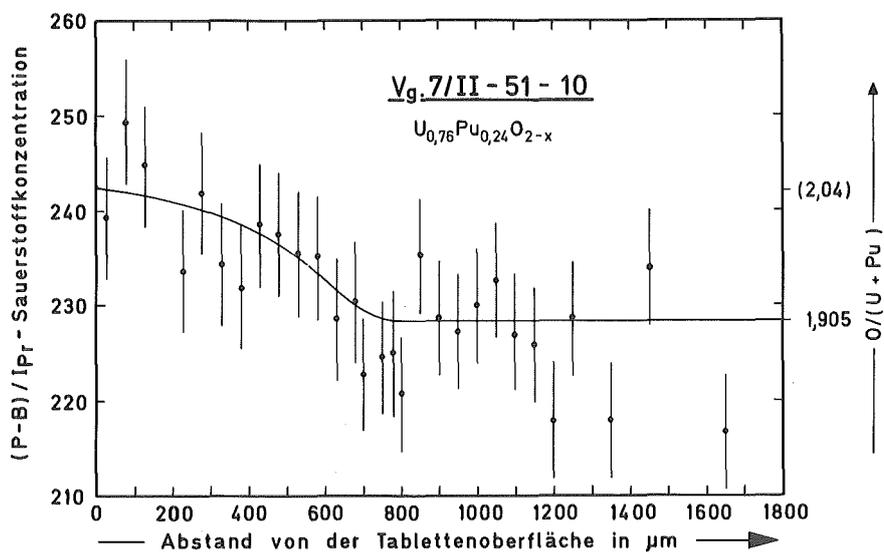


Abb.7. Relative Konzentration des Sauerstoffs und O/M-Verhältnis in Abhängigkeit vom relativen Radius einer nach dem AUPuC-Verfahren hergestellten, nachoxidierten unbestrahlten Mischoxidtablette mit $Pu/M = 0,24$.

Der sauerstoffinhomogene Brennstoff mit seinem niedrigen O/M-Verhältnis im Inneren der Tablette zeigt ein unerwartetes Bestrahlungsverhalten hinsichtlich der Bildung einer zweiten Brennstoffphase. Im radialen Temperaturgradienten während der Bestrahlung nimmt das O/M-Verhältnis im Brennstoffzentrum durch einen Entmischungsvorgang weiter ab, so daß sich bei einer geschätzten maximalen Brennstoffzentraltemperatur von 2700°C unterhalb eines O/M-Verhältnisses von 1,80 eine zweite Brennstoffphase am Zentralkanal bilden konnte. Die Analyse durch Röntgenbeugung (Prüfling 7/83 aus dem KVE 165) ergab im inneren Drittel des Brennstabquerschnitts ein mittleres O/M-Verhältnis von etwa 1,90 für die MO_{2-x} -Phase sowie eine sauerstoffärmere Brennstoffphase. Zur Interpretation dieser Ergebnisse sind eingehendere Untersuchungen zum Phasenaufbau des Systems U-Pu-O, insbesondere Konzentrationsschnitte in den quasi-binären Systemen $\text{U}_{1-y}\text{Pu}_y - \text{O}$ wünschenswert.

Der Prüfling 7/83 wurde nach einem Abbrand von 1,2% bei einer Stableistung von 50 kW/m in 7n Salpetersäure aufgelöst. Der Rückstand betrug 0,22% bezogen auf den Brennstoff /6/. Es wurden vorwiegend Spaltproduktoxidhydrate (>95%) beobachtet, die nach der vollständigen Auflösung der während des Abbrands gebildeten Mo-Tc-Ru-Rh-Pd-Legierung aus der salpetersauren Lösung durch Nachfällung entstanden sind. Die Plutonium-Konzentration im

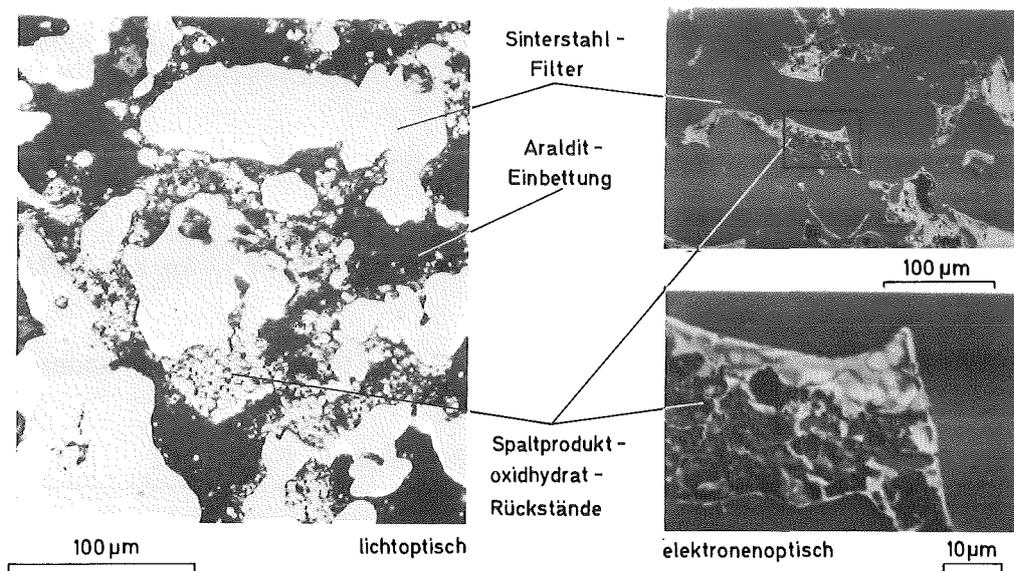


Abb.8. Rückstände nach der Auflösung von AUPuC-Mischoxid in 7n HNO₃, FR 2-Vg. 7/II, Prüfling 7/83, Abbrand 1,2%.

Rückstand liegt unter 0,05% bezogen auf den Plutonium-Anteil im Brennstoff. Der Rückstand konnte nicht isoliert werden, da die Masse nur 27 mg betrug. Er wurde daher für die Analysen zusammen mit dem Filter als Schliff präpariert (Abb.8).

Die Auflösbarkeit des KNK II/1-Brennstoffs wurde durch die während des Abbrands sich kompensierenden Einflüsse Mischkristallbildung und makroskopische Entmischung im Temperaturgradienten nicht verbessert. Etwa 30% des PuO_2 bezogen auf den PuO_2 -Anteil im Brennstoff blieben ungelöst. Dagegen ist die Auflösbarkeit des Vg. 7/II-AUPuC-Brennstoffs als sehr gut zu bezeichnen. Die PuO_2 -Konzentration ist mit Werten $<0,05\%$ bezogen auf den PuO_2 -Anteil im Mischoxid noch niedriger als die für unbestrahlten AUPuC-Brennstoff angegebene Konzentration /2/. Es ist jedoch zu beachten, daß der PuO_2 -Anteil im AUPuC-Brennstoff mit 24% niedriger als im KNK II/1-Brennstoff mit 30% war, so daß für diesen mit einer Verschlechterung der Auflösbarkeit durch die makroskopische Entmischung im Temperaturgradienten auch bei vollständiger Uran-Plutonium-Homogenität vor der Bestrahlung zu rechnen ist.

Literatur

- /1/ H. Kleykamp, H. Späte: unveröffentlichter Bericht 1975
- /2/ D. Hanus, H. Kleykamp: "Uran- und Plutonium-Verteilung in unbestrahltem Mischoxid-Brennstoff aus der industriellen Fertigung", J. Nucl. Mater. 106 (1982) 199-210
- /3/ H.J. Bleyl: persönliche Mitteilung, 1982
- /4/ H. Kleykamp: "Die Zusammensetzung von Rückständen bei der Auflösung von bestrahltem Schnellbrüter-Mischoxidbrennstoff", in KfK-3278 (1982) 100-113
- /5/ H. Kleykamp: "The Chemical State of LWR High-Power Rods under Irradiation", J. Nucl. Mater. 84 (1979) 109-117
- /6/ H.J. Ritzhaupt-Kleissl, D. Freund, P. Weimar, F. Bauer: unveröffentlichter Bericht 1982

ANFORDERUNGEN AN DEN BRENNSTAB UND AUSLEGUNG

K. Kummerer

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Institut für Material- und Festkörperforschung III

1. Kern- und Bündelauslegung

Die Auslegung des Reaktorkerns und die Auslegung des Brennelement-Bündels bedingen sich gegenseitig. Der Kern des Prototypreaktors SNR-300, wie er in Abb. 1 im Querschnitt schematisch gezeigt ist, umfaßt insgesamt 499 Kernplätze für die Spaltzone und die radiale Brutzone. Die Verteilung dieser Plätze auf die verschiedenen Kernelemente ist in Tabelle I aufgeführt. Hinsichtlich des inneren Aufbaus der Brennelemente ist der SNR-300-Erstkern MARK Ia vom Folgekern MARK II zu unterscheiden. Das Brennelement MARK Ia ist mit 6 mm-Brennstäben, das Brennelement MARK II mit Brennstäben des Durchmessers 7,6 mm bestückt. Die äußere Geometrie beider Brennelementtypen hingegen ist nahezu identisch.

In den weiterführenden Konzepten für einen Großbrüter SNR-2 sind die Kernabmessungen entsprechend der angestrebten Leistungsklasse deutlich größer. Dies führt auch zu neuen vergrößerten Brennelement-Maßen. Die geometrischen Verhältnisse im Vergleich zum SNR-300-Kern sind in Abb. 2 schematisch dargestellt.

Der Aufbau der Brennelemente und der Brennstäbe ist in den Tabellen II und III zahlenmäßig charakterisiert. Hierin sind die Daten für die beiden SNR-300-Kerne MARK Ia und MARK II sowie für ein derzeitiges Kernkonzept SNR-2 (1982) angeführt. Während die innere und äußere Konfiguration der Brennelemente und Brennstäbe den einmal gewählten prinzipiellen Aufbau beibehält,

wird in den quantitativen Auslegungsdaten die Entwicklungstendenz nach vergrößertem Stabdurchmesser und erhöhter Brennstoffdichte deutlich.

2. Nominale Beanspruchung der Brennstäbe

Eine formale Systematisierung der Betriebszustände unterscheidet zwischen dem Nominalbetrieb und einem anormalen Betrieb.

Der Nominalbetrieb eines Brennstabes umfaßt sowohl den stationären als auch den zeitlich variablen Leistungsbetrieb. Der generelle zeitliche Leistungsverlauf in einem Brennstab ist durch ein Betriebsschema gemäß Abb. 3 vorgegeben. Jeweils zu Anfang und zum Ende eines Zyklus werden Betriebstransienten durchlaufen, wie sie in den Abb. 4 und 5 für das betriebliche Anfahren und Abfahren des Reaktors in etwa angegeben sind. Im realen Kraftwerksbetrieb finden diese transienten Leistungsverläufe im allgemeinen weit häufiger statt, nämlich bei zwischenzeitlich notwendig werdenden Reaktorabschaltungen und nicht geplanten Leistungsänderungen. Bei Lastfolgebetrieb eines Brüterkraftwerkes sind derartige Betriebstransienten natürlich besonders zahlreich.

Die Beanspruchung der Brennstäbe im stationären Nominalbetrieb unter Volllast ist in Tabelle IV zusammengestellt. Dabei handelt es sich um Maximalwerte, die zeitlich und lokal unterschiedlich zutreffen. Hierbei wird besonders deutlich, daß die Entwicklungstendenz bei gleichbleibender Stableistung und Hülltemperatur in Richtung zunehmenden Abbrandes und damit zunehmender Hüllschädigung weist.

Einen Eindruck von der Leistungsverteilung über den Kernquerschnitt bekommt man aus Abb. 6. Besonders auffällig sind die hohen Gradienten an der Grenze zwischen den Kernzonen unterschiedlicher Spaltstoffanreicherung. Derartige Leistungsgradienten verursachen in Brennelementen nicht unerhebliche transversale Temperaturgradienten, wie eine detaillierte Berechnung gemäß Abb. 7 aufzeigt. Im axialen Temperaturverlauf in einem Bündel tritt die (in Tabelle IV angeführte) maximale Hülltemperatur an der Spaltzonenoberkante auf und zwar bei den höchstbelasteten Stäben. Je nach den lokalen Kühlungsverhältnissen kann es sich hierbei um Stäbe im Inneren des Bündels oder am Bündelrand handeln.

3. Anomale Beanspruchung der Brennstäbe

Hierbei sind zwei Klassen von Beanspruchungsarten zu unterscheiden, nämlich anomale betriebliche Zustände wie sie häufiger im realen Kraftwerksbetrieb auftreten und Störfälle, die zur abrupten Zerstörung der Brennstäbe führen und sehr selten auftreten.

Zu den so definierten anormalen betrieblichen Zuständen zählen wir

- Heißkanal-Bedingungen,
- Überlast-Bedingungen,
- Reaktorschnellabschaltung,
- Betrieb mit defekten Stäben.

Bei den Heißkanal-Bedingungen hat man zwischen extremer Stableistung und extremer Hülltemperatur zu unterscheiden. Beide Extremalzustände müssen nicht zu gleicher Zeit am selben Stab eintreten. Sie werden separat berechnet, wobei jeweils extreme Spezifikationswerte und Betriebsparameter unter Berücksichtigung von Wahrscheinlichkeiten kombiniert werden. Diese Vorgehensweise führt dann zu Heißkanalfaktoren, wie sie in Tabelle V in einem (vereinfachten) Berechnungsbeispiel aufgeführt sind.

Während ein Heißkanalbetrieb nur einzelne Stäbe innerhalb eines Bündels betrifft - eben die Stäbe, die an den Heißkanal angrenzen -, können ganze Brennelemente oder sogar der ganze Reaktorkern unter stationärer Überlast stehen. Auch kurzzeitige Überlast-Transienten sind nicht auszuschließen. Ein solcher Überlastbetrieb kann beispielsweise bis 120 % der Nominallast gehen und dann zu einer Beanspruchung der Brennstäbe führen wie etwa unter Heißkanal-Bedingungen.

Eine (definitionsgemäß nicht geplante) Reaktorschnellabschaltung verursacht erhebliche Temperatur- und Spannungsgradienten. Ein typischer zeitlicher Verlauf ist in Abb. 8 skizziert.

Bei der sehr großen Anzahl der Brennstäbe in einem Reaktorkern treten immer wieder einzelne Stabdefekte auf, die entweder nicht sofort erkannt und lokalisiert werden können oder deren Existenz man aus betrieblichen Gründen für eine gewisse (begrenzte) Zeit in Kauf nimmt. Der Betrieb mit einzelnen defekten Stäben ist im allgemeinen tolerabel, solange die Kontamination des primären Kühlkreislaufes eng begrenzt bleibt und solange keine Propagation des Schadens

mit der Gefahr eines Kühlstörfalles befürchtet werden muß. Um das diesbezügliche Verhalten defekter Brennstäbe richtig einschätzen zu können, sind statistisch relevante Betriebserfahrungen sowie die Ergebnisse gezielter Einzelexperimente nötig.

Zu der Klasse seltener Störfälle, die gleichwohl bei der Sicherheitsbeurteilung mit erfaßt werden, gehören

- sehr schnelle Leistungstransienten (TOP) und
- Kühlmitteldurchflußstörungen (LOF).

TOP steht hierbei für "transient overpower" und LOF für "loss of flow". Sowohl TOP- als auch LOF-Bedingungen führen zu einer schnellen Zerstörung der betroffenen Stäbe. Bei den (mehr hypothetischen) TOP-Störfällen steigt die Leistung innerhalb von Millisekunden um beispielsweise drei Zehnerpotenzen an. Die sicherheitsrelevante Fragestellung bezieht sich auf die Beherrschung eines derartigen Störfalles. Dies gilt ebenso für LOF-Störfälle, die im Verlauf von Sekunden (beim "Loop"-Reaktor) oder Minuten (beim "Pool"-Typ) totalen Kühlungsausfall hervorrufen können.

5. Anforderungen vom äußeren Brennstoffkreislauf

Vom äußeren Brennstoffkreislauf her ist eine zentrale Anforderung die möglichst vollständige Löslichkeit des Mischoxid-Brennstoffes in Salpetersäure unter den üblichen Headend-Bedingungen einer Wiederaufarbeitungsanlage. Kriterium hierbei ist der Restbetrag an ungelöstem Plutonium. Eine notwendige Bedingung hierfür ist die gute Löslichkeit des frischen Brennstoffes. Man kann sich nur partiell darauf verlassen, daß im Laufe des Abbrandes die Löslichkeit bedingende Mischkristallbildung vorangetrieben wird. Zumindest in den Bereichen niedrigerer Stabileistung - also z.B. an den Enden der Brennstoffzone im Stab - werden die Temperaturen hierfür nicht ausreichen. Diese notwendige Löslichkeitsbedingung für den frischen Brennstoff ist deshalb nicht auch hinreichend, weil der Aufbau der Spaltprodukte die Löslichkeit beeinflussen kann.

Eine weitere Anforderung bezieht sich auf die Handhabbarkeit und Zerlegbarkeit des Brennelementes nach der Bestrahlung. Dieser Gesichtspunkt ist heute noch nicht genau zu spezifizieren. Er ist im Zusammenhang mit der Ausgestaltung der Eingangsstufe zur Wiederaufarbeitung zu sehen. In dieselbe Richtung weist

die noch offene Frage, ob ein Brennelement mit einzelnen Stabdefekten repariert werden kann. Zu letzterem gibt es ermutigende experimentelle Ergebnisse an Brennelement-Attrappen.

5. Anforderungen von der Reaktorsicherheit

Dieser Komplex wird aus mehreren Quellen gespeist, die bereits in vorstehenden Kapiteln angeklungen sind. Zusammenfassend seien folgende Stichworte erwähnt:

- Die Brennstabhülle stellt die erste Barriere für Spaltstoff und Spaltprodukte dar. Sie muß dicht bleiben unter den normalen und anormalen betrieblichen Zuständen.
- Die makroskopische Brennstoffverteilung längs des Stabes darf sich nicht wesentlich ändern. Eine axiale Brennstoffverschiebung ("slumping") könnte schwer beherrschbare Heißstellen verursachen bis hin zu unkontrollierbarer Rekritikalität.
- Die Kühlbarkeit muß auch bei extremen Zuständen, d.h. bei Stab- und Bündelschäden erhalten bleiben.

Diese Anforderungen von der Reaktorsicherheit her führen zu Auslegungsgrenzen für Brennstab und Bündel. In einiger Vereinfachung läßt sich der logische Zusammenhang gemäß Tabelle VI beschreiben.

6. Konstruktive Auslegung des SNR-300-Brennelementes

Das Brennelement des SNR-300 ist ein Stabbündel mit hexagonalem Querschnitt. Die geometrischen Daten der MARK Ia- und der MARK II-Version wurden bereits in den Tabellen II und III gegeben. Die Stäbe werden im Bündel durch Gitterabstandshalter positioniert und fixiert. Der hexagonale Bündelkasten, an den bei MARK II die Abstandshaltergitter über "Schürzen" befestigt sind, bildet die äußere Umschließung des Bündels. Fußteil und Kopfteil sind nach den konstruktiven Anforderungen für die Positionierung des Brennelementes im Reaktorkern sowie für das Be- und Entladen ausgebildet. Abb. 9 gibt die Konstruktion in einer Übersichtszeichnung wieder.

Im Vergleich zu den Brennstäben anderer Prototypreaktoren - siehe hierzu Abb. 10 - fällt die Ähnlichkeit zu PHENIX und PFR auf. In allen 3 Fällen ist der Spaltgasraum unten, d.h. am (kühleren) Einlauf des Natrium angeordnet. Die größere Länge des SNR-300-Stabes ist vor allem durch das integrierte obere axiale Blanket bedingt.

7. Zusammenfassende Bemerkungen

Aus der Gesamtauslegung des Reaktorkerns als Vorgabe folgen die Rahmendaten der Brennelement-Auslegung. Die nominale Beanspruchung der Brennstäbe ist von daher genau spezifizierbar. Auch die anormalen, d.h. die nicht geplanten, jedoch real auftretenden Betriebszustände lassen sich auf Grund praktischer Erfahrung experimentell und rechnerisch eingrenzen. Weit schwieriger ist dies bei den echten Störfällen, deren Konsequenzen aus einzelnen Simulationsexperimenten erschlossen werden müssen. Die Anforderungen vom äußeren Brennstoffkreislauf her sowie von der Reaktorsicherheit sind teils quantitativ, zumindest aber qualitativ angebbbar. Die tatsächliche konstruktive Auslegung des SNR-300-Brennelementes steht im Einklang mit den heute spezifizierbaren Anforderungen, wiewohl das ganze Konzept und die Auslegungsdaten wesentlich früher festgelegt worden sind.

Ich danke Herrn U. Wehmann, Interatom GmbH, Bergisch Gladbach, für die Durchsicht und Aktualisierung von Zahlenwerten in den Tabellen.

Tabelle I: Verteilung der Kernplätze im SNR-300

SNR-300 Kern Brennstabdurchmesser	MARK-Ia 6 mm	MARK-II 7,6 mm
Kernplätze	499	499
Spaltzone	217	217
Brutzone	282	282
Brennelemente insgesamt	193/196/199	205
BE in der inneren Zone	103/106/109	115
BE in der äußeren Zone	90	90
Regeltrimmelemente	9	9
Zweitabschaltsystem	3	3
Blindelemente	12/9/6	-
Brutelemente	96	96
Reflektorelemente	186	186

Tabelle III: Aufbau der Brennstäbe

	SNR-300		SNR-2
	MK Ia	MK II	(1982)
Stabdurchmesser (mm)	6,0	7,6	8,5
Stablänge (mm)	2475		~3000
- Oberer Brutmantel (mm)	400		300
- Spaltzone (mm)	950		1000
- Unterer Brutmantel (mm)	400		300
- Spaltgasplenum (mm)	655		1300
Brennstoff	UO ₂ -PuO ₂ -Mischoxid		
- Pu-Gehalt C1 (%)	24	20	17
- Pu-Gehalt C2 (%)	34	27	22
- Brennstoffdichte (% th.D.)	86	92	~95
- Schmierdichte (% th.D.)	80	87	~89
Hüllwand	1.4970 kv/a	1.4970 kv	1.4970 kv
- Wandstärke (mm)	0,38	0,50	0,565

Tabelle II: Aufbau der Brennelemente

	SNR-300		SNR-2 (1982)
	MK Ia	MK II	
Stabdurchmesser (mm)	6,0	7,6	8,5
Elementlänge (mm)	3700		4850
Querschnitt	hexagonal		
Teilungs-Schlüsselweite (mm)	115		185
Äußere Schlüsselweite des Kastens (mm)	110	108	180
Stabplätze	169	127	271
- Brennstäbe	166	127	271
- Stützstäbe	3	0	0
Gitterteilung (mm)	7,9	8,8	10,2
P/D-Verhältnis	1,32	1,16	1,20
Abstandshalter			
- Ausführung und Befestigung	punktgeschweißtes Wabengitter an den Strukturstäben befestigt	funkenerodiertes Wabengitter mit Schürzen am Hüllkasten befestigt	
- Stützabstand in der Spaltzone	145 - 165 mm	145 - 165 mm	~ 200 mm
- Anzahl in der Spaltzone	6	6	6
- Anzahl, gesamt	14	15	15
- Stabhalteplatte	1	-	-

Tabelle IV: Beanspruchung der Brennstäbe im stationären Betrieb
- Nominalwerte

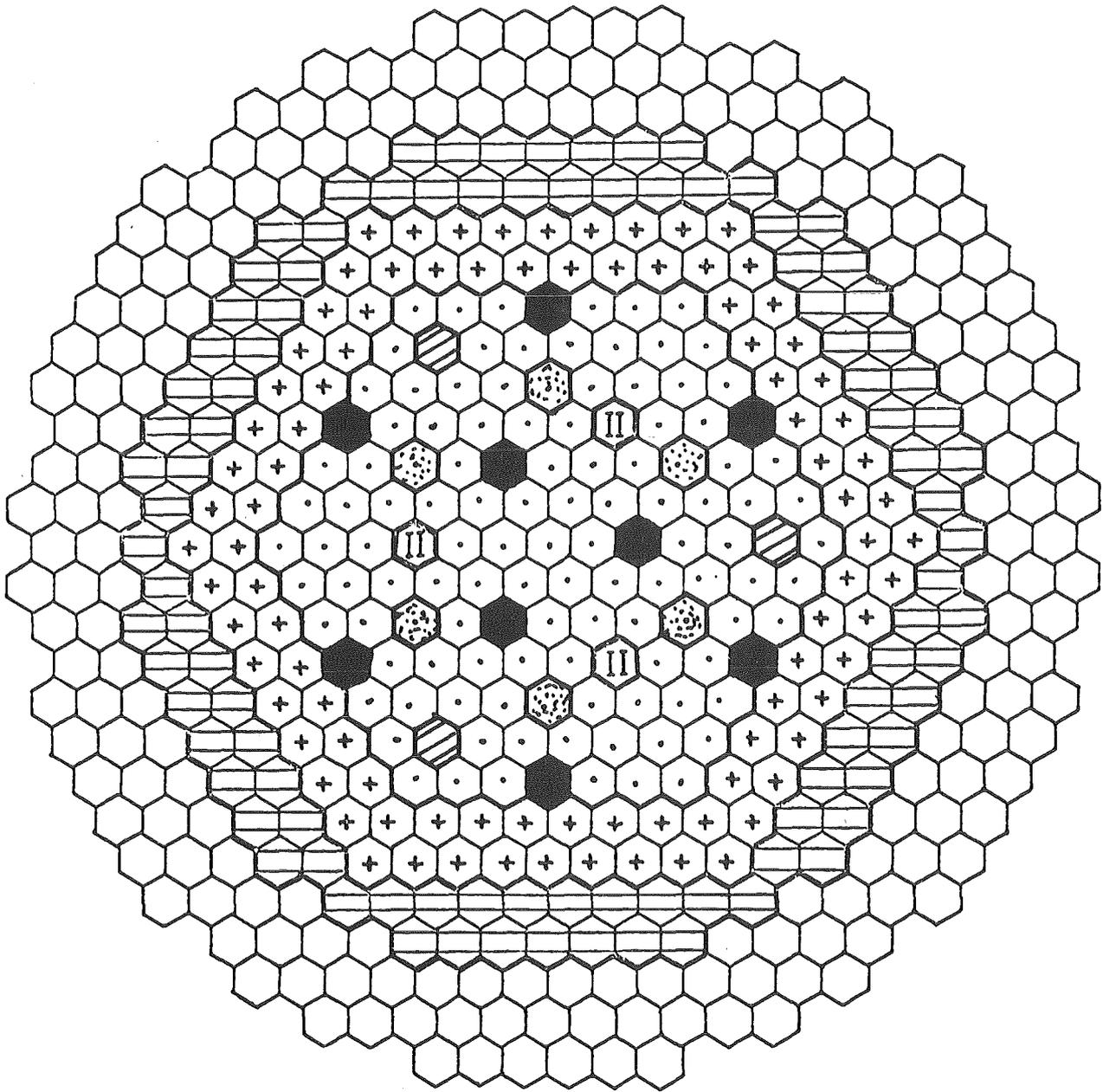
	SNR-300		SNR-2 (1982)
	MK Ia	MK II	
Stabdurchmesser (mm)	6,0	7,6	8,5
Max. Stableistung (W/cm)	350	450	~ 450
Standzeit (VL-Tage)	441	570	~ 1200
Zykluszeit (VL-Tage)	147	190	~ 400
Max. lokaler Abbrand (MWd/kg M)	85	85	~ 140
Max. Neutronenfluß (n/cm ² s) (> 0,1 MeV)	4,0·10 ¹⁵	4,0·10 ¹⁵	~ 3,0·10 ¹⁵
Max. Neutronendosis (n/cm ²)	2,3·10 ²³	3,2·10 ²³	~ 4,7·10 ²³
Hüllschädigung (NRT-dpa)	67	90	~ 140
Max. Hülltemperatur (°C)	610	610	590

Tabelle V: Heißkanal-Bedingungen (Berechnungsbeispiel)

	SNR-300	
	MK Ia	MK II
Max. Stableistung, nominal (W/cm)	350	450
Heißkanalfaktor der Stableistung	1,26	1,26
Max. Stableistung, extremal (W/cm)	441	567
Max. Hülltemperatur, nominal (°C)	610	610
Kühlmittel-Aufwärmspanne (K)	200	200
Heißkanalfaktor der Aufwärmspanne	1,30	1,30
Max. Hülltemperatur, extremal (°C)	670	670

Tabelle VI: Gesichtspunkte und Kriterien für die Auslegung

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



- | | | | |
|---|-------------------------------|---|----------------------|
|  | Brennelement
(Innere Zone) |  | Zweitabschaltelement |
|  | Brennelement
(Äußere Zone) |  | Brutelement |
|  | Regeltrimmelement |  | Stahlreflektoren |
|  | B ₄ C Diluent |  | Na Diluent |

Abb. 1: Querschnitt des SNR-300 mit MARK Ia-Kern (2. Zyklus)

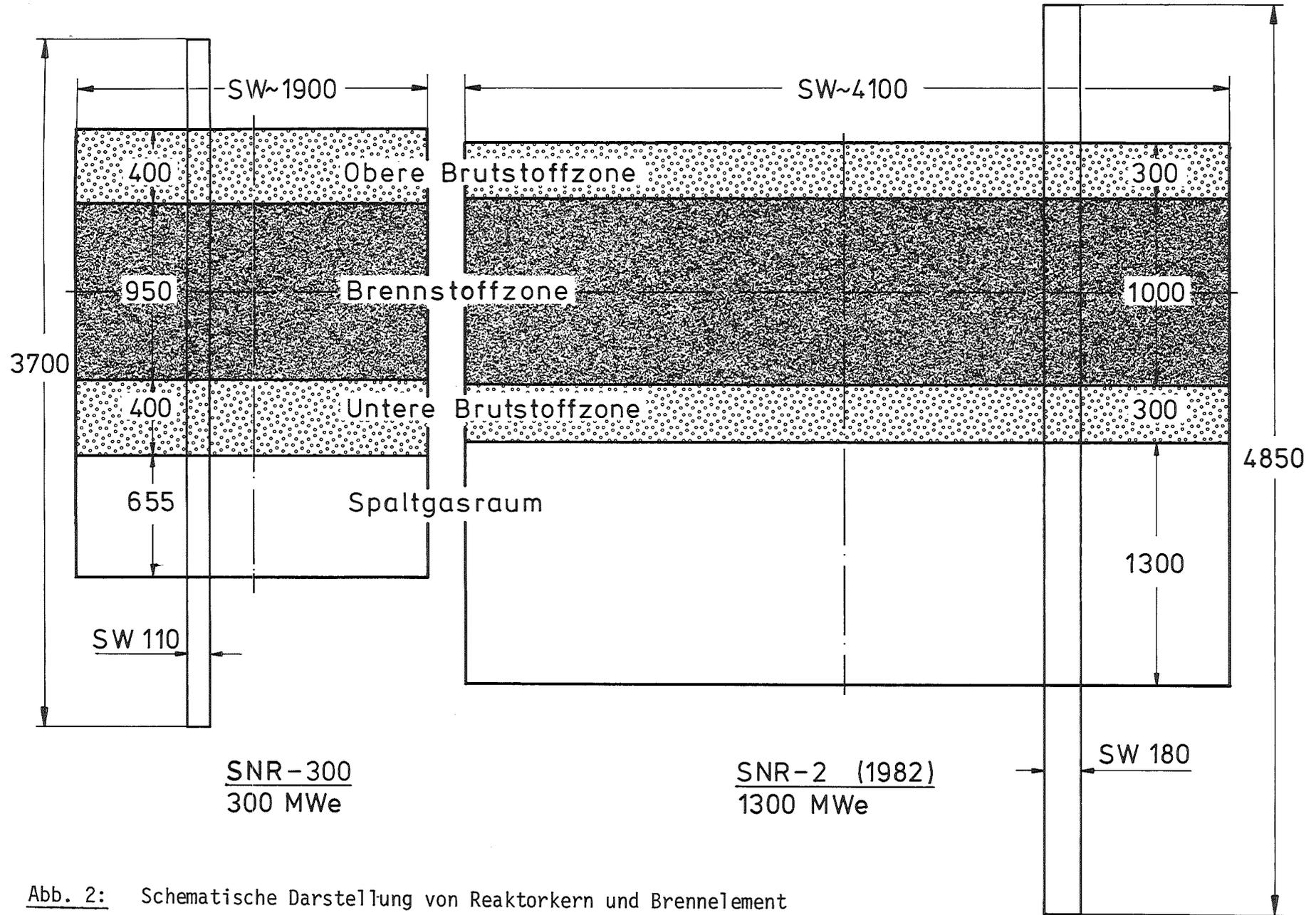


Abb. 2: Schematische Darstellung von Reaktorkern und Brennelement (ohne radialen Brutmantel)

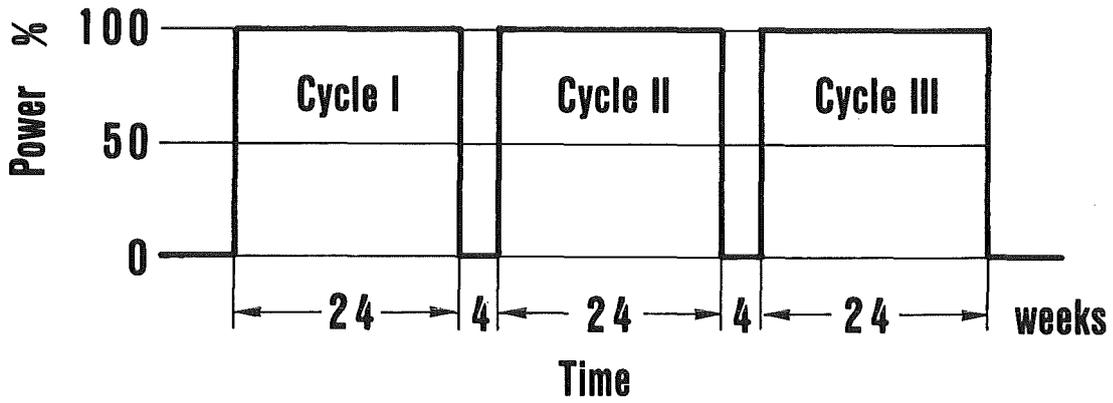
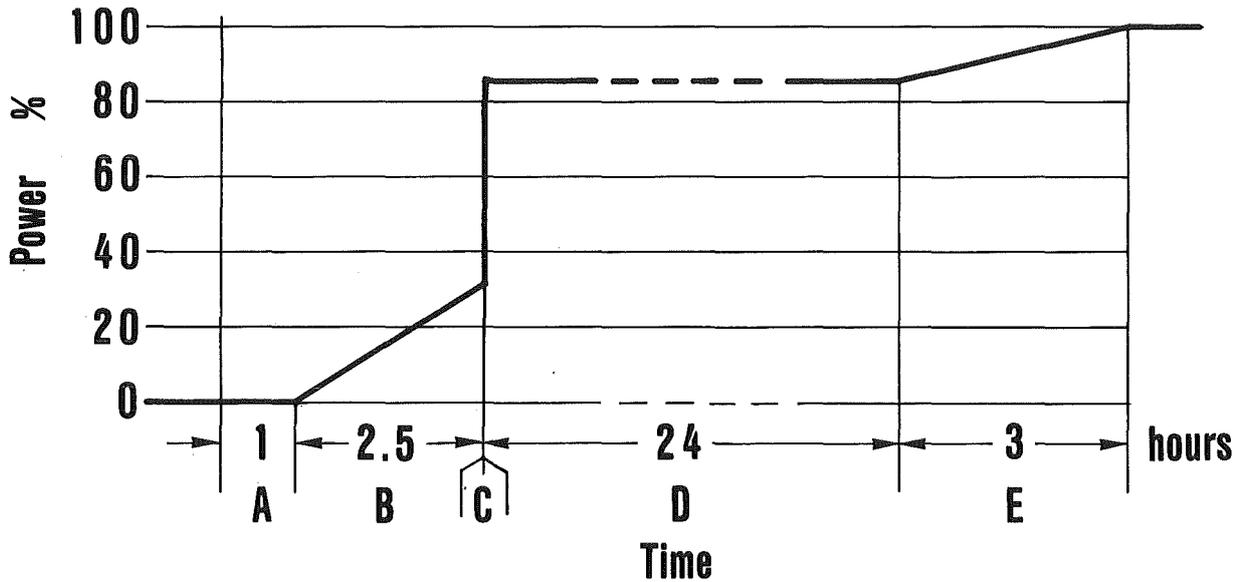
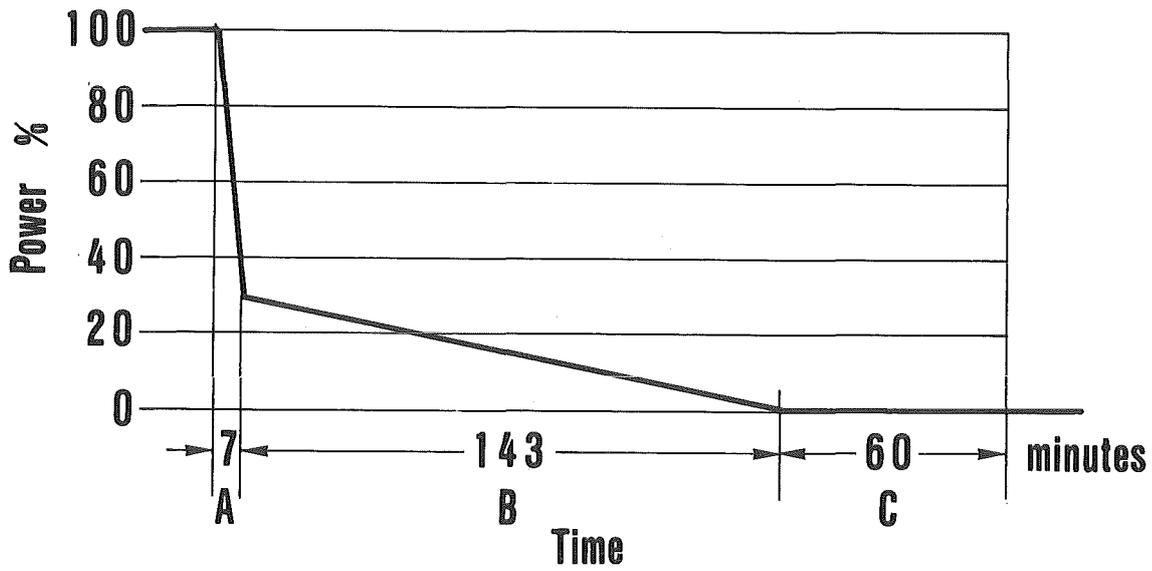


Abb. 3: Standard-Betriebsschema im SNR-300



- A: 0 bis 1 % in 1 h
- B: 1 " 30 % in 144 min (ca. 0,2 %/min)
- C: 30 " 85 % in 6 min (ca. 10 %/min)
- D: 24 h Haltezeit bei 85 %
- E: 85 bis 100 % in 3 h (5 %/h)

Abb. 4: Anfahr-Betriebsschema



- A: 100 % bis 30 % in 7 min.
- B: 30 % " 1 % in 143 min.
- C: 1 % " 0 in 60 min.

Abb. 5: Abschalt-Betriebsschema

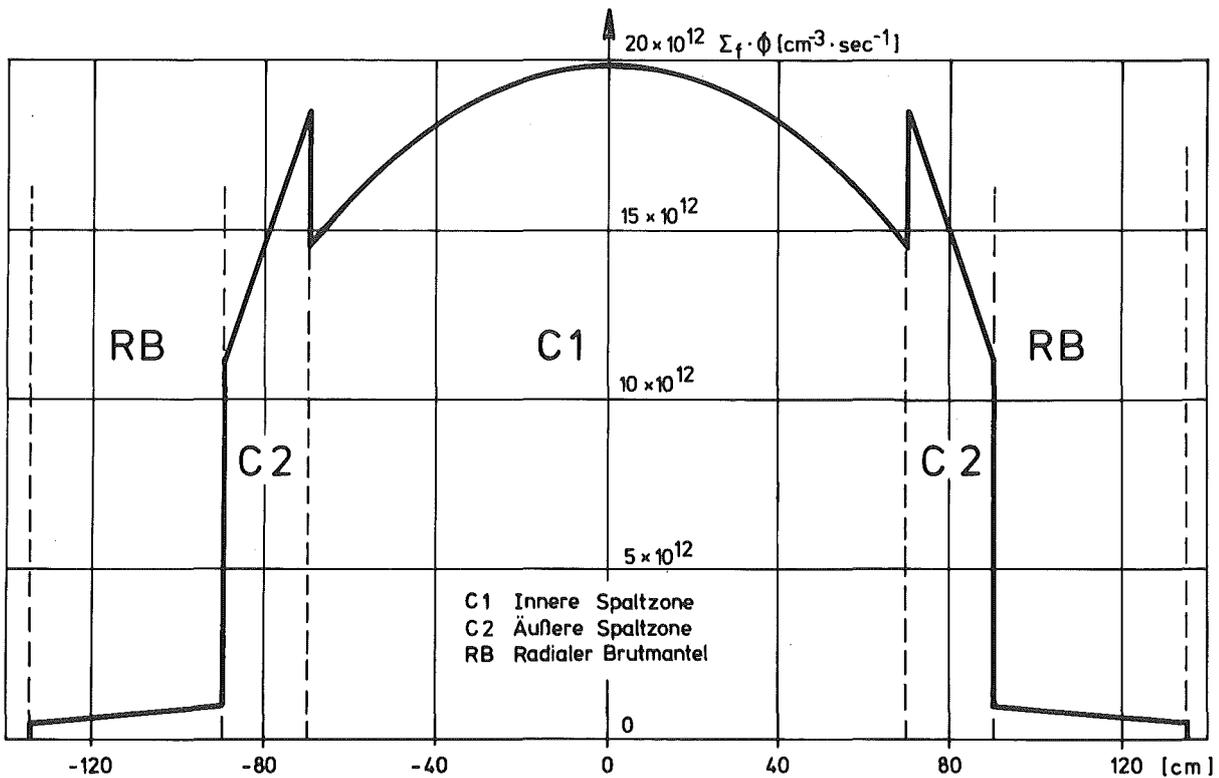


Abb. 6: Leistungsverteilung über den Kernquerschnitt

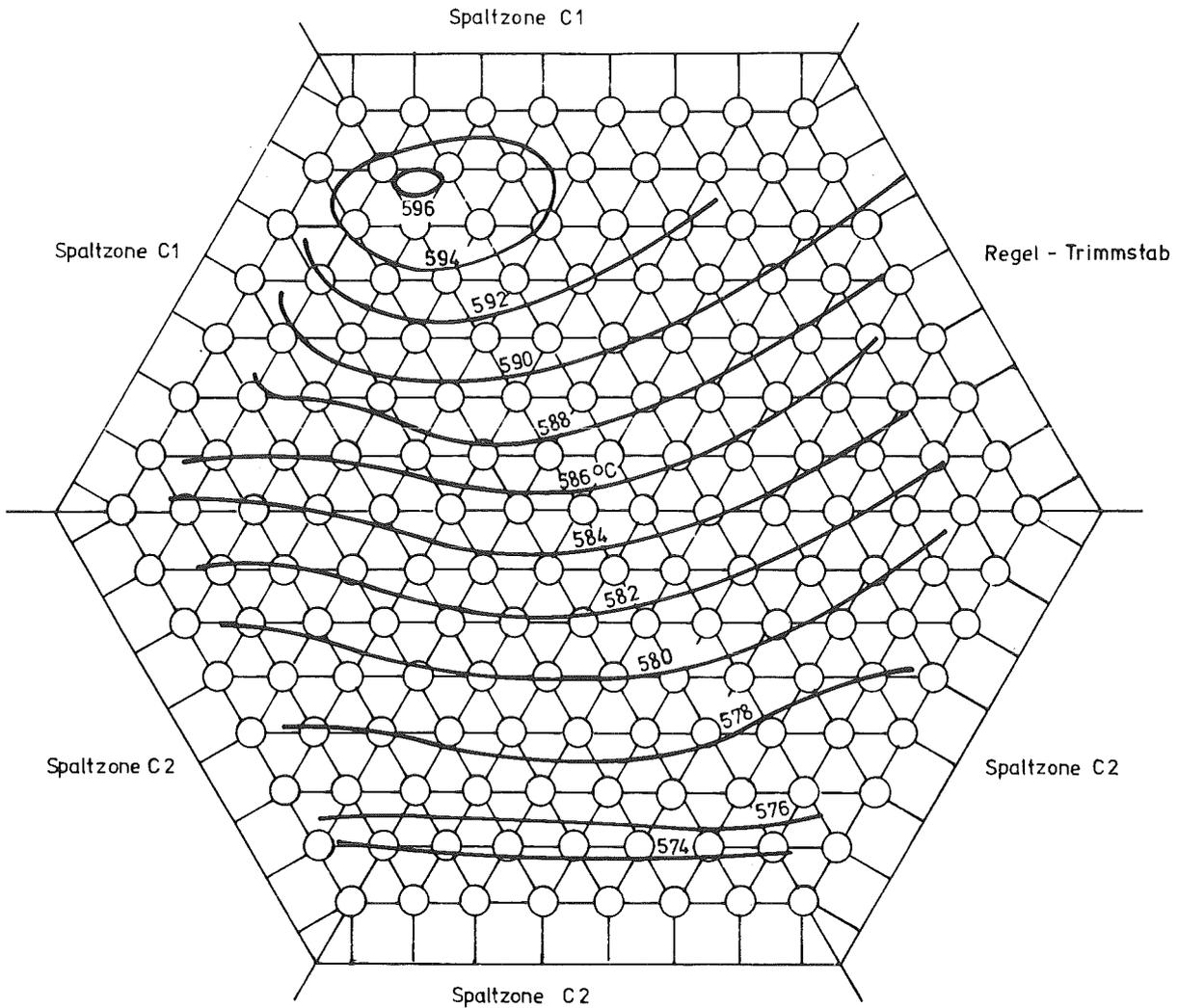
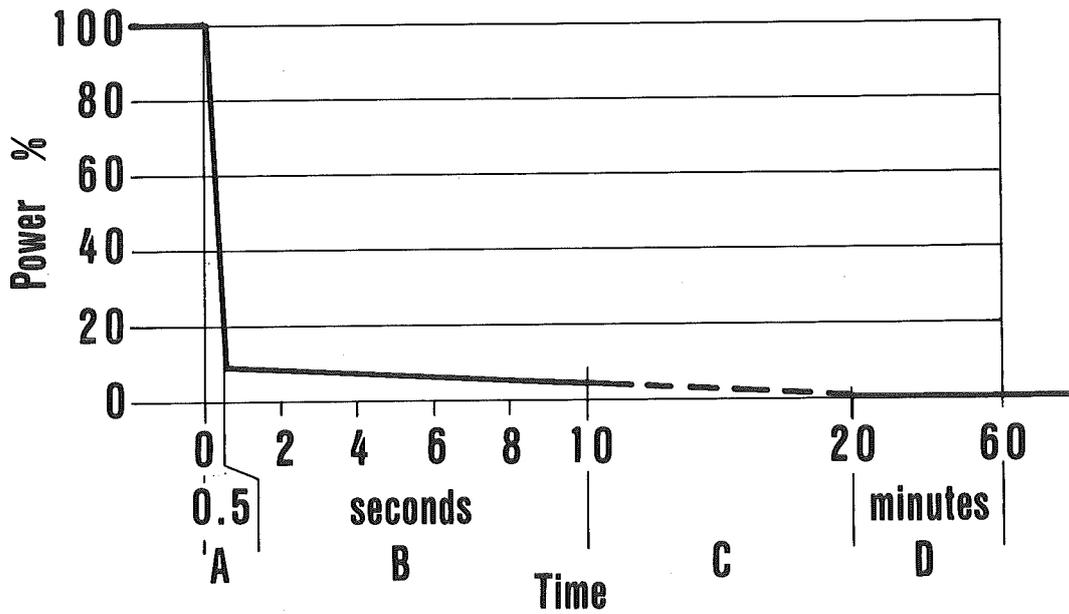


Abb. 7: Kühlmittelisothermen in einem Brennelement an der Spaltzonenoberkante



- A: 100 % bis 10 % in 0,5 sec.
- B: 10 % " 5 % in ca. 10 sec.
- C: 5 % " 1 % in ca. 20 min.
- D: 1 % " 0 in 40 min.

Abb. 8: Verlauf einer Reaktor-Schnellabschaltung

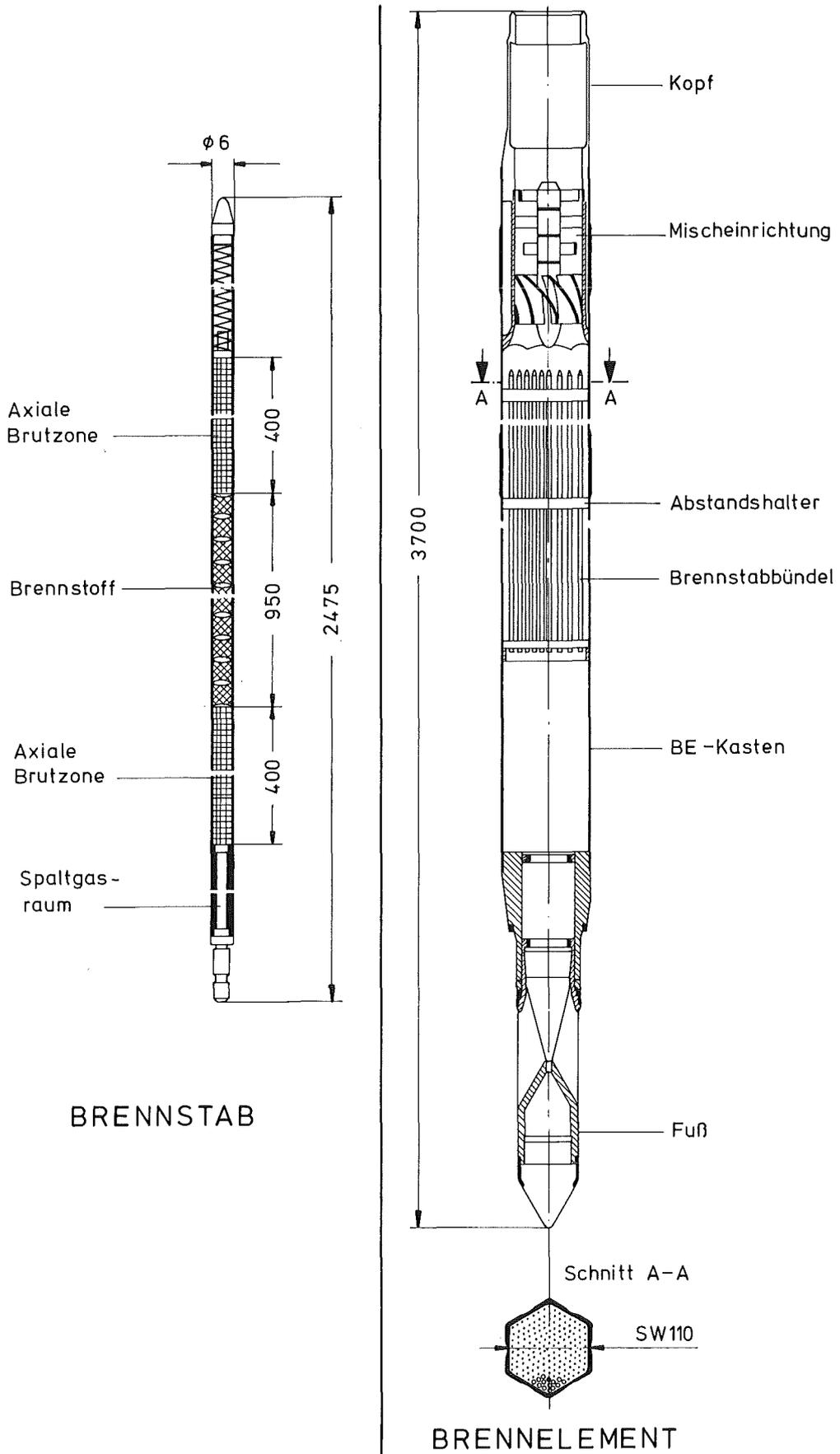


Abb. 9: SNR-300-Brennelement MARK Ia

Brennstoffverhalten und Brennstabversagensmöglichkeiten

W. Dienst

Kernforschungszentrum Karlsruhe
Institut für Material- und Festkörperforschung I

1. Einleitung

In diesem Beitrag sollen diejenigen Möglichkeiten des Versagens von Schnellbrüter-Oxidbrennstäben behandelt und beurteilt werden, die primär auf den Eigenschaften und dem Verhalten des Brennstoffes unter normalen Betriebsbedingungen beruhen. Mögliche Hüllschäden, die vorwiegend auf Eigenheiten bzw. Eigenschaften der Brennstabhülle zurückzuführen sind, wie Schweißnahtfehler oder zu starkes Hüllkriechen unter dem Spaltgasdruck im Brennstab, bleiben unberücksichtigt. Übrigens läßt sich der Spaltgasdruck problemlos auf einem unkritischen Niveau halten.

Im einzelnen kommen hier die folgenden Versagensmöglichkeiten in Betracht:

- Hüllkriechen durch stationäre Brennstoffschwellung
- Leervolumen-Erschöpfung durch Brennstoffschwellung
- Hüllkriechen oder -fließen durch lokale Cäsium-Reaktionsschwellung
- Hüllfließen durch große, schnelle Stabileistungserhöhungen
- Verformungsarmes Hüllversagen durch kombinierte mechanische und chemische Wechselwirkung Brennstoff/Hülle.

Davon kann der erste Punkt aber als vollständig entschärft gelten. Durch Modellrechnungen aufgrund von Meßdaten für das Schwellen und Bestrahlungskriechen von Oxidbrennstoff wurde überzeugend klar gemacht, daß der Kontaktdruck des schwellenden Brennstoffes an der Hülle im stationären Betrieb so niedrig bleibt, daß er zu keiner kritischen Kriechdehnung der Hülle führen kann /1/ (Abb.1).

Den folgenden Erörterungen über Hüllversagensmöglichkeiten, die sich vorwiegend mit der ursächlichen Hülldehnung befassen, ist als allgemeine Vorgabe vorzuschicken, daß an bestrahlten Schnellbrüter-Brennstäben plasti-

sche Hülldehnungen $\geq 0,5\%$ als schadensträchtig anzusehen sind. In den Abschnitten 5 und 6 werden im Hinblick auf zusätzliche chemische Einflüsse noch kritischere Bedingungen erörtert.

2. Leervolumen-Erschöpfung

Es darf nicht übersehen werden, daß die stationäre Brennstoffschwellung nur so lange harmlos ist, wie im Brennstab noch Leervolumen verbleibt, das für die Brennstoffschwellung zugänglich ist. Bei kritisch hoch ausgelegter Brennstoffschmierdichte kann es in der Nähe des Zielabbrandes zu einer Erschöpfung des verfügbaren Leervolumens kommen, die eine zwangsläufige Hülldehnung durch die fortgesetzte Brennstoffschwellung nach sich zieht. Der Leervolumenverbrauch (bzw. die Hülldehnung nach Leervolumenerschöpfung) kann nach den entsprechenden Erfahrungen im Bereich hohen Abbrandes durch die folgende Beziehung beschrieben werden:

$$-\delta V_{LV} = \delta V_{\text{stabil}} + 0,65 \text{ Vol.}\% \cdot A$$

in der A der Abbrand in At.-% U+Pu ist. Der erste Term auf der rechten Seite enthält die permanente Spaltgasschwellung, evtl. noch einen permanenten, für die Brennstoffschwellung schwer zugänglichen Leervolumenanteil, sowie die überschüssige thermische Ausdehnung des Brennstoffes (für die Bilanz mit dem "kalten" Auslegungs-Leervolumen), zusammen etwa 5 Vol.-%. Der zweite Term beschreibt die fortlaufende Brennstoffschwellung durch feste Spaltprodukte und würde auch die Hülldehnung nach Leervolumen-Erschöpfung im Brennstab bestimmen.

Eine genauere Betrachtung des Leervolumenverbrauches (Stableistungs-Abhängigkeit, axiale Brennstoffschwellung) zeigt, daß für einen Zielabbrand von maximal 12 At.-% U+Pu eine Brennstoffschmierdichte von mindestens 88% TD zulässig ist. Die SNR 300-Mark Ia-Auslegung mit 80% TD wurde demnach äußerst konservativ gewählt, wenn auch mit einem Abschlag für Brennstoffschmelzen bei schwereren Störfällen. Bei Berücksichtigung des Leervolumenzuwachses durch das Hüllschwellen erscheint sogar 90% TD akzeptabel, aber das hängt natürlich vom Schwellverhalten der in Zukunft verwendeten Hüllmaterialien ab.

Der Gesichtspunkt der Leervolumen-Erschöpfung ist keineswegs nur theoretischer Natur. Entsprechende, beträchtliche Hülldehnungen (bis zu 0,8%) wurden tatsächlich beobachtet /2/. Die Zulässigkeit sehr hoher Brennstoffschmierdichten >88% TD müßte vor der technischen Inanspruchnahme durch Bestrahlungsversuche geprüft werden.

3. Cäsium-Reaktionsschwellung

Die einleitend konstatierte Harmlosigkeit der Brennstoffschwellung ist nicht nur im Hinblick auf die mögliche Leervolumen-Erschöpfung zu relativieren, sondern auch hinsichtlich einer inhomogenen räumlichen Verteilung der Brennstoffschwellung im Brennstab. Diese kommt dadurch zustande, daß das Spaltprodukt Cäsium, das den überwiegenden Beitrag zur Brennstoffschwellung durch feste Spaltprodukte liefert, relativ leicht flüchtig ist. Es sammelt sich daher in der kühleren Randzone des Brennstoffes und an den Brennstoffsäulenenden an. Während der radiale Cäsium-Transport zu keiner kritischen Erhöhung der lokalen Schwellgeschwindigkeit führt, kann die Cäsium-Ansammlung am Brennstoffsäulenende beträchtliche Hülldehnungen (bis zu etwa 1%) verursachen. Solche Hülldehnungen wurden öfters an kurzen, 30 - 35 cm langen Testbrennstäben nach hohem Abbrand (>8%) gefunden /1/. Abb. 2 zeigt eine schematische Darstellung der beobachteten Hülldehnungspeaks. Sie entstehen durch Cäsium-Ansammlung und durch Bildung von Cäsium-Komplexoxiden (vor allem Cs-Uranaten) unter beträchtlicher Vergrößerung des spezifischen Volumens der Reaktionskomponenten, und zwar in Bereichen, in denen der Brutstoff oder der hochverdichtete Brennstoff dieser Volumenvergrößerung nicht ausweichen.

Es ist kaum möglich, diesen Hülldehnungsvorgang modellmäßig zu erfassen und quantitativ zu beschreiben /1/. Daher ist auch das diesbezügliche Verhalten von langen Reaktor-brennstäben (Brennstofflänge bis zu etwa 100 cm) noch offen geblieben, die sich vielleicht harmloser verhalten. Das Brennstabverhalten in heterogenen Cores könnte dagegen wieder problematischer sein. Allgemein scheint aber klar zu sein, daß ein breiter Brutstoff/Hülle-Spalt (in 6 mm-Brennstäben >200 µm diametral), mindestens am brennstoffseitigen Ende der Brutstoffsäulen, die Hülldehnungspeaks stark vermindern kann. Das wurde auch in simulierenden Laborglühversuchen an kurzen UO₂-Brennstabproben mit Cs₂O-Eingabe nachgewiesen.

4. Große betriebliche Stableistungserhöhungen

Bei Stableistungserhöhungen unter Reaktorbetriebsbedingungen, d.h. mit relativ geringer Änderung der Hülltemperatur, ist die thermische Ausdehnung des Brennstoffes beträchtlich größer als diejenige der Hülle. Es kann dadurch zu plastischer Hülldehnung kommen, wenn ein fester Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle besteht, wenn die resultierende Hüllspannung nicht nennenswert durch das Bestrahlungskriechen des Brennstoffes abgebaut wird, und wenn die Hüllstreckgrenze erreicht wird. Abb. 3 zeigt als Beispiel den Stableistungsverlauf eines FR 2-Bestrahlungsversuches, bei dem durch wiederholte, ziemlich große, schnelle Stableistungserhöhungen an Schnellbrüter-Versuchsbrennstäben plastische Hülldehnungen bis zu etwa 1% hervorgerufen wurden.

Durch Brennstabmodellrechnungen /3/ wurde der Bereich kritischer Bedingungen von Stableistungserhöhungen ermittelt, bei denen mit plastischer Hülldehnung zu rechnen ist. In Abb.4 sind die Grenzen des kritischen Bereiches in Bezug auf die Größe und die Geschwindigkeit der Stableistungserhöhung dargestellt, und zwar für einen 6 mm-UO₂-PuO₂-Brennstab mit 1.4970-Hülle. Kritisch erscheinen demnach nur Stableistungserhöhungen ≈ 80 W/cm mit Geschwindigkeiten ≈ 1 W/cm·min.

Bei diesen Modellrechnungen war sofortiger fester Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle bei Beginn der Stableistungserhöhung angenommen worden. Die Zeitabhängigkeit, mit der sich der Brennstoff/Hülle-Kontakt einstellt, im besonderen auch nach einer vorangegangenen Stableistungsabsenkung, blieb zunächst außer Betracht. Die Auswertung des kürzlich abgeschlossenen Stableistungszyklirexperiments Mo1 10 ergab, daß sich das Schließen von Spalten oder Rissen, die durch thermische Schrumpfung des Brennstoffes entstanden sind, mit einer konstanten, integralen Brennstoffschwellrate von 3 Vol.-% je At.-% Abbrand befriedigend beschreiben läßt. Abb.5 zeigt den Vergleich von gemessenen und berechneten Hülldehnungen für das relativ weiche Hüllmaterial 1.4988 1g im Leistungszyklierversuch Mo1 10/2. Die erwähnte Brennstoffschwellrate entspricht einer ziemlich vollständigen Schließung der Spalte und Risse nach 200 h Teillast-Betrieb.

Nach dem Gesagten muß zur Vermeidung von Hüllschäden auf vorübergehende Stab-

Leistungsreduktionen besonders geachtet werden. Übrigens wird in diesem Zusammenhang eine ziemlich wirksame Sicherung auch durch besonders hohe Warmfestigkeit des Hüllmaterials geboten, wie Abb.5 zeigt. Dort ist zusätzlich derjenige berechnete Hülldehnungsverlauf eingetragen, der sich beim gleichen Stableistungszyklrierprogramm für das festere Hüllmaterial 1.4970 kv, a ergeben würde. Offenbar ist dieses SNR-Referenzmaterial auch im Hinblick auf mögliche Fließverformungen bei Stableistungserhöhungen als günstige Wahl anzusehen.

Wenn das Hüllversagen durch Summierung zeitlich getrennt auftretender kleiner Hülldehnungen in Betracht gezogen wird, muß auch noch eine möglicherweise schwer vermeidbare, singuläre Hülldehnung von 0,1 - 0,3% berücksichtigt werden, für die sich verschiedentlich Hinweise ergaben. Sie dürfte in der Abbrandphase beginnenden mechanischen Kontaktes zwischen Brennstoff und Hülle durch Reaktorabschaltungen verursacht werden. Hier kann die irreversible Verlagerung von Brennstofffragmenten aufgrund thermischer Schrumpfung des Brennstoffes noch besonders groß sein, während ihre Umsetzung in Hülldehnung beim Wiederauffahren schon recht wirksam ist.

5. Kombinierte mechanische und chemische Wechselwirkung Brennstoff/Hülle

Neben den im Vorangehenden erläuterten mechanischen Wechselwirkungen zwischen Brennstoff und Hülle treten über weite Bereiche des Brennstoffabschnittes auch chemische Wechselwirkungen auf, die zur sogenannten Hüllinnenkorrosion führen. Es handelt sich dabei um eine durch reaktive Spaltprodukte, im besonderen Cs, Te und J, beschleunigte Oxidation der Hüllinnenseite bei hinreichendem Sauerstoffpotential des UO_2 - PuO_2 -Brennstoffes. Es besteht allgemeine Übereinstimmung, daß die Hüllinnenkorrosion allein zwar zu einer beträchtlichen Verminderung der tragenden Hüllstärke führen kann, die bei der Brennstabauslegung im voraus zu berücksichtigen ist (z.B. mit 130 μ m), aber nicht zur vollständigen Penetration der Hülle.

Wenn dagegen der chemische Angriff bei gleichzeitiger starker mechanischer Belastung der Hülle erfolgt, kann es anscheinend zur Bildung verformungsarmer Hüllrisse kommen, für die die in den vorangehenden Abschnitten angesprochenen Verformungsgrade von einigen 0,1% ausreichend sind. Die Hüllschäden im Brennstabbündel-Bestrahlungsversuch DFR 455 wurden diesem Versagenstyp zugeschrieben, und auch die beiden Defekte in den KNK II/1-Testbrennelementen legen entsprechende Deutungen nahe, wie in Abschnitt 6 noch näher erörtert wird. Für die DFR 455-Hüllschäden wurden folgende Ursachen in Erwägung gezogen /4/: 1) zu hoher Cl-Verunreinigungsgehalt des Brennstoffes, evtl. zusammen mit besonders hohem O/M-Verhältnis, 2) niedrige Brennstoffsinterdichte <87% TD, im besonderen <85% TD, 3) besonders große Anfälligkeit des Hüllmaterials 1.4981 gegen spannungsrißkorrosionsähnliches Versagen (dabei keine besondere Empfindlichkeit gegen Hüllinnenkorrosion ohne mechanische Belastung).

Zur Überprüfung des Einflusses von Brennstoffverunreinigungen wurden Labor-Kriechberstversuche an Hüllrohrproben durchgeführt, überwiegend mit dem Hüllmaterial 1.4970. Dabei wurde ein ausgeprägt verformungsarmes Versagen bei kombinierter Einwirkung von Halogenen, besonders von Chlor, und Sauerstoff festgestellt /5/.

Im anschließenden Seminarbeitrag wird die kombinierte mechanisch-chemische Wechselwirkung Brennstoff/Hülle ausführlicher behandelt (s.a. /6/). Dem entsprechenden Hüllversagenstyp muß künftig noch große Aufmerksamkeit gewidmet werden, weil hier Schadensursachen und -ablauf komplex und nur schwer systematisch zu erfassen sind.

6. KNK II/1-Brennstabdefekte

Die im 1. Testcore des KNK II aufgetretenen zwei Brennstabschäden scheinen verschiedene Fälle des Hüllversagens durch mechanisch-chemische Wechselwirkung zu exemplifizieren. Im BE 208 BN handelt es sich um einen Frühschaden bei einem lokalen Abbrand von etwa 1,2 At.-% (lokale Stableistung etwa 290 W/cm) im Brennstoffabschnitt mit dem stärksten Hüllangriff (bei der höchsten Hülltemperatur, $T_{Hi} = 630^{\circ}\text{C}$). Die ursächliche mechanische Beanspruchung der Hülle könnte auf einer großen,

bleibenden Verlagerung von Brennstofffragmenten beruhen, die durch starke Nachsinterung des Brennstoffes gegeneinander verschiebbar geworden sind, besonders bei Abschaltvorgängen. Abb. 6 zeigt die Lockerung der Brennstofffragmente. Möglicherweise wird damit auch die Exhalation reaktiver Spaltprodukte aus dem heißen Brennstoffinnern begünstigt. Zur quantitativen Beschreibung der bestrahlungsbedingten Nachsinterung des Brennstoffes kann die Formulierung in Abb. 7 dienen. Die abbrandbezogene Geschwindigkeitskonstante C_2 zeigt, daß die im obigen Sinn gefährlichste Phase, der Abschluß der Nachsinterung, nach einem lokalen Abbrand von 0,5 - 1 At.-% zu erwarten ist. Später wird die Situation durch die Brennstoffschwellung wieder verbessert.

Das so beschriebene frühe Hüllversagen wäre in erster Linie durch die niedrige Brennstoffsinterdichte (Sollwert 86,5% TD) bestimmt, die auch schon für die frühen DFR 455-Schäden mitverantwortlich gemacht wurde (s. Abschnitt 5). Die versagende Hülle bestand auch hier aus dem Material 1.4981.

Der Brennstabschaden in BE 202 IA ist eher mit einer zwangsläufigen mechanischen Wechselwirkung Brennstoff/Hülle in Zusammenhang zu bringen, die nach einem Abbrand von 3 - 4 At.-% auf jeden Fall einsetzt. Dieser Schaden entstand am Stabileistungsmaximum nach einem Abbrand von etwa 5 At.-%. Abb. 8 zeigt an den Querschnitten von Nachbarstäben, daß auf diesem Abbrandniveau tatsächlich ein fester Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle, mindestens im heißen Zustand, bestand. Eine Analyse der Meßwerte für die Hülldurchmesserergrößerung unter Bestrahlung (unter Berücksichtigung der geschätzten Hüllschwellung) ergab, daß die plastische Hülldehnung $\leq 0,2\%$ ist. Sie blieb damit im Bereich der am Ende von Abschnitt 4 erwähnten singulären Hülldehnung, die wahrscheinlich durch wenige Abschalt-Anfahrvorgänge mit relativ starker Brennstoffverlagerung in der Phase beginnender mechanischer Wechselwirkung Brennstoff/Hülle verursacht werden kann. Diese Hülldehnung erscheint für ein evtl. rein mechanisches Hüllversagen zu gering. Man kann daher annehmen, daß auch dieser Hüllschaden unter zusätzlicher chemischer Einwirkung entstand. Im Schadensbereich wurde an der Hüllinnenseite auch noch ein schwacher Korngrenzenangriff bis 40 μm Tiefe gefunden ($T_{\text{Hi}} \approx 570^\circ\text{C}$).

Als Ursache für den Hüllschaden ist hier in erster Linie eine besonders hohe Reaktivität des eingesetzten Brennstoffes zu vermuten, wenn auch häufige Abschaltungen im KNK II-Betrieb zu einer ungewöhnlich starken mechanischen Belastung der Hülle beigetragen haben können. Die hohe Brennstoffreaktivität könnte durchaus mit der niedrigen Brennstoffsinterdichte (Sollwert 86,5% TD) zusammenhängen, wie sich aus Abb. 9 qualitativ entnehmen läßt. Beobachtungen über die Gefügeausbildung, Spaltproduktumverteilung und Hüllinnenkorrosion an den Nachbarbrennstäben des Defektstabes deuten zwar auf eine "heiße Ecke" von BE 202 IA in der Umgebung des Defektstabes hin; das könnte aber auch nur durch Brennstoffchargeneinflüsse innerhalb der Abnahmetoleranzen bedingt sein. Es bleibt hinzuzufügen, daß auch hier die Hülle aus dem Material 1.4981 bestand; das galt aber für alle Brennstäbe in BE 202 IA.

7. Folgerungen

- Wegen der vermuteten ungünstigen Auswirkungen niedriger Brennstoffsinterdichte im Hinblick auf die kombinierte mechanisch-chemische Wechselwirkung Brennstoff/Hülle erscheint der Übergang zu beträchtlich höherer Brennstoffdichte angezeigt. Brennstoffschmierdichten bis zu 88% TD sind als zulässig anzusehen. In einem gemeinsamen CEA-DeBeNe-Bestrahlungsexperiment POUSSIX soll die Möglichkeit einer weiteren Erhöhung der Brennstoffdichte untersucht werden.
- An der Brauchbarkeit des Referenzhüllmaterials 1.4970 haben sich unter den hier behandelten Aspekten keine Zweifel ergeben, im Gegensatz zum Hüllmaterial 1.4981, das hinsichtlich kombinierter mechanisch-chemischer Wechselwirkung mit dem Brennstoff Schwächen vermuten läßt. In Labor-Kriechberstversuchen unter geeigneter chemischer Einwirkung soll die Neigung verschiedener Hüllmaterialien zu ausgeprägt verformungsarmem Versagen vergleichend geprüft werden.
- Das Auftreten von Hülldehnungspeaks durch Cäsium-Ansammlung muß an Reaktorbrandstäben normaler Länge überprüft werden.
- Nach längerer Reaktorleistungsreduktion bzw. bei vorhersehbarer Stableistungserhöhung ist die Leistungssteigerung sehr langsam durchzuführen.

- Für Brennstäbe mit niedriger Brennstoffsinterdichte scheint ein anfänglicher Betrieb mit niedriger (im besonderen eigens verminderter) Stableistung nicht vorteilhaft zu sein.

Literatur

- /1/ W.Dienst, Y.Guérin, J.P.Gatesoupe, I.Müller-Lyda
Fuel-cladding mechanical interaction in fast breeder fuel pins;
observations and analysis
J.Nucl.Mater. 91 (1980) 73
- /2/ J.P.Foster, U.P.Nayak
Direct observation of fuel-cladding mechanical interaction (FCMI)
in mixed-oxide fast reactor fuel pins
J.Nucl.Mater. 101 (1981) 295
- /3/ I.Müller-Lyda
Untersuchungen zur mechanischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hüllrohr in Brennstäben von Schnellen Brüter-Reaktoren
KfK 3012, Oktober 1980
- /4/ W.Dienst
unveröffentlichte Berichte 1977/78
- /5/ W.Dienst, V.Gibs, O.Götzmann
Kriechverhalten von Cr-Ni-Stahl unter Halogen- und Chalkogen-Einwirkung bei hohen Temperaturen
Werkstoffe und Korrosion 33 (1982) 533
- /6/ O.Götzmann
Combination of fuel-cladding chemical and mechanical interactions
in mixed oxide fuel pins
Nucl.Technol. 57 (1982) 90

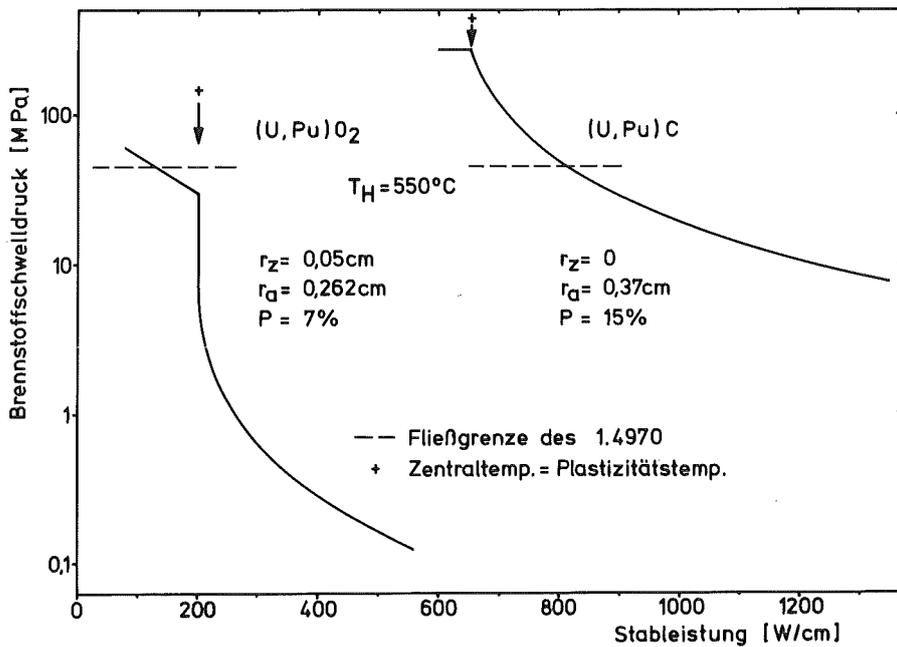


Abb. 1: Brennstoffschwelldruck in Abhängigkeit von der Stableistung. SNR-typische Brennstabauslegung mit Hüllmaterial 1.4970 (aus /3/)

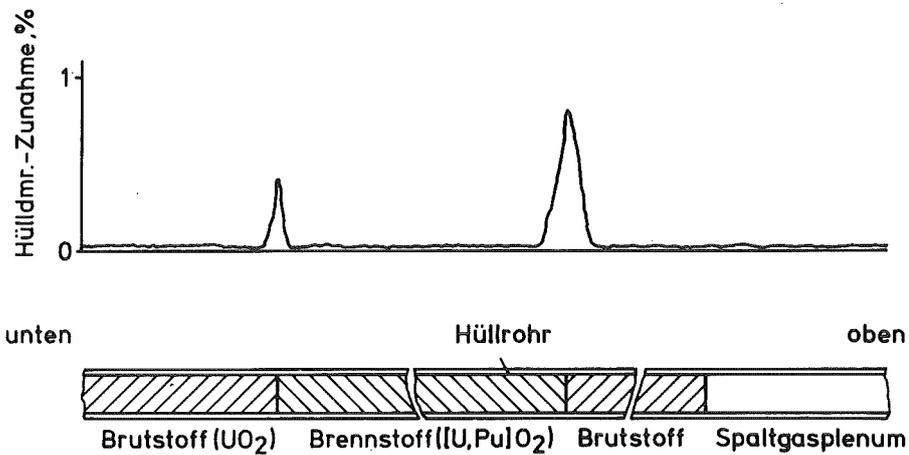


Abb. 2: Hülldehnungspeaks durch axialen Transport und lokale Reaktion von Spaltprodukt-Cäsium (schematisch)

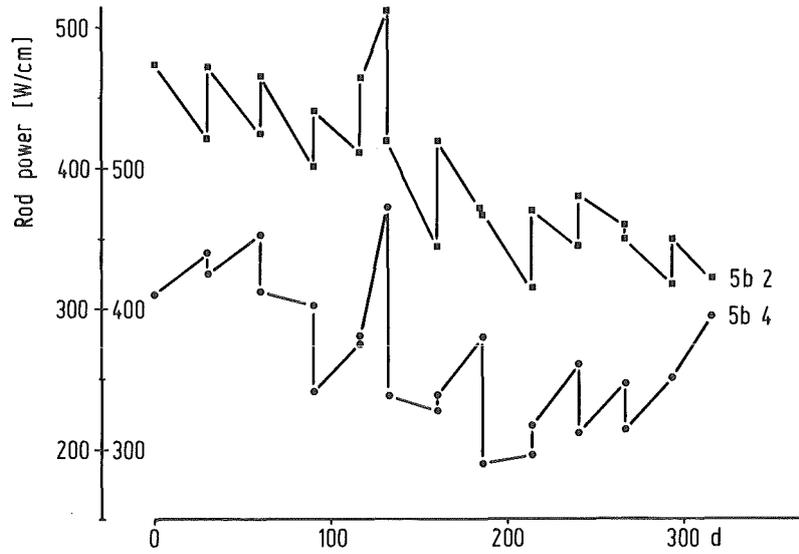


Abb. 3: Zeitlicher Verlauf der Stableistung von zwei in verschiedener Core-Höhe angeordneten Schnellbrüter-Testbrennstäben im FR 2-KVE 77

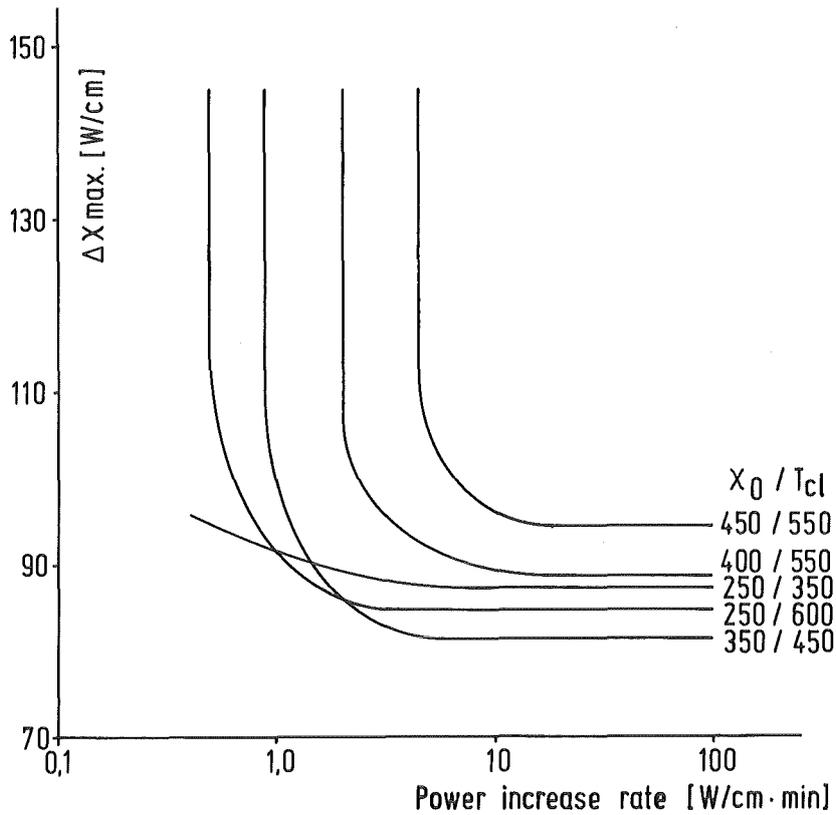


Abb. 4: Berechnete $\Delta\dot{\chi}/\dot{\chi}$ -Grenzen für den Beginn plastischer Dehnung der 1.4970-Hülle eines 6 mm-UO₂-PuO₂-Brennstabes bei der Stableistungserhöhung von verschiedenen Anfangsniveaus (χ_0) und mit verschiedenen Hülltemperaturen (T_{c1})

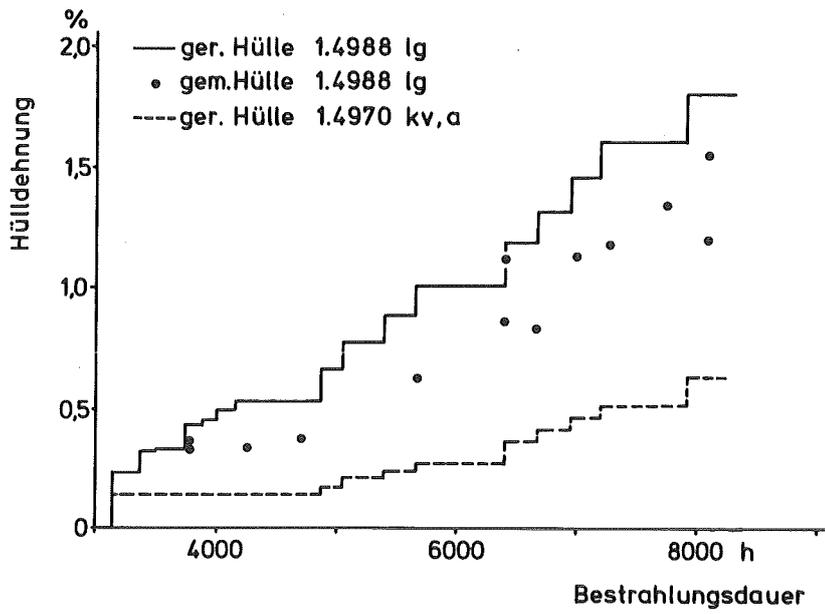


Abb. 5: Gemessene und gerechnete Hülldehnung eines Mo1 10-UO₂-PuO₂-Brennstabes durch Leistungszyklen mit $\Delta\chi \approx 80 - 150 \text{ W/cm}^2$, $t_{\text{Teillast}} \approx 100 - 200 \text{ h}$

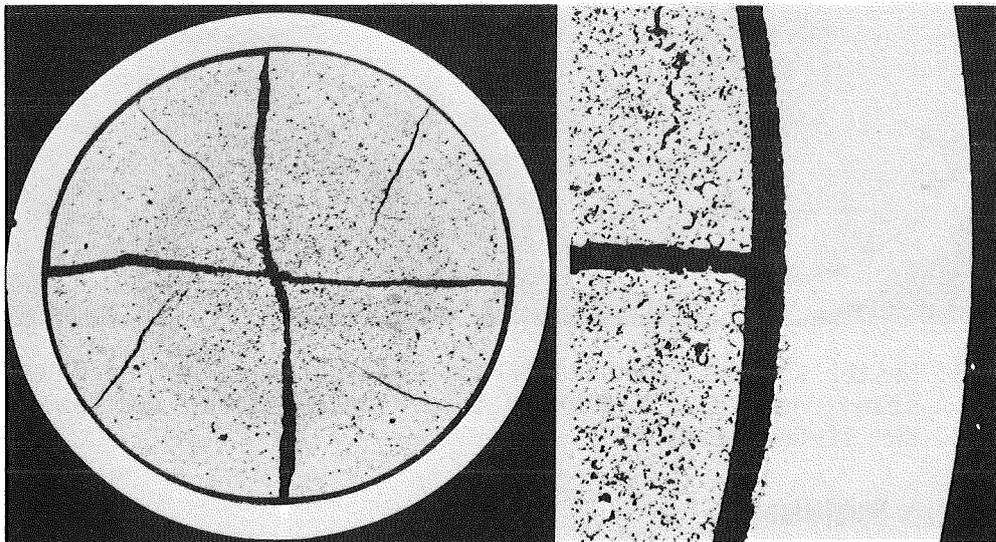


Abb. 6: Bewegliche Brennstofffragmente und Hüllinnenkorrosion nach ca. 1% Abbrand etwa 7 cm unterhalb des oberen Brennstoffendes im ersten KNK II-Defektstab

$$P = (1 - C_1) P_0 + C_1 P_0 \cdot \exp(-A / C_2)$$

P = Porosität, A = Abbrand

	C_1	C_2
Literatur	0.3-0.6	0.05-1% Abbr.
KfK	0.35-0.55	0.25-0.35%
kons. Empf.	0.5	0.2%

Abb. 7: Formulierung für die modellmäßige Berechnung der Brennstoffporositäts-Abnahme durch bestrahlungsbedingte Nachsinterung mit experimentellen Ergebnissen sowie einer konservativen Empfehlung für die maßgebenden Konstanten

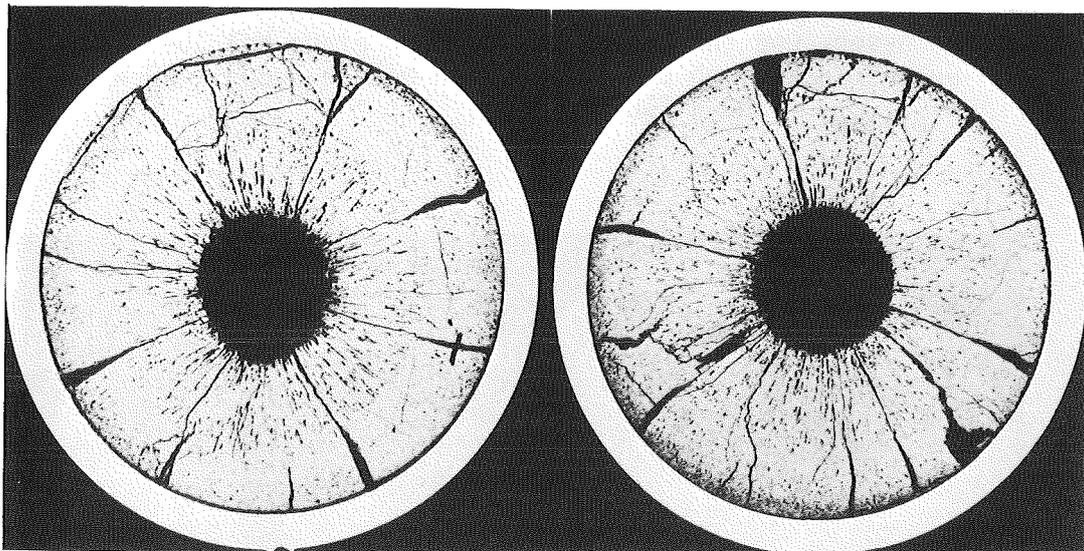


Abb. 8: Fester Kontakt Brennstoff/Hülle (im Hinblick auf heißen Zustand) nach ca. 5% Abbrand in der Umgebung des zweiten KNK II-Defektstabes

günstigere Herstellung

stabileres unterstöchiom. O / M

bessere Wärmeleitfähigkeit

geringere Nachsinterung

geringerer Transport flüchtiger Spaltprodukte

**niedrigere
Brst.-Temp.**

**geringere Brst.-
Reaktivität gegenüber
der Hülle**

Abb. 9: Vorteile durch höhere Brennstoff-Tablettendichte

Kombinierte mechanisch-chemische Wechselwirkungen
Brennstoff/Hülle

O. Götzmann

Kernforschungszentrum Karlsruhe
Institut für Material- und Festkörperforschung I

1. Einleitung

Für sich allein betrachtet sind sowohl die chemischen wie auch die mechanischen Wechselwirkungen für den Brennstab nicht besonders gefährlich. Die chemischen Wechselwirkungen führen zu Angriffstiefen, die in den meisten Fällen 50 μm nicht erheblich überschreiten. Gelegentlich können Hüllschädigungen bis Tiefen um 150 μm gefunden werden. Es sind auch schon Angriffstiefen um und über 200 μm beobachtet worden /1/. Doch das sind dann schon Ausnahmen. Mechanische Wechselwirkungen mit nennenswerten Hüllbelastungen treten im Normalfall nicht auf, weil der Brennstoff durch bestrahlungsinduziertes Kriechen sein im allgemeinen noch vorhandenes Leervolumen ausnützen kann /2/. Kritisch für die Hülle wird es jedoch dann, wenn beide Wechselwirkungsarten zusammen auftreten. Das gemeinsame Auftreten kann dabei gleichzeitig oder nacheinander stattfinden. Das gleichzeitige Auftreten würde zu spannungsrißkorrosionsähnlichen Hüllrissen führen. Solch ein Bruchmechanismus ist für Stahlhüllen schon postuliert worden (fuel adjacency effect /3/), aber noch nicht direkt zur Schadensdeutung herangezogen worden. Voraussetzungen für einen solchen, durch die chemische Umgebung begünstigten Bruchvorgang könnten bei höheren Abbränden (>6 at.%) im Brennstab vorhanden sein. Eher möglich ist dagegen die Kombination von chemischen und mechanischen Wechselwirkungen, wenn sie nacheinander erfolgen; d.h., wenn die durch Korrosion geschwächte Hülle im weiteren Verlauf des Reaktorbetriebs auch noch vom Brennstoff mechanisch belastet wird. Dafür bedarf es jedoch besonderer Voraussetzungen,

wie sie z.B. im Kapselbestrahlungsexperiment MOL 8 B/C vorhanden waren.

2. MOL 8 B/C-Kapselbestrahlungen

Das Experiment war geplant, um Gasfreisetzung und mechanische Wechselwirkungen zu untersuchen. Brennstoffdichte, Spaltbreite und Stableistungen waren die Parameter. Insgesamt wurden 12 Stäbe bestrahlt; fünf davon gingen zu Bruch. Sowohl Hüllinnenkorrosion wie auch Hüllaufweitung wurden beobachtet. Die Defekte werden auf eine Kombination von chemischer und mechanischer Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle am gleichen Ort, jedoch nicht zur gleichen Zeit, zurückgeführt /4/. Die "besonderen Voraussetzungen" sind vor allem in der Tatsache begründet, daß bei diesen Kapselversuchen, mit stagnierendem NaK als Kühlmittel, das Leistungsmaximum sich am gleichen Ort befand wie das Temperaturmaximum der Hüllinnenseite. Weitere Voraussetzungen sind in den Herstellungsdaten (Brennstoffdichte, Spaltbreite) und in der Betriebsweise (Stableistung, Leistungswechsel) zu finden. Die Angaben für die einzelnen Stäbe sind in der Tab. 1 aufgeführt. Die mechanischen Wechselwirkungen wurden begünstigt durch die häufigen Lastwechsel, die ein Charakteristikum für den BR 2-Betrieb sind, und die chemischen Wechselwirkungen durch hohe Brennstofftemperaturen, die sich aufgrund niedrigerer Brennstoffdichten und/oder hoher Stableistungen ergaben.

Die Ergebnisse aus den Messungen über die Hüllaufweitung sind in der Abb. 1 wiedergegeben. Die Angaben beziehen sich auf die Maximalwerte je Stab, die jeweils um die Position des Leistungsmaximums gemessen wurden. Die Auftragung der auf den Abbrand bezogenen Werte über der Brennstoffdichte veranschaulicht, daß die Durchmesserzunahme, die wegen des epithermischen Flusses und des geringen Innendruckes allein der mechanischen Wechselwirkung mit dem Brennstoff zuzuschreiben ist, nicht nur eine Funktion des Abbrandes war. Die Tatsache, daß unterschiedliche Abhängigkeiten von der Brennstoffdichte für Hoch- und Niederleistungsstäbe gefunden wurden, deutet im Zusammenhang mit der beson-

deren Betriebsweise des BR 2 darauf hin, daß ein durch Leistungs-"rampen" verursachter Hüllaufweitungsmechanismus bzw. Brennstoffschwellmechanismus wirksam geworden ist /12/.

3. Mechanische Wechselwirkungen Brennstoff/Hülle

Diesen Mechanismus, der durch Leistungserhöhungen zu Hüllaufweitungen führt, erklärt man sich wie im folgenden beschrieben /2/, die gezeigte Skizze (Abb. 2) soll dabei Hilfestellung leisten:

Bei der Rücknahme der Leistung nach Vollastbetrieb schrumpft der Brennstoff weg von der Hülle. Bestand vor der Leistungsminderung kein fester Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle, öffnet sich zwischen beiden ein glatter Spalt. War jedoch der Kontakt mechanisch genügend stabil, wie er z.B. durch eine Reaktionszone bewirkt werden kann, trennt sich der Brennstoff nicht glatt von der Hülle. Es entstehen bevorzugt Umfangsrisse in der Brennstoffaußenzone mit ausgefranzten Oberflächen. Wird nun der Brennstab, bevor er wieder auf Vollast zurückgeführt wird, auf einem Leistungsniveau gefahren, bei dem noch Materialtransporte durch Verdampfungs-/Kondensationsprozesse stattfinden, füllen sich die hüllseitigen Hohlräume der ausgefranzten Umfangsrisse mit Kondensat. Bei der folgenden Leistungserhöhung passen die Oberflächen nicht mehr zusammen. Ist die Leistungserhöhung genügend schnell ("Rampe"), so daß durch bestrahlungsinduziertes Kriechen der Brennstoff dem Druck nicht nachgibt, wird die Hülle aufgeweitet. Beim Vollastbetrieb werden die entstandenen Hohlräume weiter aufgefüllt. Was im Brennstoff als Spur dieses ganzen Vorganges zurückbleibt, sind Poren im Außenbereich. Bei einer neuen Leistungsabsenkung kann sich das Ganze wiederholen, und bei jeder Leistungserhöhung erfährt die Hülle eine weitere Ausdehnung. Ist die Dehnungsfähigkeit erreicht, bzw. wird bei einem Ruck die Belastungsfähigkeit der Hülle überschritten, kommt es zum Bruch. Im Brennstoff ist eine neue Porenpopulation, also zusätzliches Leervolumen entstanden. Ein Teil von dem, was die Hülle nachgegeben hat, ist ein Beitrag zum Brennstoffschwellen geworden. Der Rest ist Teil der Zentralkanalaufweitung. Da der Vorgang sich so mit meßbarem Effekt nur abspielen kann,

wenn ein genügend fester Zusammenhalt zwischen Brennstoff und Hülle besteht und dieser Zusammenhalt praktisch nur über eine Reaktionszone hergestellt wird, kann er auch als eine Kombination von chemischer und mechanischer Wechselwirkung betrachtet werden. Das Ausmaß der chemischen Wechselwirkung braucht dabei nicht groß zu sein. Theoretisch genügen schon kleine Reaktionszonen ($\sim 10-20 \mu\text{m}$). Eine besonders starke Korrosion der Hülle erhöht den Hüllaufweitungs- bzw. Brennstoffschwelleffekt nicht. Sie verringert allerdings deren Belastungs- bzw. Dehnungsgrenze.

4. Chemische Wechselwirkungen Brennstoff/Hülle

Für den Hüllangriff sind im wesentlichen zwei Mechanismen denkbar: ein durch das Spaltprodukt Cäsium induzierter Angriff und ein durch das Spaltprodukt Tellur induzierter Angriff. Der durch Tellur verursachte Angriff wird aufgrund von Ergebnissen aus Glühversuchen allgemein als gefährlicher angesehen /5/. Das Tellur ist in der Lage mit allen drei Hauptkomponenten des Stahles Reaktionsprodukte zu bilden, während das Cäsium nur zusammen mit dem Sauerstoff die Hülle angreift und bei dem in den Brennstäben normalerweise herrschenden Sauerstoffpotential ($\sim 100 \text{ kcal/mol O}_2$) nur mit dem Chrom reagiert.

Ein durch Tellur induzierter Angriff ist jedoch nur möglich, wenn im Brennstab auch ein genügend hohes Tellurpotential vorhanden ist. Da das Tellur am ehesten mit dem Cäsium reagiert, wenn man seine Reaktionsmöglichkeiten im Brennstab in Betracht zieht, ist das nur der Fall, wenn entweder das Verhältnis von Tellur und Jod (und ihrer Homologe) zu Cäsium (und seinen Homologen) günstig ist, oder wenn das Cäsium durch Reaktionen mit dem Brennstoff bzw. anderen Spaltprodukten (Mo) abgebunden (gegettert) wird. Ein für den Tellurangriff günstiges Verhältnis liegt vor, wenn $\text{Cs}/2\text{Te}+\text{J} \ll 1$ ist. Das ist am Anfang der Bestrahlung der Fall, bei verunreinigungsfreiem Brennstoff nur während einiger Tage. Da innerhalb dieser Frist (auch bei hoher Leistung) insgesamt knapp 0.5 at.ppm Tellur (+Selen) erzeugt werden und davon nur ein Bruchteil für Reaktionen mit der Hülle zur Verfügung stehen kann (der Hauptteil wird vom Cs abgebunden), ist es eigentlich

schwer vorstellbar, daß in dieser Zeit vom Tellur eine nennenswerte Schädigung der Hülle erfolgt. Der Gehalt an freiem, von Cäsium nicht abgebundenem Tellur liegt während dieser Zeit bei 0,1 at ppm, was in seiner Wirksamkeit mit einem Chlorgehalt von 3,5 Gew. ppm vergleichbar ist.

5. Cäsium-induzierter Hüllangriff

Abgesehen also von dieser Anfangsphase dominiert das Cäsium. Für die Hüllinnenkorrosion ist daher im allgemeinen auch eher ein durch Cäsium verursachter Angriff verantwortlich zu machen. Cäsium kann die Hülle jedoch nur angreifen, wenn die Brennstoffoberfläche eine höhere Temperatur hat als die Hüllinnen-seite. Out-of-pile Versuche, die mit Cäsium auch bei isothermen Verhältnissen zu einer Hüllkorrosion führten, waren für die Situation im Brennstab nicht repräsentativ. Dagegen reagiert das Cäsium mit der Hülle auch bei einem Sauerstoffpotential unterhalb dem in der Literatur /5, 6/ angegeben Niveau. Die Grenze nach unten dürfte das Bildungspotential von Chromoxid (Cr_2O_3) sein. Bei den zitierten Versuchen haben die als "buffer" eingebrachten Oxide (Cr_2O_3) das Cäsium gegettert.

Wie schon gesagt, spielt für den Angriff mit Cäsium der Temperaturunterschied zwischen Brennstoff und Hülle die entscheidende Rolle /7/. Besonders Positionen mit relativ hohen Brennstoffoberflächentemperaturen sind gefährdet, da hier im Gleichgewicht mit dem Brennstoff, der Quelle des reaktiven Stoffes, ein hoher Cäsiumpartialdruck erzeugt wird. Alle Parameter, die die Brennstoffoberflächentemperatur beeinflussen, sind für die Hüllinnenkorrosion von Bedeutung, d.h. hohe Stableistung, großer Brennstoff/Hülle-Spalt und niedere Brennstoffdichte erhöhen die Angriffswahrscheinlichkeit. Zur Deutung der Hüllschäden der Mol 8 B/C-Stäbe wurde diese Angriffsart herangezogen. Wie man aus den Ergebnissen in der Abb. 3 erkennen kann, sind die großen Angriffstiefen ($\gg 50$ m) alle in Stäben mit niederer Brennstoffdichte gefunden worden. Aufgrund der Nachsinterung bleibt in solchen Stäben der Spalt der Hülle längere Zeit offen, so daß die Bedingungen für den Hüllangriff) heiße Brennstoff-

oberfläche) genügend lange vorherrschen. Für eine starke Hüllinnenkorrosion waren im Falle von MOL 8 B/C die Bedingungen besonders günstig, da die Stelle mit der höchsten Brennstoffoberflächentemperatur (günstige thermodynamische Bedingungen) mit der Stelle höchster Hüllinnentemperatur (günstige kinetische Bedingungen) zusammenfiel.

6. Kombination der Wechselwirkungen in MOL 8 B/C

Die Korrosion war schon genügend weit fortgeschritten und die Hülle geschwächt bzw. versprödet, bevor der Brennstoff sich an die Hülle anlegte, was die Voraussetzung für das Zustandekommen der mechanischen Wechselwirkungen war. Nach dem Schließen des Spaltes war es mit den günstigen Bedingungen für den Hüllangriff um die Position des Leistungsmaximums vorbei. Mit jeder Lastfolge nahmen jedoch die mechanischen Wechselwirkungen zu. Die Zunahme je Zyklus war um so stärker, je höher die Stabileistung (Brennstofftemperatur) war. Da jedoch die Stäbe mit niedriger Leistung die meisten Zyklen erfuhren, haben sie die stärksten Effekte gezeigt, aber auch nur dort, wo die Zyklen effektiv waren. Das war nur der Fall mit hochdichtem Brennstoff, da sich hier durch das "unrestrained swelling" der Brennstoff früh an die Hülle anlegte. Beim niederdichten Brennstoff blieb wegen des Nachsinterns das Zyklieren für längere Zeit wirkungslos.

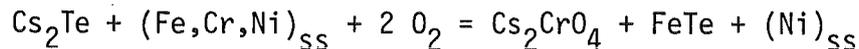
Wie aus der Tabelle zu entnehmen ist, sind Stäbe mit niedriger und mit hoher Dichte zu Bruch gegangen. Beim defekt gewordenen niederdichten Stab waren die Bedingungen für den Hüllangriff besonders günstig (niedrige Dichte und noch relativ hohe Leistung). Die hohe Zyklenzahl verbunden mit der relativ hohen Leistung haben nach der Kontaktherstellung dann auch noch genügend mechanische Belastung gebracht. Beim defekten hochdichten Stab mit niedriger Leistung war der Beitrag der mechanischen Wechselwirkungen am Versagen vorherrschend. Die Bedingungen für die Innenkorrosion waren hier nicht besonders günstig. Am Bruch des hochdichten Stabes mit hoher Leistung können beide Wechselwirkungsarten zu gleichen Teilen verantwortlich gemacht werden.

Bei den beiden letzten Stäben in der Tabelle handelt es sich um einen Sonderfall. Bei beiden Stäben waren Tabletten mit unterschiedlicher Dichte und unterschiedlicher Spaltbreite aufeinandergestapelt. Diese Situation schafft günstige Voraussetzungen für die chemische und die mechanische Wechselwirkung, wie auch für ihre Kombination an der gleichen Stelle. Zur Erläuterung sei auf Abb. 4 verwiesen. Die große Spaltbreite bewirkt eine hohe Brennstoffoberflächentemperatur und damit ein hohes chemisches Potential des reaktiven Elementes (Cäsium). Die kleinere Spaltbreite daneben ermöglicht ein frühes Spaltschließen und damit einen frühen Beginn der mechanischen Wechselwirkungen. Da hier die Brennstoffoberflächentemperatur niedriger ist als in der benachbarten Zone mit großer Spaltbreite, findet hier auch bevorzugt die Kondensation der in den heißeren Brennstoffzonen verdampfenden Materie statt. Es wird also quasi Material aus Zonen mit großer Spaltbreite in Zonen mit niedriger Spaltbreite transportiert, was den Zyklen-bedingten Effekt der Hüllaufweitung noch begünstigt. Stellen, wo Tabletten mit unterschiedlicher Spaltbreite oder Dichte nebeneinander liegen, sind also besonders gefährdet. In diesen Stäben sind die größten Angriffstiefen gefunden worden. Ihr Versagen erfolgte relativ früh, obwohl die Herstellungs- und Betriebsbedingungen sonst von denen der anderen Stäbe nicht abwichen.

7. Tellur-induzierter Hüllangriff

Obwohl das Cäsium im Brennstab mengenmäßig während fast der ganzen Betriebszeit vorherrscht, bekommt auch das Tellur seine Gelegenheit, mit der Hülle zu reagieren. Bei genügend hohem Sauerstoffpotential wird das Cäsium durch Reaktionen mit dem Brennstoff (zu Cäsiumuranat), mit Spaltprodukten (zu Cäsiummolybdat) oder mit der Hülle (zu Cäsiumchromat) so stark abgebunden bzw. seine chemische Aktivität wird so stark reduziert, daß das Tellur mit einigen Hüllkomponenten reagieren kann. Da bei dem dann herrschenden Sauerstoffpotential das Chrom oxidiert wird, ist es bevorzugt das Eisen, das mit dem Tellur eine Verbindung eingeht. Wird das Cäsium vorwiegend durch die Uranatbildung gegettert, finden die durch Tellur induzierten Angriffe am wahrscheinlichsten am heißen

Brennstoffsäulenende oder im Brutstoff statt /7/. Wird das Cäsium durch die Chromat- oder Molybdatbildung gegettert, ist die Positionierung nicht so eindeutig. Auf jeden Fall begünstigt ein guter Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle den Angriff durch Tellur (im Gegensatz zur Situation mit dem Cäsium). Die Chromatbildung, die nach der Gleichung



abläuft, veranschaulicht die Gefährlichkeit des Hüllangriffs durch eine Mischung aus Cs und Te bei genügend hohem Sauerstoffpotential. Da beide Partner des Cäsiumtellurids in gleichem Maße mit verschiedenen Komponenten des Stahles reagieren können, entsteht im Verlauf der Reaktion keine Aktivitätserniedrigung eines der reaktiven Elemente. Dieser kombinierte Angriff muß zu einem homogenen Abtrag des Hüllmaterials führen, da er praktisch das gesamte Material der Hülle beansprucht. Dagegen ist mit Cäsium allein (und auch durch Tellur allein, wenn kein Sauerstoff vorhanden ist) ein Korngrenzenangriff vorstellbar, da von den Hüllkomponenten bevorzugt das Chrom reagiert. Die Möglichkeit, daß Tellur sich am Hüllangriff beteiligt, ist nicht nur wegen des oben geschilderten Reaktionsablaufs gefährlich. Wie amerikanische Untersuchungen gezeigt haben /3/, können schon durch dünne, flüssige Tellur- oder Telluridschichten spannungsrißkorrosionsähnliche Effekte bei Stählen ausgelöst werden. Der Umstand, daß das Tellur nur wirksam war, wenn sich etwas Cäsium in der Flüssigkeit befand /3/, deutet wahrscheinlich darauf hin, daß die Sauerstoffschichten auf den Oberflächen der rostfreien Stähle erst weggegettert werden mußten. In Versuchssystemen mit großen Mengen Tellur, war der Spannungsrißkorrosionseffekt bei Stählen auch ohne die Gegenwart von Cäsium sichtbar /8/. Wahrscheinlich konnten in diesem Fall die Sauerstoffschichten durch Auflösung im Tellur entfernt werden, da aufgrund der großen Menge eine Sättigung nicht erreicht wurde.

8. Einfluß der Verunreinigungen

Vor etwas über einem Jahr ist zu diesem Thema schon ausgeführt worden, daß von den vielen Elementen, die als Verunreinigungen spezifiziert

werden, nur Chlor und Fluor von Bedeutung sind /9/. Den Ausführungen von damals soll hier noch etwas hinzugefügt werden. Von den Verunreinigungen erwartet man am ehesten eine Wirkung zu Beginn der Bestrahlung, da in deren Verlauf der Brennstoff mit korrosiven Spaltprodukten genügend stark verunreinigt wird. Wenn nun das Verhältnis von Cäsium zu Tellur die Bedeutung hat, die man ihm aufgrund von Simulationsexperimenten zubilligt /3,5,8/, dann können die Halogenverunreinigungen die Bedingungen für den Hüllangriff beeinflussen, da sie bevorzugt das Cäsium abbinden. Aus dem vorher schon angeführten Verhältnis von $Cs/(2Te + J)$ wird dann das Verhältnis:

$$Cs/(2Te + J + Cl + F),$$

das den Wert von 1 oder darüber haben muß, damit das Tellur nicht die Hülle angreifen kann. Befinden sich nennenswerte Mengen an Halogenverunreinigungen im Brennstoff, treffen die Ausführungen in Abschnitt 4, die für den verunreinigungsfreien Brennstoff gemacht wurden, theoretisch nicht mehr zu.

Kohlenstoff ist ein Verunreinigungselement, von dem angenommen wurde, daß es den spaltproduktinduzierten oxidativen Hüllangriff beschleunigt /11/, also nicht nur am Anfang der Bestrahlung wirkt. Out-pile Versuche in unserem Institut haben jedoch ergeben, daß auch große Kohlenstoffverunreinigungen die Hüllinnenkorrosion nicht verstärken. Es hat sich vielmehr gezeigt, daß bei Reaktorbetriebstemperaturen (600 - 700°C) und einem Sauerstoffpotential über der Oxydationsschwelle des Stahles von

der Hülle kein Kohlenstoff aufgenommen wird. Aufkarburierung der Stahlproben fand nur bei geringem Sauerstoffpotential statt.

Andere, in den Spezifikationen genannte Verunreinigungen haben auf die Hüllinnenkorrosion keinen Einfluß /9/.

9. Schlußbemerkungen

Die Kombination von mechanisch-chemischen Wechselwirkungen ist wahrscheinlich ein seltener Fall im normalen Reaktorbetrieb. Die hier geschilderten Situationen sollen auch nur veranschaulichen, unter welchen Bedingungen sie auftreten können. Die mechanischen Wechselwirkungen werden begünstigt durch häufige Lastfolgen, wenn das Niveau vor der Leistungserhöhung so hoch ist, daß Materialtransporte im Brennstoff über Verdampfungs-Kondensationsprozesse stattfinden. Die chemischen Wechselwirkungen werden begünstigt durch hohe Stabileistung und niedere Brennstoffdichte. Besonders gefährlich sind Tablettenstapel mit unterschiedlicher Spaltbreite bzw. Brennstoffdichte. Sie ermöglichen die Kombination von mechanisch-chemischen Wechselwirkungen. Bei den Verunreinigungselementen ist besonders auf den Gehalt von Halogenen zu achten.

Literatur

- /1/ Proc. IAEA/IWGFR/16 Technical Committee Meeting. Fuel-Cladding Interactions, Tokyo, Japan, February 21 - 25, 1977 (1977)
- /2/ W.Dienst, Y.Guérin, J.P. Gatesoupe, and I.Müller-Lyda
"Fuel-Cladding Mechanical Interactions in Fast Breeder Pins; Observations and Analysis", J.Nucl.Mater. 91,73 (1980)
- /3/ M.G.Adamson, E.A.Aitken, and S.Vaidyanathan
"Synergistic tellurium-caesium embrittlement of Type 316 stainless steel" Nature 295, 49 (1982)

- /4/ O.Götzmann
"Combination of Fuel-Cladding Chemical and Mechanical Interactions in Mixed Oxide Fuel Pins". Nuclear Technology 57, 90 (1982)
- /5/ M.G.Adamson
"Out-of-pile Experiments in the US Fuel Cladding Chemical Interaction (FCCI) Program", IWGFR/16 (IAEA, Vienna, 1977) p. 108
- /6/ W.Batey and J.R.Findlay
IWGFR/16 (IAEA, Vienna, 1977) p. 97
- /7/ O.Götzmann
"A Thermodynamic Model for the Attack Behaviour in Stainless Steel Clad Oxide Fuel Pins", J.Nucl.Mater. 84, 39 (1979)
- /8/ P.Hofmann
IMF I/KfK, pers. Mitteilung (1982)
- /9/ O.Götzmann
"Die Bedeutung der Brennstoff-Verunreinigungen für das Brennstabverhalten", J.Nucl.Mater. 106, 301 (1982)
- /10/ H.W.Wiese
INR/KfK, pers. Mitteilung (1979)
- /11/ M.G.Adamson, A.E.Aitken
GEAP-14136 (1976)
- /12/ W.Dienst und H.Zimmermann
"Mo1 8B/C Auswertung von Meß- und Nachuntersuchungsergebnissen"
KfK 2355 (1976)

Tabelle 1: Herstellungs- und Betriebsdaten für MOL 8B/C

Füll- dichte % TD	Leistung kW/m	Hülltem- peratur °C	Reaktor Zyklen	Hüllauf- weitung %		
79	48/35	690/585	31	0,6	Defekt	
79	45/38	660/630	26	0,1		
82	59/47	697/610	22	0,6		
82	59/47	665/575	22	0,4		
82	38/29	623/505	34	0,1		
82	38/30	715/580	33	0,2		
90	56/46	695/640	25	0,4	Defekt	
90	58/48	632/555	23	0,3		
90	34/28	718/615	38	1,5	Defekt	
90	39/30	700/585	36	1,8		
Versch. Spalt- breiten	86	56/42	715/600	19	0,6	Defekt
	86	59/47	670/585	19	0,6	Defekt

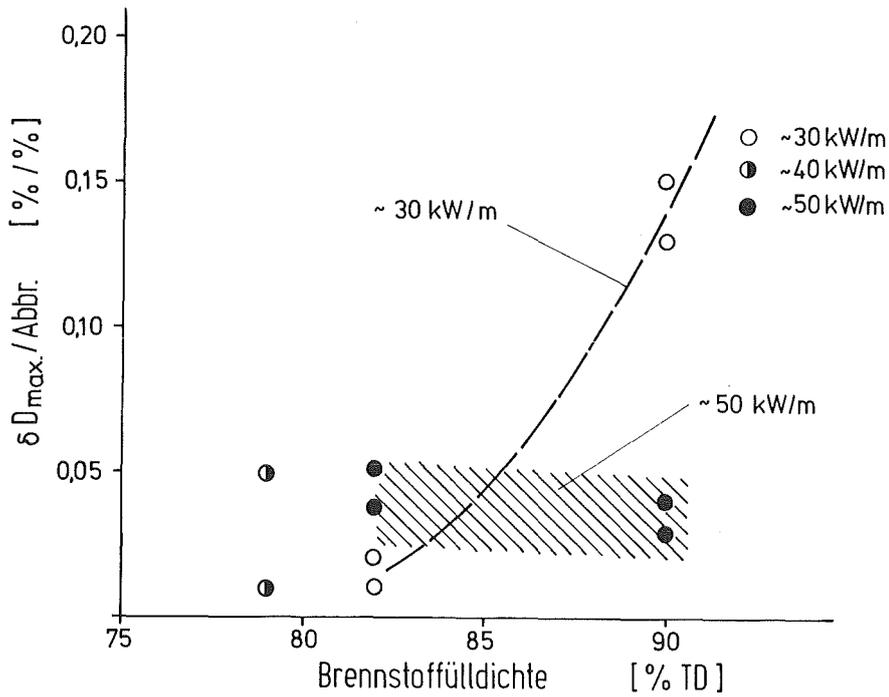


Abb. 1: Abbrandbezogene Hüllaufweitungsrates in Abhängigkeit von der Brennstoffdichte bei verschiedenen Stabileistungsniveaus

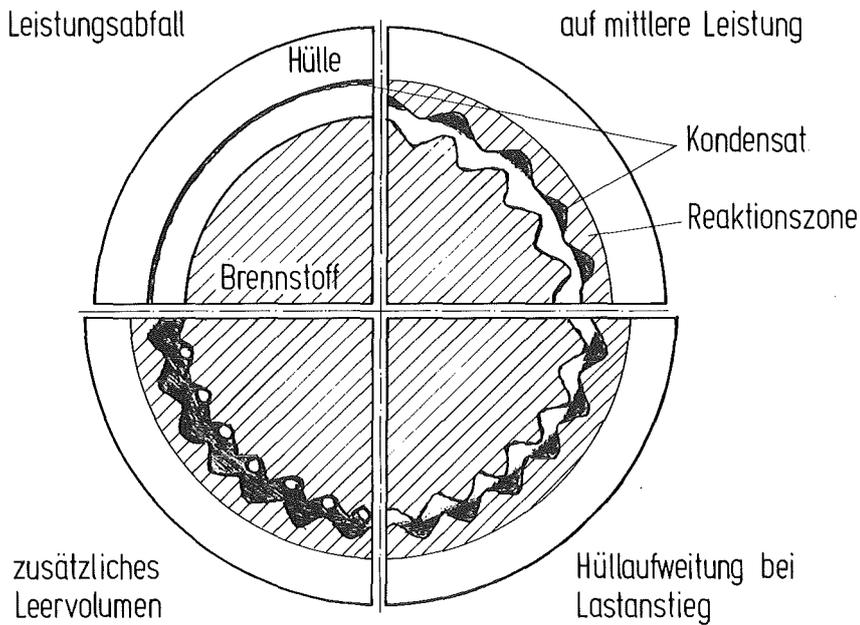


Abb. 2: Schematische Darstellung des Hüllaufweitungsmechanismus bei einem Stabileistungszyklus

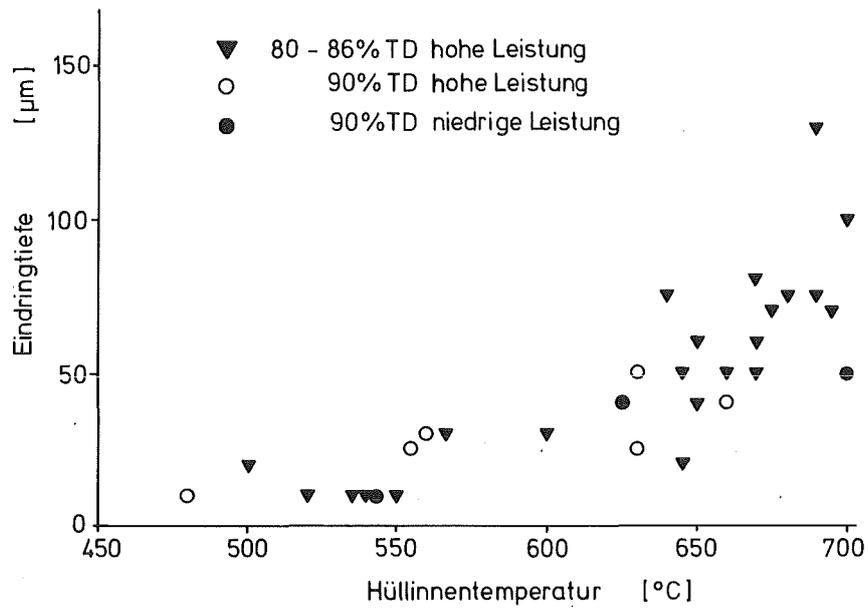


Abb.3: Maximale Hüllangriffstiefen in den Mo1 8 B/C-Brennstäben

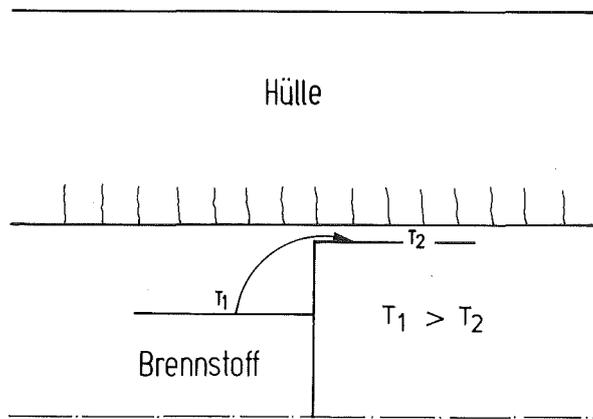


Abb. 4: Schema zur Kombination der Brennstoff/Hülle-Wechselwirkungen an Tablettenstößen zwischen unterschiedlichen Spaltbreiten

Stand der Hüllmaterialentwicklung für das SNR-Referenzkonzept
- kritische Materialprobleme -

W. Schneider, K. Herschbach, L. Schäfer,
M. Schirra, Ch. Wassilew und K. Ehrlich
Institut für Material- und Festkörperforschung II
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH

Unter dem Einfluß der energiereichen Neutronenbestrahlung im Kern schneller Brutreaktoren erleiden die beim Bau von Brennstab und Kasten benutzten Stähle Veränderungen ihrer Eigenschaften, die zu einer Einengung der ohne Bestrahlung gegebenen Standzeiten führen. Aus der Mannigfaltigkeit der Effekte sollen hier diejenigen angegeben werden, die nach der jetzigen Kenntnis als die möglicherweise den Einsatz begrenzenden Parameter angesehen werden müssen. Es handelt sich im wesentlichen um die drei Effekte:

1. Dimensionsinstabilität durch Porenschwellen und In-pile Kriechen,
2. Änderungen der Zeitstandeigenschaften durch die Bestrahlung,
3. Einfluß der Innenkorrosion durch Spaltprodukte auf Festigkeit und Duktilität.

1. Dimensionsinstabilität durch Porenschwellen und In-pile Kriechen

Die meisten Bestrahlungseffekte der Werkstoffe beruhen darauf, daß von den energiereichen Neutronen Gitteratome aus ihrer Bindung gelöst, beschleunigt und dadurch zu Verlagerungseffekten mit anderen Gitteratomen gezwungen werden. Dies führt dazu, daß im Flußmaximum eines Brütters jedes einzelne Atom im Mittel alle 150 Stunden einmal aus seiner Lage entfernt wird. Die verlagerten Atome belegen, sobald sie ihre Bewegungsenergie durch die Wechselwirkungen mit anderen Atomen ausreichend abgegeben haben, Zwischengitterplätze und hinterlassen an ihrem ursprünglichen Platz eine Leerstelle. Diese Punktdefekte werden nahezu sämtlich dadurch ausgeheilt, daß ein Zwischengitteratom und eine Leerstelle, wenn sie einander genügend nahe sind, spontan rekombinieren, oder daß sie durch Diffusion zu Defektsenken gelangen, in denen sie vernichtet werden. Solche Senken sind sowohl innere Oberflächen wie Korngrenzen oder Ausscheidungen, als

auch Gitterfehler wie Versetzungen, an denen die Punktdefekte durch Vergrößerung oder Verkleinerung der Halbebenenstufe ihren Defektcharakter verlieren. Die hohe Mobilität dieser Gitterdefekte beeinflusst alle diffusionsbestimmten Prozesse im Material dahingehend, daß diese Vorgänge unter Bestrahlung schneller ablaufen als ohne den Einfluß der punktfehlererzeugenden Neutronen. Ein kleiner Rest der gebildeten Defekte jedoch wird den Rekombinations- bzw. Annihilationsvorgängen entzogen und führt so zu bleibenden Veränderungen des Werkstoffes. Die Leerstellen können zu Poren kondensieren, und die überschüssigen Zwischengitteratome formieren sich zu planaren Versetzungsrings, auch Loops genannt, oder tragen an Korngrenzen zu einem Kristallwachstum bei. Zu Beginn der Bestrahlung ist der Anteil dieser bleibenden Defekte sehr gering. Von mehr als tausend gebildeten Punktfehlerpaaren trägt nur eines zur Volumenvergrößerung des Werkstoffes bei. Da durch die erhöhte Diffusion die Versetzungsstruktur, die maßgeblich an der Annihilation der Punktfehler beteiligt ist, einem Gleichgewichtszustand zustrebt, und andererseits durch Ausscheidungs- und Segregationseffekte die Effektivität der Punktfehleresenken stark beeinflusst wird, steigt bei hohen Bestrahlungsdosen der Anteil der überlebenden Defekte auf 1:200 an.

Diese Umverteilung des Materials macht sich makroskopisch durch Dimensionsvergrößerung und Aufweitung des Hüllrohrs bemerkbar und führt zu unerwünschten mechanischen Wechselwirkungen der Brennstäbe mit ihren Abstandshaltern und zu möglichen Problemen bei der Brennelementzerlegung. Deshalb wird vorgegeben, daß das Porenschwellen größenordnungsmäßig den Wert von 10% Volumenänderung nicht überschreitet.

Da das Porenschwellen aus dem sehr kleinen Rest nichtannihilierter Punktdefekte hervorgeht, also quasi aus der Differenz zweier sehr großer Zahlen, erscheint erklärlich, daß kleine Änderungen im Ausgangszustand oder in den Bestrahlungsbedingungen, die die Erzeugungs- oder Vernichtungstermine der Punktfehler nur geringfügig beeinflussen, doch zu deutlich verschiedenem Schwellen führen können was die Vorhersage des Volumenschwellens natürlich sehr erschwert. Der Extrapolierbarkeit des Schwellenverhaltens sind deshalb enge Grenzen gesetzt.

Allgemein lassen sich zum Porenschwellen in Stählen folgende Aussagen machen:

1. Die Konzentration an Poren nimmt mit zunehmender Bestrahlungstemperatur stark ab.
2. Die Porengröße, meist angegeben als mittlerer Porendurchmesser, erhöht sich mit der Temperatur.
3. Das Schwellvolumen durchläuft in Abhängigkeit von den beiden vorgenannten Größen mit steigender Temperatur ein Maximum, dessen Lage für die verschiedenen Stähle unterschiedlich zwischen 400 und 550 °C liegt.
4. Die gebräuchlichsten Ansätze zur Beschreibung der Dosisabhängigkeit des Schwellens benutzen einen Potenzansatz mit Exponenten von 1,5 bis 3, um dann bei höheren Dosen in ein lineares Modell überzugehen. Die zweite Beschreibungsart verzichtet auf einen Übergangsschwellbereich und beschreibt das Schwellen als linear von der Dosis abhängig, sobald der sog. Threshold, die Neutronendosis, bei der Schwellen einsetzt, erreicht ist.

Für den derzeitigen Kenntnisstand zeigt Bild 1, in welchem Bereich des Dosis-Temperaturfeldes die vorhandenen Messdaten des Stahles 1.4970 (Referenzzustand) im Vergleich zu den Zielwerten von SNR 300 MkIA liegen /1,2/. Man erkennt, daß bei niedriger Dosis der Temperatureinfluß auf das Schwellen als gut abgesichert angesehen werden kann und daß durch das RIPCEX I-Programm der Dosisinfluß bei einer relativ niedrigen Temperatur, und somit für den Stahl 1.4970 in der Region starken Schwellens untersucht ist /3,4/. Erforderlich sind noch eingehendere Hochdosisexperimente für Temperaturen über 500 °C, wie sie für das Experiment PFR-M2 geplant sind, um sowohl das Schwellen als auch das bestrahlungsinduzierte Kriechen zu untersuchen.

In den bisher verwendeten Auslegungsformeln werden die Dosis- und Temperaturabhängigkeit des Schwellens getrennt beschrieben und multiplikativ miteinander verknüpft. Mit diesen Referenzformeln (5) kann eine Abschätzung der Dimensionsänderung durch Porenschwellen eines Brennstabes unter Bestrahlungsbedingungen im Zentralelement des SNR 300 gegeben werden. Bild 2 stellt die durch Schwellen hervorgerufene Durchmesseränderung, die einem Drittel der Volumenänderung entspricht, zusammen mit den Dosis- und Temperaturwerten des Stabes dar. Man sieht, daß sie noch weit unter der Vorgabe von 3,3% linearer Änderung liegt. Bei der Berechnung der Schwellwerte wurde berücksichtigt, daß sich das Porenschwellen im RIPCEX I-Experiment als spannungsabhängig erwiesen hat /6-8/. Hier wurde eindeutig gefunden, daß sobald Schwellen auftritt, eine angelegte Spannung den Schwellbetrag proportional zum Betrag der Spannung vergrößert. Es wird weiterhin geschlossen, daß sich mit zunehmender Temperatur dieser Effekt verstärkt.

$$S(\sigma) = S_0 (1 + B(T)\sigma)$$

wobei S_0 der spannungsfreie Schwellbetrag und σ die angelegte Spannung ist. Der temperaturabhängige Faktor $B(T)$ kann als

$$B(T) = 6,625 \times 10^{-5} T + 0,0273 \left[\text{MPa}^{-1} \right], \quad T > 415 \text{ } ^\circ\text{C}$$
$$B(T) = 0; \quad T \leq 415 \text{ } ^\circ\text{C}$$

beschrieben werden. In der Rechnung wurde ein Spaltgasinnendruck angenommen, der sich im Laufe der Bestrahlung zeitlich linear bis zu einem maximalen Werte von 50 bar aufbaut.

Vorteilhaft für den Stahl 1.4970 ist, daß sein Schwellmaximum bei einer tieferen Temperatur liegt als der Stelle des Dosismaximums des SNR 300 entspricht.

Insgesamt können wir aus Bild 2 schließen, daß das Porenschwellen allein offenbar nicht der standzeitbegrenzende Faktor für die SNR 300 MkIA-Brennstäbe ist.

Der zweite dimensionsändernde Einfluß der Bestrahlung ist das bestrahlungsinduzierte Kriechen. Ein Werkstoff unterliegt unter Belastung einer größeren Deformation bei Bestrahlung als dem rein thermisch aktivierten Kriechen entsprechen würde. Besonders bei tieferen Temperaturen, bei denen das thermische Kriechen nicht meßbar ist, spielt diese Art der Verformung eine große Rolle.

Seine Ursache hat das bestrahlungsinduzierte Kriechen nach jetzigem Kenntnisstand hauptsächlich in dem unterschiedlichen Absorptionsvermögen für Leerstellen und Zwischengitteratome an Versetzungen mit unterschiedlicher Orientierung zur angelegten Spannung. Eine angelegte Spannung bewirkt nach dem sog. SIPA-Modell, daß die zur Spannungsrichtung günstig gelegenen Versetzungen oder Versetzungsringe bevorzugt Zwischengitteratome absorbieren (9,10). Dadurch ergeben sich mikrostrukturell anisotrope Materialverlagerungen, die makroskopisch zu einer Dimensionsveränderung führen.

Eine genaue Analyse der aus dem RIPCEX I-Experiment gewonnenen Kriechdaten hat ergeben, daß neben diesem linear mit Spannung und Dosis verlaufenden SIPA-Mechanismus eine weitere Kriechverformung stattfindet, die proportional zur Spannung und zum jeweiligen Porenschwellen ist.

$$\epsilon_{CR} = S \cdot \sigma \cdot \phi t + I \cdot \sigma \cdot \epsilon_{SW}$$

wobei ϵ_{CR} die Kriechdehnung, σ die angelegte Spannung, ϕ die Neutronendosis, ϵ_{SW} die Schwelldehnung, und S und I Materialkonstanten sind. Die Faktoren S und I in der angegebenen Formel haben sich im untersuchten Temperaturbereich 400-500 °C und dem RIPCEX I-Dosisbereich als konstant erwiesen und sind für die beiden verschiedenen schwellenden Stähle die gleichen.

$$S = 2,0 \times 10^{-6} \left[\text{MPa}^{-1} \text{ dpa}^{-1} \right]$$

$$I = 6,5 \times 10^{-3} \left[\text{MPa}^{-1} \right]$$

Beim Einsetzen des Porenschwellens haben sich offenbar durch mikrostrukturelle Veränderung die Senkeneffizienzen dahingehend verändert, daß ein stärkerer Strom von Zwischengitteratomen zu den Versetzungen und Loops gelangt und die Kriechprozesse verstärkt. Dadurch können einzelne Teilprozesse der Kriechdeformation wie das Klettern von Versetzungen und die Umwandlung elastischer Dehnung in dauernde Verformung beschleunigt werden /11,12/. Porenschwellen und ein Teil der In-pile-Kriechdehnung hängen also ursächlich zusammen und demzufolge kann dieser Betrag der Verformung bei Kenntnis des Schwellvolumens berechnet werden.

Für den als Brennelementkastenmaterial vorgesehenen Stahl 1.4981 wird in Bild 3 gezeigt, wie sich die im RIPCEX I-Experiment gemessene Kriechdehnung bei einer bestimmten Temperatur aus den zwei Kriecheffekten zusammensetzt. Bei der Angabe der spannungsnormierten Kriechdehnung auf der Ordinate ist allerdings zu bedenken, daß das zur Berechnung herangezogene Schwellen nur für eine bestimmte Spannung gilt, eine Folge der schon oben erwähnten Spannungsabhängigkeit des Porenschwellens. So kommt trotz einfachster Beschreibung der Kriechverformung eine quadratische Spannungsabhängigkeit quasi "durch die Hintertür" zustande.

Beim Brennstab kann das bestrahlungsinduzierte Kriechen aufgrund des sich aufbauenden Spaltgasdrucks die Dimensionsänderung verstärken. Mit einem angenommenen, sich zeitlich linear bis auf 50 bar aufbauenden Gasdruck wurde die Dimensionsänderung eines SNR-300 MkIA-Stabes im Zentralelement gerechnet. (Der Druck von 50 bar zu Ende einer Bestrahlung mit 100 MWd/kg_{SM} liegt deutlich über den nominalen Drücken und entspricht etwa den unter Auslegungsbedingungen zu erwartenden Höchstwerten). Dazu wurde die Referenzschwellformel /5/ zeitlich dif-

ferenziert und die so entstandene Schwellratengleichung mit den schon angegebenen Korrekturterminen für das spannungsbeeinflusste Schwellen versehen. Aus dem Kenntnis der Schwellrate und der zeitlich linearen Druckanstiegsfunktion läßt sich die Kriechrate als Funktion der Bestrahlungszeit formulieren. Durch Integration dieses Ausdrucks über die Zeit sind spannungskorrigierte Schwelldehnungen und Kriechdehnungen errechnet worden. Bild 4 zeigt, daß wegen des relativ geringen Drucks der zusätzliche Betrag, der durch das bestrahlungsinduzierte Kriechen hervorgerufen wird, sehr klein ist. Die Vorgabe von 5% linearer Gesamtdéhnung wird nicht erreicht.

Um den Zeitpunkt abzuschätzen, bei dem die Vorgabe von 5% linearer Hüllaufweitung erreicht wird, wurden für die Stelle maximalen Schwellens die verschiedenen Verformungsanteile zu höheren Bestrahlungszeiten hochgerechnet. Entsprechend ergibt sich aus Bild 5, daß dieser Wert nach etwa 630 Volllasttagen erreicht wird, im Vergleich zu den angestrebten 441 VLT bei MkIA. Für den Brennstab SNR-300 MkIA sind also die Bedingungen an die Formstabilität erfüllt.

Für längere Bestrahlungszeiten wird auf den rein kaltverformten Zustand dieses Werkstoffes hingewiesen, der deutlich geringeres Schwellverhalten bis zu hohen Dosen zeigt, und damit nach unserer jetzigen Kenntnis auch im Kriechverhalten unter Bestrahlung Vorteile erbringt.

Für den Brennelementkasten ergeben sich seiner ausgedehnteren Dimension und der hexagonalen Form wegen andere Kriterien. Der Unterschied zwischen dem hydraulischen Druck des Kühlmittels im Inneren und außerhalb des Kastens führt trotz seiner geringen Größe zu einer Ausbeulung der Seitenwände des Kastens, die bei Überschreitung tolerierbarer Grenzwerte den Ausbau bzw. die Handhabung der Brennelemente verhindert oder erschwert. Bei der vorgesehenen BE-Konfiguration wird eine Erhöhung der Schlüsselweite um 4,7 mm als kritische, die Standzeit eines Brennelementes begrenzende Strahlenschädigung angesehen. Bild 6 zeigt, wie weit ein Zentralelementkasten aus Werkstoff 1.4981, 20% kv während der Bestrahlung zur Zieldosis des SNR 300 MkIA aufgeweitet wird. Die kritische Aufweitung von 4,7 mm wird deutlich überschritten /5/.

Für den Stahl 1.4981 liegt der Temperaturbereich maximalen Schwellens wie bei vielen austenitischen Stählen um 500 °C, also im Bereich der maximalen Dosis.

Da genügend Anhaltspunkte zur Annahme vorliegen, daß das bestrahlungsinduzierte Kriechen einen bedeutenden, dem Schwellen proportionalen Anteil hat, kann durch Umsetzung der Brennelemente zwischen den einzelnen Bestrahlungszyklen in Regionen mit anderer Neutronenfluß- oder Temperaturverteilung die Kastenaufweitung für die Brennelemente innerhalb der Zieldosis unterhalb des kritischen Wertes gehalten werden. Für zukünftige BE-Kästen ist außerdem als Werkstoff der Stahl 1.4970 im kaltverformten Zustand vorgesehen. Von diesem Stahl ist bekannt, daß er ein deutlich günstigeres Schwellverhalten zeigt, so daß eine Standzeiterhöhung für den Kasten erwartet werden kann.

Die Umsetzung der BE hat nicht nur den Sinn, die Aufweitung der Kästen in Grenzen zu halten. Entlang der radialen Ausdehnung der Kästen, insbesondere im Core-Randbereich, ändern sich die Bestrahlungsbedingungen, hauptsächlich die Temperatur, so daß die verschiedenen Seiten des Kastens unterschiedlich schwellen und somit Biegebeanspruchungen unterzogen werden. Für ein Randelement sind in Bild 7 die Auslenkungen entlang der axialen Koordinate für verschiedene Bestrahlungszeiten angegeben /5/. Im Bereich des Kastenfußes, des unteren und des oberen Pflasters sind die Brennelemente mechanisch gehalten. Das mit Beginn der Bestrahlung einsetzende bestrahlungsinduzierte Kriechen baut die vorgegebene Anfangsausbiegung etwas ab, später aber wird durch das differentielle Schwellen, das, wie wir wissen, mit einem Dosisexponenten größer als 2 stattfindet, die Verbiegung verstärkt, so daß ein Drehen des BE angezeigt ist.

Im Gegensatz zu den Brennstäben bei denen eine gewisse Reserve bei der zulässigen Durchmesserergrößerung vorhanden ist, dürfte die Dimensionsänderung des BE-Kastens die Einsatzzeit des Brennelementes begrenzen.

2. Änderung der Zeistandigenschaften durch die Bestrahlung

Als nächstes möglicherweise die Standzeit begrenzendes Kriterium wird die durch Bestrahlung verringerte Duktilität des Werkstoffes angesehen. Aus den Festigkeitsdaten des Stahles 1.4970 sind ohne Berücksichtigung der Neutronenbestrahlung bei einem angenommenen Spaltgasdruck von 50 bar bei $T=700\text{ }^{\circ}\text{C}$ stationäre Kriechgeschwindigkeiten von 10^{-8} h^{-1} zu entnehmen und Bruchdehnungen von weit über 10% zu erwarten. Die resultierenden Standzeiten würden extrapoliert mehr als 10^7 h oder 10^3 Jahre betragen /13/.

Werden Strahlenschäden berücksichtigt, so ergibt sich im Hinblick auf die Kriechdeformation und Duktilität ein davon verschiedenes Bild. Nach Bestrahlung zeigt die Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit in Bild 8 ein prinzipiell den unbestrahlten Proben ähnliches Bild, bis auf eine geringe Verschiebung der Kurven zu kleineren Spannungen hin /14/. Die während der Bestrahlung, also im Reaktor ermittelten Kriechgeschwindigkeitswerte verhalten sich bei hohen Spannungen entsprechend den aus Nachbestrahlungsexperimenten gewonnenen, sind aber bei niedrigen Spannungen ($\sigma < \sigma_{\dot{\epsilon}}$) viel höher und zeigen auch eine deutlich andere Spannungsabhängigkeit. Die bei höheren Spannungen mit Werten um 8 anzusetzenden Spannungsexponenten deuten auf einen durch Versetzungsoperationen gesteuerten Kriechmechanismus hin. Bei niedrigen Spannungen wirkt mit linearer Spannungsabhängigkeit offenbar das schon früher diskutierte bestrahlungsinduzierte Kriechen, um dann bei höheren Belastungen in den plastischen versetzungsgesteuerten Bereich einzumünden. Diese Übergangsspannung $\sigma_{\dot{\epsilon}}$ markiert also den Übergang vom rein bestrahlungsinduzierten zum thermisch dominanten Kriechbereich. Die Kriechgeschwindigkeit bei Spannungen um 32 MPa, wie sie im Hüllrohr erwartet werden, liegt bei $1-2 \times 10^{-6} \text{ h}^{-1}$, also beträchtlich höher als bei unbestrahlten Proben, bei denen weniger als 10^{-8} h^{-1} gemessen werden.

Der Befund, daß bei Kriechversuchen unter Bestrahlung auch bei hohen Temperaturen höhere Kriechgeschwindigkeiten gegenüber dem unbestrahlten Werkstoff gefunden werden, steht im Gegensatz zu amerikanischen Beobachtungen am Stahl AISI 316. Dort wird im Hochtemperaturbereich unter Bestrahlung verringertes Kriechen festgestellt, während bei Nachbestrahlungsuntersuchungen wie beim Stahl 1.4970 leicht erhöhte Verformungsgeschwindigkeiten im Kriechversuch gefunden werden. Dieser Effekt des Neutronenflusses wird dort als dynamische Bestrahlungsverfestigung beschrieben /15/.

Bei konstanten Duktilitäten wären wie im unbestrahlten Material die Standzeiten etwa reziprok zu den Kriechgeschwindigkeiten anzusetzen. Ein Blick auf das Bruchdehnungsdiagramm in Bild 9 zeigt jedoch, daß die Duktilität bei Nachbestrahlungsuntersuchungen mit fallender Kriechgeschwindigkeit zu extrem kleinen Werten absinkt. Unter Bestrahlung werden für hohe Spannungen identische Werte der Bruchdehnung gemessen, beim Unterschreiten einer kritischen Verformungsgeschwindigkeit $\dot{\epsilon}_{kr}$, die der in Bild 8 beschriebenen Übergangsspannung $\sigma_{\dot{\epsilon}}$ entspricht, nimmt die Bruchdehnung mit fallender Verformungsgeschwindigkeit wieder zu. Metallografische Bilder in der Nähe von Bruchzonen aus Versuchen mit

unterschiedlichen Verformungsgeschwindigkeiten zeigen verschiedene Riskeimbildungen. Im höheren Spannungsbereich erkennt man die typische Keilform der sich öffnenden Initialrisse, während im Bereich geringer Kriechgeschwindigkeiten die Riskeimbildung durch Koaleszenz von Hohlräumen, d.h. He-Blasen, zu erfolgen scheint. Dies passiert generell bei niedrigen Verformungsgeschwindigkeiten d.h., die Riskeimbildung über He-Blasen ist für langsame Verformung während oder nach Bestrahlung typisch. Dies bestätigt die Vorstellung, daß der zum Bruch führende Schädigungsmechanismus durch das Helium kontrolliert wird.

Aus dem Duktilitätsdiagramm folgt, daß die minimale Bruchdehnung unter Neutroneneinwirkung im Bereich der Auslegungsduktilität von 0,2% liegt. Auch im ungünstigsten Falle wird diese Duktilität nicht unterschritten. Beim Wegfall der Bestrahlung, etwa bei Störfällen, sind, wie die Nachbestrahlungsuntersuchungen zeigen, die niedrigsten Duktilitäten bei kleinen Kriechgeschwindigkeiten, d.h. sehr geringen Belastungen, zu erwarten.

Die für niedrige Spannungen bzw. Verformungsgeschwindigkeiten gemessenen unterschiedlichen Duktilitätswerte und Kriechgeschwindigkeiten aus Bestrahlungs- bzw. Nachbestrahlungskriechexperimenten erfordern es direkt, auf die Standzeitdiagramme zurückzugreifen. Aus den bei 615, 650 und 720 °C vorliegenden, gemessenen In-Reaktorkurven wurde eine entsprechende für die Auslegungstemperatur von 685 °C interpoliert und mit der aus Nachbestrahlungsexperimenten gewonnenen in Bild 10 verglichen. Hieraus läßt sich eine weitere Standzeitverkürzung für Kriechexperimente unter Bestrahlung ablesen. Nicht in diesem Diagramm gezeigt, jedoch durch entsprechende Messungen (16) belegt, ist, daß gegenüber dem unbestrahlten Material die Zeitstandskurven vorbestrahlter Proben bereits deutlich reduziert sind. Da dieses Resultat in gewissem Gegensatz zu amerikanischen Untersuchungen steht, die feststellen, daß Kriechexperimente an vorbestrahlten Proben immer zu den konservativsten, d.h. niedrigsten Standzeiten, führten, kann man zur Zeit nicht zweifelsfrei ausschließen, daß die obigen Ergebnisse auf den großen Anteil thermischer Neutronen im Reaktor BR 2 zurückzuführen sind. In einem solchen gemischten thermisch-schnellen Neutronenspektrum geht die Bildung von Helium über die bereits besprochenen n, α Prozesse schneller vonstatten als in einem typischen SNR-Neutronenspektrum. Daher könnte man vermuten, daß der über die Heliumblasen an Korngrenzen ablaufende Schädigungsprozess in einem BR-2 Reaktor früher einsetzt. Entsprechende Experimente in SNR-typischen Reaktoren werden zeigen, ob es sich um einen Einfluß des Neutronenspektrums handelt oder nicht.

Die folgenden Abschätzungen zur Standzeit der Hüllrohre werden anhand von Bild 10 in mehreren Schritten zur Veranschaulichung der verschiedenen Parameter abgeleitet und dabei die normalerweise nur in kurzen Zeitabschnitten, bzw. bei wenigen Brennstäben auftretenden sog. Auslegungsbedingungen zugrundegelegt. Die Standzeit unter Bestrahlung bei einer als konstant angenommenen Vergleichsspannung von 32 MPa, entsprechend dem angenommenen maximalen Spaltgasdruck von 50 bar, liegt bei 31000h. Dieser recht günstig liegende Wert verkürzt sich leider dadurch, daß ein Teil der Hüllwand bei höheren Dosen für die Festigkeit nicht mehr zur Verfügung steht. Die Innenkorrosion, hervorgerufen durch den oxidischen Brennstoff und die Spaltprodukte, kann in ungünstigen Fällen den tragenden Anteil der Wandstärke um ein Drittel verringern, so daß bei gleichem Spaltgasdruck eine Vergleichsspannung von 53 MPa entsteht /17/. Bei dieser vorerst als konstant angenommenen Spannung kommt dem Hüllrohr aber nur noch eine Standzeit von 8500 h zu.

Nun wirkt diese hohe Spannung natürlich nicht über die gesamte Zeit, so daß der ermittelte Wert als zu konservativ anzusehen ist. Den Einfluß der linear ansteigenden Spannung kann man mit Hilfe der Life-fraction-rule /18/ abschätzen. Nach dieser Schadensakkumulationsregel errechnet sich die Bruchzeit des Werkstücks unter variablen Bedingungen dadurch, daß Schädigungen aufsummiert werden, bis der Grenzwert von 1 die Bruchzeit markiert. Als Schädigung wird dabei das Verhältnis von Aufenthaltszeit bei einem bestimmten Zustand zur gesamten Bruchzeit bei diesem Zustand definiert. Unter Berücksichtigung eines zeitlich linear ansteigenden Innendrucks erhält man mit der Life-fraction-rule bei 685 °C eine Standzeit von ca. 11050 h, entsprechend 460 Volllasttagen. Diese Abschätzung gilt für ein Hüllrohr unter auslegungsnahen Bedingungen bei Berücksichtigung maximaler Wandminderung durch Korrosion. Sie ist insofern als konservativ anzusehen, als die Auslegungstemperatur mit zunehmendem Abbrand deutlich unter den Wert von 685 °C absinkt. Entsprechend günstiger fallen dann die zu erwartenden Standzeiten im Realfall aus.

3. Einfluß der Innenkorrosion durch Spaltprodukte auf Festigkeit und Duktilität

Ein dritter Einfluß auf die Standzeit eines Brennelementes soll noch erwähnt werden - besonders am heißen Brennstabende sind Hüllrohre einer interkristallinen Korrosion durch Spaltprodukte ausgesetzt, die bis zu einem Drittel der Hülle durchdringen kann. In verschiedenen Bündelbestrahlungen wurden bevorzugt an diesen Stellen Brüche festgestellt /19,20/.

Um die Richtigkeit der Annahme zu prüfen, daß die Innenkorrosion dafür verantwortlich zu machen ist, wurden benachbarte Proben aus bestrahlten Brennstäben mit nahezu gleichen Bestrahlungsbedingungen entnommen. Sie stammten teils aus der Brennstoffzone, teils aus dem Brutstoffbereich, in dem keine oder nur geringe Innenkorrosion festgestellt wurde. Bisher konnten aus den anschließenden Festigkeitsuntersuchungen folgende Ergebnisse gewonnen werden: Die korrodierten Proben haben eine um etwa 25% geringere Zeitstandfestigkeit und eine Bruchdehnung, die im Mittel im Zeitstandsversuch um den Faktor 2 und im Zugversuch, also bei höheren Verformungsgeschwindigkeiten, um den Faktor 4 geringer ist.

Untersuchungen des Einflusses von Abbrand, Materialzustand und anderer relevanter Größen können wegen Probenmangels noch nicht durchgeführt werden. In solchen Fällen müssen die zu untersuchenden Effekte simuliert werden. An unbestrahlten Flachproben wurde die beobachtete interkristalline Korrosion eingestellt und deren Einfluß auf die mechanischen Eigenschaften der Probe gemessen /21/. Dabei wurden die Parameter Korrosionstiefe, simulierter Abbrand, Materialvorbehandlung, Prüftemperatur und Verformungsgeschwindigkeit systematisch variiert. Der Parameter Abbrand bedeutet hier Konzentration an Spaltelementen im korrosiven Medium UO_{2+x} , hauptsächlich an Jod, Cäsium und Tellur.

Mit den vorliegenden Ergebnissen kann abgeschätzt werden, welche Parameter allgemein am wirksamsten sind, und welche mechanischen Eigenschaften bei welchen Parameterkonstellationen besonders stark verschlechtert werden. Als Beispiel für die Wirkung eines Parameters ist in Bild 11 der Einfluß des simulierten Abbrandes auf die Zugeigenschaften bei 700 °C dargestellt. Bei einer konstanten Korrosionstiefe von ungefähr 0,1 mm sind etwa 25 bis 30% des Probenquerschnittes in den Korngrenzen entfestigt. Der gemessene Abfall der Zugfestigkeit und der Streckgrenze beträgt aber demgegenüber bei hohen Abbränden bis zu 50%. Dies bedeutet, daß die bisherige Annahme, Korrosionsschicht habe die Festigkeit Null und brauche lediglich vom lasttragenden Probenquerschnitt abgezogen werden, bei hohen Abbränden den Festigkeitsabfall unterschätzt. Es gibt vielmehr eine deutliche Fernwirkung der Korrosionsschicht in den unkorrodierten Restquerschnitt der Probe hinein.

Die Duktilität ist sehr unterschiedlich vom simulierten Abbrand abhängig. Während die Einschnürdehnung kaum beeinflußt wird, nimmt die Gleichmassdehnung und dadurch auch die Bruchdehnung mit zunehmendem Abbrand stark ab. Der Duktilitätsverlust kann eine Größenordnung betragen.

Die unterschiedliche Korrosionsanfälligkeit austenitischer Stähle und verschiedener Materialvorbehandlungen läßt sich mit der Chromverarmungstheorie erklären. Aus ihr sind folgende Empfehlungen für die Auswahl von Hüllwerkstoffen und für zukünftige Legierungsentwicklungen, sowie deren optimale Vorbehandlung ableitbar:

1. Die verwendete Legierung soll wegen der notwendigen Korrosionsresistenz mindestens 11% Cr, möglichst aber 15% Cr enthalten.
2. Die thermomechanische Vorbehandlung muß neben den bisher verfolgten Zielen hoher Festigkeit und geringer Versprödungsneigung auch eine hohe Korrosionsfestigkeit anstreben. Das wird erreicht, wenn die Ausscheidung von Chromkarbiden an Korngrenzen unterdrückt werden kann.
3. Bei hohen Abbränden und großen Korrosionstiefen sind besonders die Duktilitätsreserven des Materials gefährdet. Der Trend bei der Materialauswahl sollte zu noch duktileren Werkstoffen gehen.

Außerdem läßt sich die Korrosionsschädigung weiter vermindern, wenn der Sauerstoffgehalt des Brennstoffs gesenkt wird.

Zusammenfassung:

Die Begrenzung der Standzeit durch die oben beschriebenen Phänomene ist in der folgenden Tabelle zusammengefaßt (Bild 12). Die Standzeiten sind in Vollasttagen für das SNR 300-Konzept angegeben, und sind im Vergleich zum Zielbetrieb von 441 Vollasttagen zu sehen.

Die Dimensionsinstabilität ist nach dem bisher Gesagten für das SNR 300 Hüllrohr im MkIA-Kern nicht kritisch. Die ermittelte, extrapolierte Standzeit von 630 VLT erlaubt auch höhere Standzeiten bzw. größere Bestrahlungsdosen, wie sie etwa in einem MkII-Kern vorgesehen sind. Ausgesprochen stark einschränkend auf die Standzeit macht sich jedoch das differentielle Schwellen und das bestrahlungsinduzierte Kriechen des BE-Kasten bemerkbar. Betriebliche Maßnahmen, wie z.B. Umsetzen der Elemente, können hier z.T. Abhilfe schaffen. Hier muß aber in Zukunft ein anderer Werkstoff ausgewählt werden. Der aussichtsreichste Werkstoff ist im Augenblick der kaltverformte Stahl 1.4970, der, wie aus Füllkörperuntersuchungen aus RIPCEX I und einzelnen französischen Bestrahlungen

bekannt ist, besonders geringes Schwellen zeigt, und somit nach unserem Verständnis des bestrahlungsinduzierten Kriechens auch hier deutliche Vorzüge besitzen müßte. Die Ermittlung des Zeitstandverhaltens der Hüllrohre unter Bestrahlung führt zu den folgenden Aussagen: Bei voller Wandstärke reicht die Festigkeit des Hüllrohres auch unter Bestrahlung bei einem Spaltgasdruck von 50 bar bis zur dreifachen Betriebszeit. Die beobachtete Innenkorrosion von maximal einem Drittel der Wandstärke wirkt sich in einer deutlichen Spannungserhöhung aus, die zu stark verkürzten Standzeiten führt. Die Lebenszeit des Hüllrohres reicht aus, wenn eine Schadenssumme von 1 bei Anwendung der Life-fraction-Regel zugrunde gelegt wird. Es gibt jedoch Zeitstandversuche mit ansteigender Spannung, bei denen Proben schon bei einer Schadenssumme 0,5 brachen /22/. Auch der Einfluß der Spaltprodukte auf die Innenkorrosion ist bei den angegebenen Standzeiten nicht berücksichtigt, so daß eine weitere Beeinträchtigung der Standzeit nicht auszuschließen ist. Andererseits beruhen die Abschätzungen darauf, daß die Auslegungstemperatur von 685 °C nicht mit zunehmendem Abbrand abgesenkt wird. Dies führt zu entsprechenden Reserven in der Standzeitbetrachtung, zumal die meisten Hüllrohre den sehr viel mildereren Nominal- bzw. Extremalbedingungen ausgesetzt sind.

Literatur:

- 1/ Ehrlich, K., Gross, R. and Schneider, W.: Void Formation in Stabilized Austenitic Stainless Steels International Conference on Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials, Scottsdale, 1977, 529.
- 2/ Ehrlich, K., Kunisch, W., Stober, T. und Wassilew, Ch.: unveröffentlicher Bericht (1978)
- 3/ Bergmann, H.J., Haas, D. and Herschbach, K.: Proceedings: International Conference on Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials, Scottsdale, 1977, 241
- 4/ Bergmann, H.J., Knoblauch, J.G., Haas, D. and Herschbach, K.: Proceedings, International Conference on Irradiation Behaviour of Metallic Materials for Fast Reactor Core Components, Ajaccio, France, 1979, Suppl., 37.
- 5/ Fa. INTERATOM, unveröffentl. Mitteilung
- 6/ Ehrlich, K.: Journal of Nuclear Materials, Vol. 100, 1981, 149.
- 7/ Herschbach, K., Schneider, W. and Ehrlich, K.: Journal of Nuclear Materials, Vol. 101, 1981, 326.

- 8/ Schneider, W., Herschbach, K. and Ehrlich, K.: "Interdependence of In-Pile Creep and Void Swelling in Ti- and Nb-Stabilized Stainless Steels", Effects of Radiation on Materials: Eleventh Conference, ASTM STP 782, 1982, pp. 30-43.
- 9/ Heald, P.T. and Speight, M.V., Philosophical Magazine, Vol. 27, 1974, 1075.
- 10/Wolfer, W.G. and Ashkin, M.: Journal of Applied Physics, Vol. 46, 1975, 547.
- 11/Gittus, J., Creep, Viscoelasticity and Creep Fracture in Solids, Applied Science Publ., London, 1975, 231.
- 12/Foster, J.P., Wolfer, W.G., Biancheria, A. and Boltax, A., Proceedings, BNES Conference on Irradiation Embrittlement and Creep in Fuel Cladding and Core Components, London, U.K., 1973, 273.
- 13/Schirra, M.: Pers. Mitteilung
- 14/Wassilew, Ch., Anderko, K., Schäfer, L.: Bestrahlungsinduziertes Kriechen oberhalb 0,5 Ts bei stabilisierten austenitischen Stählen. Internat. Konferenz. Bestrahlungsverhalten metallischer Hüll- und Strukturwerkstoffe für schnelle Brutreaktoren. Ajaccio, F, 4.-8. Juni, 1979, Suppl. 419-425.
- 15/Gilbert, E.R. and Lovell, A.J.: Temperature Dependence of In-Reactor Creep of 20% Cold Worked 316 Stainless Steel. International Conference on Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials, Scottsdale, 1977, 269.
- 16/Wassilew, Ch.: Influence of helium embrittlement on post-irradiation creep rupture behaviour of austenitic and martensitic stainless steels. The Metals Society. Book 280: Mechanical behaviour and nuclear applications of stainless steel at elevated temperatures. London 1982, page 172.
- 17/Götzmann, O., Hofmann, P. and Thümler, F.: Attack upon the Cladding of Oxide Fuel Pins by Fuel and Fission Products. Journal of Nuclear Materials, 52 (1974), 33-50.
- 18/Robinson, E.L.: Trans. ASME, 60 (1938), p.253-259.
- 19/Dienst, W., Götzmann, O., Kleykamp, H. und Zimmermann, H.: UO₂-PuO₂ -Brennstab-Bestrahlung DFR-435. KfK-Bericht 2218, 1976.
- 20/Kummerer, K. und Weimar, P.: Das Bestrahlungsexperiment Mol-7B. KfK-Bericht 3256, 1982.
- 21/Schäfer, L.: Einfluß der interkristallinen Korrosion durch Urandioxid und simulierte Spaltprodukte auf die Zugeigenschaften des Hüllwerkstoffes 1.4970. KfK-Bericht 3199, 1982.
- 22/Schäfer, L. und Closs, K.D.: Beschreibung der Kriechkurven zweier austenitischer Stähle aus Zeitstandversuchen mit konstanter Lastanstiegsgeschwindigkeit. KfK-Bericht 1963, 1974.

Abbildungen

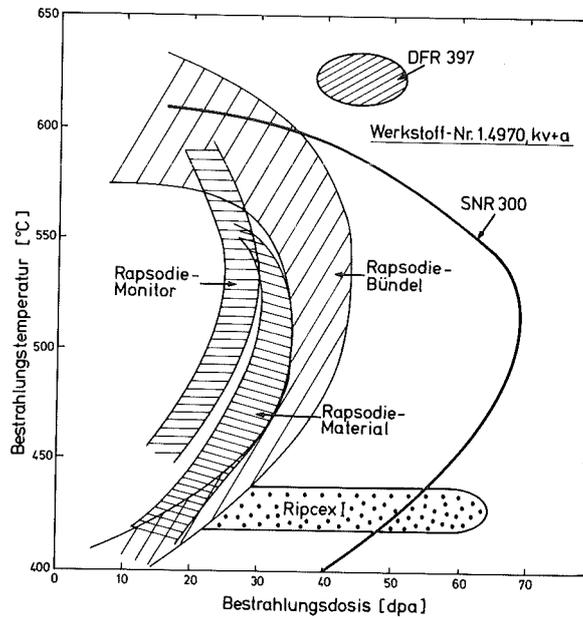


Bild 1: Dosis- Temperaturbereiche nachuntersuchter Bestrahlungsexperimente für die Stähle 1.4970 und 1.4981.

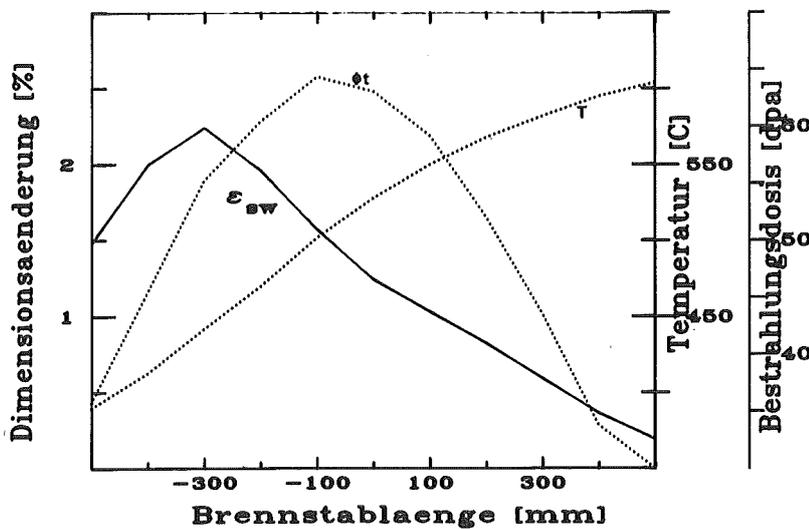


Bild 2: Dimensionsänderung durch Porenschwellen eines SNR-Zentralstabes. (SNR+300, MkIA Bedingungen)

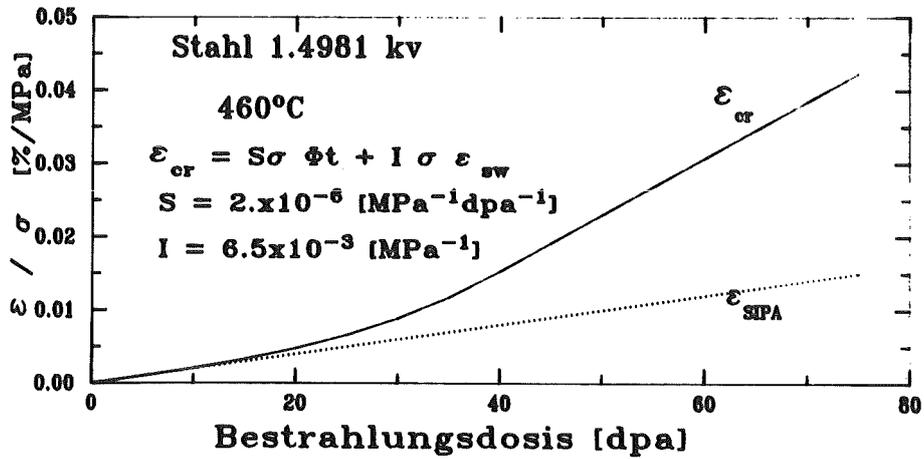


Bild 3: Bestrahlungsinduziertes Kriechen beim Stahl 1.4981.

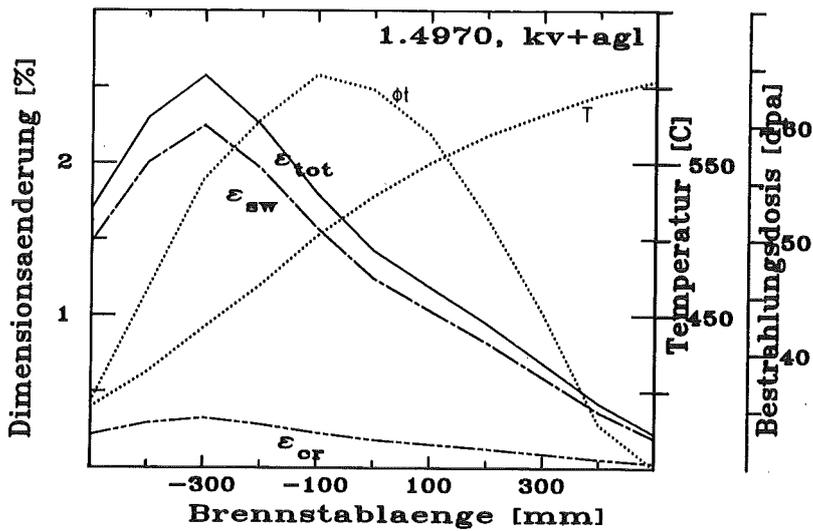


Bild 4: Dimensionsänderung durch Schwellen und Kriechen eines SNR-Zentralstabes.
(SNR-300, MkIA Bedingungen)

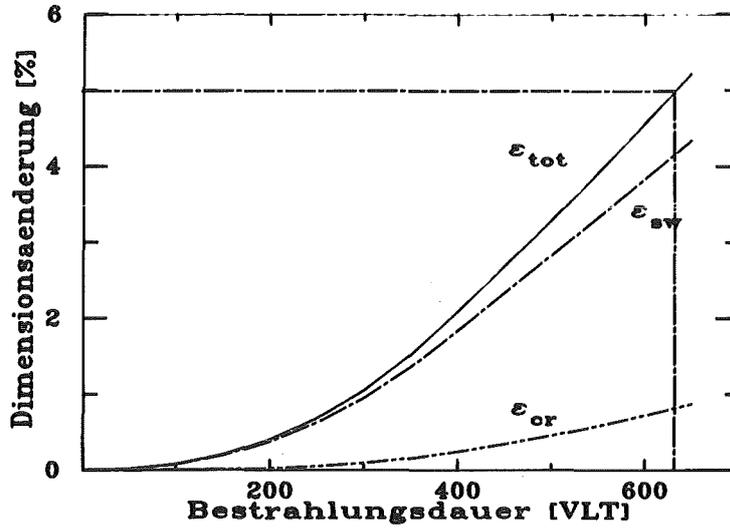


Bild 5: Dosisabhängigkeit der Dimensionsänderung eines SNR-Zentralstabes für die Position mit maximalem Schwellen.

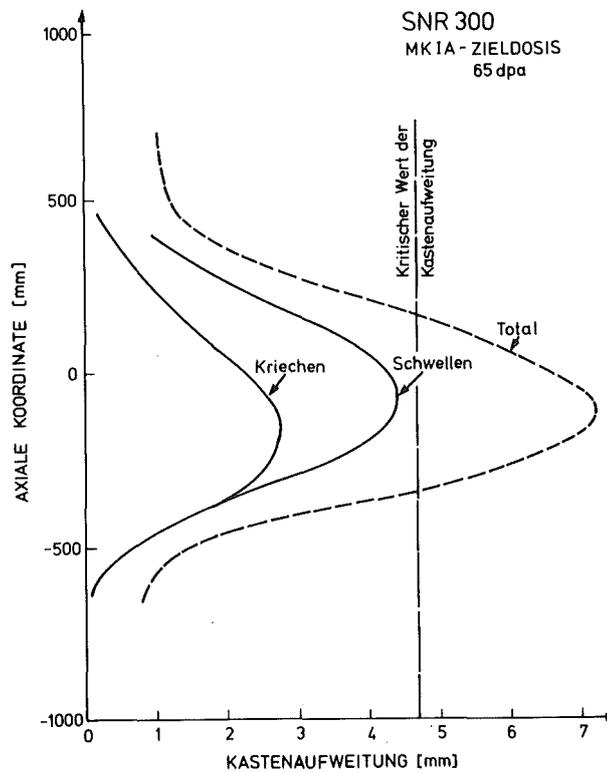


Bild 6: Dosisabhängigkeit der Kastenausbeulung für das SNR300-Zentralelement (nach INTERATOM /5/ -SNR 300 MkIA Bedingungen)

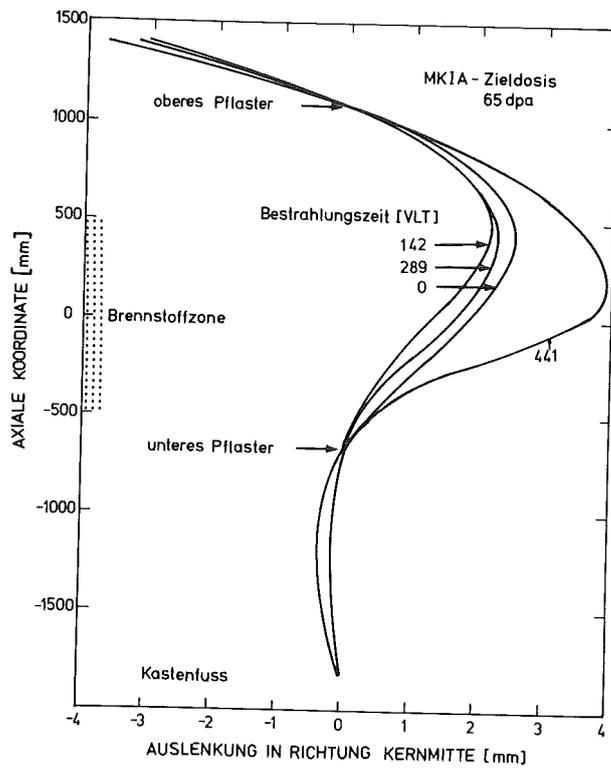


Bild 7: Zeitliche Änderung der Verspannungen von Brennstäben in einem SNR300-Randelement durch Bestrahlungskriechen und differentielles Schwellen (nach INTERATOM /5/).

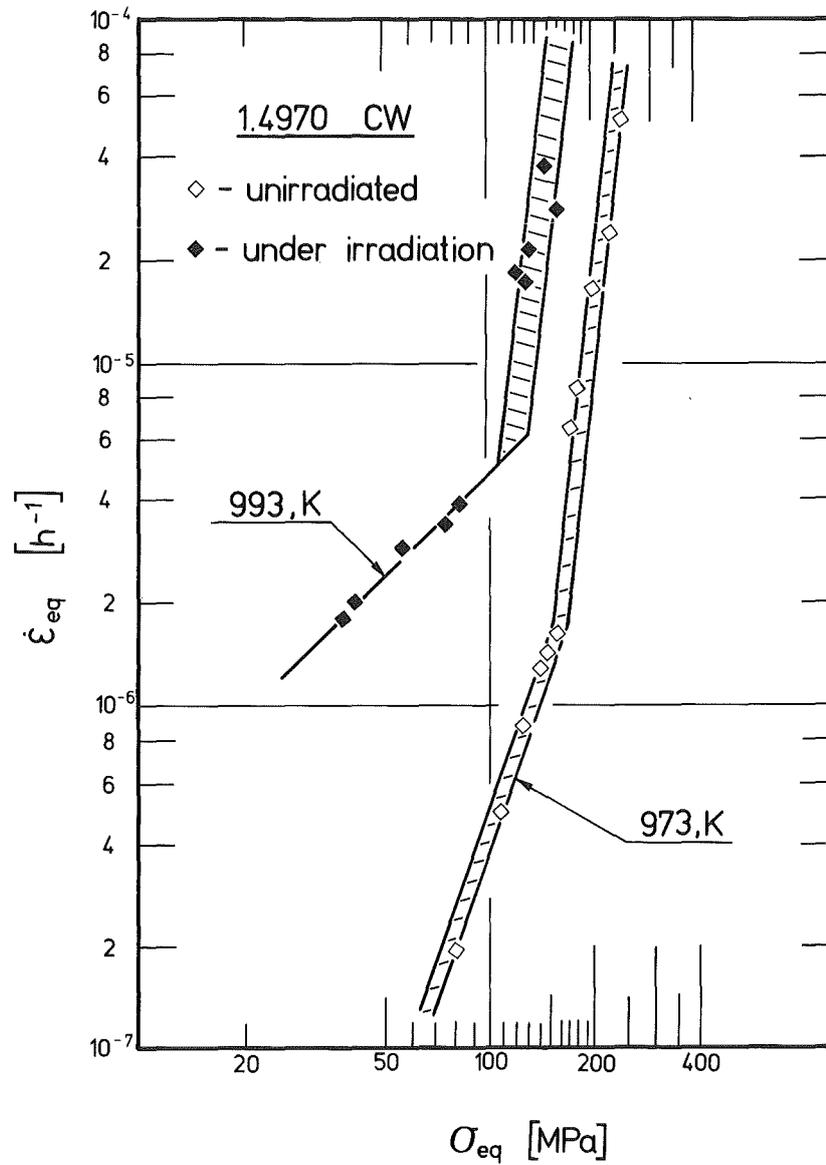


Bild 8: Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit vor und während Bestrahlung im BR-2 Reaktor

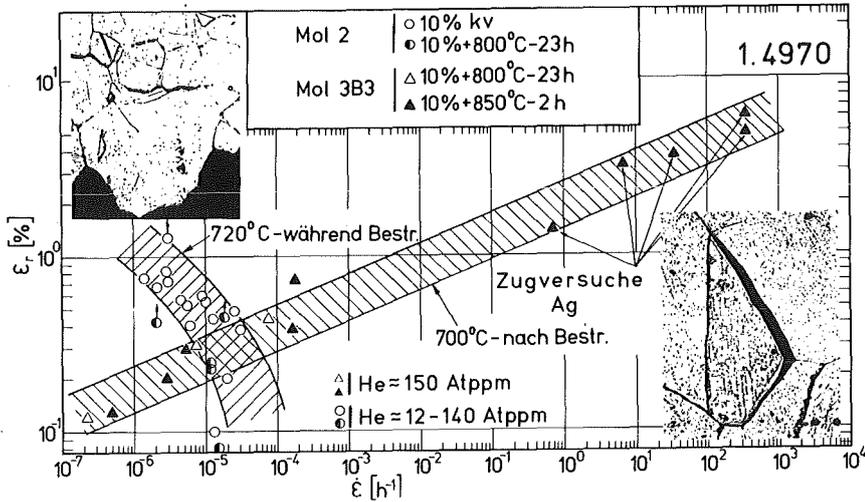


Bild 9: Bruchduktilität des Stahls 1.4970 nach Bestrahlung im BR 2 (Mol 3B3) bzw. bei im Reaktor BR 2 (Mol 2) getesteten Proben.

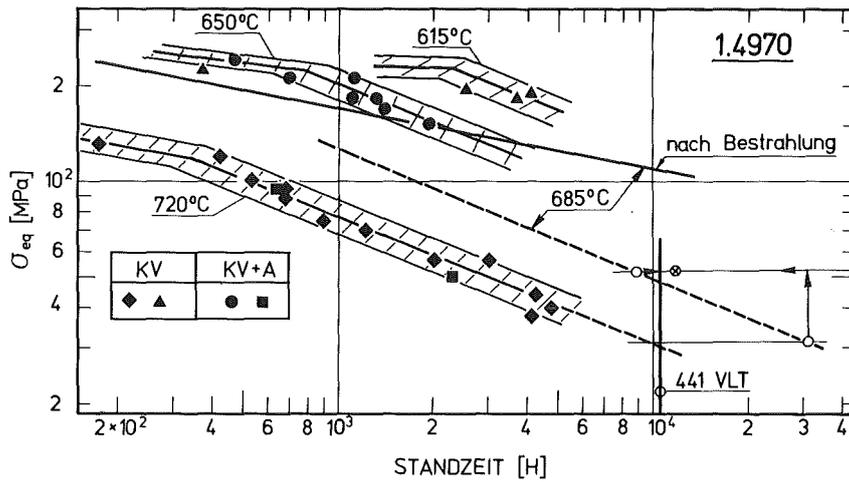


Bild 10: Standzeitdiagramm für den Stahl 1.4970 bei Neutronenbestrahlung. Zusätzlich angegeben ist die interpolierte Standzeitkurve bei 685 °C (gestrichelt) und die entsprechende Kurve aus Nachbestrahlungstests

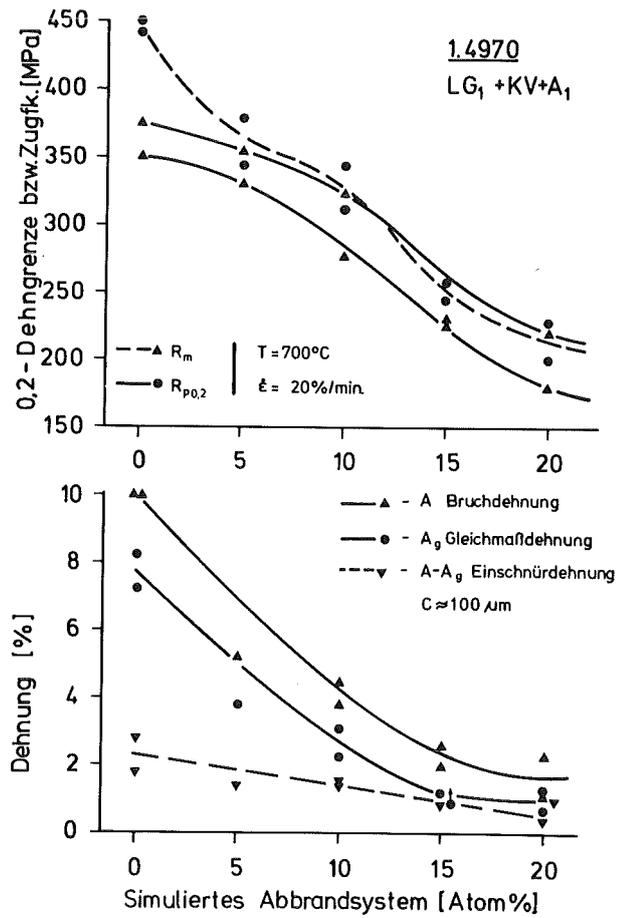


Bild 11: Einfluss des simulierten Abbrandes auf die Zugeigenschaften und die Duktilität des Stahles 1.4970.

Standzeitabschätzung SNR300

Eigenschaft	Bedingungen	Standzeit(VLT)
Dimensionsstab. Zentralstab	65 dpa, Betriebstemperatur	630
Aufweitung BE-Kasten	65 dpa, Betriebstemperatur	(335)441
Zeitstandfestigkeit bei Spannungsanstieg bei Innenkorrosion	$\sigma_{\text{Ende}} = 53 \text{MPa}$ Auslegungstemp.(685°C)	460

Bild 12: Abschätzung der Standzeit für einen Zentralstab SNR-300 MkIA unter Zugrundelegen der Auslegungsbedingungen.

Werkstoffentwicklung für höhere Abbrände

K.Ehrlich und K.Anderko

Institut für Material- und Festkörperforschung II

Einleitung

Mitte 1982 erreichte der Erstkern des KNK II einen maximalen lokalen Abbrand von $100\ 000\ \text{Mwd}/_{\text{tsm}}$, entsprechend 10% FIMA und bestätigte damit das im Kernforschungszentrum zusammen mit Interatom entwickelte Brennelementkonzept in beeindruckender Weise. Ein vergleichbarer Abbrand wird für den Erstkern MK IA des zur Zeit im Bau befindlichen SNR-300 in Kalkar angestrebt. Es muß jedoch darauf hingewiesen werden, daß beim Übergang von Versuchsanlagen der Größe des KNK II zu prototypischen Schnellen Brütern, z.B. dem SNR-300, bei vergleichbarem Abbrand eine mehr als doppelt so hohe Strahlenschädigung zu erwarten ist. In Tab. 1 ist die Relation von Strahlenschädigung und Abbrand für den KNK II, die beiden Erstkerne MK IA und MK II des SNR-300 und für einen kommerziellen Brüter vom Typ SNR 2 bzw. Superphénix angegeben. Die Zahlen über die maximal zu erwartende Schädigung lassen erkennen, welchen Stellenwert die bisher gewonnenen Ergebnisse einnehmen und welche Anstrengungen noch unternommen werden müssen, um ein Brennelement für einen kommerziellen Brüter zu entwickeln.

1. Stand der Entwicklungsarbeiten zum Referenzkonzept

Die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zum Erstcore MK IA des SNR-300 sind inzwischen soweit abgeschlossen, daß man ein befriedigendes Werkstoffverhalten sowohl für das ausgewählte Hüllmaterial 1.4970 [im Vorbehandlungszustand lösungsgeglüht (lg), kaltverformt (kv) und ausgelagert (a)]⁷, als auch für das Kastenmaterial 1.4981 (lg + kv), erwarten darf. Die erzielten Ergebnisse sind im Rahmen dieses Seminars eingehend erörtert worden /1/. Es hat sich dabei erwiesen, daß für den Brennelementkasten die Dimensionsänderungen, die durch Schwellen, bestrahlungsinduziertes Kriechen und durch Kastenverbiegung infolge differentiellen Schwellens hervorgerufen werden, als standzeitbegrenzende Phänomene gelten können. Für den einzelnen Brennstab ist die durch Schwellen hervorgerufene Dimensionsinstabilität, möglicherweise aber auch

die Deformation durch thermische, bzw. bestrahlungsinduzierte Kriechvorgänge und Korrosionsangriffe im Bereich der maximalen Hüllmittentemperatur lebensdauerbegrenzend, die erzielbaren Abbrände sind aber möglicherweise nicht voll ausgeschöpft.

Für den Zweitkern MK II des SNR-300 wurden Hüll- und Kastenmaterial "harmonisiert", d.h. der titanstabilisierte 1.4970 soll im 20% kaltverformten Zustand sowohl als Kastenmaterial als auch als Hüllwerkstoff eingesetzt werden. Eine endgültige Entscheidung hierüber wird jedoch erst etwa Ende 1986 getroffen werden, nachdem eine Reihe sehr wichtiger Bestrahlungsexperimente genügend Sicherheit über das Bestrahlungsverhalten in Material- und Brennelementbestrahlungen geben wird. In Abb. 1 sind wichtige Experimente zur Ertüchtigung dieses Materials angegeben. Allgemein werden die Aussichten für einen titanstabilisierten Werkstofftyp 1.4970, eines im Sinne des Schöfflerdiagramms stabilen Austenits, inzwischen auch von anderen Ländern, die in der Brennelemententwicklung für Schnelle Brüter tätig sind, sehr positiv eingeschätzt. So findet man inzwischen unter dem Begriff des "second generation material" entsprechende Legierungen in amerikanischen, französischen und japanischen Materialprogrammen /2,3,4/. Es ist jedoch derzeit noch nicht abzusehen, ob über die angestrebte maximale Belastung von 90 dpa hinaus austenitische Stähle der Zusammensetzung des 1.4970 verwendbar sind.

2. Materialentwicklungsprogramm

Etwa 1976/77 wurde gemeinsam mit Interatom ein Konzept für die Optimierung der Referenzwerkstoffe, die Entwicklung geeigneter höhernickelhaltiger Austenite, sowie die Ertüchtigung 12% chromhaltiger Martensite, ausgearbeitet /5,6/. Das Programm umfaßte:

- a. Optimierungsarbeiten am 1.4970. Es sollte herausgefunden werden, ob durch eine geeignete Variation von Legierungselementen niedriger Konzentration das Schwellen reduziert werden kann. Ebenso sollte der Einfluß von sog. Prozessparametern wie Art und Grad der Kaltverformung, der Lösungsglüh-temperatur und -dauer auf das Schwellen studiert werden.

- b. Entwicklung geeigneter Austenite durch Variation der Hauptlegierungselemente Chrom und Nickel, mit möglichst niedrigem Nickelgehalt für niedriges Schwellen.
- c. Ertüchtigung des 12%-chromhaltigen Martensits 1.4914 für die nukleare Anwendung als Kastenwerkstoff und seine chem. Modifikation zur Erreichung einer möglichst niedrigen Übergangstemperatur

3. Optimierungsarbeiten am Werkstoff 1.4970

Ausgehend von der vielfachen Beobachtung, daß kommerzielle austenitische Stähle vom Typ 1.4970 oder AISI 316 in ihrem bestrahlungsinduzierten Schwell- und Kriechverhalten einen deutlichen Chargeneinfluß zeigen, wurde zunächst versucht, mit Hilfe sog. Simulationsbestrahlungen am Variable Energy Cyclotron (VEC) die Rolle der minoreren Legierungselemente Kohlenstoff, Titan, Niob, Molybdän und Silizium zu studieren. Basierend auf der ternären Fe-15%Cr-15% Ni-Legierung bzw. den quarternären Fe-15%Cr-15%Ni-0.1%C (bzw. 0.04%C)-Legierungen wurden die minoreren Elemente in mehreren Konzentrationsstufen zugegeben und ihr Einfluß auf das Schwellen für vorgegebene Temperatur- und Dosiswerte bestimmt. In Abb. 2 ist das jeweils gefundene Streuband der Schwellwerte für jedes zulegierte Element aufgetragen, wobei die Schwellminderung nicht in jedem Falle mit zunehmender Konzentration ansteigt /7/. Nimmt man als Ausgangswert das Streuband der quarternären Fe-15Cr-15Ni-C Legierungen, so wird eine deutliche Schwellreduktion bei Zugabe von Titan und Silizium erreicht. Während die schwellmindernde Wirkung von Titan allein auch von anderen Experimentatoren gefunden wurde, zeigt sich, daß seine Wirksamkeit auch mit dem in Lösung befindlichen Kohlenstoffgehalt gekoppelt ist, d.h. ein leicht unterstöchiometrisches Verhältnis von Ti zu C am günstigsten ist. Dies gibt Anlaß anzunehmen, daß neben dem noch nicht eindeutig erklärbaren "Titaneffekt" ein Trappingmechanismus von Leerstellen mit interstitiell gelösten Kohlenstoffatomen als ein weiterer wichtiger Mechanismus zur Unterdrückung des Schwellens gelten kann /8,9/. Der positive Einfluß von Si dürfte auf das Modell schnell-diffundierender Elemente zurückzuführen sein /10/. Der Einfluß von Niob auf das Schwellen war gering,

allerdings wurde hier nur im überstabilisierten Bereich, d.h. bei einem Niob- zu Kohlenstoffverhältnis $> 7.6 : 1$ gearbeitet. Schließlich hat sich herausgestellt, daß Molybdän, welches vorwiegend zur Matrixhärtung benutzt wird, für die starken Inhomogenitäten der Mikrostruktur, insbesondere der Versetzungsstruktur und damit auch der Porenbildung, verantwortlich ist.

Nach demselben Verfahren (VEC-Bestrahlungen) wurden umfangreiche Untersuchungen an einer Reihe von Chargen des 1.4970 durchgeführt, bei denen innerhalb der vorgegebenen Spezifikationsgrenzen die Elemente Kohlenstoff, Titan, Molybdän variiert wurden. Darüber hinaus wurden der Siliziumgehalt und das Ti/C-Verhältnis in einem weiteren Rahmen variiert, die Legierungen im technisch üblichen 20% kaltverformten Zustand eingesetzt. Als Hauptergebnis dieser Untersuchungen stellte sich erneut der schwellreduzierende Einfluß von Silizium heraus, Abb. 3; interessanterweise ist die schwellmindernde Wirkung von Silizium im kaltverformten Stahl 1.4970 auf zwei Vorgänge zurückzuführen /11/: zum einen wird eine beschleunigt auftretende Rekristallisation unter Bestrahlung beobachtet, die eine vorangegangene Porenbildung annihilieren kann, zum anderen wirkt das Element Si über das Modell der schnell diffundierenden Elemente /10/.

Entsprechende Untersuchungen zum Einfluß von Prozessparametern auf das Schwellen der kaltverformten Legierungen des 1.4970, bei denen die Art der Kaltverformung, der Verformungsgrad (16-20%) und die Lösungsglüh-temperatur zwischen 1100 und 1120 °C variiert wurden, zeigen nur geringfügige Unterschiede im Schwellverhalten (Abb. 3).

Eine Relativierung der Ergebnisse, die aus Simulationsbestrahlungen mit schweren Ionen stammen, ist allerdings angebracht, da sie mit einer hohen Defektrate ($K \sim 10^{-3}$ dpa/s) durchgeführt werden. Für ihre Übertragbarkeit auf Bedingungen, wie sie unter Reaktorbestrahlungen herrschen ($K \sim 10^{-6}$ dpa/s), wird es sehr wichtig sein, ob die effektive Löslichkeit der schwellmindernden Elemente wie Si, C und Ti erhalten bleibt, oder durch Bildung von Ausscheidungen reduziert wird. Aufschluß darüber werden die Ergebnisse wichtiger Material- und Bündelbestrahlungen im KNK II, im PFR und Phénix geben, deren Beladung auch auf den Resultaten der hier diskutierten Simulationsexperimente basieren.

4. Entwicklung höhernickelhaltiger Austenite

Bereits Mitte der 70-iger Jahre wurde aufgrund breitangelegter Untersuchungen deutlich, daß austenitische Stähle mit ca. 15-20% Chrom und 12-15% Ni besonders anfällig gegenüber dem bestrahlungsinduzierten Schwellen sind, während Nickelbasislegierungen und ferritische Stähle weniger zur Porenbildung neigen. Abb. 4 demonstriert dies für Austenite und Nickellegierungen und zeigt außerdem die große Variationsbreite im Schwellverhalten der Austenite in Abhängigkeit vom Vorbehandlungszustand. Die eigentliche Ursache für das sehr unterschiedliche Verhalten von Austeniten und Nickellegierungen konnte bislang nicht hinreichend plausibel erklärt werden, obwohl es an Lösungsvorschlägen hierzu nicht gefehlt hat.

Es erschien deshalb sinnvoll, neben der Optimierung des Stahls 1.4970 andere austenitische Werkstoffe zu erproben oder zu entwickeln, die im Hinblick auf das Schwellen und möglicherweise das bestrahlungsinduzierte Kriechen günstiger sind, ansonsten die hervorragenden mechanischen Eigenschaften, die exzellente Austenitstabilität, die geringe Tendenz zu Entmischungsvorgängen und die gute Verträglichkeit gegenüber UO_2 und flüssigem Natrium des Stahls 1.4970 erreichen. Es lag nahe, neben den minoren Elementen die wichtigsten Legierungselemente Chrom und Nickel zu variieren, zumal bereits Tendenzen über deren Einfluß auf das Schwellen aus anderen Untersuchungen erkennbar wurden /12/. Unser spezifischer Ansatz beruhte darauf, ausgehend von der Grundzusammensetzung des 1.4970, den Chromgehalt zwischen 9 und 15 und den Nickelgehalt zwischen 14 und 25 Gew.% zu variieren (Legierungen B828-B830, C618, C619 in Tab. 2). Dabei war von vorneherein klar, daß aufgrund bereits vorliegender Informationen zur Korrosion in Na und zur Abhängigkeit der Bruttoreate vom Nickelgehalt /5/ ein möglichst niedriges Nickelniveau anzustreben war. Andererseits sollten 8% Chrom nicht unterschritten werden, um eine gute Verträglichkeit der Hülle mit dem Kernbrennstoff UO_2/PuO_2 zu gewährleisten. Zusätzlich wurde mit den Legierungen B801 und B831 der Versuch unternommen, mittels γ' -Härtung bzw. Härtung über Vanadinnitridausscheidungen eine Schwellreduktion und gleichzeitig eine hohe Festigkeit zu erreichen /13/.

Vom Standpunkt der Austenitstabilität her liegen diese Legierungen entsprechend Abb. 5 günstiger in Bezug auf Ferrit- bzw. Martensitbildung

als das Ausgangsmaterial 1.4970. Außerdem haben elektronenmikroskopische Untersuchungen der Legierungen B828-B830 ihre geringe Tendenz zur Bildung von intermetallischen Phasen und damit zu Entmischungsvorgängen bestätigt.

Bei den bisher getesteten mechanischen Eigenschaften ergibt sich hinsichtlich der Kurzzeitfestigkeit ein gleich gutes, bei den γ' -gehärteten Legierungen ein verbessertes Verhalten, Abb. 6. Die Zeitstandfestigkeit druckbeaufschlagter Rohre, Abb. 7, bei 600 °C ergibt etwas niedrigere Werte für die matrixgehärteten Legierungen B828-B830, ebenso für die mit VN-Ausscheidungen gehärtete Legierung B801, aber erneut Vorteile für die γ' -gehärteten Varianten.

Das Schwellverhalten dieser Sonderlegierungen wurde mittels der bereits besprochenen Technik der Bestrahlung mit Schwerionen (Ni^{6+}) am VEC studiert. Die Ergebnisse sind in Abb. 8 für die Bestrahlungstemperatur von 575 °C, bei der maximales Schwellen erwartet wird, im Vergleich zu einigen kommerziellen Legierungen aufgetragen. Ausgehend vom Stahl 1.4970 im lösungsgeglühten Zustand erzielt eine Erhöhung des Nickelgehaltes von 15 auf 25% denselben schwellreduzierenden Effekt, wie eine Chromreduktion von 15 auf 10 Gewichts-%. Eine Kombination beider Maßnahmen reduziert das Schwellen von B829 gegenüber dem 1.4970 um etwa eine Größenordnung. Basierend auf einer solchen, offenbar inhärent schwellresistenteren Basislegierung X10 CrNiMoTiB 10 25 wurden weitere chemische Modifikationen im Bereich der sog. minoren Elemente Kohlenstoff, Titan und Aluminium untersucht (Legierungen C615-C619), die keine wesentliche Änderung hinsichtlich des Schwellens zur Folge hatten, z.T. jedoch über die γ' -Härtung zu günstigeren Festigkeitseigenschaften führten. Ebenso wurde schließlich nachgewiesen, daß die üblichen Variationen in der thermisch-mechanischen Vorbehandlung (Lösungsglühung, Kaltverformung, Auslagerungsglühung) kaum Einfluß auf die Porenbildung haben /14/.

Hinsichtlich des Effektes des bestrahlungsinduzierten Kriechens liegen bei diesen Entwicklungslegierungen noch keine Informationen vor. Aufgrund der uns bislang zugänglichen Information zum bestrahlungsinduzierten Kriechen austenitischer Stähle nehmen wir an, daß die Kriechdeformation unter Bestrahlung sich aus zwei Termen zusammensetzt, von denen einer linear mit der Bestrahlungsdosis ansteigt, der andere mit dem Schwellen gekoppelt ist /15,16/. Zumindest die von uns untersuchten

stabilisierten austenitischen Stähle lassen sich durch einen solchen Formalismus mittels der für die Stähle gültigen Konstanten S und I zwanglos erklären /18/.

$$\varepsilon_{cr} = S \cdot \sigma \cdot \phi t + I \cdot \sigma \cdot \varepsilon_s$$

Die Ergebnisse an höhernickelhaltigen γ' -gehärteten Legierungen M813 und PE16, bei denen das Schwellen in dem untersuchten Dosisbereich noch sehr niedrig ist /18/, deuten darauf hin (Abb. 9), daß die schwellenunabhängige Kriechkonstante S für höhernickelhaltige Legierungen etwa vergleichbar (innerhalb eines Faktors 2) mit der der austenitischen Stähle vom Typ AISI 316 oder 1.4970 ist. Dies würde bedeuten, daß der Vorteil niedriger Schwellraten wegen der Dominanz des Terms 2 in obiger Gleichung ebenfalls eine niedrigere Kriechdeformation für unsere Entwicklungslegierungen zur Folge haben sollte. Selbstverständlich entheben solche Annahmen nicht der Notwendigkeit, Bestrahlungsexperimente durchzuführen. In Abb. 10 ist eine Zusammenfassung solcher Experimente dargestellt. Insgesamt scheint der hier im IMF II eingeschlagene Weg, höhernickelhaltige nichtkommerzielle Austenite als Hüll- und Kastenwerkstoffe zu entwickeln, erfolgversprechend.

5. Ferritisch-martensitische Stähle

Das starke Interesse an ferritisch-martensitischen Stählen liegt in der begründeten Erwartung, daß diese Werkstoffe neben ausreichender Warmfestigkeit insbesondere ein günstiges Bestrahlungsverhalten zeigen /19/. So wurde bisher wenig Neigung zum Porenschwellen festgestellt /2,20,21/. Ebenso haben sich die frühen Beobachtungen /22,23/, daß ferritisch-martensitische Stähle wenig zur bestrahlungsinduzierten Heliumversprödung neigen, erhärtet /24,25/. Hierzu kommt, daß nach vorläufigen Befunden in stationärem Natrium 12% Chrom-Stähle offenbar ein günstiges Korrosionsverhalten zeigen; sie scheinen auch in sehr reinem Natrium bis etwa 650 °C gegen Entkohlung weitgehend stabil zu sein.

Das hier skizzierte Eigenschaftsprofil macht daher das weltweite Interesse an den 10-12% Chromstählen, insbesondere für Anwendung als Kastenwerkstoff, verständlich.

Für die Anwendung im Temperaturbereich um 600 °C kommen nur spezielle ferritische Werkstoffe in Betracht:

- a. mit praktisch unlöslichen Teilchen (z.B. Oxiden) dispersionsgehärtete Werkstoffe
- b. mit Ferritbildnern (z.B. Cr) hochlegierte einphasige Ferrite (> 12% Cr)
- c. hochlegierte, vergütete martensitische Werkstoffe (9-12% Cr, 0.1-0.2% C)

Von diesen Werkstoffen fällt Gruppe (b) aus, weil sie bei erhöhten Einsatztemperaturen zu Versprödungsreaktionen neigt, die u.a. auf die σ -Phasenbildung zurückgeführt werden können. Vertreter der Gruppe (a) sind die von unseren belgischen Kollegen entwickelten, auf pulvermetallurgischem Wege hergestellten Werkstoffe, die sich durch Strangpressen und Ziehen vornehmlich zu Hüllrohren verarbeiten lassen /26/. Die Werkstoffe sind C-arm und daher bewegt sich ihr Zustandspunkt im Diagramm der Abb. 11 (Schnitt durch Dreistoffsystem Fe-Cr-C bei 12% Cr) bei T-Änderungen praktisch innerhalb des schwarzen Ferritgebietes.

Von besonderem Interesse für die Fertigung von Brennelementkästen sind die kommerziellen, warmfesten Vergütungsstähle mit 9-12% Cr. Typische Analysenwerte sind in Tab. 3 aufgeführt. Sie entsprechen im wesentlichen den "unstabilisierten" Cr-Mo-V-, bzw. den niobstabilisierten Cr-Mo-V-Nb-Legierungen. Der Ni-Gehalt dieser Stähle ist im Interesse einer ausreichend hohen A_{C1} -Temperatur und einer hohen Überalterungsresistenz auf ca. 1% begrenzt. Im EM12 ist das Nickel durch erhöhten Molybdängehalt ersetzt; dieser Stahl neigt deshalb stärker zur δ -Ferritbildung. Sehr ähnlich sind die Werkstoffpaare 1.4923/CRM-12 einerseits und 1.4914/FV 448 andererseits. Der amerikanische HT9 enthält an Stelle von Niob einen Wolframzusatz.

Wie bereits erwähnt, ist nach bisher vorliegenden Erkenntnissen die Porenbildung in ferritischen und martensitischen Stählen sehr niedrig. So liegt der nach Neutronenbestrahlung der Werkstoffe EM12 /20/ und HT9 /2/ beobachtete Schwellbetrag bei bis zu 100 dpa (NRT) unterhalb 1%, also deutlich

unterhalb des Referenzaustenits AISI 316, etwa im Bereich hochnickelhaltiger Legierungen (Abb. 12 u. 13). Die mit Ionenbestrahlung bei noch höheren Dosen ermittelten Schwellen schließen sich entsprechend Abb. 12 gut an die Neutronendaten an. Entsprechende Ergebnisse aus VEC-Bestrahlungen des IMF II (575 °C, 70 dpa) führten zu keinerlei Schwellen. Allgemein wird vermutet, daß die Hauptursache für die hohe Schwellresistenz dieser Legierungen eine erhöhte Direktrekombination von Leerstellen und Zwischengitteratomen an Trappingzentren ist, bzw. der Bias für die bevorzugte Aufnahme von Selbstinterstitiellen an Versetzungen reduziert wird /27/.

Die Aussagen zum bestrahlungsinduzierten Kriechen dieser Werkstoffgruppe sind noch sehr dürftig, sie genügen noch nicht für ein fundiertes Statement. Paxton et al. /28/ ordnen den Martensit HT9 in die Gruppe der matrixgehärteten Austenite der Serie AISI 300 ein, beobachten also bei allerdings relativ hohen Bestrahlungstemperaturen (540 °C) ein beachtliches bestrahlungsinduziertes Kriechen. Neuere Ergebnisse, in Abb. 14 dargestellt, stützen diese Aussage bei höheren Neutronenfluenzen /2/. Andererseits liegt die zwischen 280 und 360 °C am FV448 gemessene Kriechrate nahezu um eine Zehnerpotenz niedriger als bei austenitischen Stählen /21/. Möglicherweise muß also mit einer relativ starken Temperaturabhängigkeit zwischen 300 und 500 °C gerechnet werden. Die neuesten eigenen Ergebnisse aus Mol-5-Experimenten stützen für den Werkstoff 1.4914 diese Aussage /29/. Außerdem wird, wie in Abb. 15 dargestellt, eine nicht-lineare Spannungsabhängigkeit der Kriechdeformation beobachtet. Beides, die unterschiedliche Temperatur- und Spannungsabhängigkeit der Kriechdeformation unter Bestrahlung läßt bei den Martensiten den Schluß zu, daß der bei austenitischen Stählen übliche Mechanismus des SIPA Kriechens offenbar nicht gültig ist.

Einen kritischen Punkt bei jedem ferritischen Stahl bildet der Steilabfall der Kerbschlagzähigkeit bei niedrigen Temperaturen und die Erhöhung dieser Übergangstemperatur durch Bestrahlung. Das Ziel bei der Optimierung des Werkstoffs 1.4914 mußte daher vor allem darin bestehen, die entgegengesetzten Forderungen nach hoher Kriechfestigkeit und möglichst niedriger Übergangstemperatur T_0 in Einklang zu bringen, wobei einer möglichst niedrigen Übergangstemperatur für die Anwendung des 1.4914 als Kasten-

material Priorität eingeräumt wurde. Das Ziel wurde im Rahmen einer gemeinsam mit ARBED-Saarstahl durchgeführten Entwicklung durch Sicherstellung der δ -Ferritfreiheit des Gefüges sowie durch Limitierung des Stickstoff- und Borgehaltes erreicht. Abb. 16 zeigt die neuesten Werte der Großcharge 51482. Nach Kerbschlagarbeit und FATT (Fracture Appearance Transition Temperature) liegt die Übergangstemperatur für längs zur Walzrichtung entnommene ISO-V-Normal- und Kleinproben bei -40 bzw. -50 °C, also erfreulich tiefen Werten.

Im Hinblick auf die technische Handhabung (z.B. Auswechseln von Brennelementen), muß die Übergangstemperatur für bestrahltes Material unterhalb etwa 250 °C liegen. Abb. 17 zeigt die bisher vorliegenden Daten über die Erhöhung der Übergangstemperatur, ΔT , infolge Bestrahlung. Beim HT-9 wurde nach einer EBR-II-Bestrahlung bei 419 °C bis zu 7 dpa (NRT) ein ΔT von 108 K ermittelt. Die Übergangstemperatur erreichte danach 113 °C, was noch deutlich unter der kritischen Grenze von 230 °C liegt. Es muß aber beachtet werden, daß die Dosis nur etwa 10% der Zieldosis des SNR-300 betrug und die Vergütungstemperatur von 780 °C sehr hoch lag, wodurch günstige Kerbschlagwerte, aber schlechte Zeitstandeigenschaften, erzielt werden.

Die im Interesse einer Verbesserung der Kerbschlagzähigkeit erforderliche drastische Reduzierung des Stickstoffgehaltes um etwa eine Zehnerpotenz führt zu einer fühlbaren Verringerung der Zeitstandfestigkeit. Diesen Effekt zeigt Abb. 18 in einer Larsen-Miller-Darstellung. Man liest aus ihr auch eine 600 °C - 10^4 h-Zeitstandfestigkeit für die stickstoffarme Variante von ca. 80 MPa ab. Dieser Wert wird von den Auslegern als ausreichend angesehen, da die Brennelementkästen im oberen (heißen) Teil abgestützt sind und dort keine hohen Spannungen auftreten.

Den Bestrahlungseinfluß (am BR2-Reaktor) auf die Zeitstandfestigkeit der stickstoffreichen Variante (Charge 11368) zeigt Abb. 19. Die Auftragung erfolgte gemäß einer ISO-Empfehlung (ISO/TC17/WG10) /30/. Man erkennt, daß die bestrahlten Proben bei den höheren Prüfspannungen eine geringfügig niedrigere Festigkeit aufweisen, während bei den (praktisch wichtigeren) niedrigen Spannungen die bestrahlten Proben sogar die etwas höhere Festigkeit zeigen. Dieses Verhalten kann wie folgt verstanden werden: Little und Stoter /31/ haben an einem ähnlichen Stahl (FV 448) gezeigt, daß eine schnelle Bestrahlung bei 600 °C zu einer gewissen Bestrahlungserweichung

führt, als Folge von Erholungsvorgängen in der von der Martensitumwandlung her versetzungsreichen Matrix. Dieser Befund macht das Verhalten bei hohen Spannungen verständlich. Die eigenen Untersuchungen haben gezeigt, daß bei den Langzeittests die Kriechraten der bestrahlten Proben geringer sind als die der unbestrahlten, und daß der sekundäre Kriechbereich bei ersteren verlängert ist. Es muß elektronenmikroskopisch geklärt werden, ob dieser günstige Bestrahlungseinfluß auf einer Ausscheidungsmodifikation beruht oder die Folge der Matrixerhärtung durch Heliumbläschen ist.

Tab. 4 gibt schließlich einen Überblick über die 19 laufenden bzw. geplanten Bestrahlungsvorhaben, die die notwendigen Informationen zum Bestrahlungsverhalten des Martensits 1.4914 erbringen werden. In Abb. 20 ist dargestellt, in welchen Bereichen noch Informationen fehlen.

6. Schlußfolgerungen

Die bisher erzielten Ergebnisse sowohl auf dem Gebiete der höhernickelhaltigen Austenite (X10CrNiMoTiB 10 25) als auch dem der ferritisch-martensitischen Stähle (X18CrMoVNb12 1 \approx 1.4914) rechtfertigen die Erwartungen in diese Werkstoffe.

Schwerpunkte der weiteren F+E-Arbeiten liegen bei den höhernickelhaltigen Austeniten in der Ermittlung der In-pile-Standzeiten im Bereich der maximalen Hüllmittentemperaturen (He-Versprödung), bei der Bestätigung der relativ günstigen Schwell- und Kriecheigenschaften durch Bestrahlungsexperimente mit Neutronen und bei der Werkstoffqualifizierung und Technologie.

Für die Martensitentwicklung steht an erster Stelle die Frage nach der Beeinflussung der Übergangstemperatur durch Neutronenbestrahlung. Ebenso wichtig und interessant ist die Aufklärung des vorherrschenden In-pile-Kriechmechanismus zwischen 400 und 600 °C. Schließlich besitzen die Fragen zur Fabrikation und Qualifikation von Hüllrohrkästen ebenfalls hohe Priorität.

Literatur:

- /1/ W. Schneider, K. Herschbach, L. Schäfer, M. Schirra, Ch. Wassilew und K. Ehrlich
Stand der Materialentwicklung für das SNR-300 Referenzkonzept -
kritische Materialprobleme. Dieses Seminar Seite 125

- /2/ B.A. Chin, R.J. Neuhold and J.L. Straalsund
Nuclear Technology, 57 (1982) 426

- /3/ J.M. Dupouy
Rapsodie and Phenix - The Material Story; Effects of Radiation on
Materials, Eleventh Conference ASTM STP 782, Scottsdale 1982 p 1179

- /4/ R.R. Hasiguti
J. Nucl. Mater. 103 + 104 (1981) 51-56

- /5/ K. Ehrlich und W. Dietz: Atoomenergie en haar Aoepassingen
18 (1976) S. 189

- /6/ W. Dietz, K. Ehrlich and J.J. Huet
Research and Development Programme in the DEBENE-Area for Fast
Breeder Material Development. Proc. Internat. Conf. Radiation
Effects in Breeder Reactor Structural Materials, Scottsdale (1977) p 13

- /7/ K. Ehrlich und W.V. Vaidya
Porenbildung in Sonderlegierungen auf der Basis von Fe-15%Cr-15%Ni.
Jahrestagung Kerntechnik, Mannheim 4.-6. Mai 1982, p 465

- /8/ F.A. Smidt Jr. and J.A. Sprague
Scripta Met. 7 (1973) 495

- /9/ L.K. Mansur and M.H. Yoo
J. Nucl. Mater. 74 (1978) 167

- /10/ H. Venker und K. Ehrlich
J. Nucl. Mater. 60 (1976) 347

- /11/ W.V. Vaidya, G. Knoblauch und K. Ehrlich
Void Swelling and Phase Stability in Different Heats of Cold-drawn
Type 1.4970 SS after Heavy-Ion Irradiation; Effects of Radiation
on Materials, Eleventh Conference ASTM STP 782, Scottsdale 1982
p 824
- /12/ J.F. Bates and W.G. Johnston
Effects of Alloy Composition on Void Swelling. Proc. Internat. Conf.
Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials,
Scottsdale 1977, p 625
- /13/ L. Schäfer
Persönliche Mitteilung
- /14/ D. Gulden and K. Ehrlich
Void Swelling and Microstructural Development in Experimental
Austenitic Alloys; wird veröffentlicht auf der Brighton Conference 1983
- /15/ J.P. Foster, W.G. Wolfer, A. Biancheria and A. Boltax
in Proc. BNES Conference on Irradiation Embrittlement and Creep
in Fuel Cladding and Core Components, London 1973 p 273
- /16/ K. Ehrlich
J. Nucl. Mater. 100 (1981) 149
- /17/ W. Schneider, K. Herschbach and K. Ehrlich
Interdependence of In-pile Creep and Void Swelling in Ti- and Nb-stabi-
lized Stainless Steels; Effects of Radiation on Materials, Eleventh Con-
ference ASTM STP 782, Scottsdale 1982 p 30
- /18/ B.A. Chin and R.J. Puigh
Analyses of the High Fluence Creep Behaviour of Two Precipitation
Strengthened Alloys; Effects of Radiation on Materials, Eleventh Con-
ference ASTM STP 782 p 122
- /19/ K. Anderko
J. Nucl. Mater. 95 (1980) 31

- /20/ J. Erler, A. Maillard, G. Brun, J. Lehmann und J.M. Dupouy
Proc. Internat. Konferenz; Bestrahlungsverhalten metallischer Hüll-
und Strukturwerkstoffe für schnelle Brutreaktoren, Ajaccio, F, 1979,
p 11
- /21/ E.A. Little, D.R. Arkell, D.R. Harries, G.R. Lewthwaite und
T.M. Williams
Proc. Internat. Konferenz; Bestrahlungsverhalten metallischer Hüll-
und Strukturwerkstoffe für schnelle Brutreaktoren, Ajaccio, F, 1979,
p 31
- /22/ H. Böhm und H.J. Hauck
J. Nucl. Mater. 21 (1967) 112
- /23/ H. Böhm und H.J. Hauck
J. Nucl. Mater. (1969) 184
- /24/ K. Anderko und C. Wassilew
Jahrestagung Kerntechnik Berlin (1980) p 535
- /25/ C. Wassilew, K. Ehrlich und K. Anderko
Post-Irradiation Creep Rupture Properties of the 12 % Chromium
Martensitic Steels 1.4914 and 1.4923; wird veröffentlicht (Brighton-
Conference 83)
- /26/ J.J. Huet und V. Leroy
Nucl. Technol. 24 (1974) 216
- /27/ E.A. Little
J. Nucl. Mater. 87 (1979) 11
- /28/ M.M. Paxton, B.A. Chin, E.R. Gilbert und R.E. Nygren
J. Nucl. Mater. 80 (1979) 144
- /29/ K. Herschbach und W. Doser
Irradiation Creep of the Martensitic Steel No. 1.4914 between 400
and 600°C (Mo1 5B); wird veröffentlicht (Brighton-Conference 83)

- /30/ British Standards Institution; Elevated Temperature Proof Stress and Creep-Rupture Properties of 12CrMoV (W) Steels, ISO/TC 17/WG 10/ETP-SB 29
- /31/ E.A. Little und L.P. Stoter
Microstructural Stability of Fast Reactor Irradiated 10-12 % Cr Ferritic-Martensitic Stainless Steels; Effects of Radiation on Materials, Eleventh Conference ASTM STP 782, Scottsdale 1982 p 207

Tab. 1 Vergleich von Abbrand- und Schadensakkumulation
verschiedener Reaktoren

Reaktor	Standzeit (VLT)	Abbrand (max.lok.) (%)	dpa (NRT)	dpa/% Abbrand
KNK II/1	400	10	32	3,2
SNR 300				
MK IA	441	9,1	65	7,3
MK II	570	9,6	90	9,3
Superphénix-2 bzw. SNR-2	1160	~ 20	165	~ 8

Tab. 2 Wichtige Legierungskomponenten der Entwicklungs-
legierungen (austen. Stähle, Hauptkomponente Fe)

Chargen-Nr.	Cr	Ni	Minore Elemente	Härtungsmechanismus
8-215561 (1.4970)	15.3	14.9	Si, Mn, Mo, Ti	Matrix
B828	15.4	25.0	"	"
B829	10.2	25.0	"	"
B830	9.0	14.7	"	"
B831	8.4	35.7	Si, Mn, Mo, Ti, Al, Zr	γ'
B801	11.1	30.5	Si, Mn, Mo, V	VN
C618	9.1	24.7	Si, Mn, Mo, Ti	Matrix
C619	9.2	23.5	Si, Mn, Mo, Ti, Al	γ'

Tabelle 3: Typische chemische Zusammensetzung von Stählen mit 9-12 % Chrom

	C	Cr	Ni	Mo	V	Nb	Si	Mn	S	P	B	N	Sonstige
<u>Typ Cr-Mo-V</u>													
1.4923	0.21	11.2	0.42	0.83	0.21	-	0.37	0.50					
CFM-12	0.19	11.8	0.62	0.96	0.30	-	0.45	0.54	0.017	0.016			
HT9	0.20	11.95	0.62	0.99	0.30	-	0.38	0.59					0.52W
<u>Typ Cr-Mo-(V)-Nb</u>													
1.4914	0.11	11.3	0.7	0.5	0.3	0.25	0.45	0.35			0.007		
	<0.2	11.5	1.0	0.7	0.2	0.1		1.2					0.3Cu
	0.11	11.3	0.7	0.5	0.3	0.25	0.45	0.35			0.007	0.029	
FV 448	0.10	10.7	0.65	0.60	0.14	0.26	0.46	0.86	0.009	0.020			
	0.10	10.7	0.64	0.64	0.16	0.30	0.38	1.01	0.016	0.006			
EM12	0.12	9.5		2	0.25	0.1		1.0					
	0.10	11.9		1.7		0.25	0.3	0.75					
	0.19	10.4		0.9	0.53	0.36	0.33	0.61					
	0.06	10.5	0.15	2.05		0.36	0.18	1.08					
						(Nb+Ta)							

Tab. 4: Reaktor-Bestrahlungsexperimente mit ferritischen Werkstoffen

Experiment	Werkstoffe	Probenform	Untersuchungs- ziel	Voraus. beendet
RipceX I	D102 1.6770	Füllstücke	Schwellen, Gefüge	1982
Rapsodie II- Monitor	D102 1.4923 EM 12	Füllstücke	Schwellen, Gefüge	1983
PFR M1	1.4914	Flachproben, Vierkant- proben	Zugversuche Schwellen Gefüge	1984
PFR Transient Programme	1.4914 1.6770	Rundproben Kerbschlag- proben	Zug+Kriechver- suche (trans.) Kerbschlag Gefüge	1986
Mol 5 B13-16	1.4914	Rundproben	in-pile Kriechen, Gefüge	1984
ISIS (BR2)	Disp.geh. Ferrite EM12 1.4914 1.6770	Kerbschlag- Kleinstproben	Kerbschlag- zähigkeit	1983
OASIS (BR2)	Disp.geh. Ferrite EM12 1.4914 1.6770	Druck- röhrchen	in-pile Kriechen Gefüge	1984
PFR M2	1.4914 Disp.geh. Ferrite	Druck- röhrchen	in-pile Kriechen Schwellen Gefüge	1987
RipceX II	Disp.geh. Ferrite EM12 1.4923*	Druck- röhrchen u. Füllkörper	in-pile Kriechen Schwellen Gefüge	1982 (?) oder 1985
Carafe (Rapsodie)	Disp.geh. Ferrite	Fuel pins	Dichte, Ab- messungen, Schwellen Gefüge	1982 (?) oder 1984

CFC-6 und 8 (BR2 reflector)	Disp.geh. Ferrite	Fuel pins	Fuel cladding interaction	1983
KNK-II/2 (Zentralelement 1.33)	1.4914 EM12 1.6770	Hüllrohre Zugproben Kerbschlag- proben	Schwellen Mech. Eig.	1987
SNR-MTE III	Alternative Hüll- und Kasten- materialien	Schwellproben Zugproben	Schwellen Mech. Eig.	nach 1990
COUCOU IV (Phenix)	Disp.geh. Ferrit	Fuel pins	Dichte Abmessungen	1985
IDEFIX (Phenix)	Disp.geh. Ferrit	Fuel pins	Dichte Abmessungen Gefüge	1988
HFR 6770	1.6770	Zugproben	Mech. Eig. (core clamping material)	1983
Mol 3B7	1.4914	Zugproben	Zugversuche (HT-Ver- sprödung)	1983
KNK-II-MTE II	1.6770	Zugproben	Zugversuche Kriechver- suche	1987
Mol 3B6	1.4914 1.4923	Zugproben	Zugversuche Kriechver- suche	1982

* nicht wie wiederholt irrtümlich berichtet 1.4914

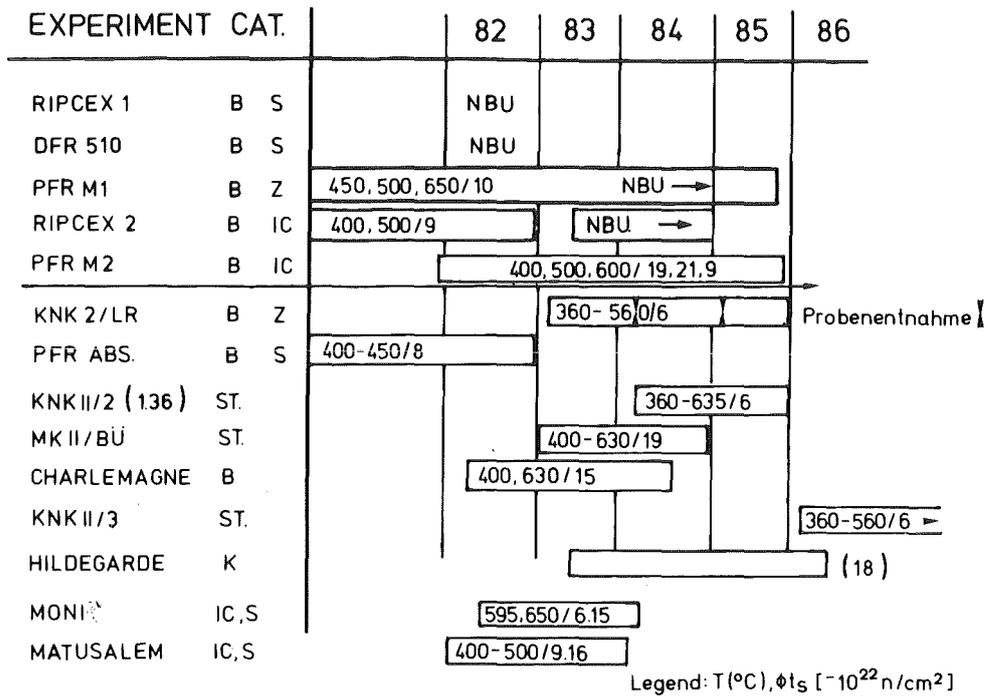


Abb. 1 Wichtige Bestrahlungsexperimente zur Qualifizierung von Werkstoff 1.4970 im kaltverformten Zustand als MK II-Referenzmaterial

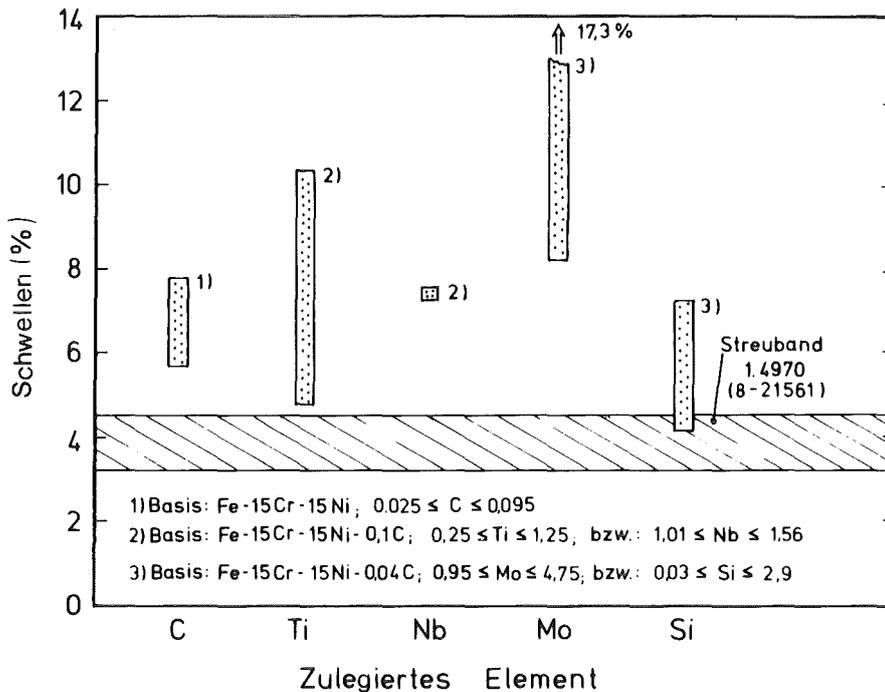


Abb. 2 Wirksamkeit verschiedener Elemente auf das Schwellverhalten in Fe-15%Cr-15%Ni-Legierungen nach VEC-Bestrahlung (575 °C, 70 dpa)

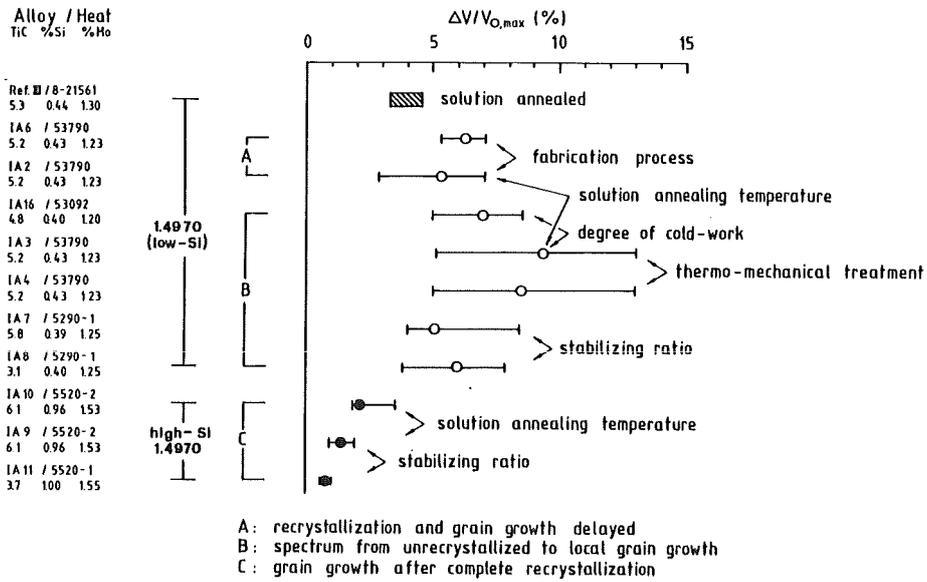


Abb. 3 Variation des Schwellens im kaltverformten 1.4970 in Abhängigkeit von verschiedenen Prozessparametern

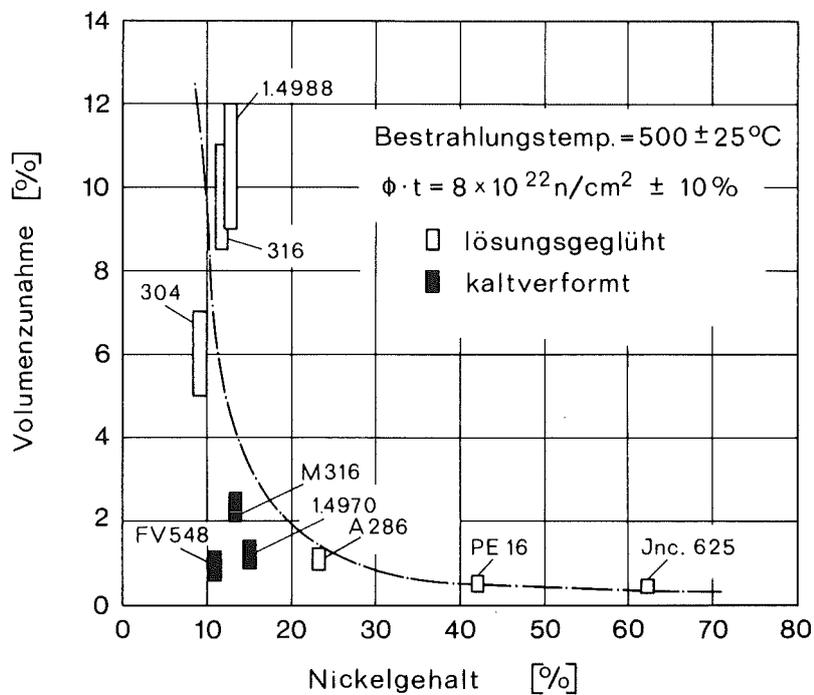


Abb. 4 Das Schwellen verschiedener Legierungen nach Neutronenbestrahlung in Abhängigkeit vom Nickelgehalt

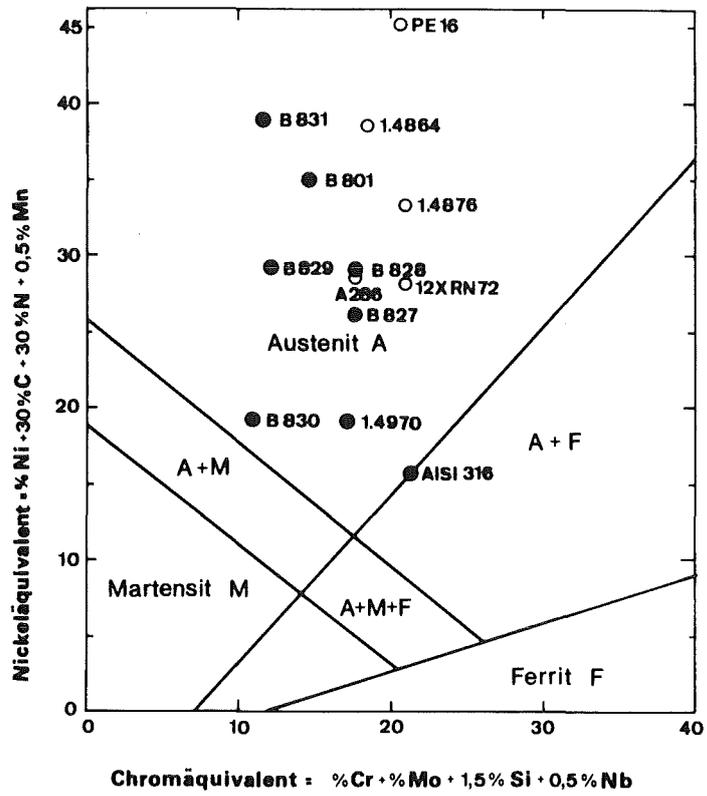


Abb. 5 Position kommerzieller austenitischer Stähle und von Entwicklungslegierungen B828-B830, B801, B831, im Schaeffler-Diagramm

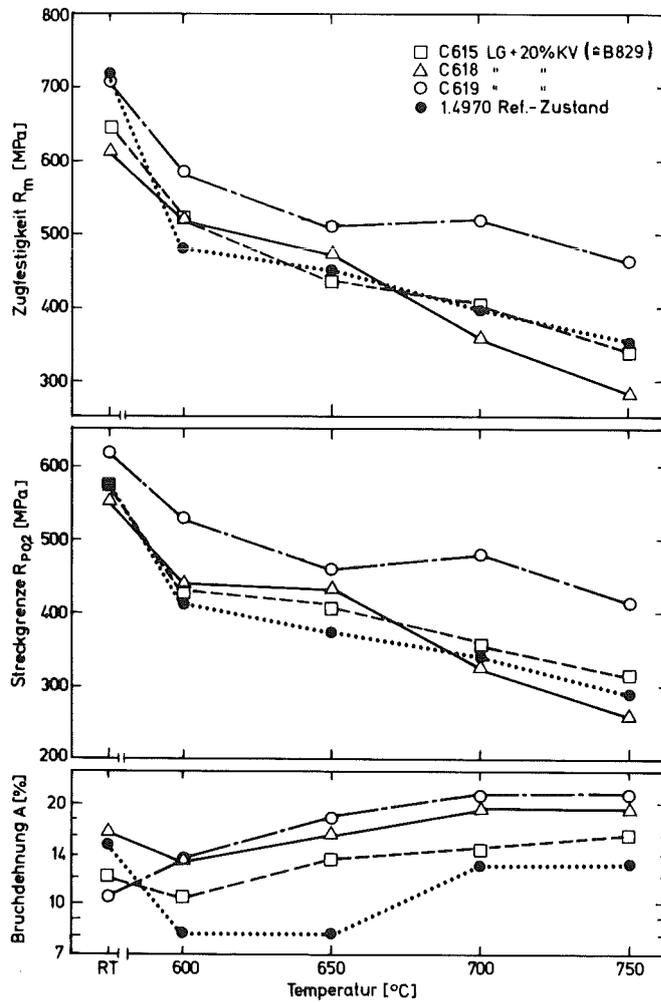


Abb. 6 Kurzzeitfestigkeit von Sonderlegierungen auf der Basis von Fe-10Cr-25Ni im Vergleich zum 1.4970 im Referenzzustand (lg+KV+a)

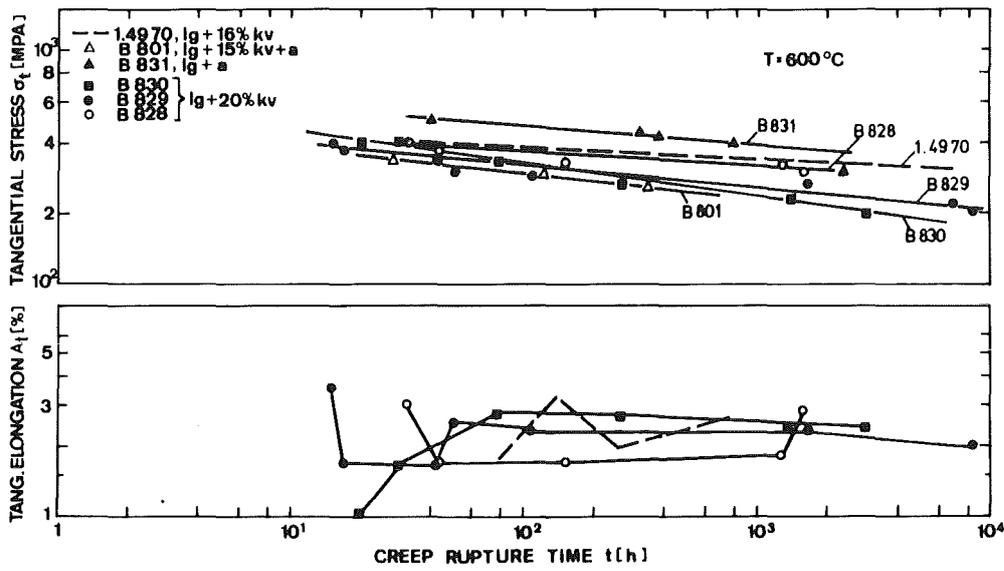


Abb. 7 Zeitstandfestigkeit von Sonderlegierungen bei 600 °C

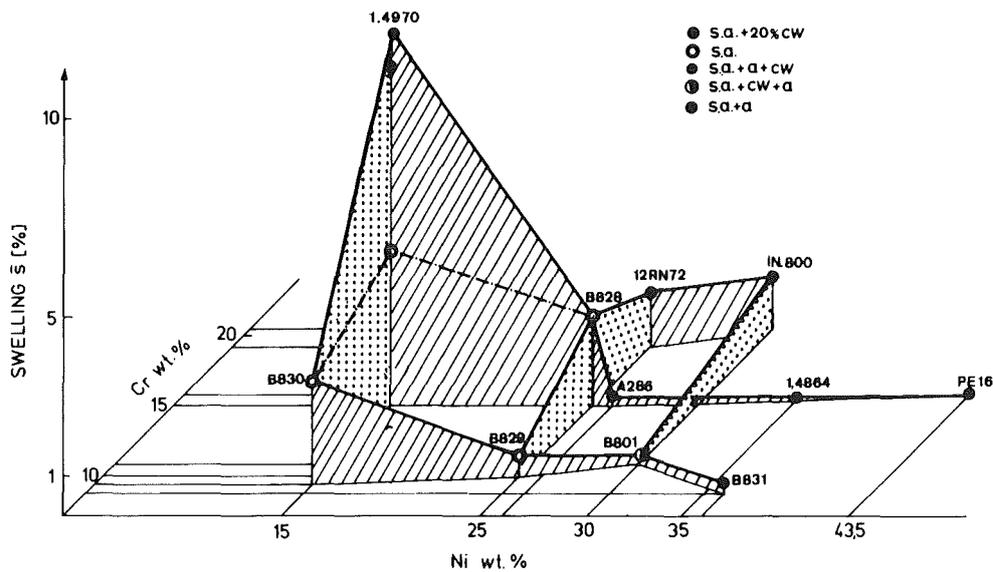


Abb. 8 Schwellverhalten von Sonderlegierungen und kommerziellen, höhernickelhaltigen Austeniten nach Bestrahlung (575 °C, 70 dpa) am VEC

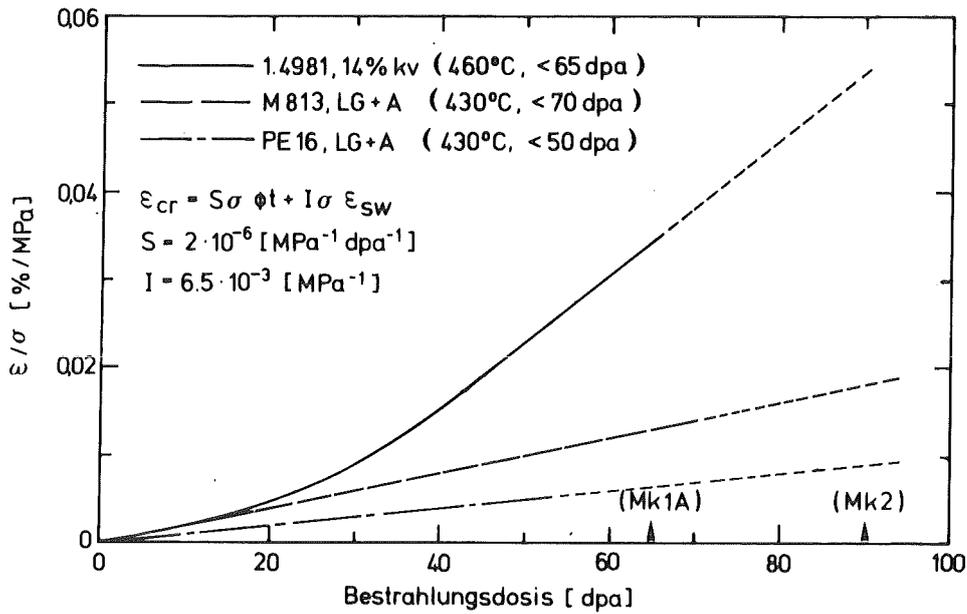


Abb. 9 Bestrahlungsinduzierte Kriechverformung für die Werkstoffe 1.4981, M813 und PE-16 nach Neutronenbestrahlung

Bestrahlungsexperimente an höhernickelhaltigen Austeniten (Entwicklungsstegierungen)

Experiment	Ziel der Untersuchung	Bestrahlungsparameter	Zeitplan			
			1983	84	85	86
PFR - M2	Schwellen+Kriechen	T = 400, 500, 600°C dpa = 77, 70, 35 (NRT) p ≤ 300 bar		400°C 500°C		
KNK II/2 (1.33)	Schwellen u. mechan. Eigenschaften	T = 360 - 560°C dpa = 30				
KNK II/2 (1.44)	Gefügeänderungen	T = 450, 550, 650°C dpa = 0,05, 0,25, 0,5, 2,5				
Mol3B/9	Versprödung	T = 650°C dpa = 50				
Mathusalem-Typ	Schwellen+Kriechen	T = 400 - 470°C				
DIMEP	Schwellen Pinverhalten	T = 400 - 600°C				
Charlemagne-Typ	Bündel	T = 400 - 600°C dpa = 90				
KNK II/3	Bündel u. Kastenverhalten	T = 400 - 600°C				

} In Planung

Bestrahlung
 Nachuntersuchung

Abb. 10 Bestrahlungsexperimente an höhernickelhaltigen Austeniten

12% Cr

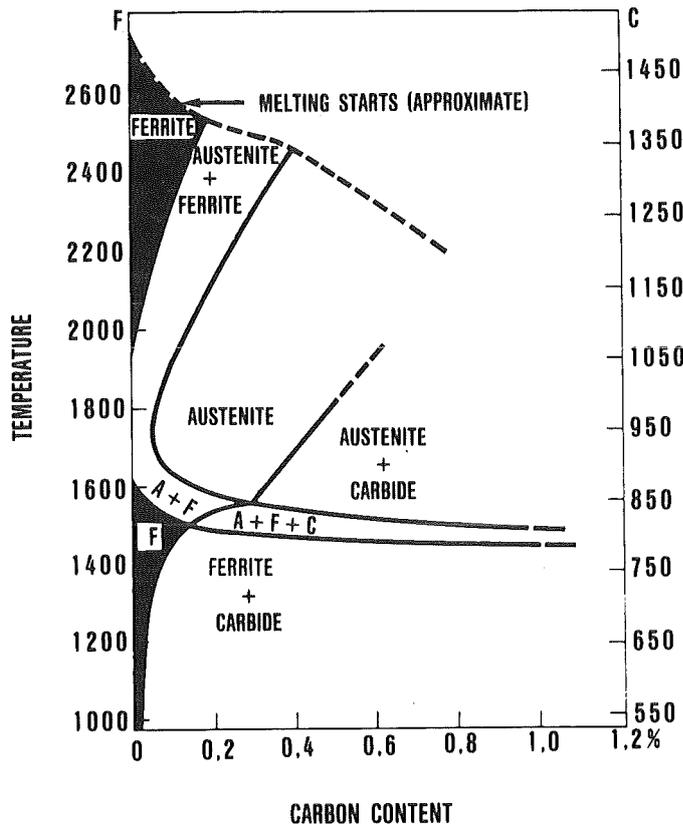


Abb. 11 Ternäres Eisen-Chrom-Kohlenstoffsystem

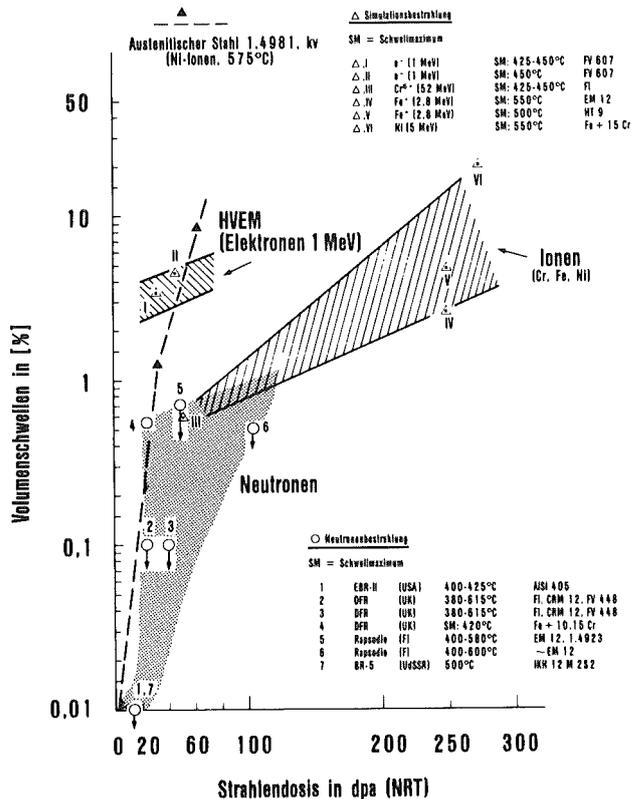


Abb. 12 Porenschwellen ferritischer Stähle bei Neutronen-, Elektronen- und Schwerionenbestrahlung

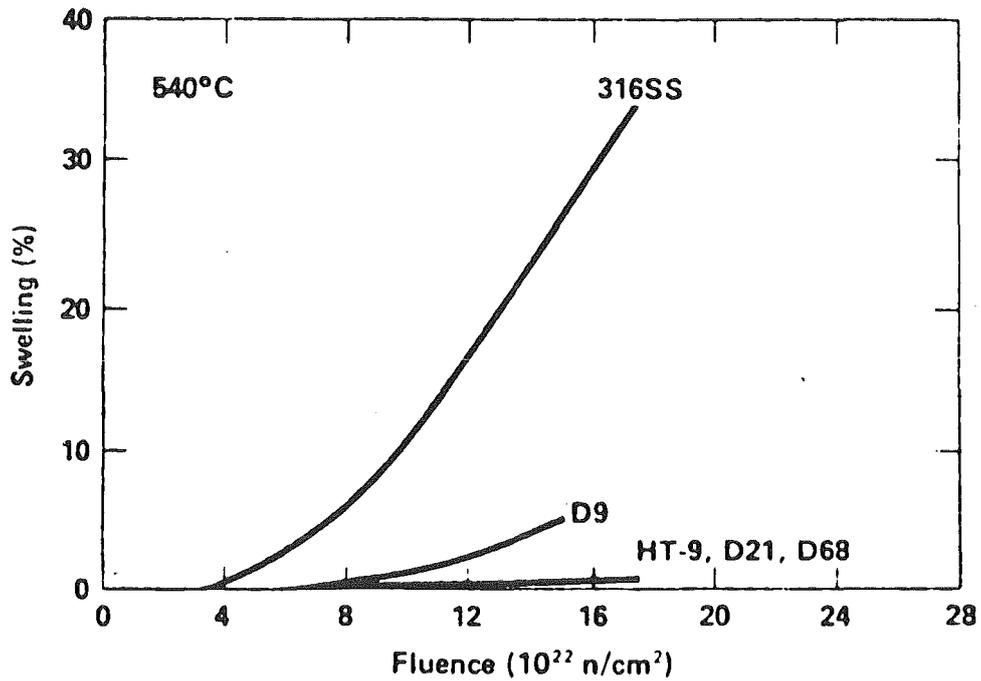


Abb. 13 Vergleich der Porenbildung in Austeniten (316, D9, D21, D68) und Ferriten (HT9) nach Neutronenbestrahlung [2]

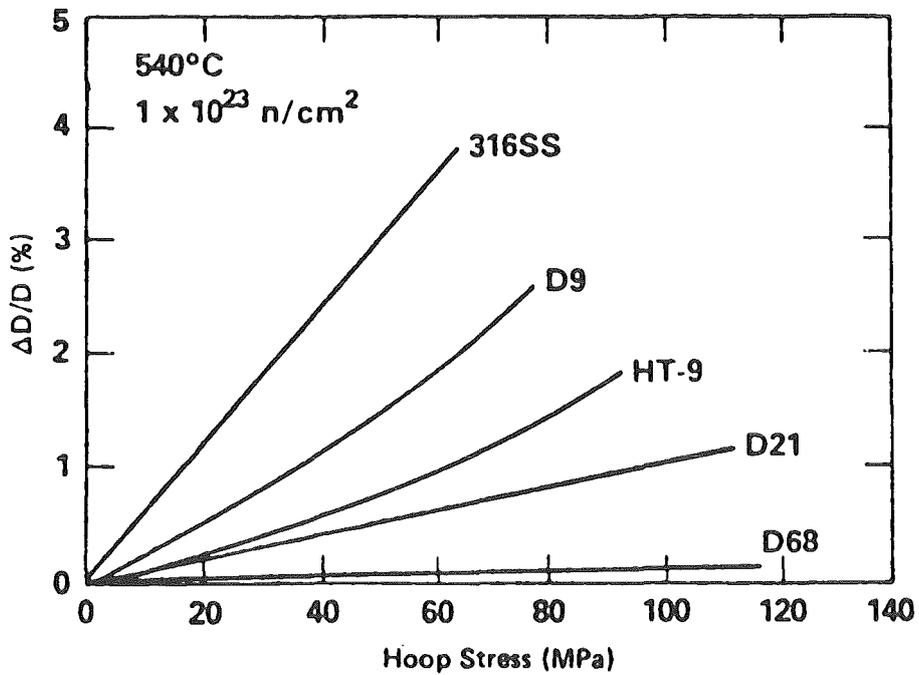


Abb. 14 Diametrale Aufweitung druckbeaufschlagter Kriechkapseln aus austenitischen bzw. ferritischen Werkstoffen als Funktion des Rohrrinnendrucks [2]

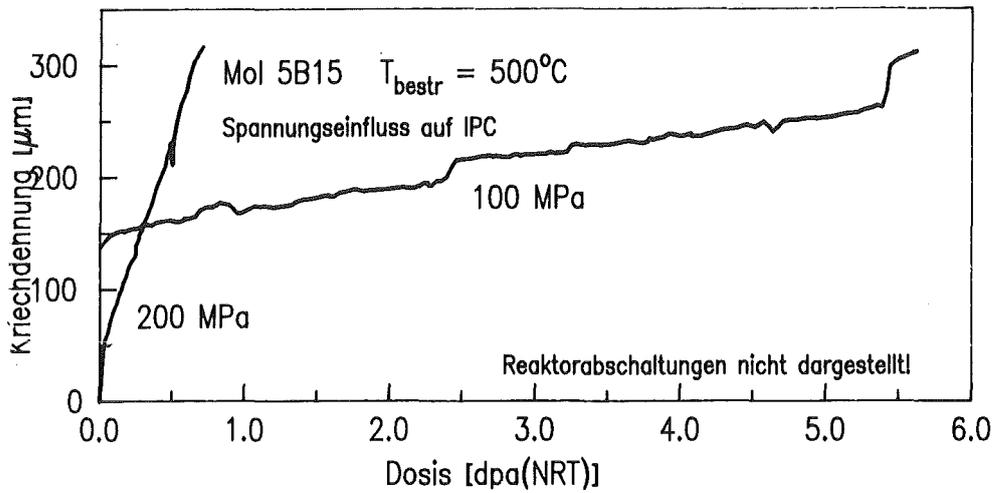


Abb. 15 Spannungseinfluß auf das bestrahlungsinduzierte Kriechen des Martensits 1.4914 aus Mol 5B Bestrahlungen

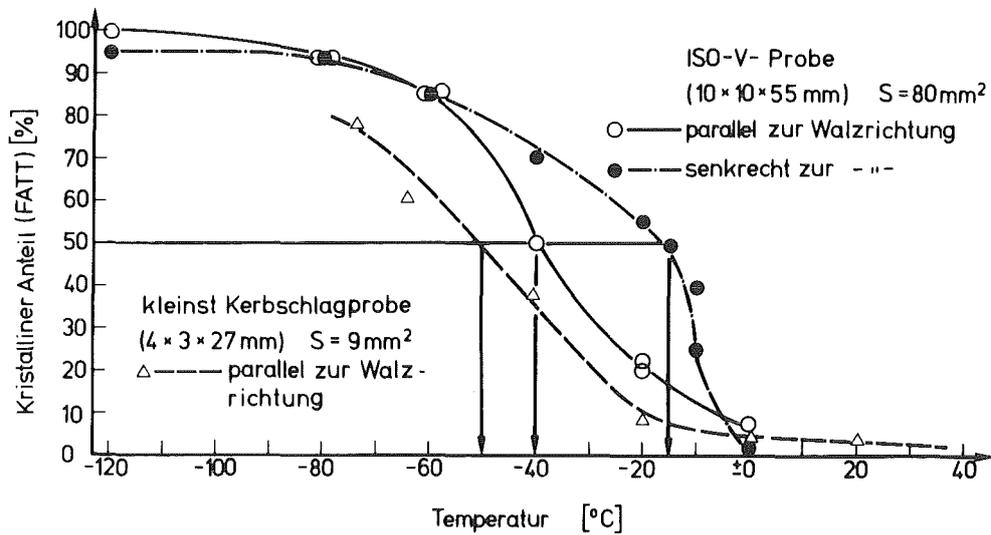


Abb. 16 DBT-Temperatur des Stahls 1.4914 (Charge 51482 K) an ISO-V- und miniaturisierten ISO-V-Proben

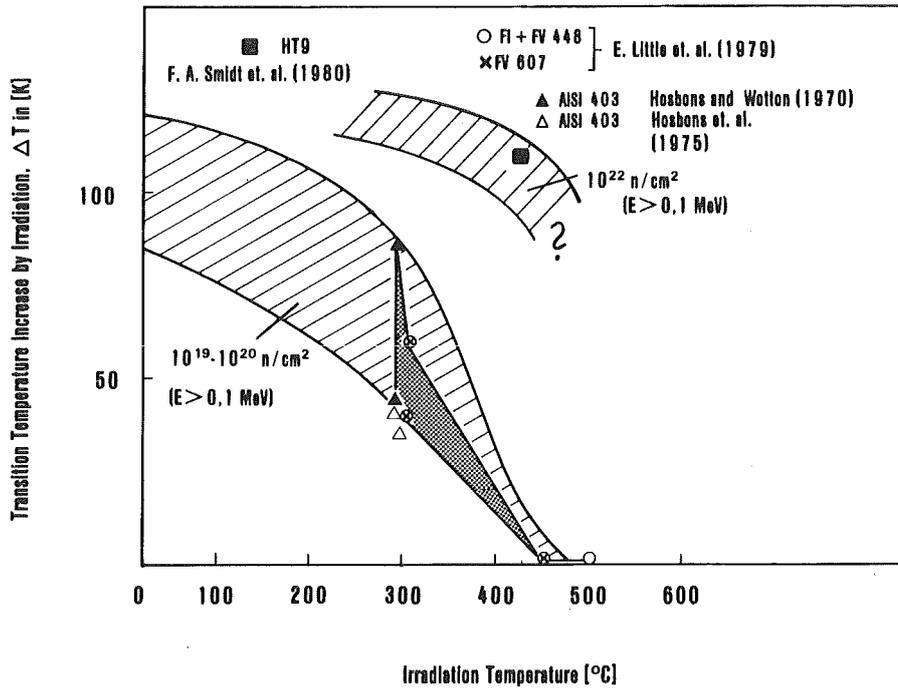


Abb. 17 Anstieg der DBT-Temperatur in Martensiten durch Bestrahlung

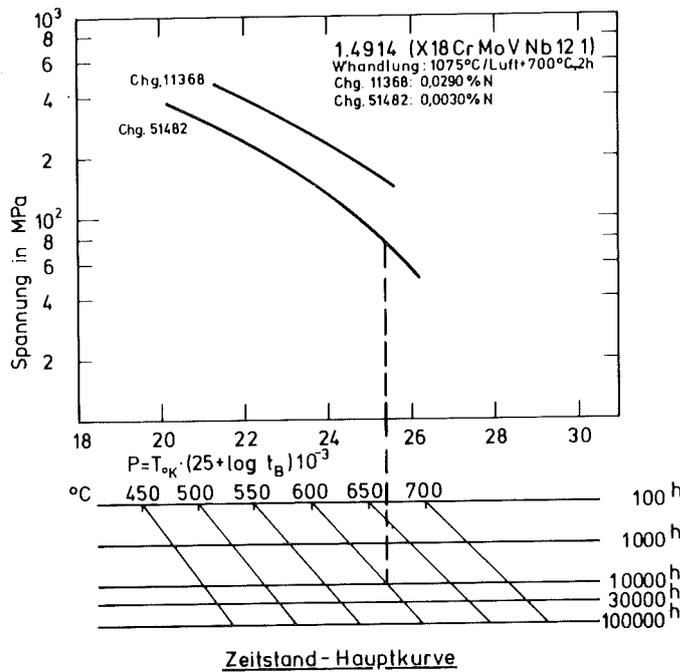


Abb. 18 Vergleich der Zeitstandfestigkeitseigenschaften der Großcharge 51482 K mit einer normalen RNOD-Schmelze des Martensits 1.4914

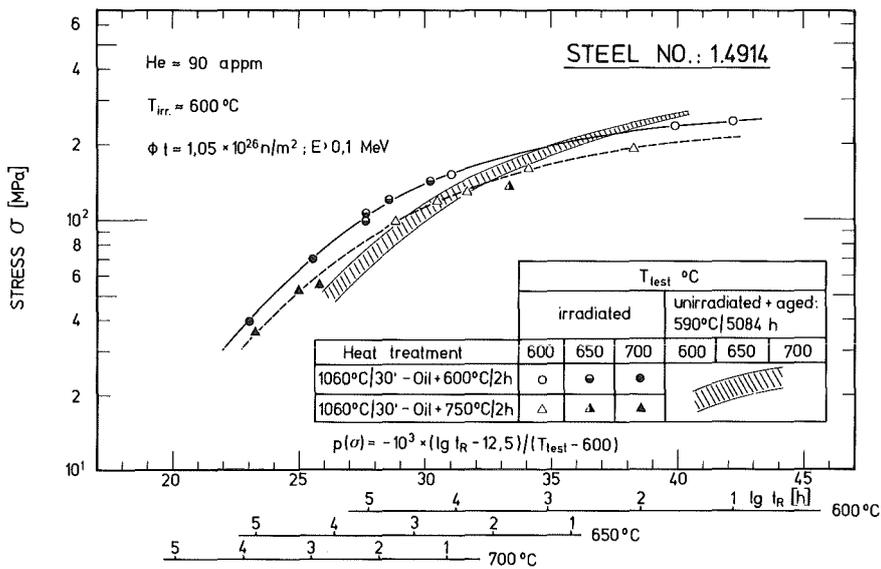


Abb. 19 Zeitstandfestigkeit des Stahls 1.4914 vor und nach Bestrahlung (nach ISO/TCI 7/WG 10-Empfehlung [30])

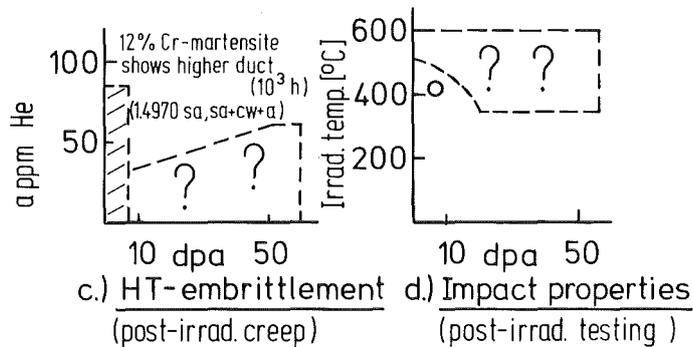
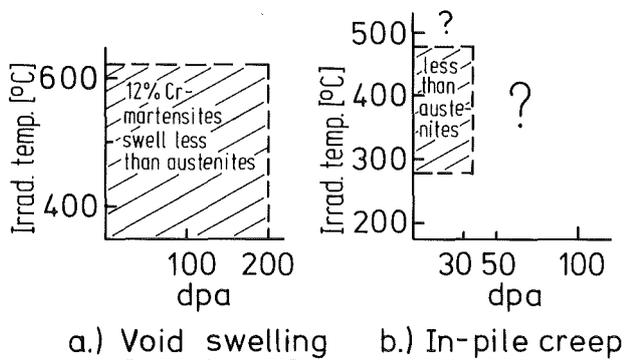


Abb. 20 Schematische Darstellung zum Kenntnisstand der 9-12%-Chromstähle für die Anwendung als Kastenwerkstoffe schneller Brüter

STATIONÄRE BESTRAHLUNGSEXPERIMENTE

D. Geithoff

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Institut für Material- und Festkörperforschung III

1. Einleitung

Mit Bestrahlungsexperimenten im stationären Betrieb wurde die Brennelement-Entwicklung innerhalb des PSB eingeleitet. Zunächst kamen in einer Vielzahl von Einzelversuchen Testbrennstäbe in Kapseln und speziellen Kreisläufen zur Bestrahlung. Auf diese Weise wurde das weite Parameterfeld abgetastet. Das grobe Zielporrait, das inzwischen Erweiterungen erfahren hat, enthielt anfangs als Hauptpunkte den Abbrand, die Stabileistung und die Hülltemperatur. Auch heute wird der Erfolg eines Bestrahlungsexperimentes noch weitgehend nach diesen Kriterien beurteilt.

Das aus Einzelversuchen entwickelte Brennstabkonzept wurde mit Stab-Bündeln getestet, die im direkten Kühlmittelstrom der jeweiligen Reaktoren betrieben wurden. Sie stellen die Meilensteine der Entwicklung dar und sollen hier in ihrem Ergebnis betrachtet werden.

Am Ende dieser Reihe stehen die echten Brennelemente, von denen inzwischen zwei aus dem schnellen Reaktor KNK untersucht werden konnten. Einem davon, dem Brennelement NY 202 IA gilt der größere Teil der nachfolgenden Ausführungen.

2. Bündel-Experiment DFR-350

Das erste größere externe Unternehmen im Bereich der Bestrahlungsversuche war das Experiment DFR-350, dessen Bestrahlungszeit in die Jahre 1969 und 1970 fiel. Hier wurden mit dem französischen CEA als Partner von der

DeBeNe-Seite 39 Teststäbe für eine Erprobung im Dounreay Fast Reactor bereitgestellt. Abstandshalter-Käfig und Brennelement-Mantelrohr lieferte der Reaktorbetreiber. Die wesentlichen Brennstabspezifikationen (siehe Abb. 1) entsprachen dem heute als SNR Mark-Ia bezeichneten Konzept. Mit einem maximalen lokalen Abbrand von 5,6 % Fima wurde das vorher definierte Ziel des Experiments erreicht. Wichtigstes Ergebnis war der Befund, daß alle Stäbe intakt geblieben und auch nicht Anzeichen von bevorstehendem Stabversagen erkennbar waren. In Detailuntersuchungen zeigte sich allerdings eine stärkere Streuung des Brennstoffverhaltens (Umstrukturierung), die auf noch nicht gleichmäßige Fabrikation schließen ließ. Bemerkenswert war außerdem eine starke axiale Wanderung des Spaltcäsiums zu den Brennstoffsäulenenden hin. Daß bei der Weiterbestrahlung einer Reihe von Stäben in sogenannten Trefoils (Experiment DFR-435) mehrere Stabschäden auftraten, ist weitgehend eine Folge von Handhabungsfehlern beim Assemblieren und dem DFR-typischen "gas blanketting". Allerdings ergaben sich bei Abbränden über 9 % Fima auch Hinweise auf "end-of-life"-Stabschäden.

3. Bündel-Experiment RAPSODIE-I

Zwei Stabbündel mit jeweils 34 Brennstäben überschritten bei diesem Experiment den Zielabbrand des SNR-300. Mit einem Maximalwert von 10,6 % Fima erreichten sie das Doppelte des vorangegangenen Bündel-experiments. Das Brennstabkonzept folgte auch hier den Mark-Ia-Spezifikationen (siehe Abb.2). Keiner der 68 Stäbe wies einen Stabschaden auf, obschon die Hüllrohrdurchmesser aufgrund des Stahl-schwellens um bis zu 6,5 % zugenommen hatten. Die schon früher beobachtete starke axiale Wanderung des Spaltcäsiums zeigte sich noch stärker ausgeprägt. Auch wurden nachteilige Auswirkungen dieses Effektes erkennbar. Im Bereich der Enden der Brennstoffsäulen war die Hülle lokal gedehnt, Folge einer Reaktion des Spaltcäsiums mit dem Brutstoff. Des weiteren waren auch einzelne Abschnitte der Brennstoffsäule durch Cäsium-Ansammlungen in ihrer geometrischen Struktur gestört und wiesen unregelmäßige Hohlräume und Risse auf. Eine weitere Besonderheit war die Überschreitung der Brennstoff-Schmelzgrenze in einigen zentralen Bereichen der Brennstoffsäule. Allerdings war dieser Effekt auf Stäbe mit stark unterstöchiometrischem Mischoxid beschränkt und zeigte auch keinerlei Auswirkungen auf das sonstige Stabverhalten.

Alle Befunde der Nachuntersuchung führten zu der Feststellung, daß das Ende der Lebensdauer der Brennstäbe noch nicht erreicht war.

4. Bündel-Experiment DFR-455

Mit einem 60-Stab-Bündel unter der Bezeichnung DFR-455 sollte das Mark-Ia-Brennstabkonzept weiter bestätigt und statistisch abgesichert werden (Daten siehe Abb.3). Die im Januar 1973 angelaufene Bestrahlung führte jedoch schon nach etwa einem Monat zum Stabversagen. Der Versuch wurde bei einem Abbrand von 5,4 % Fima abgebrochen. Bei der anschließenden Nachuntersuchung wiesen 4 Brennstäbe starke Hüllrohrschäden auf. In einem großen Untersuchungsprogramm, das auch die Analyse von unbestrahlten Ersatzstäben umfaßt, konnte die Ursache für das frühe Stabversagen ermittelt werden. Danach sind Verunreinigungen des Brennstoffs (Chlor und Wasser) und eine daraus resultierende Hüllinnenkorrosion für die Stabschäden verantwortlich. Die Quelle dieser Verunreinigungen wurde entdeckt und beseitigt.

Im Zuge der Nachbestrahlungsuntersuchungen wurde eine für die Lagerung der Stäbe wichtige Beobachtung gemacht. Nach etwa drei Jahren Lagerzeit in den Heißen Zellen zeigten zahlreiche Stäbe starke Außenkorrosion, die bis zum Verlust des Spaltgases durch nachträgliche Ribbildung reichte. Laugenkorrosion durch nicht vollständig entferntes Kühlmittel war hierfür die Ursache.

5. KNK-Brennelement NY 208 BN

Das Brennelement NY 208 BN gehörte zur KNK-II-Testzone. Es enthielt 211 Brennstäbe mit UO_2/PuO_2 -Brennstoff und Hüllrohren von 6 mm Außendurchmesser aus den Edelstählen 1.4981 und 1.4970.

Nach einem Betrieb bei einer Stableistung von maximal lokal 446 W/cm trat bei einem Abbrand von maximal lokal 17450 MWd/t ein Stabschaden auf, der durch mehrere DND-Ausbrüche angezeigt wurde. Daraufhin wurde der Reaktor sofort abgefahren und mit Hilfe von Spaltgas-Messungen an Einzelelementen in der BE-Wechselmaschine das defekte Brennelement identifiziert. Bei der darauffolgenden Bestrahlungsnachuntersuchung in den Heißen Zellen der KfK konnte zunächst kein schadhafter Stab gefunden werden. Sowohl die visuelle

Inspektion als auch ein spezieller Lecktest verliefen bei der Suche negativ. Erst Wirbelstromuntersuchungen in Verbindung mit Spaltgasanalysen und Gewichtsbestimmungen identifizierten den Stab IB 396 als Defektstab, bei dem schließlich nach einem Sipping-Test bei über 500 °C ein Querriß im Bereich der Brennstoffzone festgestellt wurde. Weitere Hinweise auf Defekte in anderen Stäben konnten nicht verifiziert werden. Die metallografische Untersuchung des Hüllrohrs vom schadhafte Stab IB 396 brachte eine erhebliche Innenkorrosion, verbunden mit zahlreichen Anrisssen zutage, deren Ursache bisher noch nicht geklärt wurde.

Ein weiterer wesentlicher Befund waren die Reibmarken der Abstandshalter an den Brennstäben. An den Kontaktpunkten der Wabengitter waren insbesondere im oberen Bereich des Brennelements starke Markierungen an den Hüllrohren der Brennstäbe erkennbar. Die ausgeschlagenen Krater erreichten Tiefen von bis zu 120 µm. Als Ursache für eine totale Penetration der Hüllwanddicke reichten diese Oberflächenschädigungen jedoch nicht aus.

Ein vollständigeres Bild des Verhaltens der KNK-Brennstäbe soll erst in der anschließenden Erläuterung der Ergebnisse aus der Untersuchung des Brennelements NY 202 IA gegeben werden, das einen Abbrand von maximal lokal 48 000 MWd/t erreichte.

6. KNK-Brennelement NY 202 IA

Das Brennelement NY 202 IA gehörte wie das zuvor beschriebene zur KNK-II-Testzone und ist mit diesem in Spezifikation und Aufbau weitgehend identisch (Daten siehe Abb. 4). Auch hier führte ein Stabschaden zur Beendigung der Bestrahlung. Allerdings wurde das Brennelement noch ca. 18 Tage bei geringer Leistung weiterbestrahlt. Anschließend wurde es ohne Naßreinigung in die Heißen Zellen der KfK überführt und hier zerlegt. Durch einen glücklichen Zufall war der einzige defekte Stab unter den ersten, die aus dem Bündel gezogen wurden.

6.1 Nachbestrahlungsuntersuchung

Für die Untersuchung der Brennstäbe waren zwei Ziele definiert. Zum einen sollte das Geschehen um den Stabschaden, seine Ursache und seine Auswirkungen erforscht werden und zum anderen der typische

Brennstabzustand bei der vorliegenden Abbrandstufe. In der nachfolgenden Erläuterung der Untersuchungsergebnisse werden beide Ziele nicht immer getrennt gehalten.

Alle Arbeiten zur Nachbestrahlungs-Untersuchung wurden in den KfK Heißen Zellen durchgeführt. Der qualifizierten Arbeit, basierend auf einer großen Erfahrung, ist es zu danken, daß die Untersuchungsergebnisse in so eindeutiger Art erstellt wurden.

6.1.1 Veränderung des Stabdurchmessers

Die Stäbe zeigten sich äußerlich in bester Verfassung. Nach individueller Reinigung von anhaftenden Natrium-Resten wurde ihr Durchmesser entlang der Stabachse bestimmt. Die Veränderungen gegenüber dem Zustand vor der Bestrahlung waren gering. Mit maximal 20 μm , entsprechend 0,3 % des Durchmessers, hoben sich die Meßwerte nur schwach aus dem Untergrund heraus, ganz im Gegensatz zu den 390 μm , die an einem Teststab des RAPSODIE-Bündels 102 gemessen worden waren. Neben dem schwellarmen Hüllmaterial bildet die geringe schnelle Neutronendosis sowie der nur mäßige Abbrand die Erklärung.

6.1.2 Wirbelstrom-Untersuchung

Die Wirbelstromsignale gelten gewöhnlich als Indikator für eine Hüllrohrschädigung, insbesondere für eine Hüllrohr-Innenkorrosion. Bei der Auswertung der Meßschriebe zeigten sich wesentliche Unterschiede zwischen den Stäben. Ganz aus dem Rahmen fiel das Bild des defekten Stabes A1-1584 (siehe Abb. 5) mit seinen starken Ausschlägen im Bereich des Spaltgasraumes und der Brutstoffsäulen. Damit ist demonstriert, daß ein defekter Stab (mit eingedrunenem Natrium) zweifelsfrei durch diese Untersuchung identifiziert werden kann. Nimmt man bei den intakten Stäben die maximale Signalamplitude als Beurteilungsmerkmal, so fällt auf, daß Stäbe, die in einer früheren Fertigungskampagne hergestellt wurden (38. KW 1973, 46. KW 1973), größere Veränderungen (Innenkorrosions-Schäden ?) aufweisen als solche späterer Produktion (25. KW 1975; siehe Abb. 5). Da auch der schadhafte Stab A1-1584 im Jahre 1973 gefertigt wurde, war dies

ein Hinweis auf eine mögliche Schadensursache. Unerklärt bleibt hier allerdings, warum die Hüllrohrrisse etwa in Stabmitte aufgetreten sind, wohingegen die Wirbelstromsignale erst am heißen oberen Stabende eine Hüllrohrschädigung anzeigen.

6.1.3 γ -Spektrometrie

Die Aussagen aus der γ -Spektrometrie über den Zustand der Brennstoffsäule sind nicht immer eindeutig, besonders wenn große Anomalien sichtbar sind. Umgekehrt deuten jedoch gleichmäßige Nuklidprofile auf einen pauschal guten Zustand hin.

Die γ -Profile der Brennstäbe des BE 202 sind durch eine Stetigkeit in ihrem Verlauf gekennzeichnet (Abb. 6). Geringere Unregelmäßigkeiten, wie z.B. stufenartige kleine Aktivitätserhöhungen, konnten zwar nicht erklärt werden, könnten aber bei der verwendeten provisorischen Meßeinrichtung durch Handhabungsfehler entstanden sein. Besonders deutlich wird die erwähnte Stetigkeit, wenn man die Cs-137-Profile einiger Stäbe aus dem Experiment RAPSODIE-I zum Vergleich heranzieht, wo starke Wanderungen und Anreicherungen des Cäsiums stattgefunden haben (Abb. 7). Daß diese Wanderungen auch Auswirkungen auf das Stabäußere haben, zeigt das Durchmesserprofil eines RAPSODIE-Stabes in Abb. 8. Lokale Dehnspitzen am Ende der Brennstoffsäule sind hier als Folge einer Cäsium-Reaktion mit dem angrenzenden Brutstoff erkennbar.

Eine Separierung der Brennstofftablette als Folge einer Brennstoffverdichtung ist bei den KNK-Stäben ebenfalls nicht zu sehen. Der Gesamtbefund belegt den guten Zustand der Brennstoffsäule.

6.1.4 Betatron-Durchleuchtung

Von den 211 Brennstäben des Bündels wurden 74 mit dem Betatron durchleuchtet. Durch die große Zahl dieser Untersuchungen erhält man ein statistisch gesichertes Gesamtbild, das auch etwas über das Streuband des Stabverhaltens aussagt.

Wie erwartet, hat sich bei allen Stäben über den größten Teil der Brennstoffsäule ein Zentralkanal ausgebildet (Abb. 9). Lediglich am

oberen Säulenende ist die Umstrukturierung wegen der in diesem Bereich zu geringen Stabileistung nicht erfolgt (Abb. 10): Durchmesser und Verlauf des Zentralkanals (Exzentrizität) zeigen nur geringe Schwankungen. Die bei früheren Bestrahlungsexperimenten beobachteten Unregelmäßigkeiten, wie z.B. Kavernenbildung (Abb. 11) oder starke lokale Veränderungen der Kanalgröße bis hin zur Verstopfung, fehlen hier. Auch sind keine metallischen Spaltproduktperlen als Zeichen einer Brennstoffüberhitzung erkennbar. Gegenüber der Ausgangslänge hat sich die Brennstoffsäule um 1 bis 5 mm, entsprechend 0,15 - 0,8 % verkürzt, vermutlich durch Nachsintern. Die durch den Verdichtungsprozeß mitunter entstehenden Querspalte innerhalb der Säule sind in den KNK-Stäben nicht aufgetreten.

In der Gesamtbeurteilung darf das einheitliche Aussehen der Brennstoffsäule, das Fehlen von nachteiligen Unregelmäßigkeiten als Zeichen eines einwandfreien Bestrahlungsverhaltens gedeutet werden.

6.1.5 Keramografie und Metallografie

Der pauschale Befund der zerstörungsfreien Nachuntersuchung setzt sich auch in der keramografisch-metallografischen Detailuntersuchung fort. Abb. 12 zeigt zwei Querschnitte im Bereich maximaler Stabileistung. Die Leervolumenverteilung (Zentralkanal, Radial-Risse) entspricht dem für diese Abbrandstufe typischen Bild. In den α -Autoradiografien ist in der Außenzone des Brennstoffs noch die heterogene Ausgangs-Verteilung von Uran und Plutonium erkennbar, die nach innen zu in einen homogenen Bereich (Mischkristalle) übergeht und um den Zentralkanal eine Plutonium-Anreicherung durch Thermodiffusion zeigt. Am Übergang Brennstoff/Hülle ist ein im kalten Zustand offener Restspalt von etwa 20 μm Weite verblieben. Das Hüllrohr ist von der Innenseite nur in einem Falle geringfügig (20 μm Tiefe) korrodiert. Alle Einzelbeobachtungen fügen sich zu einem Gesamtbild zusammen, in dem das Brennstabverhalten mit "gut" beurteilt werden kann.

Abb. 13 zeigt zwei Querschliffe im oberen Bereich der Brennstoffsäule (höhere Hülltemperatur, niedrigere Stabileistung). Entsprechend dem niedrigeren Temperaturniveau im Brennstoff zeigt sich im Tablettenzentrum nur isometrisches Kornwachstum. Rißanzahl und Größe bewegen

sich im üblichen Rahmen: Bedingt durch die höhere Hülltemperatur ist die Innenkorrosion nun weiter fortgeschritten. Korrosionsschichten von bis zu 90 μm Dicke haben den Brennstoff/Hülle-Spalt ausgefüllt. Allerdings tritt der Hüllrohrangriff hier in seiner weniger gefährlichen Art, nämlich flächenartig auf. Kritische Korrosionsnester mit Kornzerfall und Eindringtiefen von über 120 μm wurden bei einem Brennstab beobachtet, der einer der früheren Herstellungskampagnen entstammte. Damit verdichtet sich die bei der Wirbelstrom-Untersuchung entstandene Vermutung, daß die Ursache des aufgetretenen Stabschadens bei der Stabherstellung zu suchen sei. Eine schlüssige Erklärung steht jedoch noch aus.

6.2 Schadenspropagation

Bei der Zerlegung des Stabbündels war festgestellt worden, daß in Höhe des aufklaffenden Hüllrohrisses am intakten Nachbarstab A1-1598 deutliche Zeichen einer Wechselwirkung vorhanden waren. Unter einer Kruste, die sich mit einem feuchten Tuch entfernen ließ, war das Hüllrohr stark verfärbt, so daß eine Überhitzung nicht ausgeschlossen werden konnte. Eine anschließende Dimensionskontrolle des Stab-Außendurchmessers zeigte einen flächenhaften Abtrag von bis zu 40 μm Schichtdicke. Dieser Befund deutete bereits eher auf einen Korrosionseffekt hin, als auf eine Überhitzung des Stabes infolge einer Verengung des Kühlkanals. Die keramografisch/metallografische Untersuchung im Bereich der Verfärbung bestätigte den Materialabtrag, der in seinem Erscheinungsbild typisch für einen Korrosionsangriff war. Auch die mikroskopische Untersuchung der Hülle in geätztem Zustand sowie Härtemessungen erbrachten keinen Hinweis auf eine lokale Überhitzung während der Bestrahlung. Es gilt daher als sicher, daß die Hüllrisse an Stab A1-1584 während der Bestrahlung keine erkennbaren Auswirkungen auf seine unmittelbaren Nachbarn gehabt haben. Vielmehr dürfte im Schadensbereich zurückgehaltenes Natrium zu einer verstärkten lokalen Korrosion geführt haben.

7. Gesamterfahrungsbereich

Die Bündel-Bestrahlungsexperimente und der erfolgreiche Betrieb von Brennelementen in der KNK haben den Erfahrungsbereich für die stationäre Betriebsweise des Brennstab-Konzeptes Mark-Ia weitgehend abgesichert, so daß innerhalb der erreichten Parametergrenzen eine Voraussage über das Brennstabverhalten gemacht werden kann. Voraussetzung ist allerdings, daß Fertigungsfehler, wie sie beim Experiment DFR-455 aufgetreten und beim KNK-Brennelement 202 vermutet werden, in Zukunft auszuschließen sind. Offene Fragen sind noch die Verwendung von Plutonium als alleinigem Spaltmaterial (ohne U-235) und die Auswirkungen hoher Neutronendosen bzw. Dosisleistungen auf das Verhalten des Hüllmaterial.

8. Zusammenfassung

Die stationären Bestrahlungsexperimente DFR-350, RAPSODIE-I und DFR-455 werden als Meilensteine der Entwicklung des SNR-Mk Ia-Brennstabkonzeptes kurz erläutert und einige wichtige Ergebnisse aufgezeigt. Für die zwei defekten Brennelemente aus der KNK, insbesondere für das BE 202 IA wird anhand der Einzelbefunde bei den verschiedenen Schritten der Nachbestrahlungs-Untersuchung der Zustand der Brennstäbe beschrieben. Durch Vergleiche mit den Erfahrungen aus vorangegangenen Experimenten wird für diese Stäbe gezeigt, wie die Befunde einzuordnen sind. Auf dieser Grundlage wird das Brennstabverhalten in verschiedenen Bereichen qualitativ beurteilt.

DFR - 350

Brennelement: DEBENE - Anteil 39 Stäbe (CEA 38 Stäbe)
Stablänge: 51 cm Brennstoffsäule: 29 cm
Brennstoff: U/PuO₂ 80/20 U - 235 - Anreicherung 86 %
Tablettendichte 90 % th. Schmierdichte 80 % th.
O/Me 2.00
Hülle Edelstahl 1.4961 1.4988
Bestrahlung: 203 VLT
52.800 MWd/t = 5.6 % (max)
450 W/cm (max)
Hüllmittentemperatur 650 °C (max)

Alle Stäbe intakt
Starke Streuung der Brennstoffstruktur (Zentralkanal)
Dokumentation der Herstellung fehlerhaft (Tablettenanzahl)
Starke axiale Cäsium-Wanderung nach den Säulenenden

Abb. 1: Daten zum Bestrahlungsexperiment DFR-350

RAPSODIE - I

Brennelement: 2 Bündel zu je 34 Stäben
Stablänge: 83.5 cm Brennstoffsäule: 32 cm
Brennstoff: U/PuO₂ 70/30 U - 235 - Anreicherung 83 %
Tablettendichte 87 % th. Schmierdichte 80 % th.
O/Me 2.00 - 1.965
Hülle: Edelstahl 1.4988 1.4970
Bestrahlung: 365 VLT
99.000 MWd/t = 10.6 % (max)
485 W/cm (max)
Hüllmittentemperatur 600 °C (max)

Alle Stäbe intakt
Trotz hoher Hüllschwellwerte kein Hüllrohrschaden
Starke axiale Cäsium-Wanderung mit lokaler Dehnung
Zerstörung der Tablettensäule durch Spaltprodukte
Überhöhte Brennstofftemp. in niederstöch. Brennstoff (Schmelzen)

Abb. 2: Daten zum Bestrahlungsexperiment RAPSODIE-I

DFR - 455

Brennelement:	60 Brennstäbe
	Stablänge: 90 cm Brennstoffsäule: 44 cm
Brennstoff:	U/PuO ₂ 70/30 U-235 - Anreicherung 93 %
	O/Me 1.973 - 2.00
Hülle:	Edelstähle 1.4988 1.4970 1.4981 kv 1.4981 lg
Bestrahlung:	178 ULT
	50.500 MWd/t = 5.4 % (max)
	500 W/cm
	Hüllmittentemperatur 638 °C

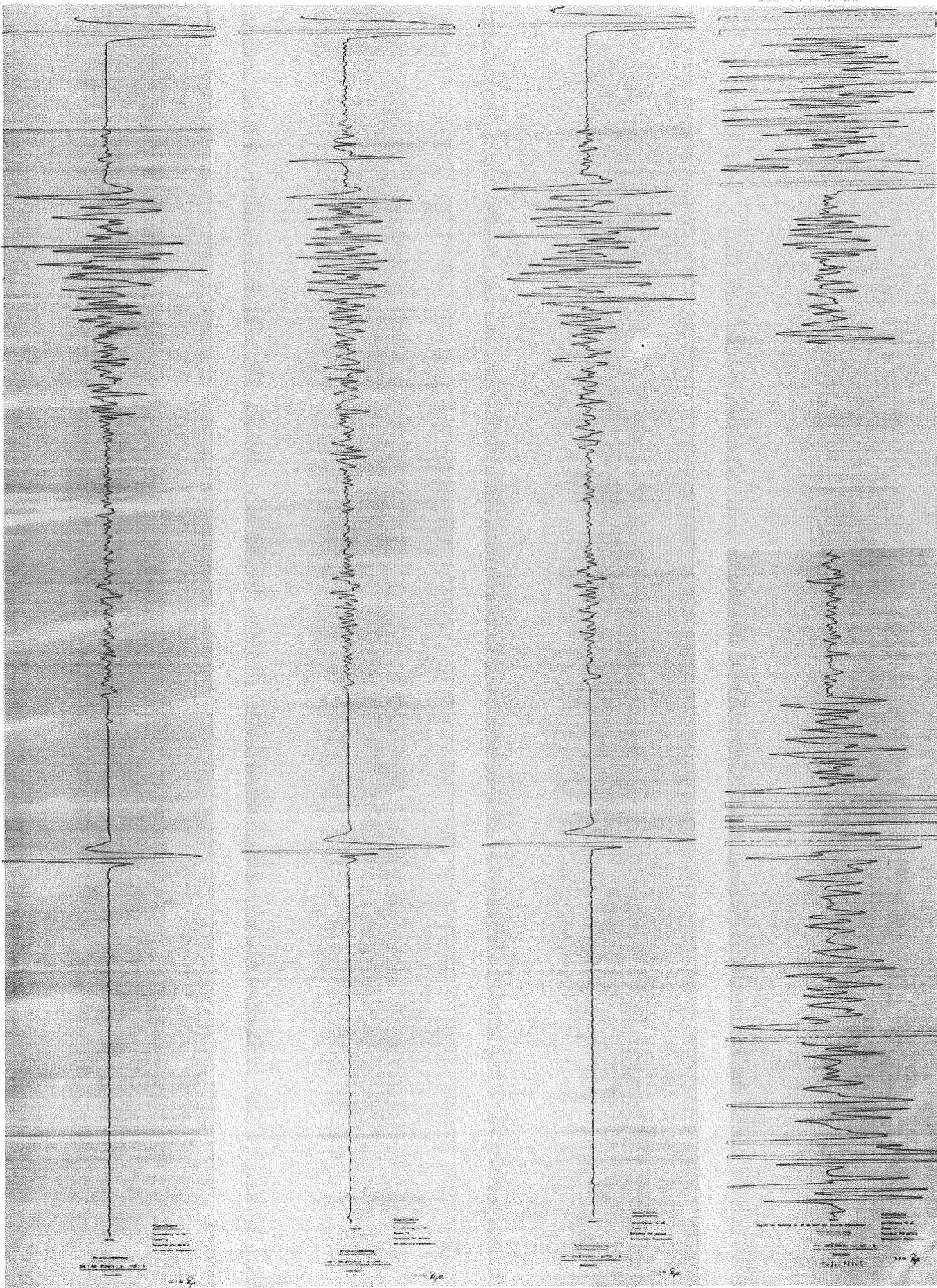
Stabversagen schon nach einem Monat
4 Stäbe mit grösseren Hüllschäden; 2 weitere mit Haar-Rissen
Innenkorrosion bis zu 250 µm
Fabrikationsfehler; Chlor- und Wassergehalt des Brennstoffs
Aussenkorrosion nach 3 Jahren Lagerzeit

Abb. 3: Daten zum Bestrahlungsexperiment DFR-455

KNK - BE 202 IA

Brennelement:	211 Brennstäbe mit Gitterabstandshaltern
	Stablänge: 155.65 cm Brennstoffsäule: 60 cm
Brennstoff:	U/PuO ₂ 70/30 U - 235 - Anreicherung 93 %
	Tablettendichte: 86.5 % th. Schmierdichte: 80 % th.
	O/Me ~ 2.00
Hülle:	Edelstahl 1.4981
Bestrahlung:	192.5 ULT
	48.000 MWd/t = 5.1 % (max)
	439 W/cm (max)
	Hüllmittentemperatur 610 °C (max)
	18 Tage Bestrahlung nach Hüllriss (DND - Signal)

Abb. 4: Daten zum KNK-Brennelement NY 202 IA



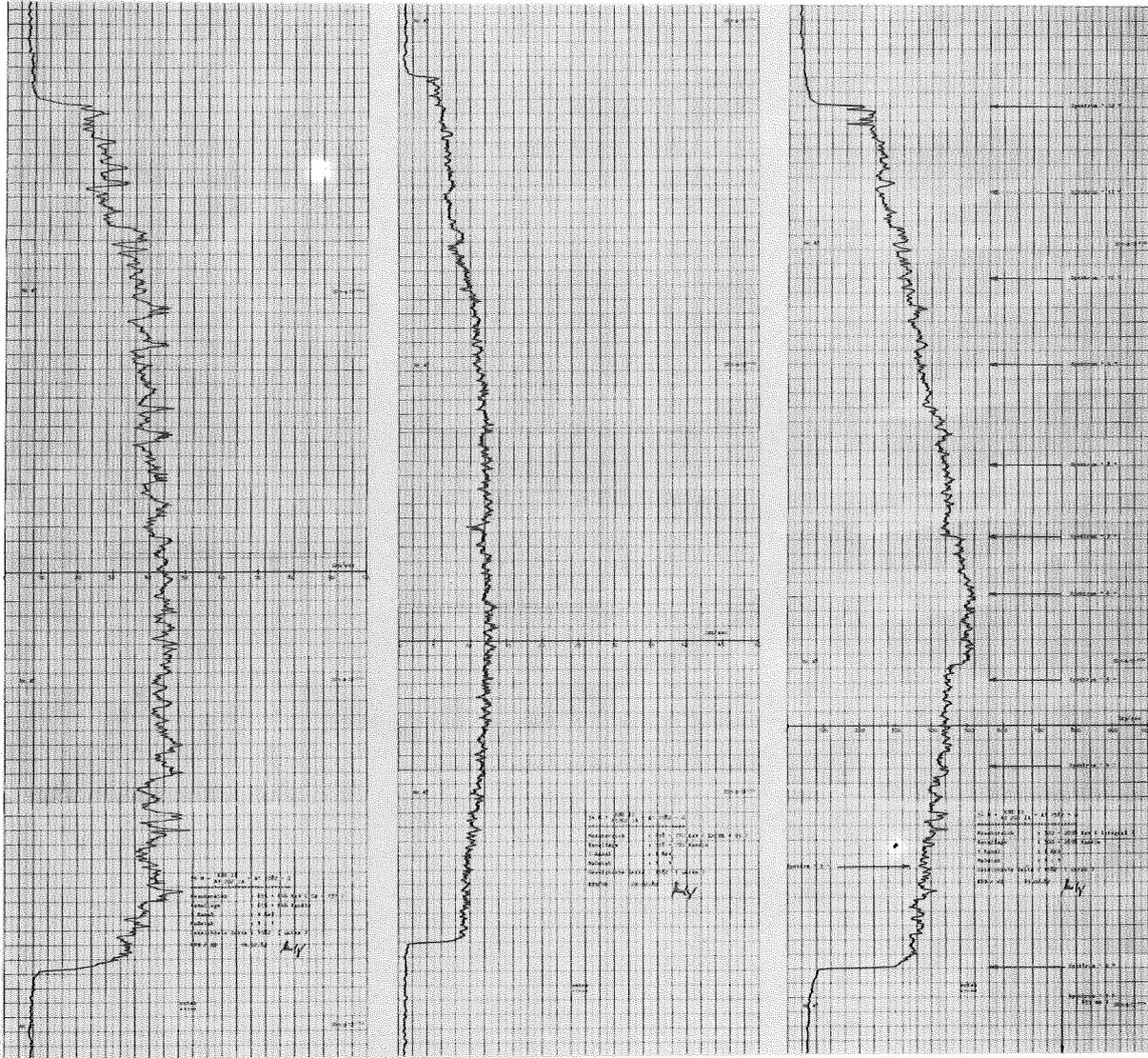
A1 - 1598
46 / 73

A1 - 1649
25 / 75

A1 - 1832
38 / 73

A1 - 1584
46 / 73

Abb. 5: KNK-BE NY 202 IA
Wirbelstromsignale ausgewählter Brennstäbe



Cs/Ba-137

Zr/Nb-95

Integral

Abb. 6: KNK-BE NY 202 IA
 γ -Profile des Stabes A1-1582

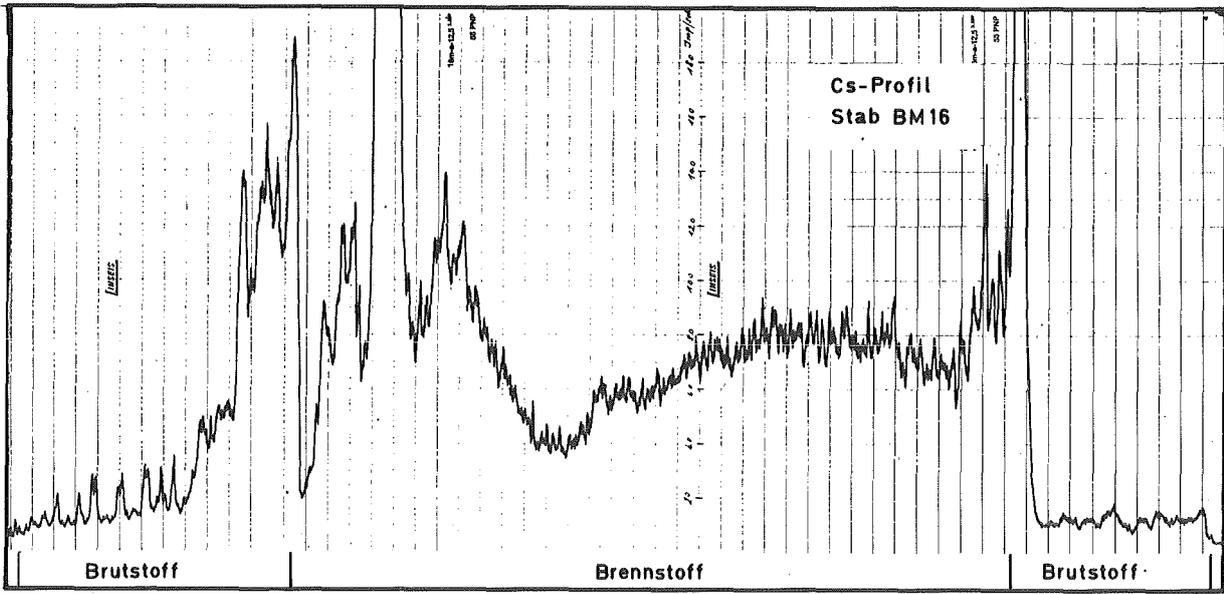


Abb. 7: Cäsium-Verteilung in einem RAPSODIE-Testbrennstab

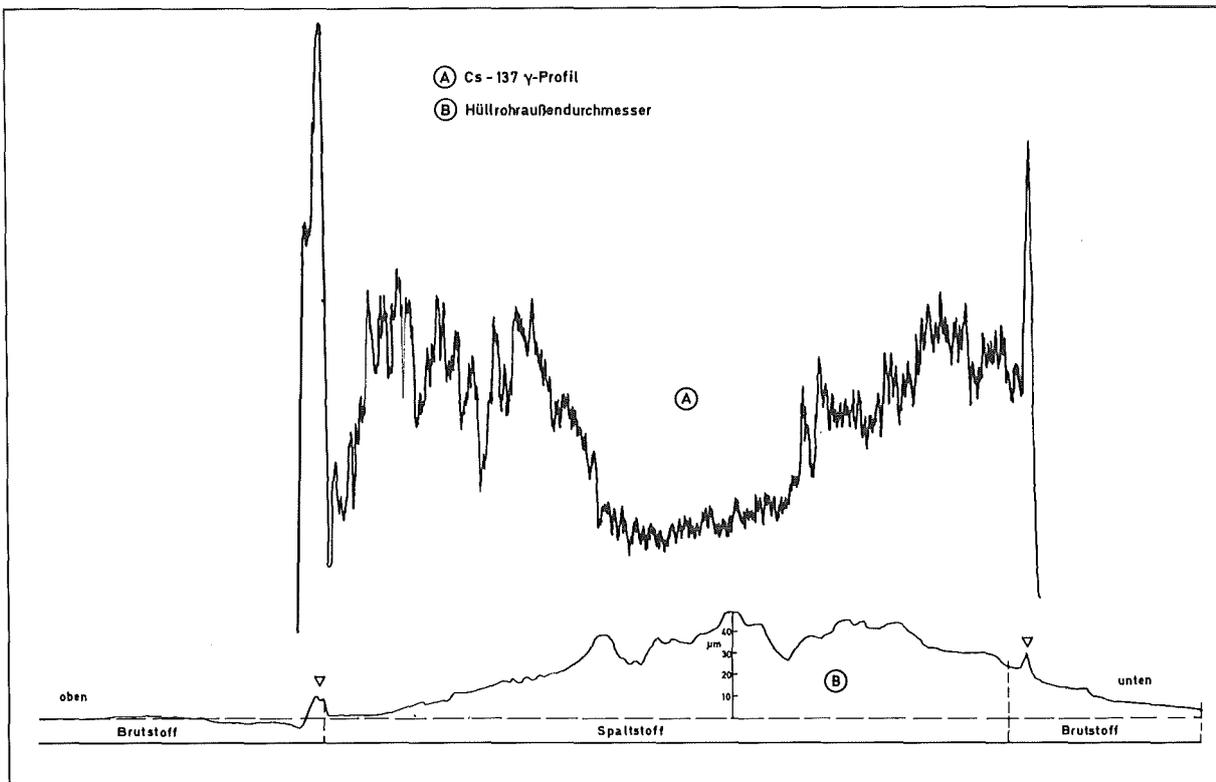


Abb. 8: Lokale Hülldehnung in einem RAPSODIE-Testbrennstab

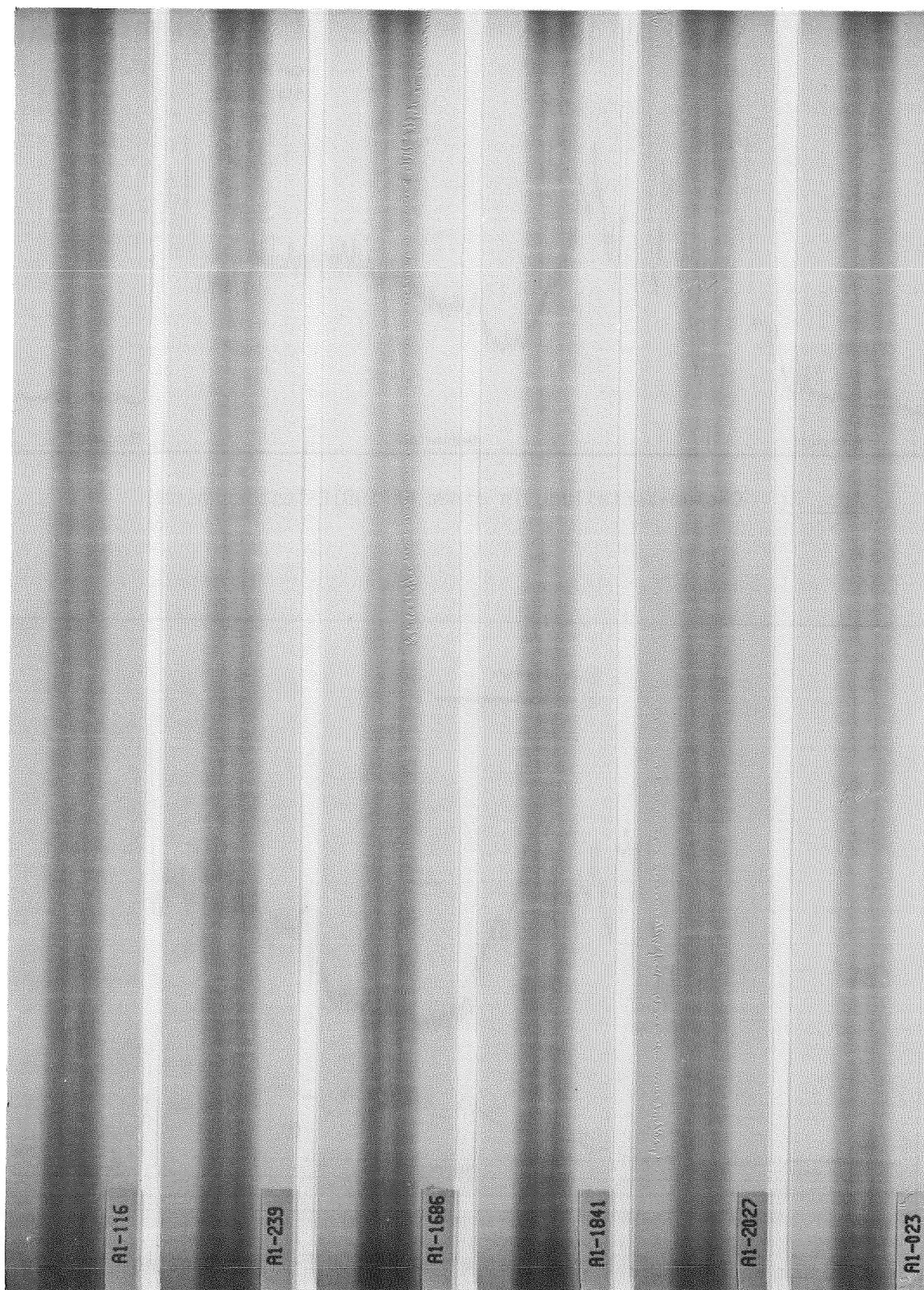


Abb. 9: KNK-BE NY 202 IA
Betatron-Durchleuchtung der Brennstäbe im Bereich maximaler
Stableistung

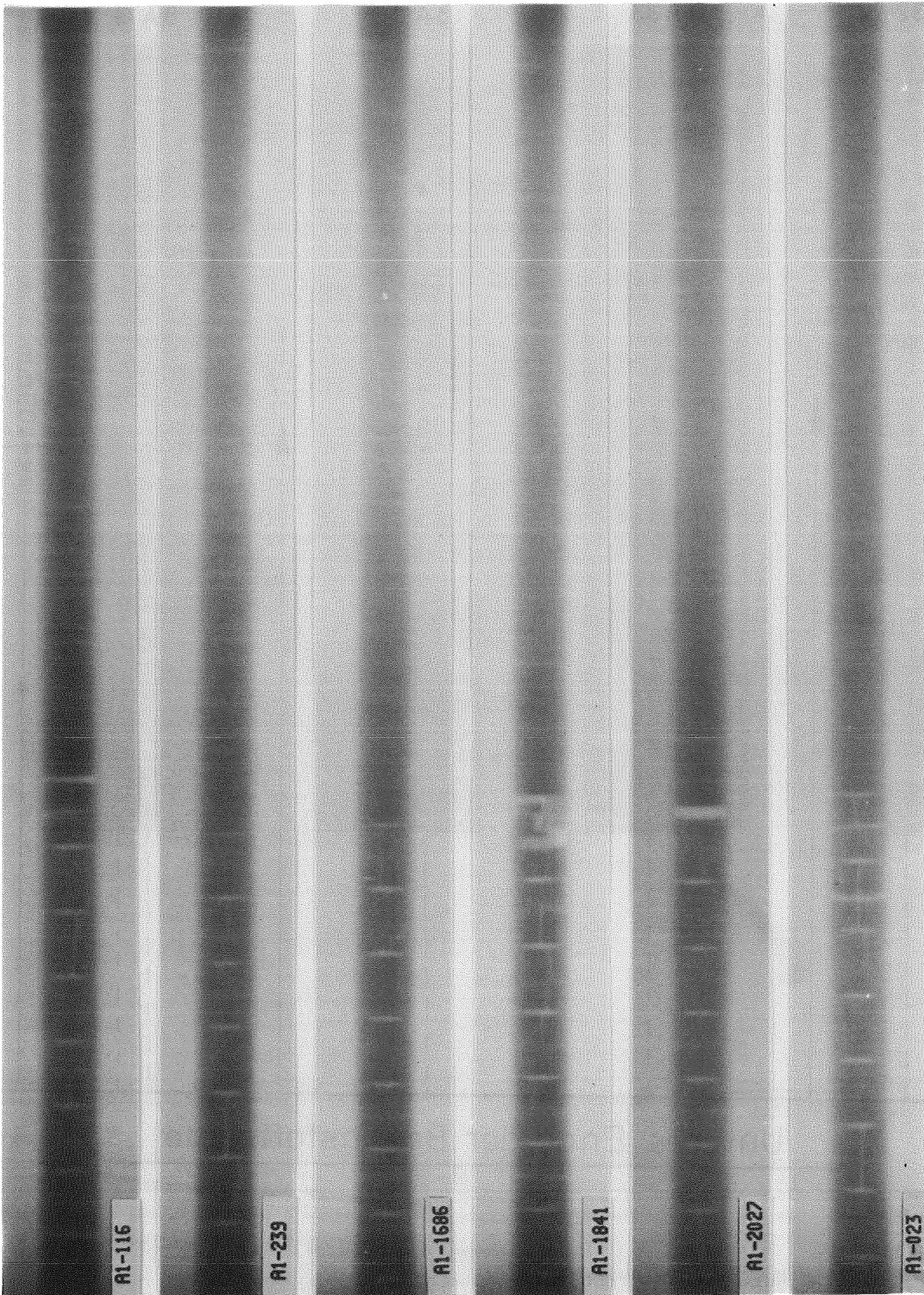


Abb. 10: KNK-BE NY 202 IA
Betatron-Durchleuchtung der Brennstäbe am Übergang
Brennstoff/Brutstoff

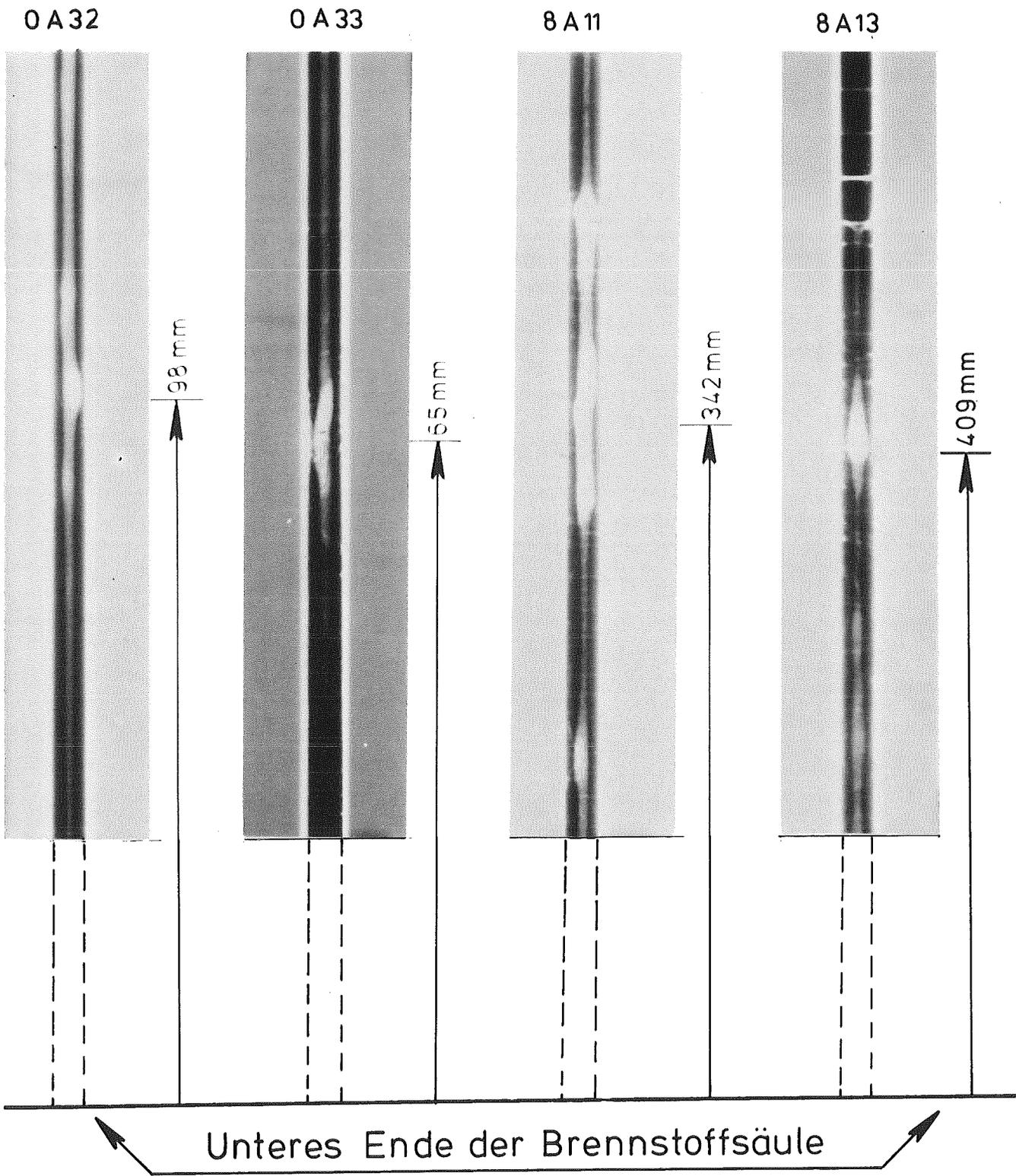


Abb. 11: Kavernen im Brennstoff
ausgewählter Stäbe des Experiments DFR-455

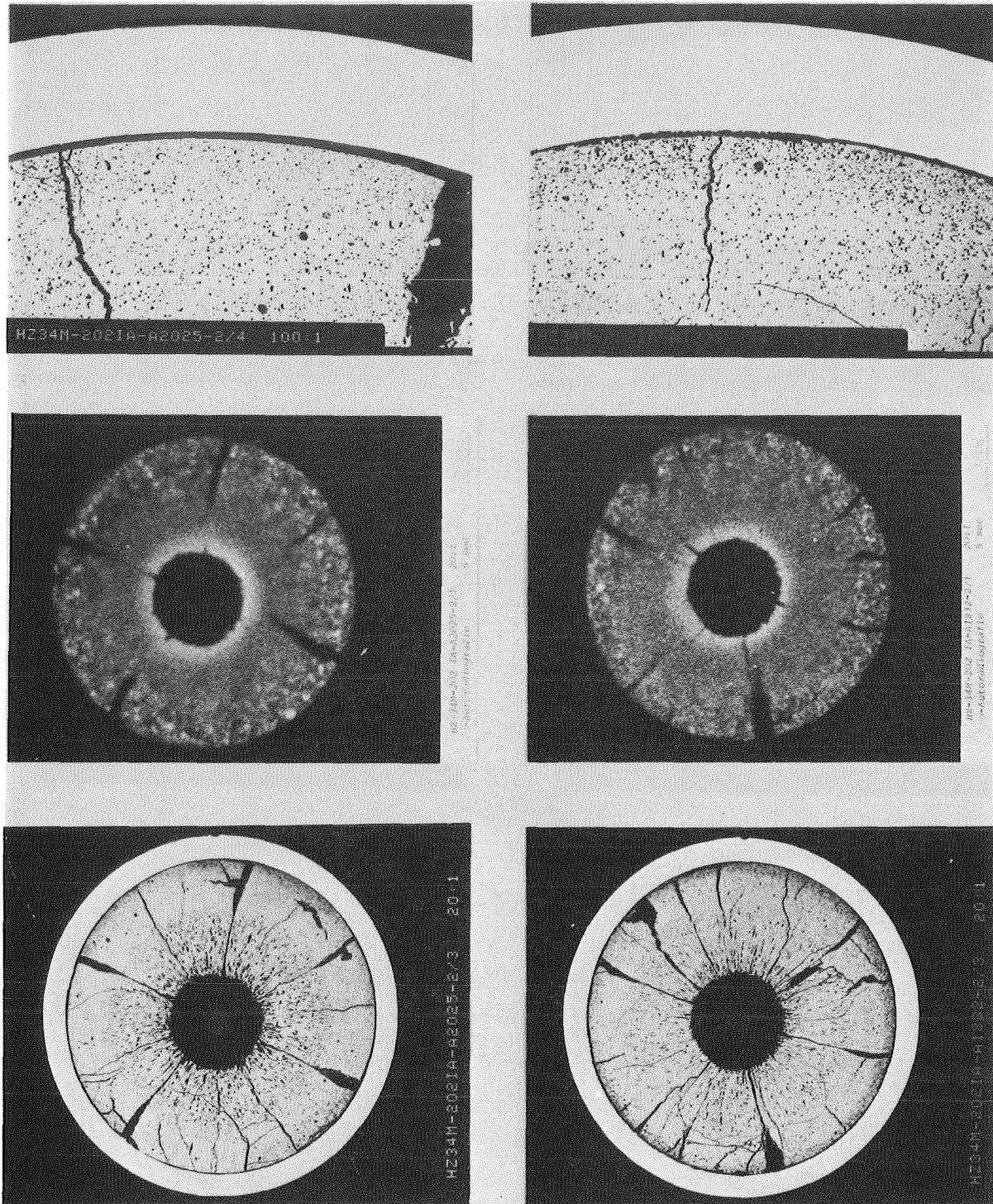


Abb. 12: KNK-BE NY 202 IA
Keramografie-Querschliffe im Bereich maximaler Stableistung

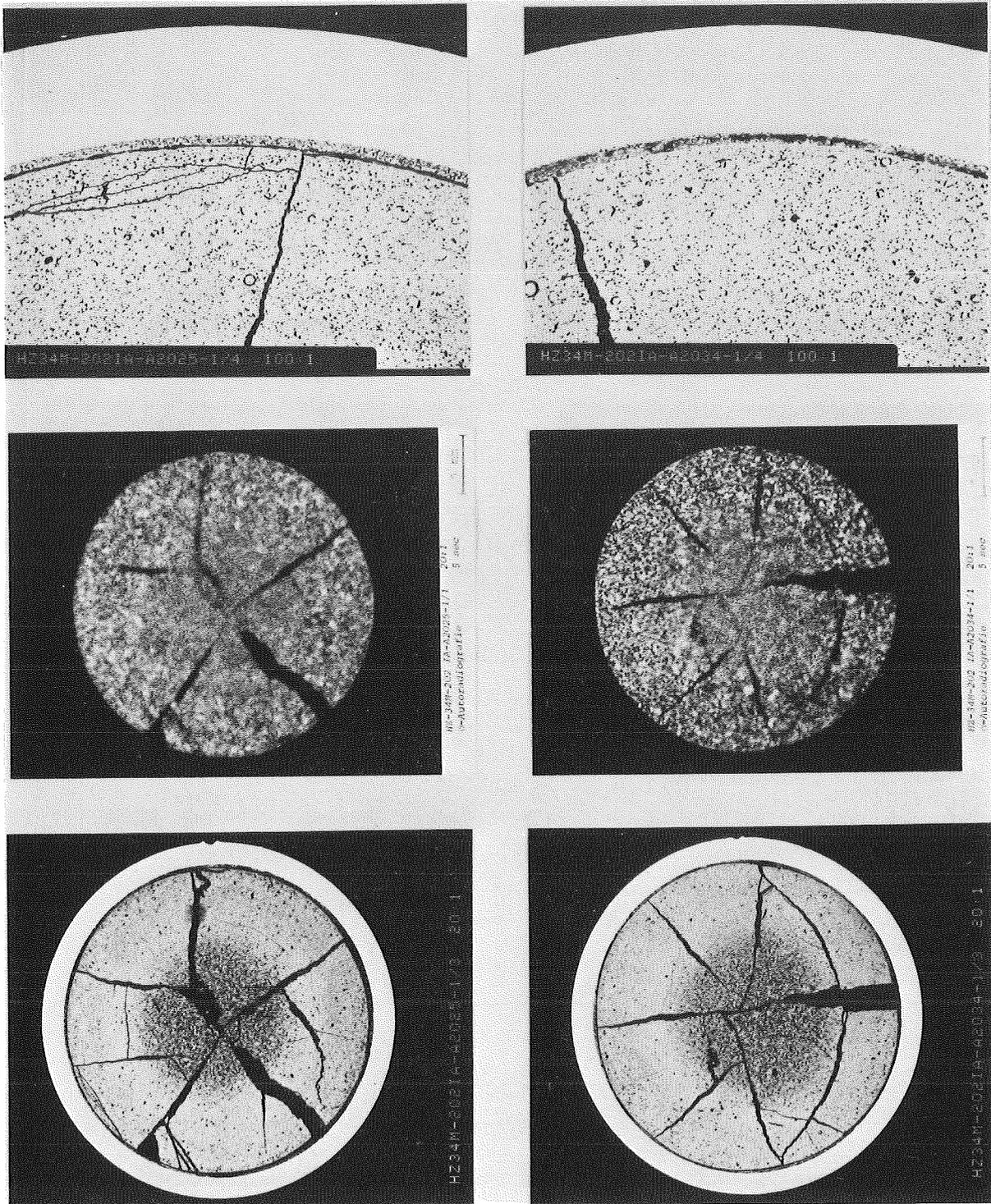


Abb. 13: KNK-BE NY 202 IA

Keramografie-Querschliffe im Bereich geringer Stableistung
aber erhöhter Hülltemperatur

Brennstoff- und Brennstabbestrahlungen aus
internationaler Sicht

C. Heyne

INTERATOM, Bergisch Gladbach

In allen die Entwicklung von Brutreaktoren betreibenden Ländern hat der Brennstab mit Mischoxid als Brennstoff einen hohen technischen Standard erreicht. Es soll hier versucht werden, die Position der DeBeNe-Gruppe im internationalen Umfeld aufzuzeigen, und nicht wie sie eventuell von außen gesehen wird.

In Natrium-gekühlten Brutreaktoren erreicht man heute beim Einsatz von Mischoxidtabletten in austenitischen Hüllrohren in größerem Umfang Abbrände von 100.000 (MWD/t_M). In einzelnen Versuchen ergaben sich auch 200.000 (MWD/t_M) ohne Stabfehler. Die Hüllrohre waren dabei Schädigungsdosen von entsprechend 115 bis 135 dpa-NRT ausgesetzt.

Die vorhandene Erfahrung ergibt sich aus verschiedenen Versuchsgruppen. Es soll hier eine Unterteilung in drei Gruppen vorgenommen werden.

Gruppe 1: Versuchsbestrahlungen in kleinen Testreaktoren mit schnellem oder epithermischen Fluß.

Gruppe 2: Versuchs- und Prototypbestrahlungen mit großen Stabmengen

Gruppe 3: Defektstabbestrahlungen, wobei man zum Studium der Defekte diese z.T. künstlich erzeugte.

In Gruppe 1 wurden Brennstoffe und Stäbe in kleiner Zahl zur Erkennung der Ziele und Grenzen untersucht. Hier wurden jedoch auch die Resultate am weitesten vorangetrieben.

Gruppe 2 verbreiterte in erster Linie die Basis der in Gruppe 1 gesammelten Erfahrung. Diese Versuche wurden mit größeren Stabbündeln in den Reaktoren RAPSODIE, DFR, PFR, PHENIX, KNK etc. vorgenommen.

Gruppe 3 diente der Suche nach den defektauslösenden Phänomenen und der Beobachtung des Verhaltens defekter Brennstäbe im Reaktor.

Tabelle 1 zeigt eine Zusammenstellung der Stäbe aus Gruppe 1.

<u>Tabelle 1</u>	1975	1982
CEA: Rapsodie	1000	2000
Rapsodie + PHENIX	1200	8000 ⁺)
UKAEA: DFR	1500	1500
PFR		
USA: EBR II	1800	2500 (geschätzt)
FFTF		
UDSSR:	(4600)	
DeBeNe:	223	246
(ohne KNK)		
	4723 ⁺⁺)	12246

+) Kleinbündel in Träger-BE's des PHENIX

++) ohne UDSSR

Im Zeitraum von 1975-1982 erhöhte sich die Stabanzahl etwa um das 2,5-fache. In DeBeNe, läßt man KNK als Prototyp gelten, nimmt die Stabanzahl nur um 8,5% zu (Versuch Rapsodie II). Auch wenn die hier angegebenen Stabzahlen der anderen Länder eventuell nicht ganz exakt sind, die sich ergebende Tendenz ist richtig.

Zur Gruppe 2 gibt Tabelle 2 Aufschluß.

<u>Tabelle 2</u>	Stabanzahl	
	1975	1982
CEA : Rapsodie	20.000	30.000
Phenix	21.000	110.000
UKAEA : PFR	25.000	50.000
	(niedriger Abbrand)	(davon 5000 über 5 at% BU)
USA : FFTF	./.	8000 bei 3 at%
UDSSR :	25.000	
	geschätzt)	
DeBeNe : KNKII/1	./.	1.854 bei max. 10 at%BU)
	66.000	199.854
	(ohne UDSSR)	(etwa zwei Coreladungen SPX1)

Im Zeitraum 1975 bis 1982 verdreifachte sich hier die Anzahl der Stäbe. 1982 gibt es zum ersten Mal eine größere Menge Stäbe im DeBeNe-Bereich. Die Zahl von 1.854 Stäben wirkt zwar zwischen den 200.000 Stäben noch recht bescheiden, es wurde aber zügiger als bisher üblich ein hoher Abbrand erreicht. Die Zahl von 200.000 Stäben entspricht auf jeden Fall einer Erfahrung von 2 Coreladungen oder etwa 4 Betriebsjahren eines Brütters der 1300 MWe-Klasse. In Frankreich wurden über 100.000 Stäbe eingesetzt. Die Kooperation erlaubt uns den Zugang zu dieser Erfahrung.

In Tabelle 3 sollen die nicht "provozierten" also im Bründelversuch oder normalem Reaktorbetrieb aufgetretenen Stabfehler der Gruppe 3 dargestellt werden.

Die Anzahl defekter Stäbe dürfte weltweit bei etwa 400 liegen. Man schätzt, daß etwa 120 Stäbe in der UDSSR defekt wurden. Die verbleibenden 280 Stäbe wurden zum größeren Teil in Versuchen defekt oder wurden zur Untersuchung der Defektart besonders präpariert.

Die Defektrate in Prototypbestrahlungen, also unter möglichst typischen Bedingungen eines Brutreaktors ist verhältnismäßig gering. Diese Tendenz läßt sich aus Tabelle 3 ablesen. Abweichend davon sind die in der letzten Spalte angegebenen DeBeNe Ergebnisse; sie enthalten die unter speziellen Bedingungen durchgeführten Versuche Mol 7B und DFR 455. Nimmt man sie aus dieser Betrachtung heraus, so ergibt sich eine Defektrate der DeBeNe-Versuche von etwa 8%. Dies ist bei der kleinen Anzahl von Versuchsstäben nicht außerordentlich. Der KNK II-Betrieb hat schon mit dem ersten Core gezeigt, daß serienmäßig gefertigte Brennstäbe im DeBeNe-Bereich dem internationalen Standard entsprechende Defektraten aufweisen. Die Treiberelemente der ersten Ladung des Rapsodie (1967-1970) zeigten schon eine sehr niedrige Defektrate. Bei den Versuchsbestrahlungen in diesem Reaktor lag die Defektrate um den Faktor 10 höher. Hier wird der gleiche Unterschied sichtbar wie zwischen den DeBeNe-Versuchen und dem KNK-II-Erstcore.

Die geringeren Defektraten beim Reaktorbetrieb ergeben sich natürlich auch daraus, daß die Treiberelemente eines Reaktors möglichst in "sicheren Grenzen" gehalten werden. Die Versuche aber tasten diese Grenzen ab oder gehen darüber hinaus.

Für PHENIX, PFR und FFTF gilt das ebenso. Hier konnte der Unterschied zwischen Stabfehlern in Standardelementen und Versuchen nicht so deutlich dargestellt werden. Die 7 offenen Stabfehler im PHENIX sind auf 3 Standardelemente und 4 Versuchselemente verteilt.

In Abb. 1 (1) erkennt man nochmals deutlich, die im Rapsodie erreichten Bestrahlungswerte. Bei 10 at% Abbrand und 50 Fdpa \cong 38 dpa-NRT häuft sich hier die Erfahrung. Trägt man in dieses Bild die jetzt vorliegenden KNK II/1-Ergebnisse ein, so wird die gute Vergleichsmöglichkeit mit Rapsodie ersichtlich.

Abb. 2 (1) gibt die entsprechenden Werte für PHENIX an. Man erkennt, PHENIX ist kein Testreaktor. Im unteren Abbrand- und Dosisbereich ist die Anzahl der bestrahlten Stäbe gering. Im Bereich zwischen 5 bis 10 at% befindet sich die Hauptmenge der Stäbe. Der Reaktor wurde auf diese Werte begrenzt, die man als sicher erreichbar aus den Versuchen in Rapsodie kannte. Man hat hier erst in jüngster Zeit die bis dahin einen unterbrechungsfreien Betrieb garantierenden Werte von \approx 100 dpa-F bzw. \approx 10 at% mit einigen Versuchen überschritten.

Tabelle 3: Defektstäbe und Defektraten

Versuchsort	Stabanzahl	offene Defekte	Defektrate (%)
Rapsodie (2) (1967-1970)	3480	2	0,06
-Fortissimo (1970-1981)	23000	20 (42) ⁺	0,09 (0,18) ⁺
-Versuche	2240	21 (35)	0,94 (1,56)
PHENIX (2) (1974-1982)	110000	7	0,006
FFTF (3) (1980-1982)	8000 (3 at% BU)	0 (1)	0 (0,01)
PFR (1974-1982)	50000	0 (2 aus Ver- suchskapseln)	0 (0,002)
KNK II/1 (1978-1982)	1854	2	0,11
DeBeNe-Versuche (1967-1982)	246 168	39 14	15,6 8,3

+) Werte in Klammern = Defektstäbe einschließlich solcher mit Spaltgasfreisetzung.

In diesem oberen Abbrand- und Dosisbereich finden sich dann auch die bisher im PHENIX aufgetretenen offenen Stabfehler.

Aufgrund der Ergebnisse aus Rapsodie, PHENIX und KNK-II dürfte für den SNR-Mk Ia Kern ein einwandfreies Brennelementverhalten erwartet werden.

Die Erfahrungen der kleinen Testreaktoren EBR-II und DFR entsprechen denen des Rapsodie . Wenn dort auch nicht ganz die gleiche Breite der Ergebnisse vorhanden ist.

Im PFR hat man inzwischen mit einer kleinen Anzahl von Stäben Abbrände um 10 at% bei etwa 85 dpa-NRT erreicht. Auch der FFTF trägt jetzt mit 8000 Stäben und 3 % Abbrand (im Nov. 1982) zur internationalen Erfahrung bei. (3)

Tabelle 4 zeigt die Abbrand- und Dosiswerte des KNK II/1-Kerns.

Tabelle 4

KNK II/1

BE-Anzahl	Stabanzahl	Abbrand (Mwd/t)	dpa-NRT
5	1010	65-94000	20-31
1	211	66-83000	21-27
2	422	38-53000	11-16
1	211	14-18000	4- 6

Die Tabelle zeigt auch, daß nicht nur ein Abbrand von 10 at% erreicht wurde. Der gesamte Bereich unterhalb dieses Wertes wird abgedeckt. Die maximale Materialschädigung von 31 dpa-NRT kann jedoch nicht mit den entsprechenden Dosen bei 10 % Abbrand in großen Brutreaktoren verglichen werden. Einige der verwendeten Stahltypen dürften allerdings schon bei diesem dpa-Wert solche Veränderungen erfahren haben, daß Wechselwirkungen zwischen Elementkomponenten auch für höhere Neutronendosen abschätzbar sind.

Wie aus den bisher gezeigten Tabellen und Abbildungen ersichtlich, dürften Abbrände über 100.000 (MWd/t) vom Brennstoff her gesehen kaum Schwierigkeiten bereiten. Mit dem z.Zt. verfügbaren Hüllrohrmaterial ist man aber bei einem Grenzwert angelangt, wenn die Schädigung etwa 120 dpa-NRT beträgt.

Für den wirtschaftlichen Betrieb schneller Reaktoren werden nach neueren Überlegungen jedoch 150.000 (MWd/t_M) bei 170 dpa-NRT=220 dpa-F angestrebt. So ist dies das Ziel für den Nachfolger des SPX-1. Es bedarf dazu noch einiger Anstrengungen bei der Materialentwicklung. In Abb. 3a und 3b werden zum Vergleich die in Frankreich beim CEA und in DeBeNe untersuchten Längenleistungen und Hüllrohrtemperaturen angegeben. Bei den Standard-bzw. Treiberelementen der verschiedenen Reaktoren lagen die Längenleistungen jeweils unter 500 (W/cm), oft bei 450 (W/cm). Im Rapsodie gab es Versuche zwischen 300 und 580 (W/cm), wobei bei der hohen Längenleistung Abbrände bis zu 11 at% erreicht wurden. Auch bei diesen Werten ist die DeBeNeErfahrung in der Breite mit der französischen nicht vergleichbar. Die in DeBeNe untersuchten Grenzwerte ergänzen sich allerdings gut mit dem französischen Programm.

Im PHENIX lag der höchste Wert für die Längenleistung bei 530 (W/cm) (etwa 12 BE's). Das gleiche Bild wie für die Längenleistung ergibt sich auch für die Hüllrohrtemperaturen.

Im PFR gab es Versuche, die mit (650 W/cm) betrieben wurden. Die Temperaturen sowie die Versuchsergebnisse sind uns hierzu jedoch nicht bekannt.

In Abb. 4a und 4b sind zum Vergleich die DeBeNe-Längenleistungen und Hüllrohrtemperaturen gegen den Abbrand aufgetragen. Es wird deutlich, daß die Versuche einen größeren Bereich abdecken, als für den SNR-Mk Ia Kern benötigt wird. Auch die erreichten Werte des KNK II/1-Kerns gehen deutlich darüber hinaus; somit ist der SNR-300 Start auch gut durch eigene Erfahrung abgestützt. Um auf der Basis der bis hierher dargestellten Versuchsergebnisse das "wirtschaftliche" Brennelement zu bauen bzw. hohe Abbrände zu erreichen, müssen in erster Linie die Materialien optimiert werden.

Niedrigdichte Brennstoffe von etwa 86 %TD, wie sie bisher von DeBeNe favorisiert wurden, sind intensiv untersucht. Dazu dienen etwa 15 verschiedene Tests, Abb. 5. Zur Verbesserung des Brennstoffverhaltens im gesamten Kreislauf werden jetzt Brennstoffdichten im Bereich von 92-95% TD untersucht. Dieser hochdichte Brennstoff wird mittels eines Programms von 17 Versuchen optimiert, Abb. 6. In den gleichen Versuchen werden die zur Erreichung hoher Dichten neu entwickelten Brennstofftypen OKOM und AUPuC eingesetzt, Abb. 7. Damit dürfte die Lücke zur Kenntnis des zum hochdichten Brennstoffes zu schließen sein.

Ein vielversprechender Werkstoff für die Hülle ist der Stahl DIN W.-Nr. 1.4970 kv, in Frankreich als 15-15 Ti, E bekannt. Er wird z.Zt. in mehreren Versuchen eingesetzt. Im PHENIX sollen, wohl ab 1984, die BE's der Nachladungen mit diesem Stahl ausgerüstet werden. Dazu gibt die Abb. 8 Information und gleichzeitig einen Ausblick in die Zukunft.

1985 soll demnach der Standard-Abbrand im PHENIX bei 100.000 MWD/t_M und die Dosis bei 100 - 120 dpa-NRT liegen. Heute sind es 70 - 90.000 MWd/t und 50 - 60 dpa-NRT. Die Ziele beim SPX-1 und der für das Nachfolgeprojekt anvisierte Abbrand bzw. Dosis von 220 dpa=F=170 dpa-NRT erscheinen auf diesem Hintergrund nicht allzu utopisch.

Man kann also zusammenfassen:

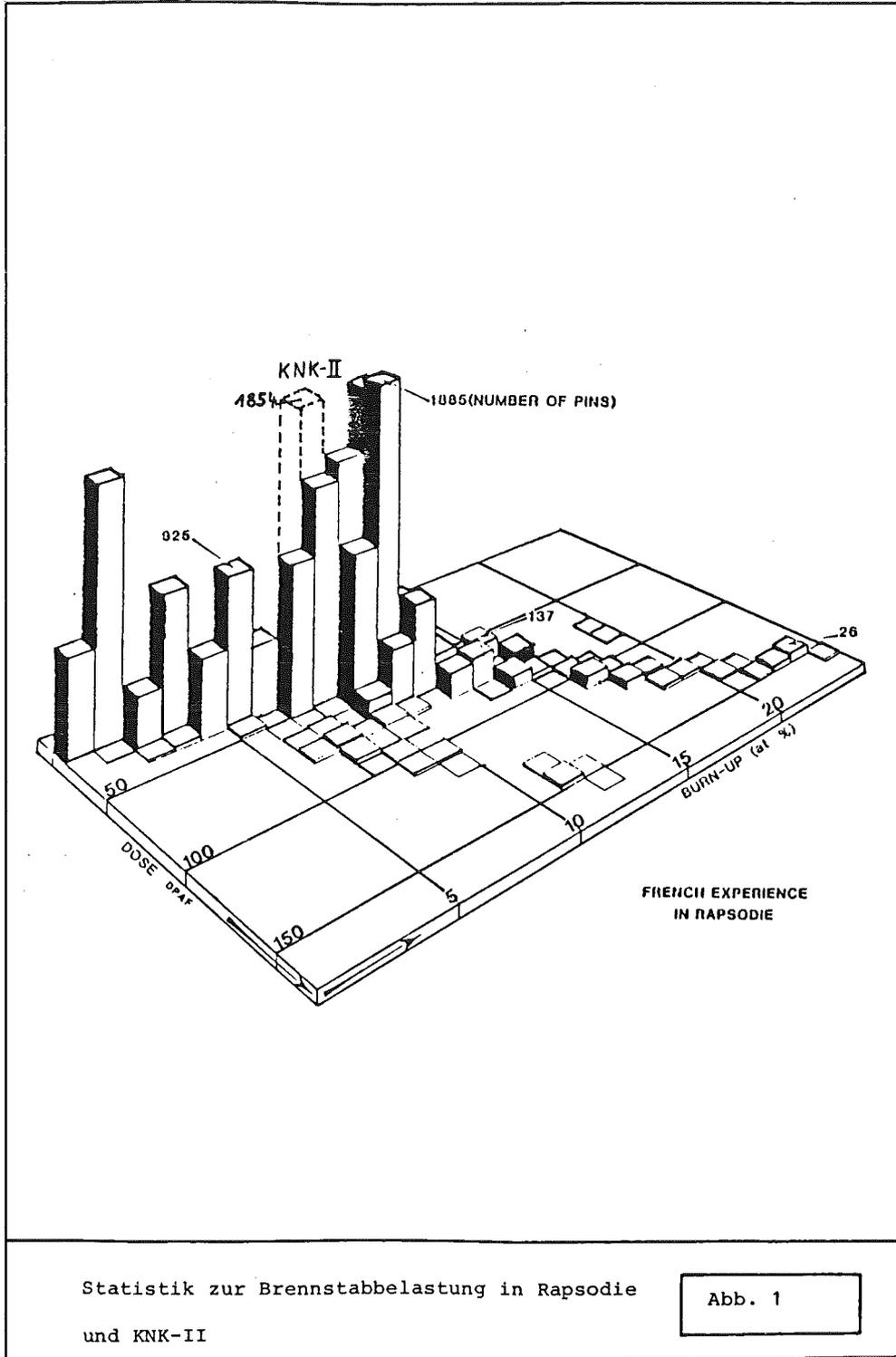
Die in DeBeNe vorhandenen Kenntnisse zum Brennstoff und Brennstabverhalten entsprechen in ihrem Wert internationalem Standard. Sie werden durch die Breite internationaler Ergebnisse ergänzt und gestützt. Der Anschluß ans Weltniveau ist so noch erhalten geblieben. Wieweit der Entwicklung im DeBeNe-Bereich ein Erfolg beschieden sein wird, hängt sicher auch davon ab, wie bei unseren Partnern diese Arbeiten weitergeführt werden. Ein früher Alleingang zum Bau eines ersten großen schnellen Brutreaktors wird bei allen an der Brüterentwicklung beteiligten Nationen kaum für möglich gehalten. Eine enge internationale Kooperation ist zwangsläufig erforderlich; dies kann bedeuten, daß Ideen anderer übernommen, nachvollzogen und eventuell optimiert werden müssen.

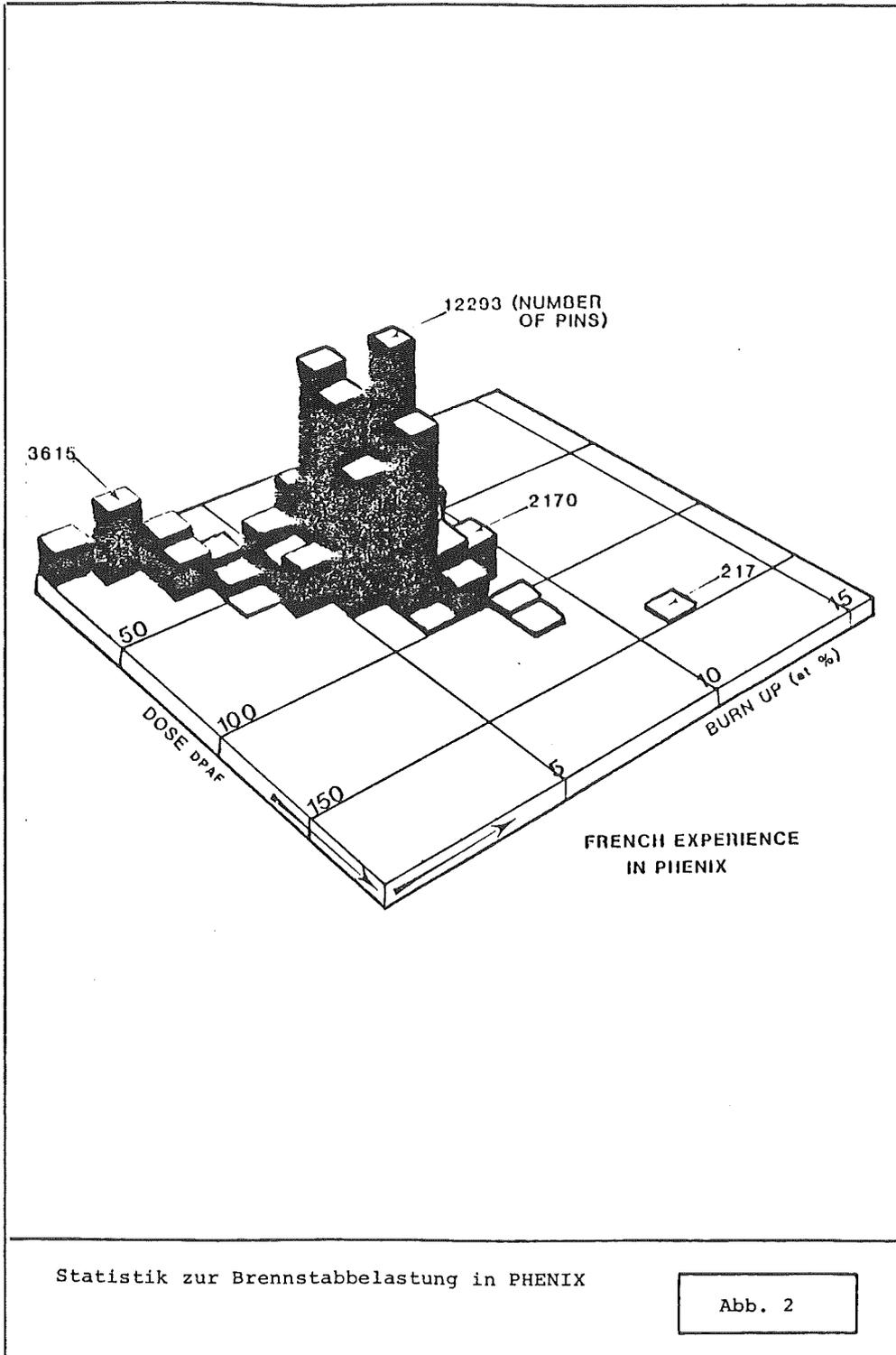
Zusammenfassung:

Der vorhandenen Erfahrung liegen Stäbe aus drei Gruppen zugrunde: 1. Versuchsbestrahlungen, 2. Prototypbestrahlungen, 3. Defektuntersuchungen. Zur Darstellung der DeBeNe-Position wird der internationale Stand zu diesen Punkten aufgezeigt. Es wurden insgesamt ca. 200.000 Stäbe unter verschiedensten Bedingungen bestrahlt. Die bisher erreichten höchsten Abbrände liegen bei 200.000 MWD/T_M und Dosen von ca. 120 dpa-NRT. Der größte Erfahrungsanteil liegt bei 100.000 MWD/t_M und 80 dpa-NRT. Die Defektraten sind erfreulich niedrig. Man hat bei der Brennstoff und Hüllmaterialbestrahlung große Fortschritte gemacht. Das ehrgeizige Ziel, ein wirtschaftliches Brennelement für 150.000 MWd/t_M Abbrand und Dosen von 160 dpa-NRT herzustellen, scheint erreichbar. Die DeBeNe-Ergebnisse sichern trotz fehlender Breite den Anschluß an den internationalen Stand.

Referenzen:

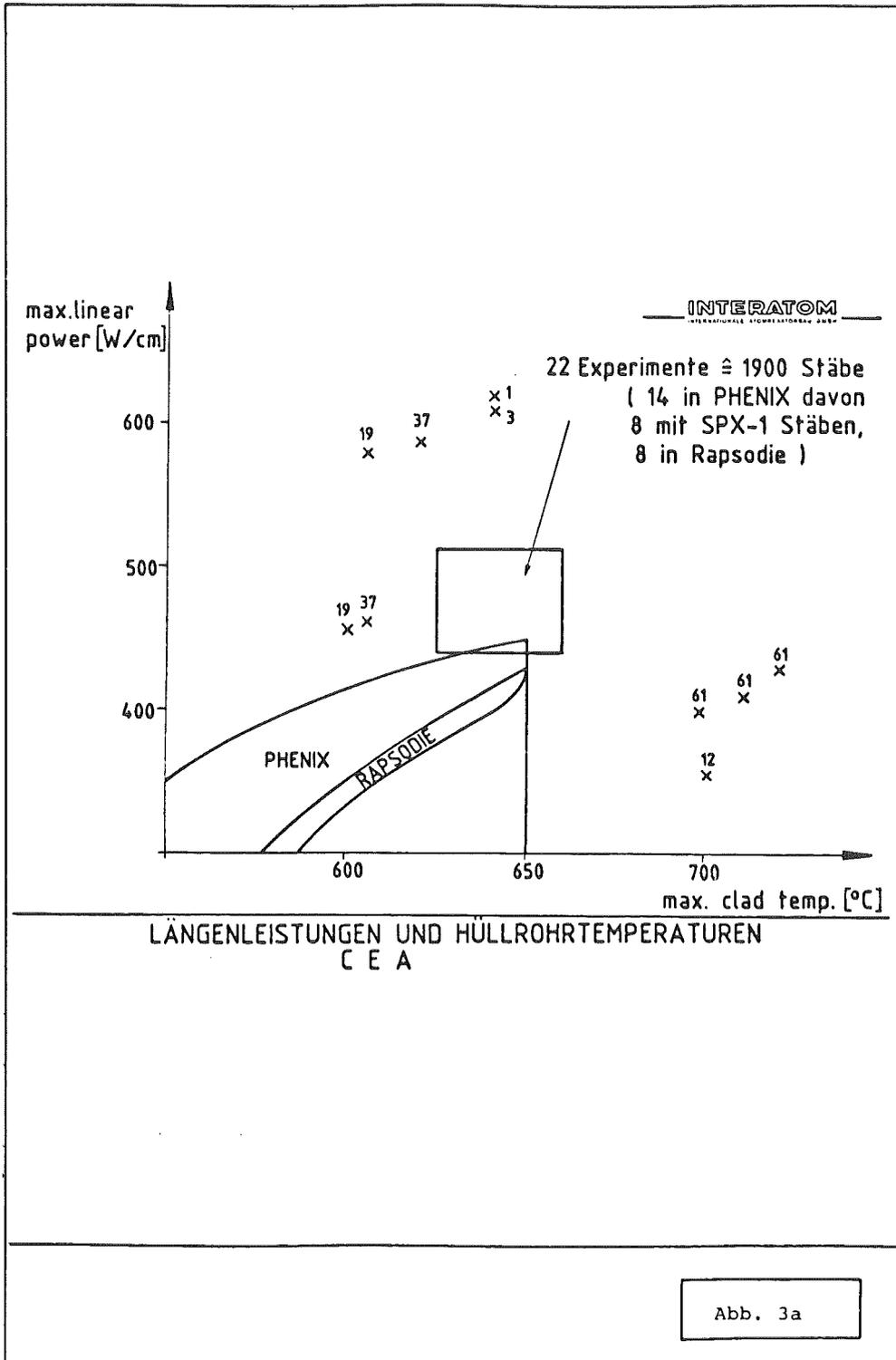
- (1) R. Lallement, CEA
French Experience Concerning the Reactor Behavior of Breeder Fuel Elements.
ANS-Topical Meeting, Reactor Safety Aspects of Fuel Behavior
August 2-6, 1981, Sun Valley
- (2) A. Chalony, A. Languille, CEA
Summary of the Experiments in Rapsodie and PHENIX Trans. ANS, 40, 242
(1982)
- (3) Telex, J.J. Laidler, Westinghouse, Hanford vom 30.09.1982

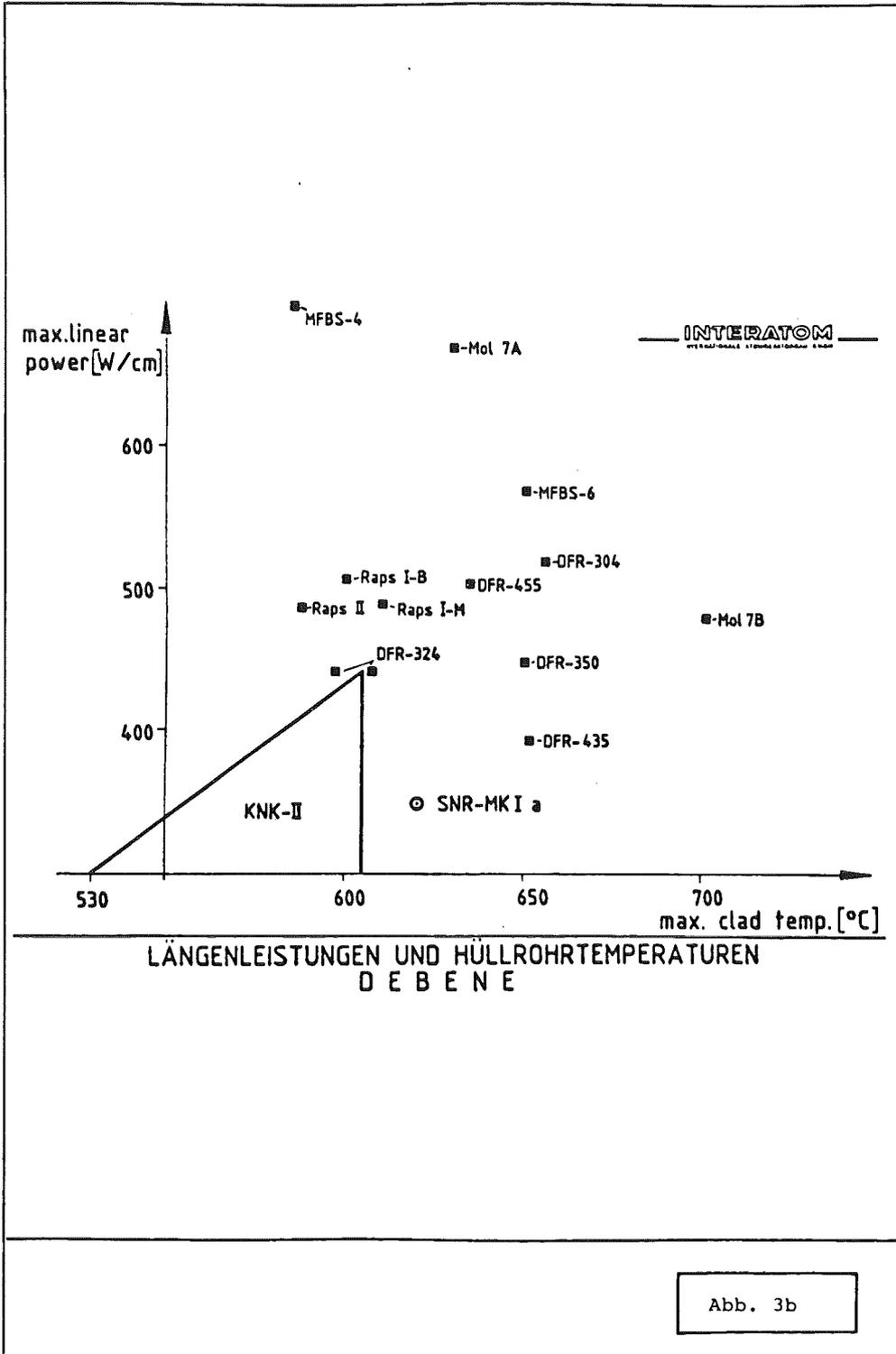


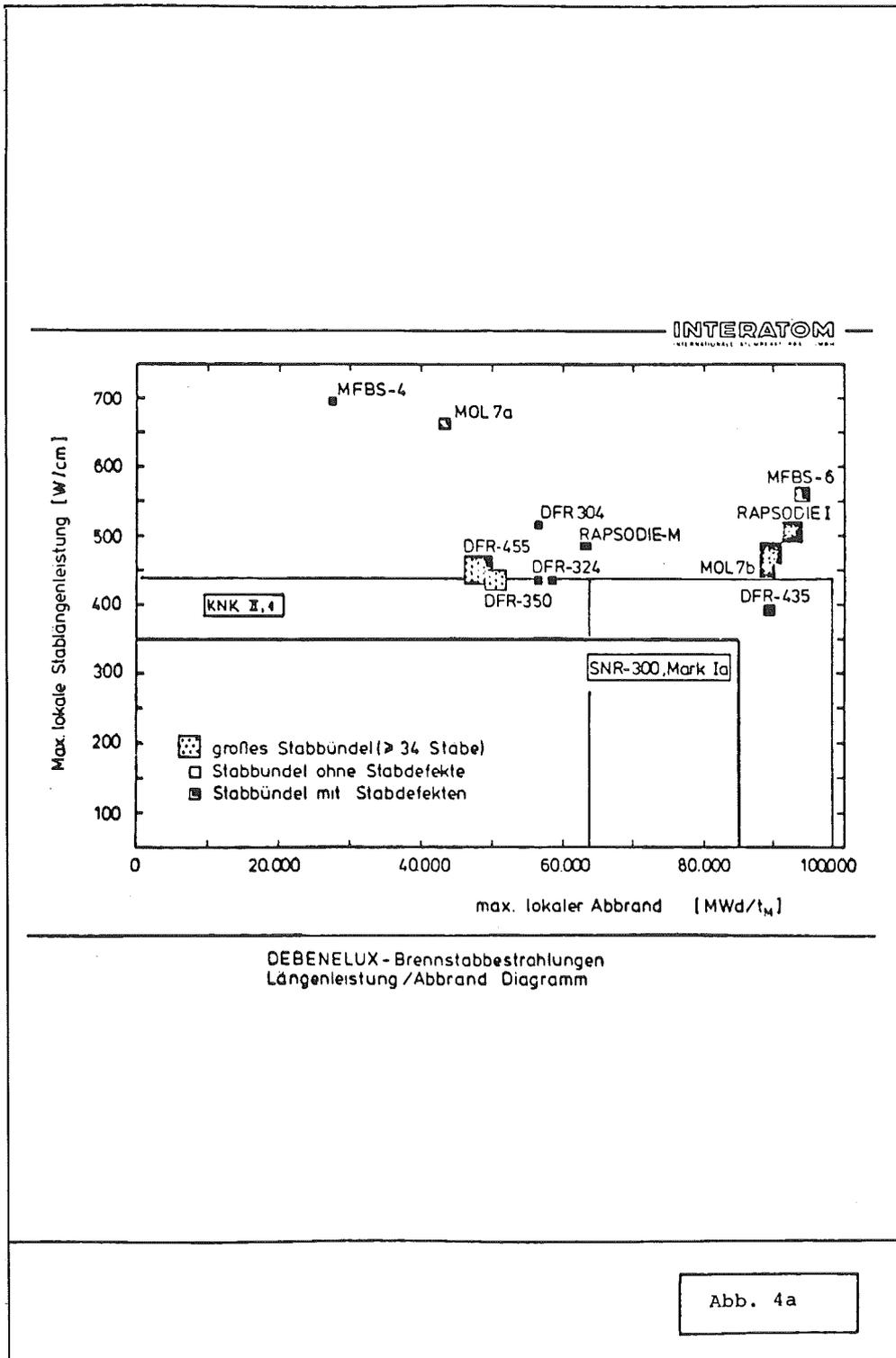


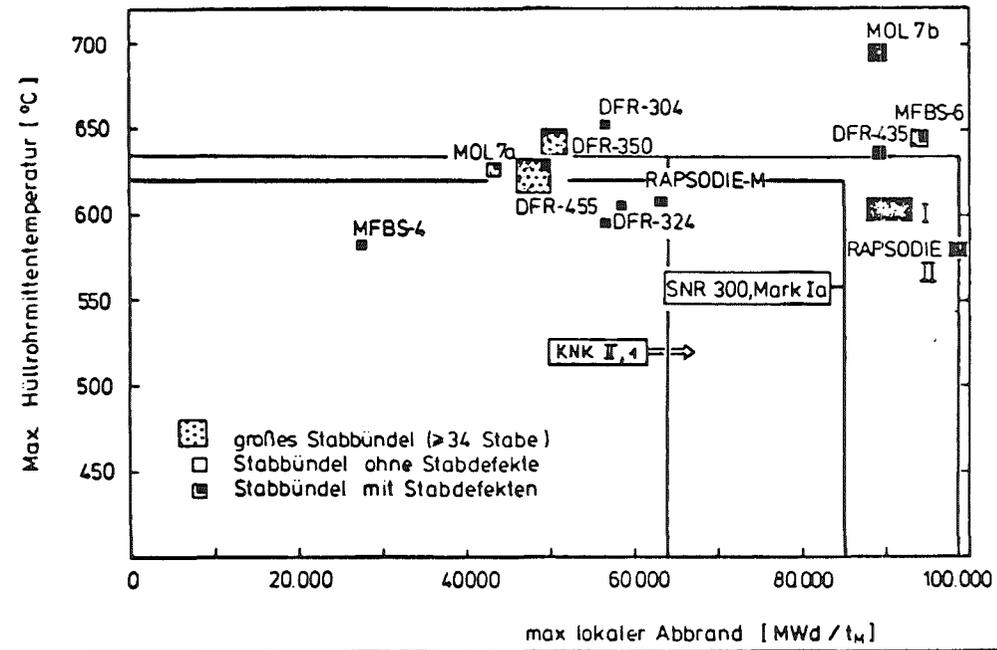
Statistik zur Brennstabbelastung in PHENIX

Abb. 2









DEBENELUX - Brennstabbestrahlungen
Hüllrohrtemperatur / Abbranddiagramm

Abb. 4b

54.05735.9

Notiz 54.05735.9

INTERATOM				
VERSUCHSAUS- SAGEN ZU:	<u>BRENNSTOFF- MECHANIK</u>	<u>THERM. VERHALTEN</u>	<u>CHEMIE THERMODYNAMIK</u>	
	<u>STATIONÄR INSTAT.</u>	<u>STATIONÄR INSTAT.</u>		
FR2-VG3-5	X	X		
MOL 8A/B	X	X		X
MOL 16				X
MOL 7A	X	X		X
DFR 304	X	X		X
DFR 350	X	X		X
DFR 435	X	X		X
DFR 455	X	X		X
RAPS.-MONITOR	X	X		X
RAPSODIE I	X	X		X
KNK-11/1	X	X		X
RAPSODIE II	X	X		X
FR2-LOOP 3/5			X	X
DUELL		X	X	
SILOE-S	X			X

Reaktorkern	TEST-MATRIX ZU NIEDRIG DICHTEM	
WERKSTOFFE	MK IA-BRENNSTOFF	
		4/80

Abb. 5

Abb. 6

ERGEBNISSE ZU:		BRENNSTABVERHALTEN				DEFEKSTAB- VERHALTEN
		THERM. VERHALTEN		BRENNSTOFFMECHANIK		
EXPERIMENT	STATUS	STATION.	INSTAT.	STATION.	INSTAT.	
MOL 10 MOL 8D FR2-LOOP VG 7	ABGESCHLOSSEN	X	X	X	X	X
DUELL II KAKADU II MOL 18	LAUFT		X X X		X X X	
SAPHIR SNR-PHX-1 KNK-II/2 POUSSIX FARFADET SILOE PS1	IN VORBEREITUNG	X X X		X X X X		X X X
POTOM OPOST GIGONDAS II/III KNK-II/3	IN PLANUNG		X X		X X	
Reaktorkern		ÜBERSICHT ÜBER IN-PILE TESTS AN BRENNSTÄBEN UND VERSUCHS- KAPSELN MIT HOCHDICHTEM BRENNSTOFF				

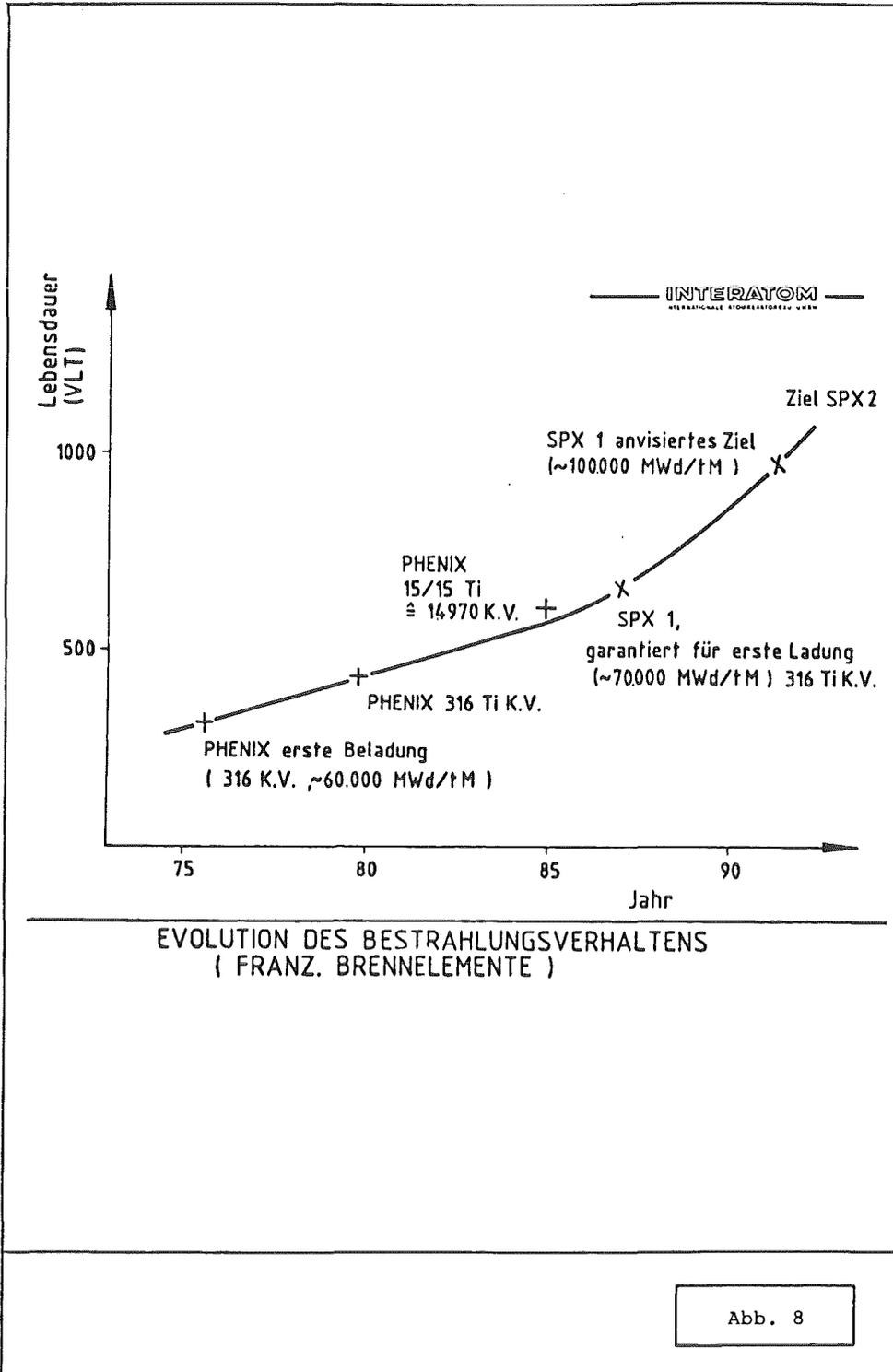
16196/05-81/1

Notiz 54.05/35.9

BRENNSTOFF-TYP EXPERIMENTE		INTERATOM			
		OKOM	AU.PU.C	HSV	HOCHD. BN-BREHNST.
VG 7		(X)	X		
DUELL II		X			
KAKADU II		X			
MOL 18		X			
SAPHIR			X		X
SNR-PHX-1		X			
POUSSIX		X.	X		X
KNK-II/2		X	X		X
FARFADET					X
POTOM		X			
OPOST		X			
GIGONDAS II/ III		X.	X		
KNK-II/3		X.	X	(X)	
• EINSCHL. TEST VON LOCHTABLETTEN					
Reaktorkern		BRENNSTOFF-TESTPROGRAMM			

16195/05-81/1

Abb. 7



Bestrahlungsexperimente zum Betriebstransientenverhalten

H. Plitz,

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Projekt Schneller Brüter/Projektleitung

D. Freund,

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Material- und Festkörperforschung III

Zusammenfassung

Im System des Schnellen Natriumgekühlten Brutreaktors (SNR) können sich Betriebstransienten ereignen, die nicht die Reaktorsicherheit, eventuell aber die Anlagenverfügbarkeit beeinträchtigen können. Die möglicherweise auftretenden Betriebstransienten und deren Auswirkungen auf das Brennstabverhalten werden systematisch untersucht. In Bestrahlungsversuchen werden SNR-Brennstäbe unter folgenden Bedingungen getestet:

- Bestimmungsgemäßer Betrieb (Lastfolgebetrieb, Leistungsrampen)
- Kleine Leistungstransienten
- Kleine Hülltemperaturtransienten

Diese Experimente werden zunächst mit frischen, später auch mit vorbestrahlten Brennstäben in Natrium-Kapseln im HFR-Petten, sowie in Natrium-Loops im BR-2-Mol durchgeführt.

1. Einführung

Das Verhalten von Brennelementen des Schnellen Natriumgekühlten Brutreaktors bei stationärem Betrieb ist experimentell dokumentiert. Beispielsweise wurden im schnellen Reaktor KNK-II bei maximalen Stabileistungen zwischen 360 bis 435 W/cm und maximalen Hülltemperaturen bis 650 °C knapp 100.000 MWd/tM Abbrand erzielt. Doch mit dem Betrieb von größeren Anlagen zur Stromerzeugung wie Superphenix oder SNR-300 sind leichte Abweichungen vom Normalbetrieb zu erwarten, deren Auswirkungen auf Brennelemente nur wenig untersucht sind, wobei nicht sicherheitsbezogene, sondern die Verfügbarkeit betreffende Fragen in den Vordergrund treten (1).

Im sog. Betriebstransienten-Programm sollen drei Komplexe experimentell untersucht werden:

- Bestimmungsgemäßer Betrieb, unter Berücksichtigung von Leistungsrampen und Lastfolgebetrieb
- Leistungstransienten, verursacht z.B. durch Ausfahren einer Trimm-Elementbank
- Kühlmitteldurchsatztransienten (beispielsweise infolge Stromausfall) und deren Einfluß auf Brennelemente.

Es wurde zunächst ein Katalog möglicher leichter Betriebsstörungen in den Primär-, Sekundär- und Tertiärsystemen der SNR-300 Anlage erstellt, der die Grundlage für das experimentelle Programm bildet. Der Komplex der hypothetischen Störfälle wurde bewußt ausgeklammert. Diese Abgrenzung führt zu einer Einteilung der Transienten, wie sie in Tab. 1 dargestellt ist.

Das Betriebstransienten-Programm soll Aufschluß darüber geben, wie robust das SNR-Brennelementkonzept ist, welche Betriebsstörungen ertragen werden können und ob die angesetzten Abschaltgrenzen der Reaktorüberwachungssysteme auch bei hohen Abbränden mehrfach angefahren werden können, ohne daß Brennelementschäden auftreten. Bei der Aufstellung des Programmes müssen neben den betrieblichen Gegebenheiten auch die ablaufenden Prozesse im Brennstab bei Transienten berücksichtigt werden. Leistungstransienten wirken sich primär auf den Brennstoff aus, wobei, abhängig von Leistungsvorgeschichte und Abbrandzustand, die Effekte thermische Brennstoffdehnung, transientes Schwellen sowie Gasfreisetzung und Volumenzunahme beim Brennstoffanschmelzen wesentlich sind. Dies läßt grundlegende Unterschiede im Verhalten von frischen und vorbestrahlten Brennstäben bei transientem Betrieb erwarten.

Sowohl Leistungstransienten, als auch Durchsatztransienten führen zu Temperaturbelastungen des Hüllrohres.

Ein Teil der Hülltemperaturtransienten kann wegen der Entkopplung zwischen Brennstoff und Hülle bei konstanter Stabileistung in Versuchen außerhalb des Reaktors untersucht werden. Die Leistungstransienten dagegen lassen sowohl reaktivitätswirksame Brennstoffverlagerungen als auch zusätzlichen Festkörperdruck zwischen Brennstoff und Hüllrohr erwarten, so daß hierfür in-pile-Untersuchungen unumgänglich sind.

2. Experimentelles Programm zur Untersuchung des Verhaltens von Brennstäben bei Betriebstransienten

Das Programm wurde von einem Arbeitskreis mit Beteiligung von Belgonucléaire, CEN Mol, ECN Petten, EURATOM Petten, und Interatom unter Federführung von KfK erarbeitet.

Für die Durchführung der Experimente stehen Na-Kapseln im Reaktor HFR in Petten/Niederlande sowie der Na-Loop (Kreislauf) VIC im Reaktor BR-2 in Mol/Belgien zur Verfügung.

Ein großer Teil der Leistungstransienten wird in Na-Kapseln des HFR Petten untersucht, wobei vier Kapseltypen eingesetzt werden (2):

- DUELL-Kapseln (je zwei kurze Teststäbe) für Startrampen (schnelles Hochfahren auf Vollast) zur Untersuchung des Anfahrverhaltens frischer Brennstäbe
- KAKADU-Kapseln (je zwei lange, auch vorbestrahlte Brennstäbe) für Betriebsrampen und Lastwechseltests,
- OPOST-Kapseln (je drei Stäbe) für Überlastexperimente,
- POTOM-Kapseln (je drei Stäbe) für Brennstoffanschmelzexperimente.

In der Mehrzweckanlage des VIC-Loops im BR-2 werden kombinierte Lastsprung/Hülltemperatur-Transienten-Experimente mit frischen und vorbestrahlten Brennstäben durchgeführt. Die für die einzelnen Experimente zur Verwendung kommenden Testbrennstäbe sind in Tab. 2 zusammengestellt. Für die ersten Versuchsserien DUELL, KAKADU und Mol-18 werden Original KNK-II-Brennstoffe (frisch, bzw. im KNK-II vorbestrahlt) verwendet, wobei der niederdichte Brennstoff nach dem auch für den SNR-300 geltenden Standardverfahren hergestellt wurde. In den folgenden Versuchsserien werden neu gefertigte, nach dem OKOM (optimiertes Ko-Mahl)-Verfahren hergestellte hochdichte Brennstoffe getestet. Der Zeitplan des experimentellen Programms ist in Abb. 1 dargestellt. Bisher wurden 11 Experimente durchgeführt, weitere 12 Experimente laufen derzeit oder sind fest eingeplant.

3. Durchführung des Betriebstransientenprogrammes

3.1 Experimente im HFR-Petten

Die Rampenexperimente (Klasse BI) sowie Anschmelzexperimente (Klasse BII) werden in den oben beschriebenen Na-Kapseln DUELL und KAKADU im HFR in Petten in der sog. "Pool Side Facility" durchgeführt. Durch einfaches Verschieben der gesamten Versuchskapsel können Leistungsänderungen bis zu 10 %/Min. erreicht werden.

Der grundsätzliche Aufbau ist für alle Kapseltypen gleich. Der Brennstab sitzt, umgeben von einem mit Thermoelementen bestückten Zwischenrohr aus Molybden, in einem Natrium-gefüllten inneren Kapselrohr aus Edelstahl. Diese dicht geschlossene Innenkapsel ist von einer zweiten, äußeren Kapsel aus Edelstahl umgeben. Zwischen beiden Kapselrohren befindet sich ein dünner Gasspalt, der von Helium bzw. einem variablen Gasgemisch zur Regelung der Temperatur des Brennstabes durchströmt wird. Um ein typisches axiales Hüllrohrtemperaturprofil zu erreichen, ist die Gasspaltbreite über die Länge der Stäbe im Bereich zwischen 30 und 90 m abgestuft. Die äußere Kapsel wird mit Wasser aus dem Reaktorbecken gekühlt. Die Integrität der Brennstabhüllen kann durch Umwälzen des Schutzgases über dem Natrium-Spiegel (5bar Helium) überprüft werden. 1979 wurden fünf DUELL-Kapseln mit jeweils zwei Kurzstäben und zwei KAKADU-Kapseln mit Original KNK II-Brennstäben bestrahlt. Die aktive Brennstofflänge beträgt dabei 150 bzw. 600 mm.

Für die Zukunft ist auch die Untersuchung von vorbestrahlten Brennstäben geplant. Zu diesem Zweck wurde die sog. "EUROS-ZELLE" entwickelt und gebaut, in der die aktiven Stäbe fernbedient in die vorbereiteten Kapseln eingebracht werden können. Auch die Na-Füll- und Verschweißtechnik soll in dieser abgeschirmten Zelle bewerkstelligt werden.

Die Kapsel DUELL und KAKADU wurden von EURATOM Petten ausgelegt und gebaut. Die Spezifikation der Experimente wurde von allen am Projekt beteiligten Partnern erarbeitet. Die Experimente werden im HFR Petten durch EURATOM durchgeführt; die Nachuntersuchungen erfolgen größtenteils bei KfK.

Mit den Experimenten der Startrampen-Serie in DUELL-Kapseln soll das Anfahrverhalten von frischen Brennstäben genauer untersucht werden, wobei insbesondere die Umstrukturierung und Geometrieänderung des Brennstoffs, die thermische Belastung (Zentraltemperatur, mittlerer Wärmedurchgang im Spalt) und der Einfluß verschiedener Haltezeiten bei 85% Vollast (0,2h, 2h, 1 d, 10 d) interessieren.

In Abb. 2 und Abb. 3 sind die Leistungshistogramme der ersten DUELL-Serie mit Mk-Ia-Brennstoff (5 Experimente Haltezeiten 0,2h; 2h; 1d; 10d bei 85 % Vollast, danach Leistungsrampe auf 100 % Vollast, bei Ziffer 5 nach 3 Tagen Haltezeit auf 165 % Vollast) und der zweiten DUELL-Serie mit Mk-II-Brennstoff hoher Dichte (4 Experimente, 8 Teststäbe) aufgetragen. Bisher wurden neun DUELL-Kapseln bestrahlt. Bei allen Experimenten wurden vor sowie bei Zwischenabschaltungen und nach Bestrahlungsende Neutrografien (Neutronendurchstrahlungen) angefertigt, um den Zustand bzw. die Veränderungen der Brennstabsäulen laufend zu verfolgen. Die Nachuntersuchungen sollen Aussagen über die Zeitabhängigkeit der Brennstoffumstrukturierung (Zentralkanal, Verdichtung durch Porenwanderung und Nachsintern), Dimensionsstabilität etc. erbringen, um Brennstabrechenprogramme zu verifizieren. In allen Fällen (auch bei den im folgenden beschriebenen KAKADU-Experimenten) blieben die Testbrennstäbe intakt. Die Ausbildung des Brennstoffzentralkanals bei höheren Leistungen war in einigen Fällen besonders ausgeprägt (beispielsweise bei DUELL-1-800 W/cm). Die Untersuchung des Brennstabverhaltens bei Betriebsrampen erfolgt in KAKADU-Kapseln mit je zwei Original-KNK-II-Brennstäben, wobei der Einfluß eines Wechsellastbetriebs zwischen 2/3 Vollast und Vollast (mit Zwischenabschaltungen) untersucht wird.

Die wesentlichen Versuchsziele sind dabei die Erfassung der Struktur- und Geometrieänderung des Brennstoffs und der mechanischen Wechselwirkung Brennstoffhülle und Hüllrohrverformung.

Der Leistungsverlauf des ersten KAKADU-Experimentes mit Original KNK-II/1-Brennstäben ist in Abb. 4 dargestellt.

Bei der Bewertung der in den HFR-Kapselexperimenten erreichten Stabileistungen von knapp 600 W/cm bzw. 800 W/cm unter thermischen Neutronenflußbedingungen ist zu berücksichtigen, daß die Brennstofftemperaturen im Vergleich zu den Bedingungen im schnellen Neutronenfluß abgesenkt sind. Deshalb werden im KNK-II vorbestrahlte Brennstäbe in weiteren Experimenten im HFR Petten getestet.

3.2 Experimente im BR-2 Mol

Für den Einsatz in den Reaktor BR-2 in Mol wurde ein neuer Natrium-Kreislauf ausgelegt und konstruiert, der gleichzeitig eine Leistungsregelung mittels einer He-3-Anlage sowie eine Kühlmitteldurchsatzregelung ermöglicht. Als Testbrennstab werden Original-KNK-II-Brennstäbe verwendet. Der Leistungshub beträgt für die VIC-Anlage bis 180% im thermischen und ca. 140% im epithermischen Neutronenfluß (Änderungsgeschwindigkeit max. 15%/sec).(3)

Nach einigen Umkonstruktionen können auch bereits vorbestrahlte Teststäbe in der VIC-Anlage getestet werden. In diesem VIC-Loop können alle Experimente durchgeführt werden, bei denen sowohl Hülltemperatur als auch Leistung zu verändern sind (vorwiegend Klasse BII, entsprechend Tab. I). Hierbei soll das Verhalten von SNR-Brennstäben bei Kühlstörungen, Hülltemperaturüberhöhungen und kombinierten Hülltemperatur/Leistungstransienten untersucht werden.

Für das erste Experiment Bezeichnung Mol-18-A1 mit einem Original-KNK-II-Brennstab wurde bei stationärer Stabileistung von 450 W/cm der Na-Durchsatz von 90 auf 53g/sec in etwa 10 Sekunden gedrosselt, wobei die Hülltemperatur um ca. 10°C/sec anstieg. Nach mehrmaliger Erhöhung der Hülltemperatur wurde nach knapp 1% Abbrand die Stabileistung auf max. 160% (der stationären Ausgangsleistung) angehoben.

In Abb. 5 ist der Leistungsverlauf des letzten Bestrahlungszyklus von Mol-18-A1 mit Leistungsrampen auf 120, 140 und 160 Prozent (thermischer Neutroneneinfluß) aufgetragen.

Das Mol-18-Experiment A1 wurde im März 1982 beendet. Der Teststab blieb intakt, die derzeit laufenden Nachuntersuchungen scheinen keine Besonderheiten zu ergeben.

Das zweite und dritte Experiment der Mol-18-Serie, nämlich Mol-18-B3 (KNK-II-Mk-II-Originalstab) und Mol-18-A2 (auf max. 4,8% Abbrand im KNK-II-vorbestrahlter Original-KNK-II-Mk-I-Brennstab) werden 1983 durchgeführt (Abb. 1).

Das experimentelle Programm zur Untersuchung des Verhaltens von frischen und im schnellen Neutronenfluß vorbestrahlten SNR-Brennstäben unter transientem Betrieb ist langfristig und orientiert sich auch an den Ergebnissen vergleichbarer internationaler Bestrahlungsexperimente. In der ersten Phase wurden frische Brennstäbe und in einer zweiten Phase im schnellen Neutronenfluß vorbestrahlte Brennstäbe bei Leistungs- und Hülltemperaturtransienten getestet. Die bisherigen Ergebnisse aus Experimenten mit frischen Testbrennstäben, mit der Einschränkung der thermischen Neutronenflußbedingungen, lassen erkennen, daß das SNR-300 Brennstabkonzept robust genug ist, leichte Betriebsstörungen schadensfrei zu überstehen. Diese vorläufigen Aussagen müssen noch untermauert werden durch Ergebnisse mit im schnellen Neutronenfluß vorbestrahlten Brennstäben mit entsprechenden Abbrandprofilen, entsprechenden Hüllmaterial-konditionen hinsichtlich Neutronendosen und entsprechenden Temperaturbedingungen.

Literaturhinweise:

1) H. Plitz

"Experimental Program to Investigate LMFBR-Fuel Pin Behaviour During and Post Operation Transients", in Proc. ANS Topical Meeting - Reactor Safety Aspects of Fuel Behaviour, American Nuclear Society (1981), p. 1-211.

2) D. Geithoff et.al.,

"Operational Transient Test Irradiation of FBR Fuel", ibid, p.1-426

3) J. Dekeyser,

"The VIC-sodium Loop: A Versatile Irradiation Device for Transient Testing of LMFBR Fuel Pins", Paper presented at Fast, Thermal and Fusion Reactor Experiments Conference, April 12-15, 1982, Salt Lake City, UTAH, USA

Betriebsart	Bedingungen
A. Normalbetrieb	
I. Stationär	450 W/cm, 650°C 70 MWd/kgM
II. Lastfolge	
Zyklieren (60 / 100%, 0,2% / s)	≤ 1000 mal
Rampen (10%, 0,5% / s)	≤ 100 mal
B. Transienter Betrieb	
I. Betriebstransiente	
(Reaktor bleibt verfügbar)	
geringe Stabdefekte	kleine Hülldefekt
Leistungstransiente (< 112%), 1% / s	unterhalb Anregung Erstabschaltssystem
Leistungstransiente (< 130%), 2% / s	unterhalb Anregung Zweitabschaltssystem
Leistungstransiente (< 150%), 15% / s	leichte Reaktivitätsänderung
Hülltemperaturerhöhungen < 800°C, 10-100°C/s	verringerte Pumpenleistung
	Kühlkanalverengungen
II. Sicherheitsbezogene Transiente	
(Reaktor bleibt sicher)	
Überlast mit Brennstoffanschmelzen	Reaktivitätsänderungen
größere Leistungstransiente (< 180%), 15% / s	
Hülltemperaturüberhöhungen, ≤ 950°C, < 100°C/s	teilweise Kühlkanalverspernung



Tab.1 Einteilung der Transienten

Lfd. Nr.	Versuchsreihe	Kapseln	Stabanzahl + Reserve	Stabdurchmesser (mm)	Brennstoff			
					Verfahren	Tabletten-dichte (% th.D.)	Pu-Gehalt (%)	U5 / U _{tot} (%)
1	DUELL-I	5	10 + 4	6,0	Standard	86,5	27	83
2	DUELL-II	4	8 + 4	7,6	OKOM	95	25	0,7
3	KAKADU-I	2	4 + 2	6,0	Standard	86,5	27	83
4	KAKADU-II	2	4 + 2	7,6	OKOM	95	25	0,7
5	KAKADU-III	2	4 + 2	6,0	Standard	86,5	27	83
6	POTOM	3	9 + 3	7,6	OKOM	95	15 / 20 / 30	80
7	OPOST	2	6 + 3	7,6	OKOM	95	20 / 30	80
8	MOL-18-A1	1	1 + 1	6,0	Standard	86,5	27	83
9	MOL-18-B3	1	1 + 1	7,6	OKOM	95	25	50
10	MOL-18-A2	1	1 + 1	6,0	Standard	86,5	27	83

Anmerkung: Lfd. Nr. 5 + 10 sind vorbestrahlte Original-KNK-II / 1-Brennstäbe



Tab.2 Testbrennstäbe für Betriebs transienten-Experimente

Projekt	Test-Nr.	1979	1980	1981	1982	1983	1984	1985
HFR-D 173 DUELL	10 / 11	●						
	12 / 13		●					
	14 / 15		●					
	16 / 17		●					
	18 / 19			●				
	20 / 21				●			
	22 / 23				●			
	24 / 25				●			
	26 / 27				●			
	HFR-D 183 KAKADU	21 / 22			■			
23 / 24				■				
25 / 26				■				
27 / 28				■				
50 / 51					■			
52 / 53						■		
HFR-D 184 OPOST POTOM	11 / 13							
	14 / 16							
	17 / 19							
	20 / 22 23 / 25							
MOL-18 A1 B3 A2	A1				■			
	B3					■		
	A2						■	



Abb1

Betriebs transientenprogramm

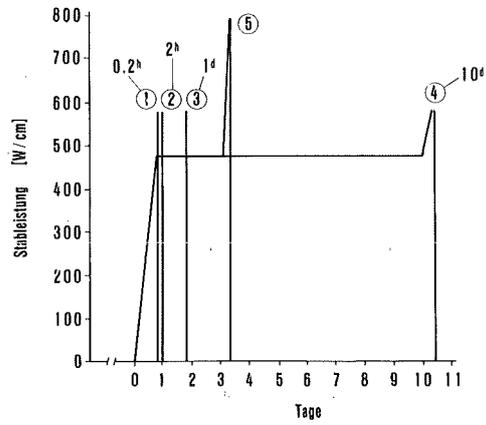


Abb. 2

DUELL-I-Starttrampenverlauf

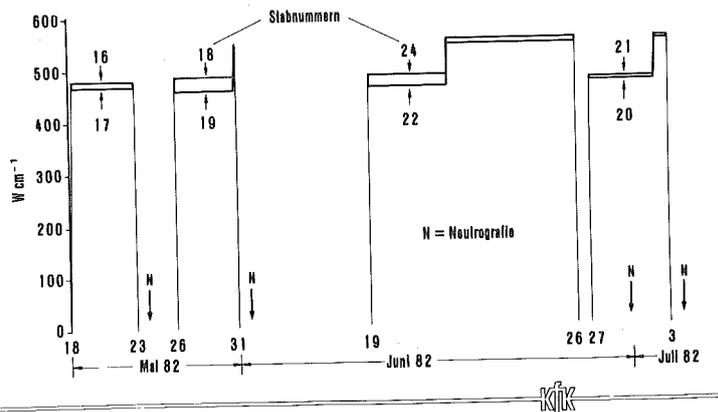


Abb. 3

DUELL-II-Starttrampenverlauf

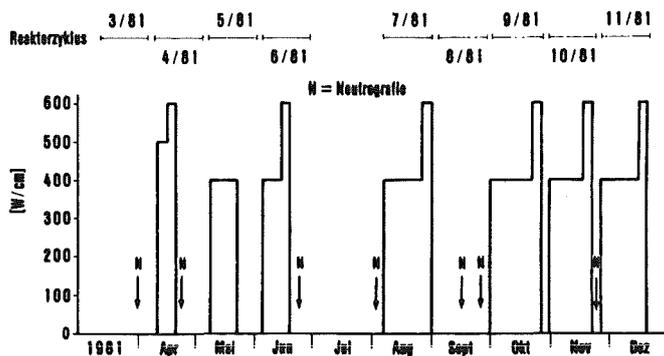


Abb. 4

KAKADU 21/22-Bestrahlung

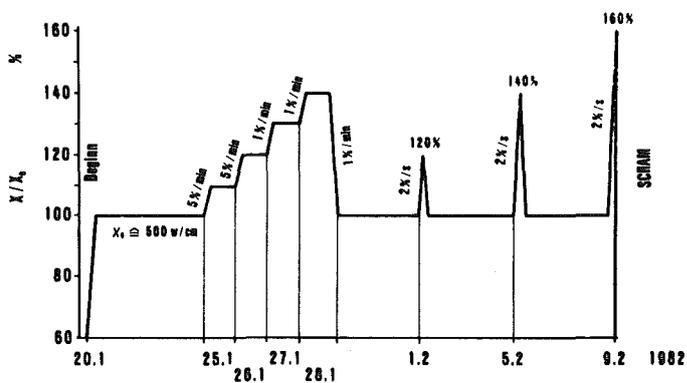


Abb. 5

Mel 18-A 1 Transienten

Defektstabexperimente - VOLGA-Programm

P. Weimar

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Institut für Material- und Festkörperforschung III

H. Kleykamp

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Institut für Material- und Festkörperforschung I

1. Einleitung

Auch beim stationären Betrieb eines Schnellbrüters sind Stabschäden nicht ganz auszuschließen. Ähnlich wie bei den Leichtwasser-Reaktoren kann auch bei Schnell-Reaktoren mit einer Defektrate von nur 0,1 % gerechnet werden. Abbildung 1 gibt die Defektraten von Versuchs-Schnellbrüter-Anlagen wieder.

Man geht davon aus, daß Frühschäden an Brennstäben durch eine gute Qualitätskontrolle weitgehend ausgeschlossen werden, es sind daher nur die sog. "end-of-life"-Fehler, also Schäden, die erst bei höheren Abbränden auftreten, zu beachten. Diese Art von Stabversagen findet man häufig im Bereich der Spaltstoffsäule an der sog. Hüllheizstelle. Dieser Bereich der Stabhülle ist meist durch Innenkorrosion bereits geschwächt und wird bei einer zusätzlichen Belastung des Brennelementes versagen. Nach einem Auftreten eines Stabdefektes laufen die folgenden Vorgänge in chronologischer Reihenfolge ab (Abb. 2):

- Austritt des Spaltgases,
- Eindringen des Kühlmittels Na,
- Austreten des im Na gelösten Spaltcäsiums,
- chemische Reaktion Mischoxid-Na zu Na-Uranat-Plutonat,
- Uranat-Schwellen, Rißpropagation und Sekundär-Risse,
- Brennstoff-Verlust.

Diese Fakten waren zwar durch die Literatur z.T. bekannt, da die Reaktionsraten aber stark vom Brennstofftyp und Abbrand beeinflußt werden, schien es sinnvoll, das Verhalten solcher Stäbe im defekten Weiterbetrieb zu studieren.

Bereits in den Jahren 1973 und 1974 wurden vom Projekt Schneller Brüter Verhandlungen mit der französischen CEA geführt mit dem Ziel, den Na-Kreislauf des Pégase-Reaktors in Cadarache für solche Versuche zu nutzen. Da dieser Reaktor jedoch kurzfristig stillgelegt wurde, kam man mit dem CEN-Grenoble überein, im Reaktor SILOE Einzelstabexperimente in einem kleinen Na-Loop zu fahren. Ursprünglich war geplant, 4 Versuche mit Brennstäben des Typs Mk-Ia/SNR-300 auszuführen. Man konnte hier auf hochabgebrannte Stäbe des RAPSODIE-Bündelexperimentes zurückgreifen.

2. Versuchsziel

Als Versuchsziel wurde definiert, das Verhalten von defekten Brennstäben im stationären und zyklischen Weiterbetrieb zu untersuchen.

Folgende Institutionen sind an den Experimenten beteiligt:

- die Kreislaufchemie (IRCh),
- die Schadensdetektion (IRE),
- das Brennstoff- und Stabverhalten (IMF),
- die Firma INTERATOM,
- die Heißen Zellen des KfK.

Die ursprünglich geplanten Experimente mit je 2 frischen und 2 vorbestrahlten Brennstäben des Mk-Ia-Typs wurden später erweitert. Nach Abschluß des Vertrages mit Frankreich zur gemeinsamen Schnellbrüterentwicklung wurden Experimente des französischen VOLGA-Programms miteinbezogen.

3. Experimentmatrix

Abbildung 3 zeigt die Experimentfolge der Versuchsserie. Es handelt sich um 7 Experimente, wovon die ersten 3 mit SNR-300-Mk-Ia-Stäben gefahren wurden. Bei den folgenden 4 VOLGA-Experimenten handelt es sich um Versuche mit Stabmessungen, wie sie für den Superphênix vorgesehen sind.

Die Spalte 4 der Abbildung 3 gibt die Defektgrößen wieder. Wie man sieht, hat man zuerst mit relativ großen offenen Defekten als Primärschaden begonnen. Im Laufe der Serie ging man zu mehr realistischer Defektgeometrie über, die sich dann auch erst in in-pile öffnete. Mit VOLGA-RS 1 begann dann die gemeinsame DeBeNe/CEA-Serie. Das Hüllmaterial variiert hier vom Stahl 316 bis hin zur Ti-stabilisierten und wärmebehandelten Form, während die deutschen Stäbe bereits mit dem Stahl 1.4970 ausgestattet waren. Bei den französischen Stäben variieren die Defektgrößen in Anlehnung an Stabdefekte, wie sie an RAPSODIE-Stäben bereits früher auftraten. Bei RS 1 war die Hülle nur angefräst mit einer Restdicke von 100 µm. Durch entsprechende Fahrweise des SILOE wurde dann der Schaden provoziert.

Bei RS 5 wurde ein "Pinhole"-Defekt im Bereich der Brennstoffsäule simuliert. Es wurde ein Loch von 0,3 mm ϕ angebracht und anschließend verlötet. Das Lot schmolz während der Bestrahlung und gab so die Öffnung frei.

PS 1 stellt einen Superphénix-Stab dar, der ohne U-235-Anreicherung im PHENIX einen Abbrand von ca. 8 at-% erreichte. Der defekte PS 1 soll neue Aussagen erbringen hinsichtlich Defektsignalen (DND) und Brennstoffverhalten.

Bei PS 0 handelt es sich um einen PHENIX-Brutstoffstab (ca. 5 % Pu), der erstmals hinsichtlich seines Defektverhaltens getestet werden soll. Es interessiert speziell das Spektrum an verzögerten Neutronen, das von defekten Brutstoffstäben in einem Schnellbrüter emittiert wird. Dieser Versuch wird unter Beteiligung der italienischen ENEA in Bologna am SILOE ausgeführt.

In der letzten Spalte der Tabelle sind für die ersten 4 Experimente die Brennstoffverluste angeführt. Klammert man S 4 aus, so liegen dieselben zwischen 40 und 120 mg; dies entspricht etwa 0,1 % des Brennstoffinventars. Bei S 4 wird der extrem hohe Brennstoffverlust auf Einwirkung von Na-Dampf zurückgeführt, der sich im Zentralkanal bilden konnte, da der Stab bei Versuchsbeginn bereits offen war.

In Abbildung 4 werden die Konsequenzen der Reaktion zu Na_3MO_4 auf den Stabdurchmesser aufgezeigt. Die lokale Durchmesser-Veränderung nimmt beachtliche Beträge an und verläuft außerdem im Anfangsstadium sehr schnell. Der abgebrannte Stab wiederum schwillt stärker als der frische Brennstab. Die Conse-

quenzen dieses Effektes auf evtl. Blockaden sollten in Mehrstabversuchen untersucht werden.

Wie bereits eingangs erwähnt wurde, findet beim direkten Kontakt Brennstoff-Natrium eine Stöchiometrie-Erniedrigung statt. Die Ursache hierfür ist die reduzierende Wirkung des Na ($0,2 \sim 2 - 5$ ppm), wodurch die thermodynamischen Gleichgewichtsbedingungen im Brennstoff verändert werden. Es ändern sich generell die

- Stabilitätsbedingungen für die Reaktionsprodukte zwischen Hülle und Brennstoff,
- Stabilitätsbedingungen für die Spaltproduktphasen,
- Plutoniumverteilung im Brennstoff (infolge Verschlechterung der W.L. im Brennstoff).

Jeder der angeführten Fakten beeinflusst das Verhalten des Defektstabes.

Zur Erläuterung des Vorgesagten sollen Ergebnisse von Mikrosondenuntersuchungen herangezogen werden:

Abbildung 5 zeigt die an dem Stab S 3 gemessenen U- bzw. Pu-Profile. Die folgende Abbildung gibt Punktanalysen an mehrphasigen, metallischen Einschlüssen radial im Brennstoff wieder. Interessant ist das Auftreten der Spaltprodukte Mo, Ru, Te und Rh in zweiphasigen Ausscheidungen unterschiedlicher Konzentration. Abbildung 7 schließlich zeigt ein Brennstoffgefüge mit Na-Uranat/Plutonat-Schicht. Man findet noch tief im Mischoxidgefüge Inseln von Na bzw. NaO. In der eigentlichen Na-Uranat/Plutonat-Schicht findet man die Spaltprodukte Mo und Ba, z.T. in oxidischer Form. Letzteres beeinflusst die Mikrohärtigkeit dieser Schicht. So findet man in Hüllnähe einen Wert von ca. 140 kp/mm^2 , während derselbe bis auf 700 kp/mm^2 in Brennstoffnähe ansteigt.

Abbildung 8 gibt die bisherigen Ergebnisse der ersten 4 Experimente in tabellarischer Form nochmals wieder.

4. Wesentliche Ergebnisse der Defektstabexperimente

Die wichtigsten Ergebnisse der 4 ersten Experimente lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Der Brennstoffverlust an das Kühlmittel Natrium erfolgt erst nach einer Inkubationszeit. Er ist bei Defektbetrieb von 2 Wochen auf 0,1 % des ursprünglichen Brennstoffinventars beschränkt.
- Spaltprodukte werden ebenfalls an das Kühlmittel freigesetzt. Hier ist das langlebige Cs-137 mit Freisetzungsraten von 80 bis 85 % hervorzuheben.
- Das verzögerte Neutronen-Signal ist ein sicheres Anzeichen für einen Stabdefekt im Bereich der Brennstoffsäule. Mangels eines geeigneten Modells konnte bislang noch keine Korrelation zwischen Signalhöhe und Defektgröße hergestellt werden.
- Eine chemische Reaktion zwischen Na und Mischoxid kann nicht vermieden werden. Sie führt zur Defektaufweitung und über eine Erhöhung des radialen Temperaturgradienten zur Pu-Anreicherung im Stabzentrum. Inwieweit hiervon der Brennstoffverlust betroffen wird, konnte durch die in-pile-Versuche nicht ermittelt werden. Hier erscheinen begleitende out-of-pile-Versuche sinnvoll.
- Die Frage nach einer möglichen Blockade von Kühlkanälen durch Na-Uranat muß durch Mehrstabversuche noch geklärt werden.

Danksagung

An dieser Stelle sei allen beteiligten Mitarbeitern des CEA, der Firma INTERATOM und des KfK gedankt.

Reaktor	Defektrate [%]
DFR	0.3
EBR II	0.7
RAPSODIE	0.1
PHENIX	0.06
KNK II	0.14



Abb.1 Defektraten an Schnellbrüter-Stäben

- Austritt des Spaltgases
- Eindringen des Kühlmittels Na
- Austreten des im Na gelösten Spaltcäsiums
- chemische Reaktion zwischen Mischoxid und Na zu Na / uranatplutonat
- „Uranatschwellen“, Rißpropagation und Sekundärrisse
- Brennstoff-Verlust

Abb. 2 Ablauf-Sequenz nach Stabdefekt

Experiment Bezeichnung	Brennelement-Typ	Vorbestrahlungs-abbrand (at %)	Typ des primär defekts	Planungs-stadium	Bestrahlungszeit i. SILOE (d)	Brennstoff-verlust (mg)
S 2	SNR-300 Stab \varnothing : 6 mm Hülle: 1.4970 ϵ	0	30 x 1 mm ² offen	abgeschlossen	47	40
S 4	dto.	ex RAPSODIE-Bündel 10.6 at %	30 x 1 mm ² offen	abgeschlossen	21	1500
S 3	dto.	ex RAPSODIE-Bündel 10.6 at %	5 x 0.5 mm ² verlötet	abgeschlossen	22	120
VOLGA-RS1	SUPERPHENIX 18% PuO ₂ + 23% U ⁵ , Hülle: 316 ϵ vorbestrahlt im RAPSODIE	ex ATHENA V B. 12.5 at %	30 x 0.2 mm ² 100 μ m Rest- dicke d. Hülle	abgeschlossen	33	60
VOLGA-RS5	SUPERPHENIX 18% PuO ₂ + 23% U ⁵ , Hülle: 316 Ti ϵ vorbestrahlt im RAPSODIE	ex CYCLOPE I 2.2 at %	Loch: 0.3 mm \varnothing verlötet	Bestrahlung beendet Nachuntersuchung läuft	12,5	0
VOLGA-PS1	SUPERPHENIX 14% PuO ₂ ohne U ⁵ , Hülle: 15/15 Ti ϵ vorbestrahlt im PHENIX	ex OPHELIE 10 at %	Defekt in Höhe Brennstoff-Säule Dimension noch nicht definiert	geplant für 1, 83	—	—
VOLGA-PSD	PHENIX- Brutstoff-Stab Hülle: 316 ϵ vorbestrahlt im PHENIX	—	Herstellungs- defekt	z. Zt. unter Bestrahlung im SILOE	—	—

Abb. 3 Experimente der Serie Defektstab-VOLGA im SILOE

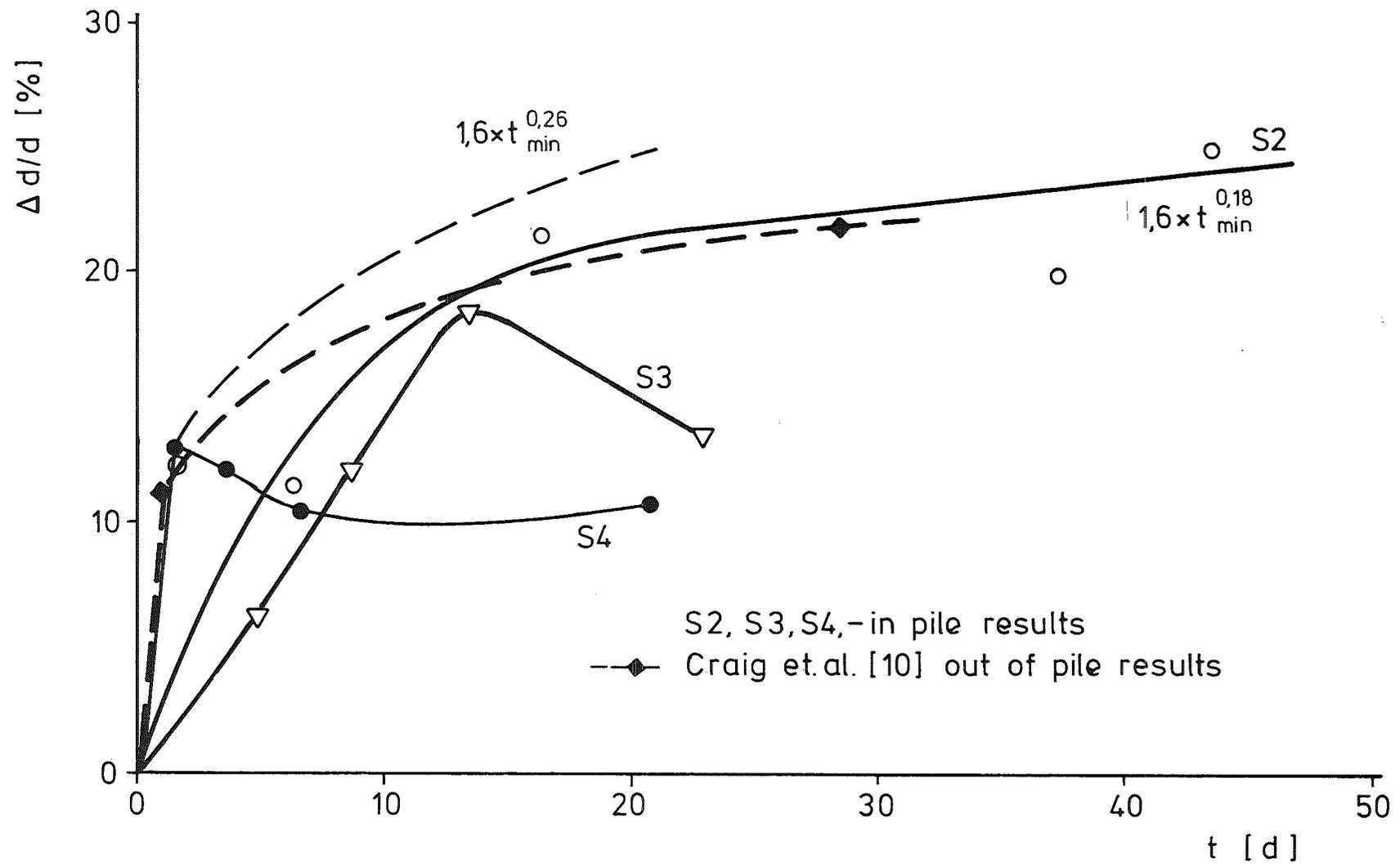
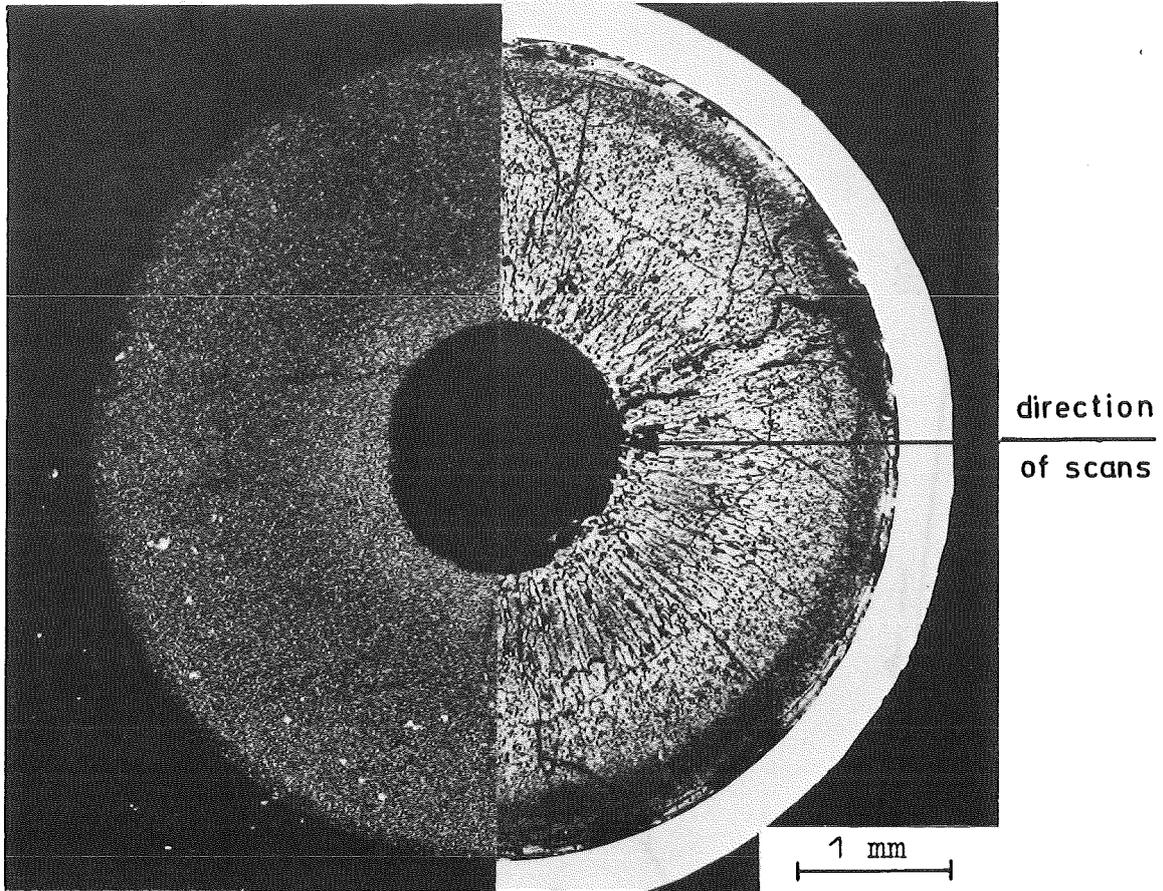


Abb 4 Maximale Durchmessererweiterung im Defektbereich

Siloe S3-9



Mikrostruktur und α -Autoradiografie von Stab S3,
Schnitt 9 im Flußmaximum

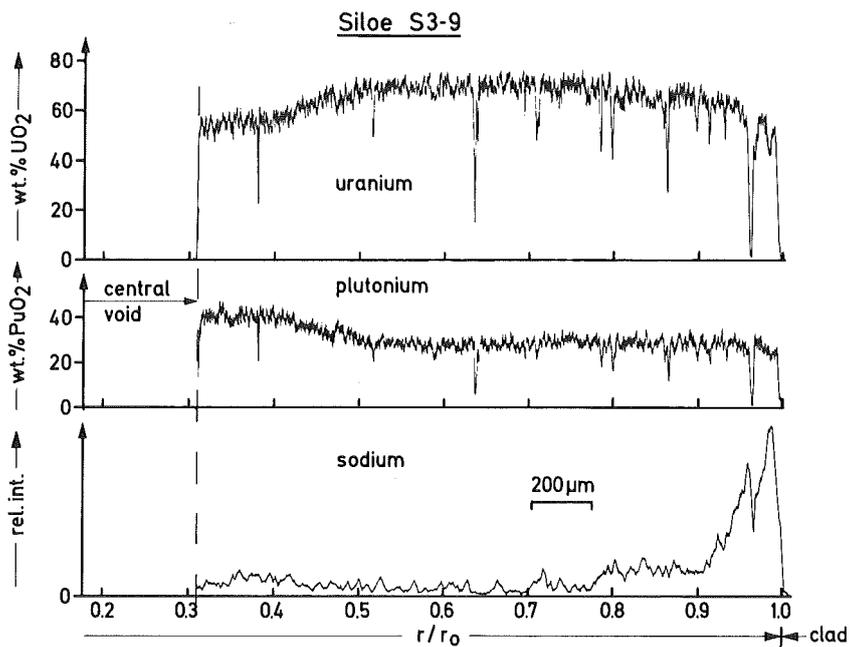
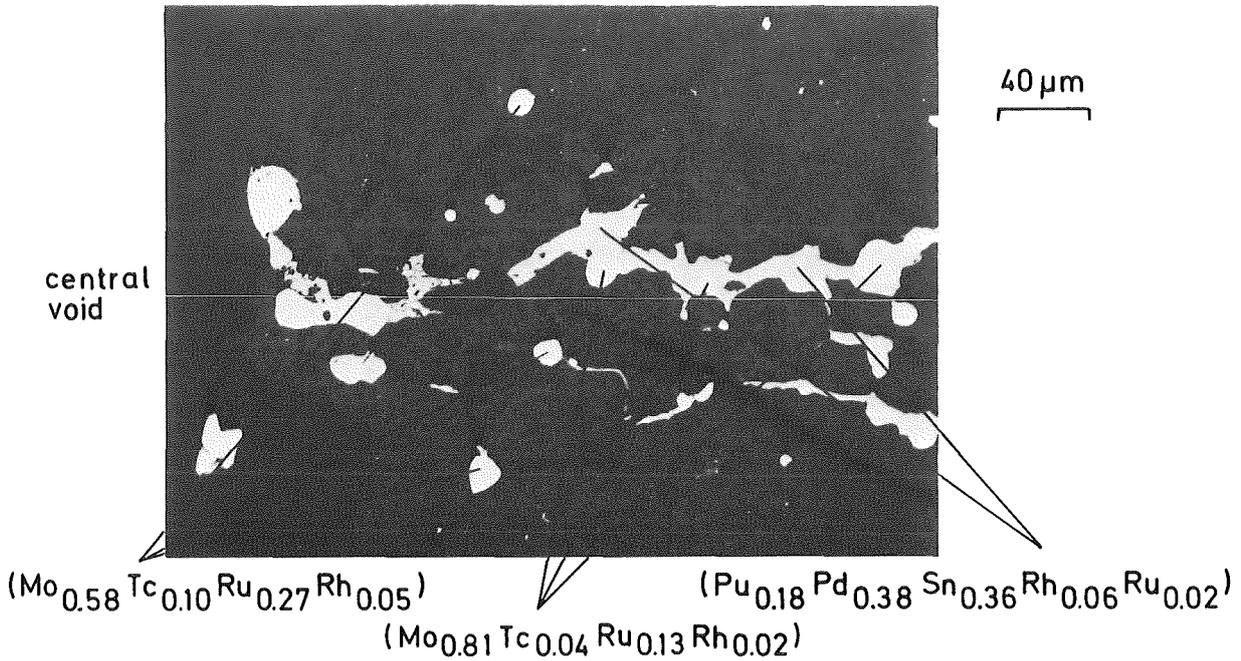


Abb. 5: Radiale U-, Pu- und Na-Konzentrations-
Profile von Stab S3, Schnitt 9

Siloe S3-9



Dreiphasige metallische Ausscheidungen im Brennstoff
in Nähe des Zentralkanals

Siloe S3-9

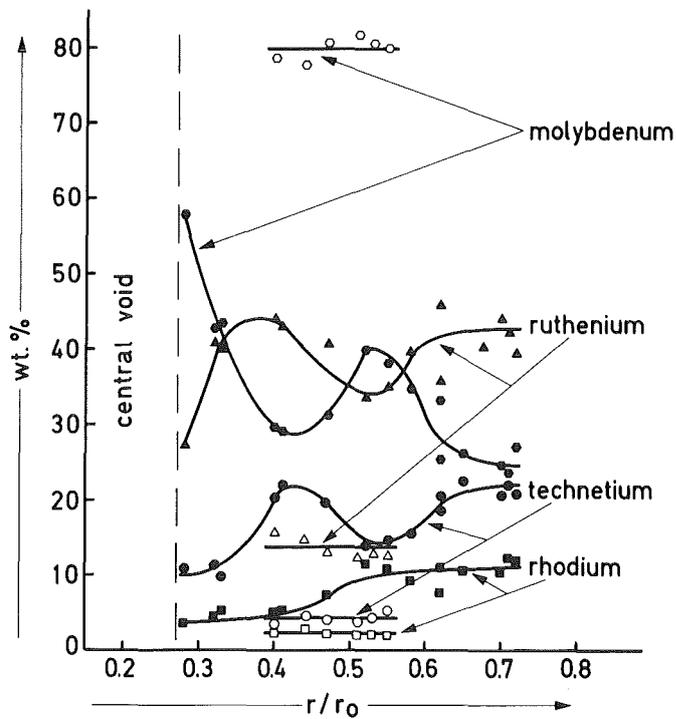


Abb. 6: Konzentration von Mo, Tc, Ru, Rh und Pd in
zweiphasigen metallischen Ausscheidungen
über dem relativen Brennstoffradius r/r_0

Siloe S3-9

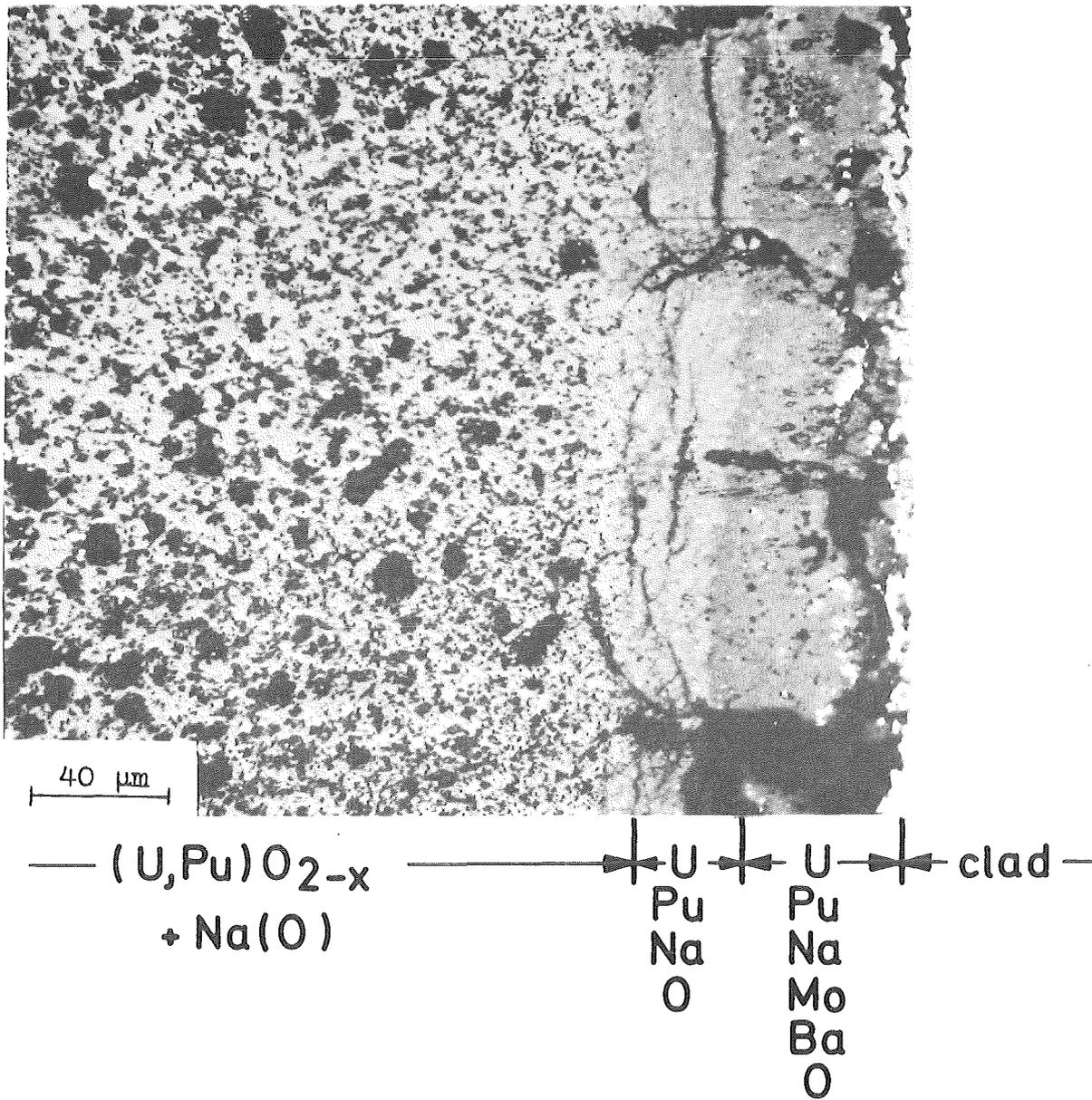


Abb. 7: Mikrostruktur der Na-Uranoplutonat- und Na-Ba-Molybdat-Uranoplutonat-Reaktionszonen zwischen Brennstoff und Hülle (Stab S3, Schnitt 9)

				Ergebnisse d. Versuche im SILOE			
Experiment	Abbrand [at %]	Größe des Primär- defekts (mm ²)	Bestrahl. Zeit im SILOE (d)	DND max (cm ² · R)	Sekundär-Risse	Brennstoffverlust (mg)	Cs-Release [%]
S 2	0	30 x 1 offen	47	35	keine	40	40
S 4	10,6	30 x 1 offen	21	180	ja Verlängerung auf 110 mm	1500	81
S 3	10,6	5 x 0,05 (verlötet)	22	200	ja mehrere	120	85
RS 1	12,5	Hüllanriß nicht durchgehend	33	300	ja	60	92
RS 5	2,2	Loch 0,3 mm Ø (verlötet)	12,5	—	—	—	—

Abb. 8 Brennstoff- und Cs-137 Freisetzung während des „Defekt“-Betriebs