

KfK 5282

Mai 1994

**Ergebnisse von REM/EDX-  
Mikrobereichsanalysen  
des Siedewasserreaktor-  
Bündelabschmelzexperiment  
CORA-16**

J. Burbach

Institut für Materialforschung  
Projekt Nukleare Sicherheitsforschung

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



**Kernforschungszentrum Karlsruhe**

**Institut für Materialforschung  
Projekt Nukleare Sicherheitsforschung**

**KfK 5282**

**Ergebnisse von REM/EDX-Mikrobereichsanalysen des  
Siedewasserreaktor-Bündelabschmelzexperiment  
CORA-16**

**J. Burbach**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe**

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

ISSN 0303-4003

## Kurzfassung

Im CORA-Versuchsprogramm des Kernforschungszentrums Karlsruhe (KfK) wird das Brennelementverhalten bei Temperaturen bis über 2000°C untersucht. Die Temperatur wird durch elektrische Beheizung von einigen Brennstäben aus dem Brennstabbündel erreicht. Die CORA-Versuche wurden im Rahmen des Projektes Nukleare Sicherheitsforschung (PSF) durchgeführt. Die Versuche sind Teil des KfK-Forschungsprogrammes zur experimentellen Untersuchung schwerer Kernschäden in Leichtwasserreaktoren (LWR).

Die Auswertung der CORA-Experimente erfolgt zum einen auf der Grundlage der Meßwerte und der Videoaufzeichnungen während des Experimentes, zum anderen mittels umfangreicher zerstörender Nachuntersuchungen an Materialproben von dem überhitzten Brennstabbündel. In diesem Bericht werden die Analysenergebnisse von Mikrobereichsuntersuchungen mit dem Rasterelektronenmikroskop (REM) und dem angeschlossenen Energiedispersiven-Röntgenspektrometer (EDX) an vier Querschliffen und einem Längsschliff des Brennstabbündels CORA-16 dargestellt.

Das Experiment CORA-16 wurde durchgeführt, um Informationen über die Schadensmechanismen, die an einem überhitzten Siedewasser-Reaktorkern (SWR) bis zum Beginn des unkontrollierten Schmelzens auftreten können, zu erhalten. Die erarbeiteten experimentellen Daten bilden die Basis für den Vergleich mit Ergebnissen von Rechnungen mit Codesystemen, die die Bündelzerstörung analytisch beschreiben sollen. Aus diesem Grunde wurde das Brennstabbündel intensiv metallografisch und chemisch-analytisch nachuntersucht.

## **Results of SEM/EDX Microrange Analyses of the CORA-16 Bundle Melting Experiment Performed in a Boiling Water Reactor (BWR)**

### Abstract

Under the CORA experimental program conducted at the Karlsruhe Nuclear Research Center (KfK) the fuel element behavior is being investigated at temperatures up to and beyond 2000 °C. These temperatures are attained by electric heating of some fuel pins from the bundle. The CORA experiments were performed under the Nuclear Safety Research Project (PSF). The experiments are part of the KfK research program on the experimental investigation of severe core damage in light water reactors (LWR).

The CORA experiments are being evaluated both on the basis of the values measured and video tapes recorded during the experiment and, in addition, in extensive destructive post-test examinations of material specimens collected from the overheated fuel pin bundle. In this report the analytical results are presented of investigations performed in the microrange with the scanning electron microscope (SEM) and the connected energy dispersive X-ray spectrometer (EDX) on four transverse microsections and one longitudinal microsection of the CORA-16 fuel pin bundle.

The CORA-16 experiment was performed with the objective to obtain information on the damage mechanisms which may get active in the excessively heated core of a boiling water reactor (BWR) until the onset of non-controlled melting. The experimental data derived form the basis for the comparison with results of computations using code systems, which describe analytically the destruction of the bundle. This is the reason why the fuel pin bundle was subjected to an intensive metallographic and chemical-analytical post-test examination.

## Inhaltsverzeichnis

1. Vorbemerkung .....	1
2. CORA-Versuch Nr. 16 .....	1
3. Auswahl der zu untersuchenden Proben .....	6
4. Beschreibung der Analysengeräte .....	16
5. Ergebnisse der Mikroanalysen .....	21
5.1 Versuchsprobe Nr. 08 .....	23
5.2 Versuchsprobe Nr. 01, unten .....	36
5.3 Versuchsprobe Nr. 01, oben .....	52
5.4 Versuchsprobe Nr. 09 .....	74
5.5 Versuchsprobe Nr. C .....	108
6. Zusammenfassung .....	116
7. Danksagung .....	127
8. Literatur .....	128

## 1. Vorbemerkung

Im Rahmen des CORA-Versuchsprogramms wurden 19 Brennstabbündelexperimente mit  $\text{UO}_2$ -Brennstoff durchgeführt. Die Versuche zielen auf das physikalisch-chemische Verhalten eines Brennelements bei schweren Reaktorstörungen im Druckwasserreaktor (DWR) oder im Siedewasserreaktor (SWR) hin. Neben dem Verhalten der Absorbermaterialien Silber-Indium-Kadmium (DWR) bzw. Borkarbid (SWR) sollen die vielfältigen Wechselwirkungen der diversen Brennstabmaterialien bei hohen Temperaturen erforscht werden [1, 2]. Das Institut für Materialforschung I (IMF I) hat die Aufgabe übernommen, sowohl die umfangreichen metallografischen Untersuchungen als auch die Materialanalysen im Mikrobereich mit Hilfe des Rasterelektronenmikroskops (REM) und seines angeschlossenen Energiedispersiven-Röntgenspektrometers (EDX) durchzuführen. Für die Auswertung des Mikrobereichs wird das gesamte CORA-Brennstabbündel nach dem Versuch mit einer Plexiglasabgußform umgeben und mit Epoxidharz ausgegossen. Nach dem Zersägen und der metallographischen Präparation der Abschnitte [3] stehen für die Untersuchungen dann etwa 140 mm x 140 mm große Schliffplatten mit hoher Oberflächengüte für die Auswertung der chemischen Reaktionen zur Verfügung.

## 2. CORA-Versuch Nr. 16

Ziel des mit Original-Siedewasserreaktor-Hüllrohren, typischen  $\text{B}_4\text{C}$ -Absorber-elementen und Urandioxid-Tabletten ausgestatteten Tests war es, Materialdaten über das Verhalten eines Brennstabbündels im Siedewasserreaktor (SWR) beim Aufheizen auf ca.  $2000^\circ\text{C}$  zu erhalten. Unter Argon-Wasserdampf-Atmosphäre wurde das Brennstabbündel mit einer Temperaturanstiegsrate von 1 K/s bis zum Beginn des unkontrollierten Kernschmelzens (ca.  $2000^\circ\text{C}$ ) elektrisch aufgeheizt und anschließend unter fortlaufender Argonzufuhr langsam abgekühlt. Von besonderem Interesse ist der Schadenseinfluß des für SWR-Brennelemente typischen  $\text{B}_4\text{C}$ -Absorber-elementes auf die Bildung flüssiger Phasen, deren Verlagerung im Bündel und auf die Bildung von Blockaden, sowie auf das Ausmaß der  $\text{UO}_2$ -Brennstabauflösung zu erhalten. Die REM/EDX-Analysen sollen einen Überblick über die Bor- bzw. Kohlenstoffverteilung des  $\text{B}_4\text{C}$ -Absorbers im teilzerstörten Brennstabbündel, über die chemische Zusammensetzung der erstarrten Schmelzen (Blockaden) und Informationen über die durch chemische Wechselwirkungen bevorzugt entstandenen Phasenzusammensetzung geben. Die gewonnenen Ergebnisse werden zur Überprüfung von Modellrechnungen, die das integrale Verhalten der Brennstäbe bei schweren Kernschäden beschreiben sollen, her-

angezogen. Die Versuchsdurchführung von CORA-16 sowie die gemessenen Versuchsdaten und die zerstörungsfreien Nachuntersuchungsergebnisse werden in einem anderen KfK-Bericht beschrieben [4]. Zur schnellen Orientierung über die Versuchsparameter, technische Ausführung der Brenn- und Absorberstäbe und deren Anordnung im Brennstabbündel siehe Tab. 1 sowie Abb.1 und Abb.2.

### Tabelle 1

#### Daten der Komponenten und der Versuchsparameter des CORA-16-Bündels

Anzahl der Stäbe		18
Anzahl der beheizten Stäbe		12
Anzahl der unbeheizten Stäbe		6
Stabaußendurchmesser		10,75 mm
Hüllmaterial		Zircaloy-4 (1)
Hüllwanddicke		0,725 mm
Länge der Stäbe		2175 mm
Beheizte Länge		1000 mm
Heizerdurchmesser		6 mm
Heizermaterial		Wolfram
Brennstabtablettens	- beheizt	UO <sub>2</sub> -Ringtablettens
	- unbeheizt	UO <sub>2</sub> -Volltablettens
U-235-Gehalt		0,2 %
Pelletaußendurchmesser	(nominal)	9,1 mm
Abstandshalter	- Material	Zry-4
	- Höhe	42 mm
	- Positionierung	unten - 33 mm mitte + 578 mm oben + 1167 mm
Dampfführungsrohr (shroud)	- Material	Zry-4
	- Wanddicke	1,2 mm
	- Außenabmessungen	86 x 112 mm
Bündelisolations	- Material	ZrO <sub>2</sub> -Fiber
	- Dicke	20 mm

Mo-Elektrode	- Durchmesser	8,6 mm
	- Länge	300 mm
Cu-Elektrode	- Durchmesser	8,6 mm
	- Länge	unten 186 mm oben 669 mm
Absorberelement	- Anzahl der Stäbe	11
	- Absorbermaterial	B <sub>4</sub> C-Pulver
	- Hüllmaterial	Rostfreier Stahl (2)
	- Stabaußendurchm.	5,77 mm
	- Stabinnendurchm.	4,57 mm
	- Stablänge innen	1578 mm
	- Stablänge außen	1600 mm
Absorberkasten	- Material	Rostfreier Stahl <sup>(2)</sup>
	- Wanddicke	1 mm
	- Innenabmessungen	66x6 mm
Thermoelemente	- Schenkel	WRe5/WRe 26
	- Isolation	HfO <sub>2</sub>
	- Hüllrohr	innen Ta außen Zry-4
Maximale Stabtemperatur		~ 2000°C
Aufheizgeschwindigkeit		1 K/s
Atmosphäre		Argon, Wasserdampf
Beendigung des Experiments		Abkühlen im Argonstrom

(1) Zircaloy-4: Sn 1,3 - 1,7, Fe 0,18 - 0,25, Cr 0,07 - 0,13, (Zr~98)

(2) Rostfreier Stahl: Cr 16 - 18, Ni 12 - 14, Mo 2 - 2,5, Si ≤0,75, Mn2,  
(Fe ~ 65 ±3)

Angaben in Gewichtsprozent

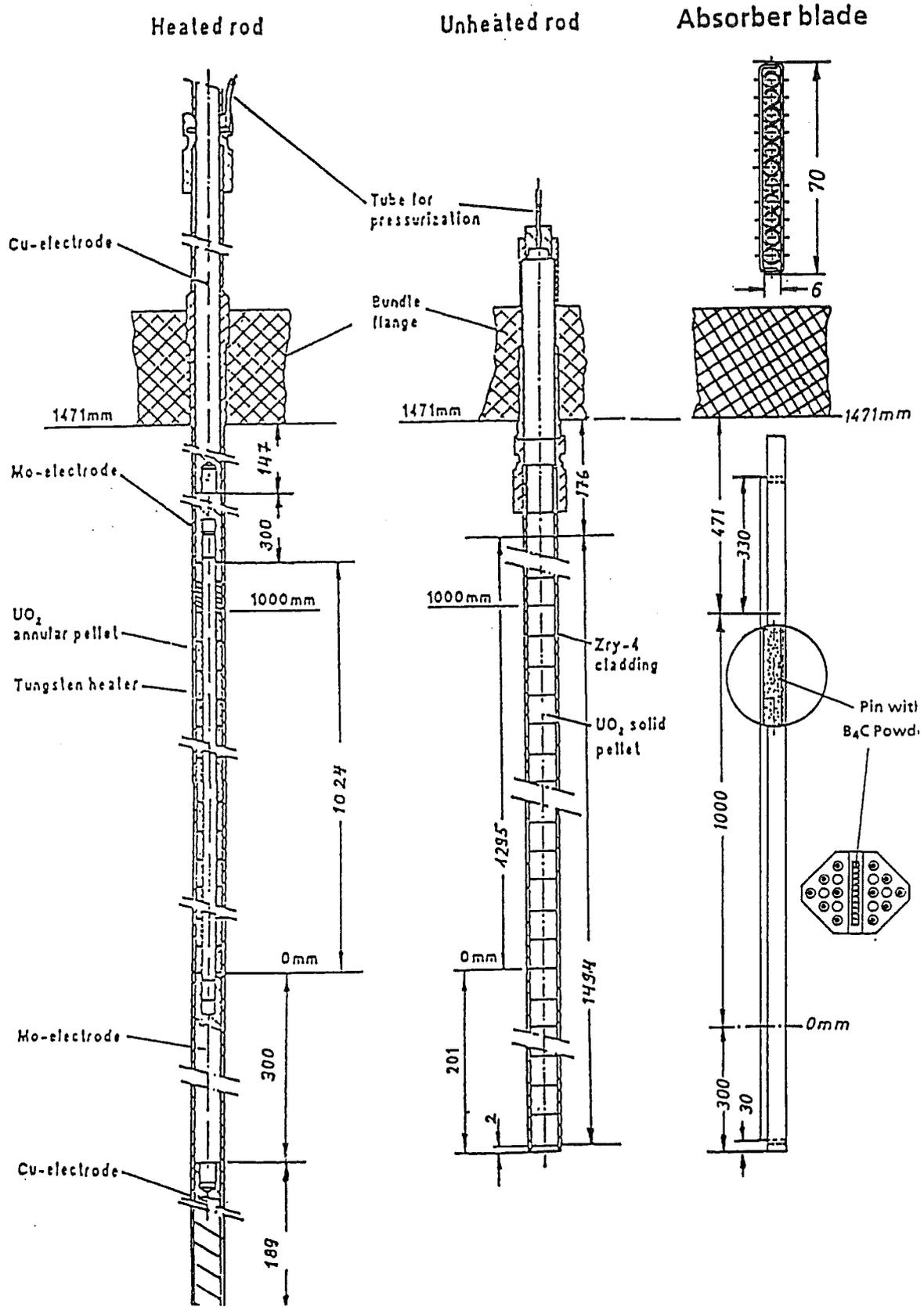


Abb. 1: Rod types used in the CORA-16 experiments

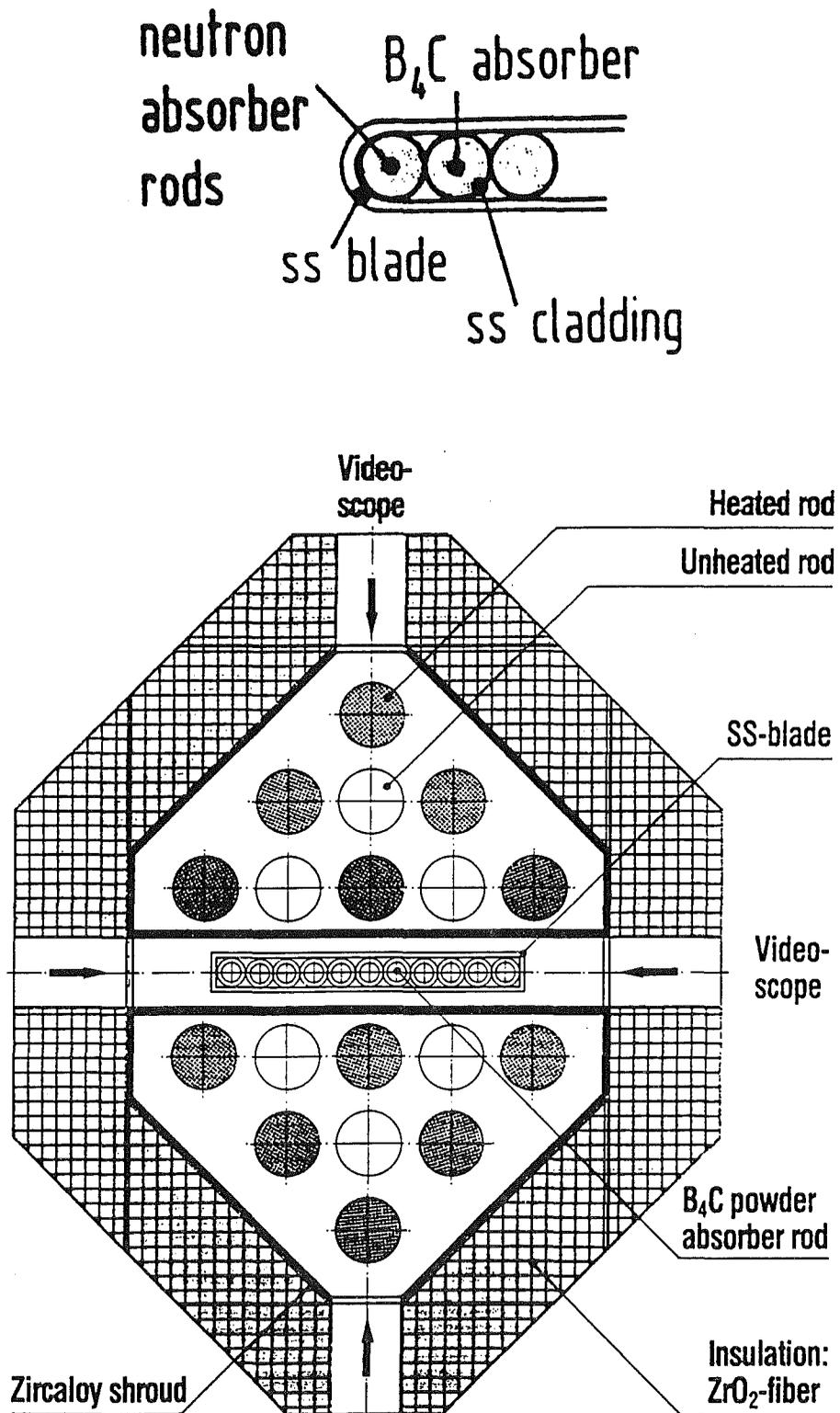


Abb.2: Rod designation of test bundle CORA-16

### **3. Auswahl der zu untersuchenden Proben**

Das SWR-Brennelement CORA-16 (Abb. 3 bis 7) wurde nach dem Einbetten in Epoxidharz in 23 Probenabschnitte zersägt (Tab. 2). Es wurden sowohl Querschnitte als auch Längsschnitte angefertigt. Für die metallographischen Untersuchungen wurden 7 Probenabschnitte geschliffen und poliert. Eine Querschnittprobe wurde sowohl an der Oberseite als auch an der Unterseite präpariert (Probe Nr. 01). Für die Mikrobereichsanalysen mit dem REM/EDX wurden von den sieben präparierten Proben vier Querschleifproben und eine Längsschleifprobe ausgewählt (Tab. 3). Wesentliche Auswahlkriterien waren der Temperaturverlauf während des Experimentes in diesen Bündelhöhen, Umfang der chemischen Wechselwirkungen sowie Schadens- und Schmelztypen in diesen Proben. Die am wenigsten zerstörte Probe Nr. 08 aus der Bündelhöhe 1145 mm (höchstmögliche Position im Bündel) wurde ausgewählt, um den Beginn der Zerstörung bei geringster Temperaturbelastung, unbeeinflusst von herablaufenden Schmelzen, zu dokumentieren. Die beidseitig präparierte Probe Nr. 01 (Höhe 97 mm - 110 mm) ermöglicht das Materialverhalten in zwei Bündelhöhen von nur 13 mm Differenz zu analysieren. Aus diesem Grund wird hier die Probenbezeichnung "unten" und "oben" verwendet. Als typische Probe aus der sehr stark zerstörten Bündelzone wurde die Querschleifprobe Nr. 09 (Höhe 525 mm) ausgewählt. Die Längsschleifprobe Nr. C wurde für die Untersuchung der von oben herablaufenden Schmelzen und ihrer chemischen Zusammensetzung über einen größeren Bereich (Höhe 112 bis 195 mm) ausgewählt (Abb. 8).

**Tab. 2: Schnittplan der Quer.- und Längsschnitte von CORA-16**

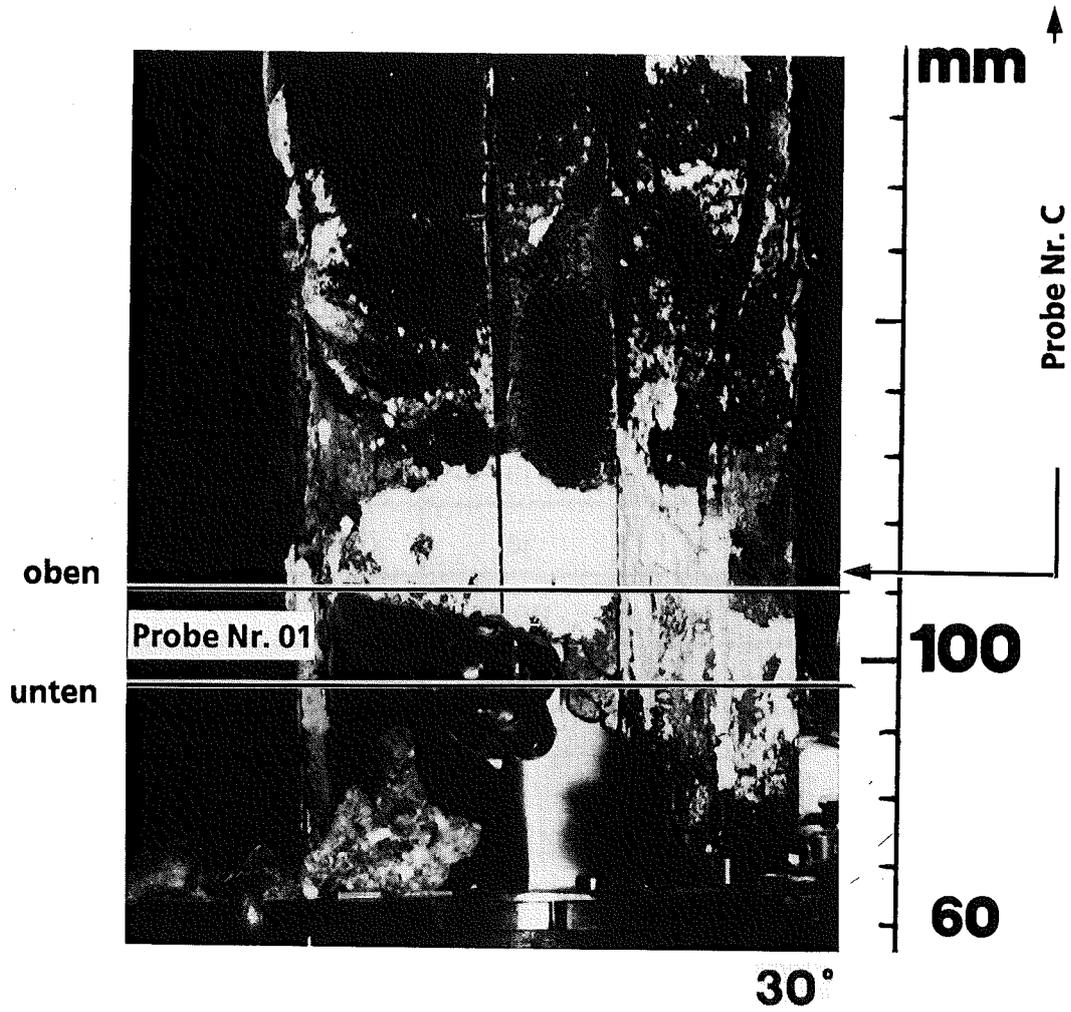
Probe <sup>(a)</sup>	Probenlänge	Axiale Lage		Bemerkungen
		unten	oben	
16- a1			- 39 mm	Unteres Reststück
Schnitt	2 mm			
16- a2	100 mm	- 37 mm	+ 63 mm	
Schnitt	2 mm			
16- b	30 mm	65 mm	95 mm	zus. ein Längsschnitt
Schnitt	2 mm			Übergang rund - Vierkant
➔ 16-01	13 mm	97 mm	110 mm	Querschnitt
➔ Schnitt	2 mm			
➔ 16- c	83 mm	112 mm	195 mm	zus. zwei Längsschnitte
Schnitt	2 mm			
16-02	13 mm	197 mm	210 mm	Querschnitt
Schnitt	2 mm			
16- d	83 mm	212 mm	295 mm	
Schnitt	2 mm			
16-03	13 mm	297 mm	310 mm	Querschnitt
Schnitt	2 mm			
16- e	83 mm	312 mm	395 mm	
Schnitt	2 mm			
16-04	13 mm	397 mm	410 mm	Querschnitt
Schnitt	2 mm			
16- f	83 mm	412 mm	495 mm	
Schnitt	2 mm			
16-05	13 mm	497 mm	510 mm	Querschnitt
Schnitt	2 mm			

16-09	13 mm	512 mm	525 mm	Querschnitt
➔ Schnitt	2 mm			
16- g	68 mm	527 mm	595 mm	
Schnitt	2 mm			
16-06	13 mm	597 mm	610 mm	Querschnitt
Schnitt	2 mm			
16- h	110 mm	612 mm	722 mm	
Schnitt	2 mm			
16- i	110 mm	724 mm	834 mm	
Schnitt	2 mm			
16- j	112 mm	836 mm	948 mm	
Schnitt	2 mm			
16-07	13 mm	950 mm	963 mm	Querschnitt
Schnitt	2 mm			
16- k	85 mm	965 mm	1050 mm	
Schnitt	2 mm			
16- l	91 mm	1052 mm	1143 mm	
Schnitt	2 mm			
➔ 16-08	13 mm	1145 mm	1158 mm	Oberer Abstandshalter
Schnitt	2 mm			
16- m	mm	1160 mm		Oberes Reststück

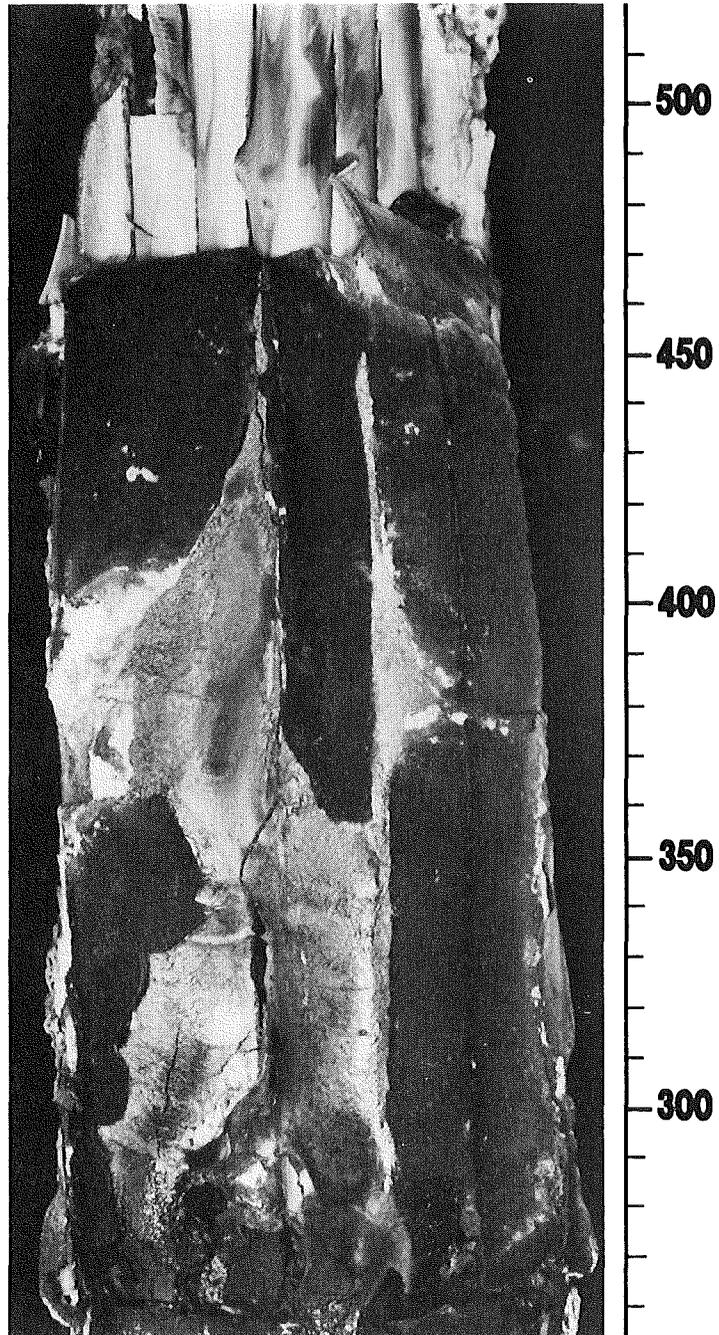
(a) Nummern bezeichnen Proben mit 13 mm Dicke; kleine Buchstaben bezeichnen Reststücke unterschiedlicher Dicke.

**Tab. 3:** Liste der untersuchten Quer- und Längsschliffe

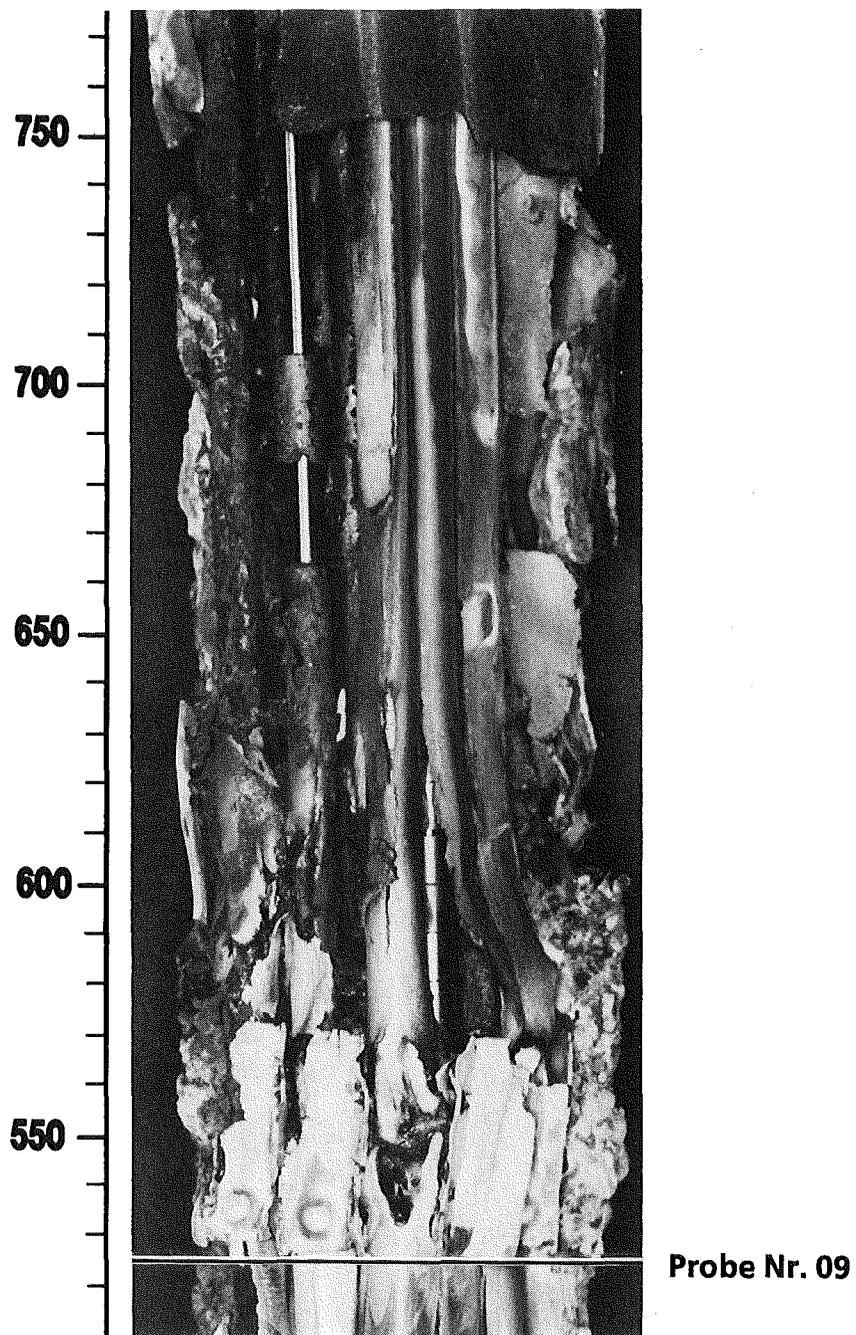
Schliff Nr.	Bündelhöhe mm	Die Untersuchungen wurden durchgeführt mit		Bemerkungen
		Licht- mikroskop	REM/EDX	
16 - 18	1145	ja	ja	Beginn der Absorber- zerstörung
16 - 01 (unten)	97	ja	ja	Querschnittsprobe beidseitig geschliffen und poliert
16 - 01 (oben)	110	ja	ja	Querschnittsprobe beidseitig geschliffen und poliert
16 - 09	525	ja	ja	Sehr starke Zerstörung
16 - C	112 bis 195	ja	ja	Längsschliffprobe
16 - 03	310	ja	nein	
16 - 07	963	ja	nein	



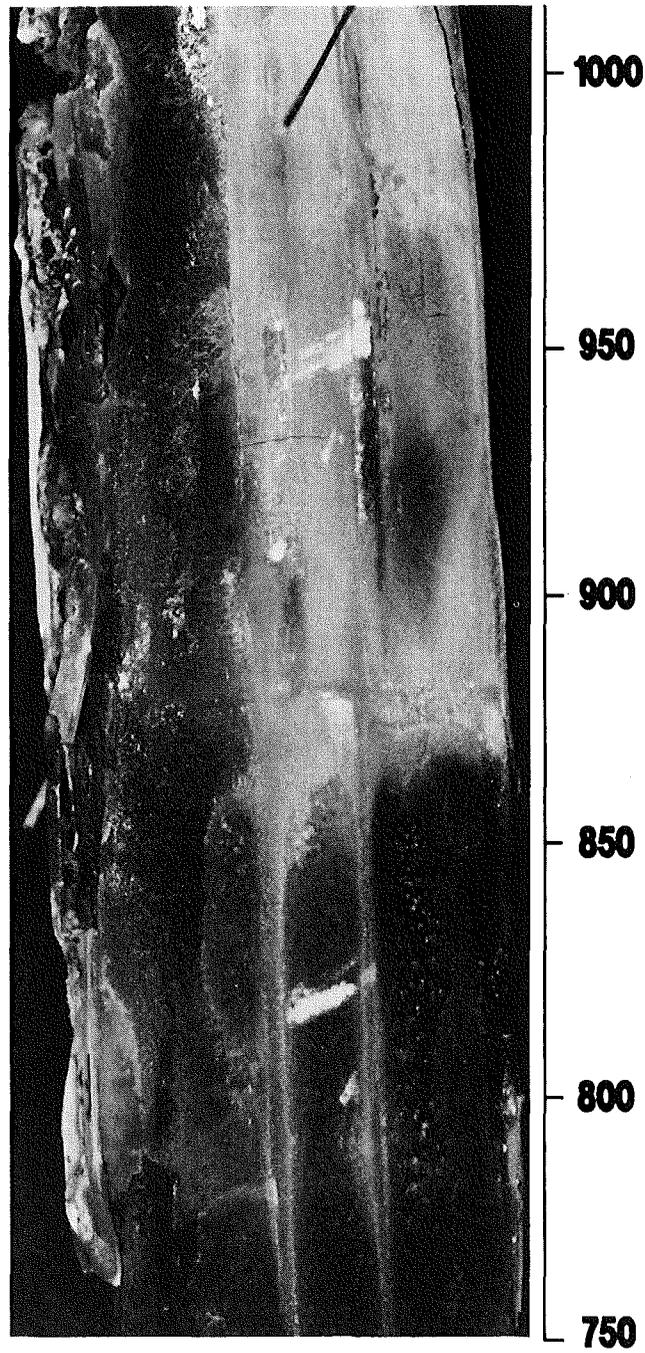
**Abb. 3:** Unterer Teil des überhitzten Brennstab­bündels CORA-16 mit der Querschnittsposition Nr. 01 (oben und unten) und der Längsschliffposition Nr. C



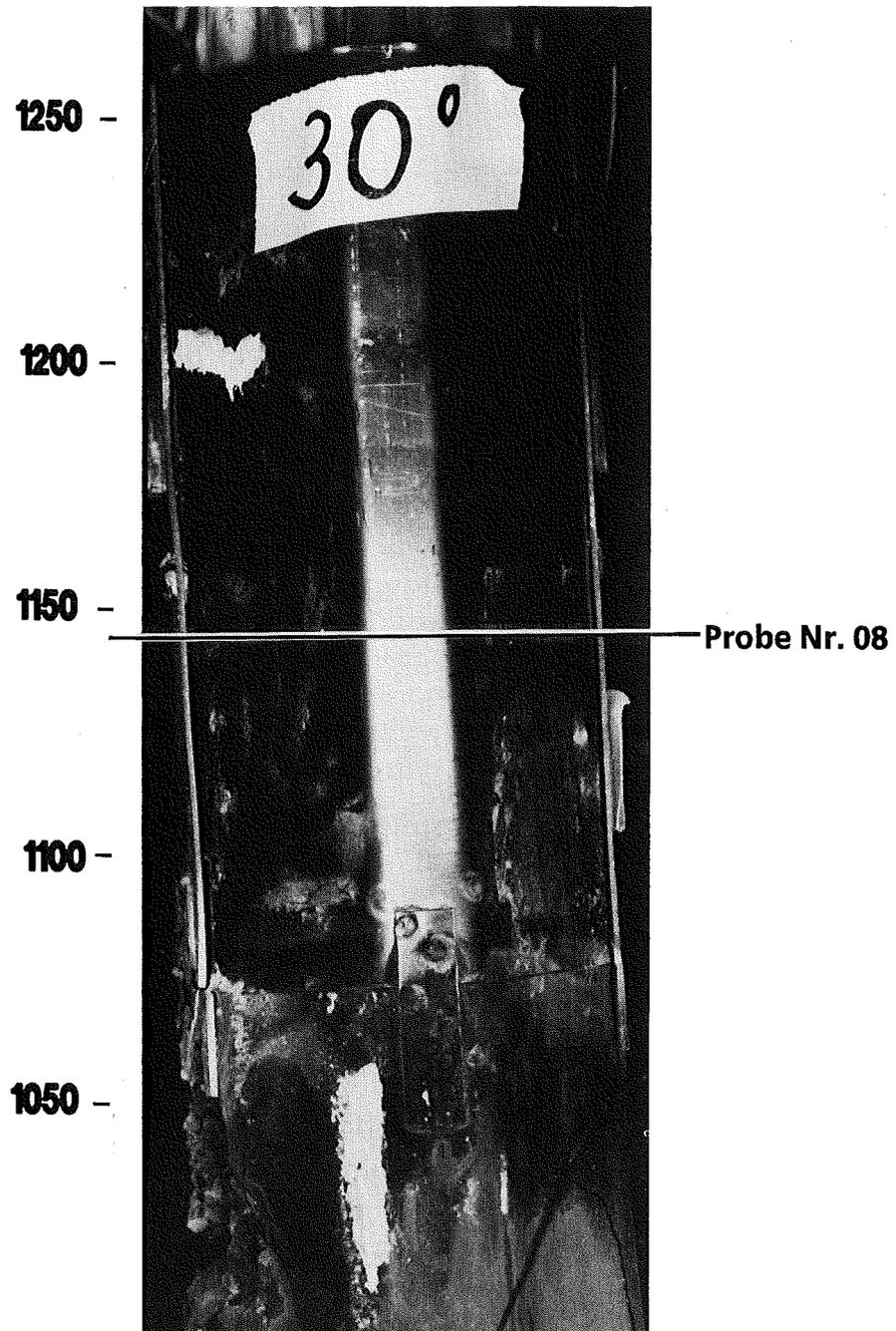
**Abb. 4:** Brennstab­bündel von CORA-16 im Bereich der Bündelhöhe 255 mm bis 520 mm



**Abb. 5:** Brennstab­bündel CORA-16 im Bereich der Bündelhöhe 510 bis 775 mm mit der Querschnittsposition Nr. 09



**Abb. 6:** Brennstabbündel CORA-16 im Bereich der Bündelhöhe 750 mm bis 1010 mm



**Abb. 7:** Brennstabbündel CORA-16 im Bereich der Bündelhöhe 1005 mm bis 1270 mm mit der Querschnittsposition Nr. 08

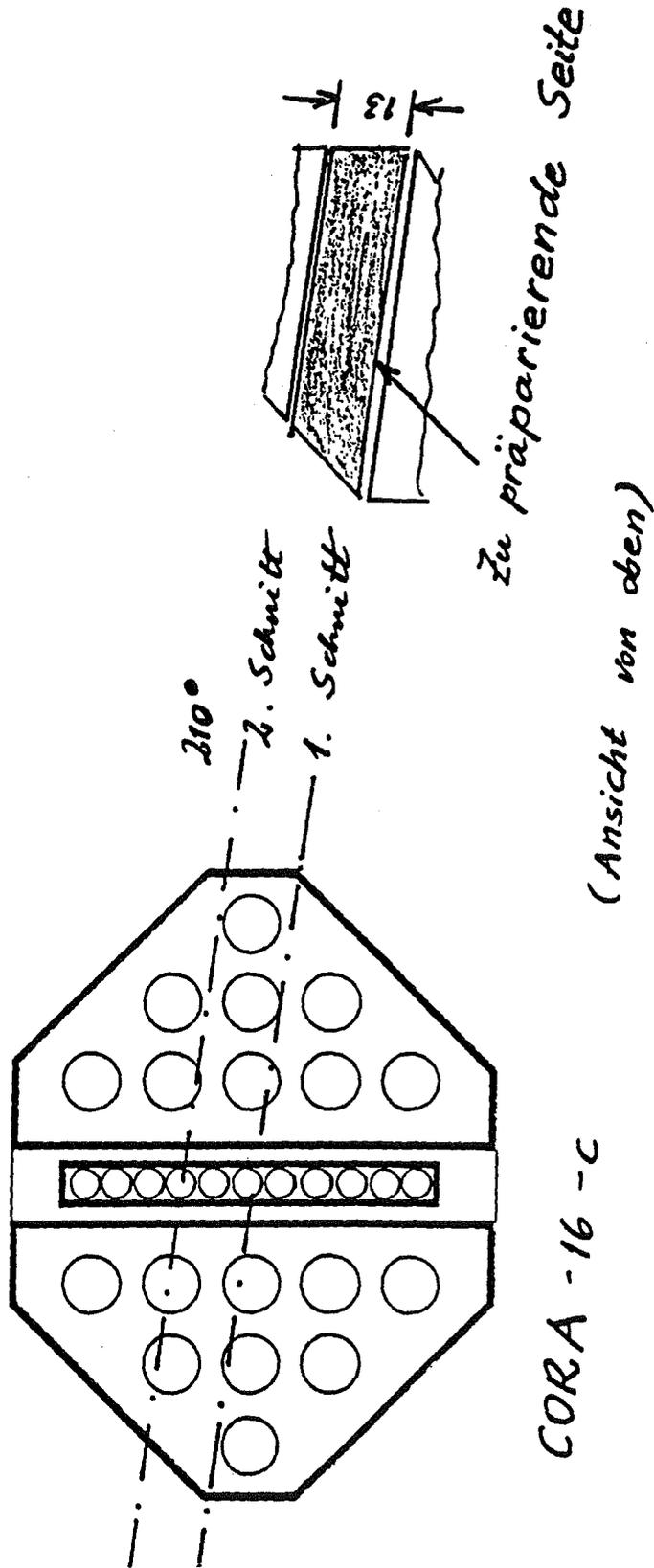


Abb. 8: Schnittplan für die Längsschliffposition Nr. C (112 mm bis 195 mm Bündelhöhe)

#### 4. Beschreibung der Analysengeräte

Für die Analyse der vielfältigen Wechselwirkungsprozesse zwischen den Komponenten eines LWR-Brennelements, benötigen wir eine Reihe von Geräten zur Untersuchung von Mikrostrukturen und deren chemischen Zusammensetzungen. In Folge werden diese Analysengeräte beschrieben.

- a) Für die lichtoptische Auswertung steht ein Mikroskop vom Typ MEF 3 der Fa. Leica/Stuttgart zur Verfügung. Neben makroskopischen Abbildungen ab dreifacher Vergrößerung wird das Gerät für die metallografische und keramografische Deutung des Gefüges sowie für dessen Abbildung bis etwa 1500-facher Vergrößerung benutzt.
- b) Mikrobereichsuntersuchungen von etwa 100- bis 100000-facher Vergrößerung werden mit dem Rasterelektronenmikroskop (REM) [5] vom Typ JSM 6100 der Fa. Jeol/Japan ausgeführt. Das Gerät verfügt über eine besonders große Probenkammer, die die Manipulation an den sehr großen Querschliffen (140 x 140 mm) von CORA-16 erlaubt. Weitere für das Arbeiten an den Versuchsproben wichtige REM-Gerätedaten sind:
  - Auflösung bis 4 nm
  - Beschleunigungsspannung von 300V bis 30kV
  - Optimale Bildqualität auch im Niedervoltbereich von 300V bis 3kV
  - Großer Verfahrweg der Probenbühne
  - Probenstrom- und Strahlstrommessung
  - Flächen-, Linien-, Punkt- und Teilflächenrasterung
  - Leistungsstarkes Vakuumsystem, das trotz der etwas ausgasenden CORA-Proben ein gutes Vakuum erzeugt.

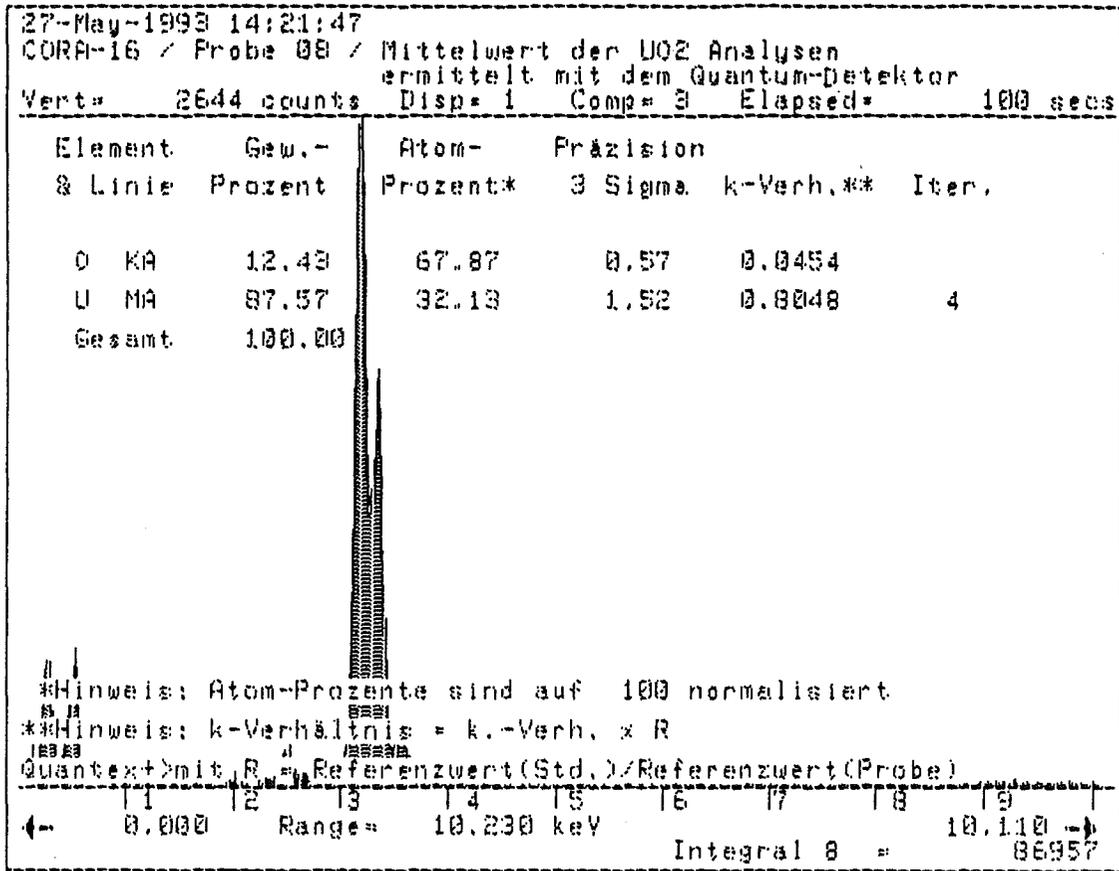
Das Gerät verfügt serienmäßig über einen Sekundärelektronendetektor (SED) [5], der sich besonders zur Abbildung von rauhen Oberflächen und Brüchen sowie im unteren Beschleunigungsspannungsbereich von 300V bis 3kV zur Abbildung geringster Oberflächenbeläge eignet. Der SED zeichnet sich außerdem durch eine hohe laterale Auflösung von 4 nm und sehr große Tiefenschärfe aus.

Um die vielen unterschiedlichen Reaktionsphasen, die als Folge der chemischen Wechselwirkungen im CORA-Versuchsbündel entstehen, hinreichend gut abbilden zu können, wurde das REM zusätzlich mit einem Rückstreu-Elektronendetektor (RED) [5] der Fa. Robinson /Australien aus-

gestattet. Der Vorteil dieses Detektors liegt in der extrem guten Trennung von geringsten Unterschieden in der Materialzusammensetzung. Er eignet sich für die Untersuchung von glatten Probenoberflächen (geschliffen und poliert). Die laterale Auflösung beträgt nur 8 nm und ist deutlich schlechter als die des SED. Die Ansprechspannung beträgt etwa 2kV. Die in diesem Bericht gezeigten REM-Bilder stammen alle vom RED und wurden bei 15 kV Beschleunigungsspannung erzeugt.

- c) Das wichtigste Zusatzgerät, das am REM angeflanscht ist, ist das energiedispersive-Röntgenspektrometer (EDX) [6] vom Typ Microanalyt 8000 der Fa. KeveX/USA. In Verbindung mit dem Si (Li)-Detektor vom Typ Quantum, ebenfalls von der Fa. KeveX, ist es möglich, alle Elemente ab Bor bis Uran vollquantitativ zu erfassen. Das als Vielkanalanalysator aufgebaute Gerät ist die Kombination eines auf Mikroprozessorbasis und Firmensoftware zusammengestellten Grundgerätes mit einem leistungsfähigen Kleinrechnersystem einem Wechselspeicherspeicher sowie einem Graphik-Matrixdrucker. Ein speziell für die energiedispersive Mikroanalyse entwickeltes Programmpaket "Quantex-Ray VI" enthält eine Vielzahl von Methoden zur Spektrenbearbeitung. Dies sind verschiedene Untergrundkorrekturen sowie Peakentfaltungen, Eliminierung von Escape-Linien, Korrektur der Absorptions- und Fluoreszenzeffekte (ZAF-Korrektur) etc.. Für die quantitative Mikroanalyse erlaubt das Programm, daß Standards und Probe unter verschiedenen Bedingungen aufgenommen und sowohl K- als auch L- und M-Linien zur Analyse herangezogen werden können. Schließlich sind noch eine Vielzahl von graphischen Darstellungsarten für die Analysenergebnisse möglich. Der angeschlossene Quantum Si (Li)-Halbleiterdetektor zum Nachweis aller Elemente von Bor bis Uran hat ein Auflösungsvermögen von 109 eV (Fluor  $K\alpha$ -Strahlung, 677 eV) 146 eV (Mangan  $K\alpha$ -Strahlung, 5,89 keV) bei einer aktiven Fläche von 10 mm<sup>2</sup>. Der Detektor ist mit einer Neigung von 40° am REM angeflanscht. Die schräge Anordnung erlaubt das Heranfahren der aktiven Detektorfläche bis unmittelbar an die zu untersuchende Probenoberfläche. Dies ermöglicht erst die EDX-Untersuchungen an den sehr großen CORA-Versuchsproben. Als besonders schwierig gestaltete sich die quantitative Analyse mit den leichten Elementen (Bor, Kohlenstoff und Sauerstoff). Aus technischen Gründen konnten erst seit Mai 1993 quantitative Analysen mit Sauerstoff und seit Oktober 1993 auch mit Bor und Kohlenstoff erstellt werden. Die quantitative Analyse von leichten Elementen mit ultradünmem Detektorfenster (Fa. KeveX) ist relativ neu. Neben den in [6] beschriebenen Problemen wurden die Arbeiten an den CORA-

Versuchsproben durch zusätzliche Peaküberlappungen erschwert. Uran zeigt an derselben Stelle wie Kohlenstoff einen charakteristischen Röntgenpeak und Zirkon an derselben Stelle wie Bor. Die quantitativen Analysen wurden mit dem sogenannten XPP-Computerprogramm errechnet. XPP ist die Abkürzung von eXtended Phi-Rho-z Procedure, ein Matrixkorrekturverfahren für energiedispersive Röntgenmikroanalyse entwickelt von F. Pichoir und J. L. Pouchou am Forschungszentrum ONERA (Frankreich). Aus zeitlichen Gründen konnten keine umfangreichen Materialanalysen zum Testen der Ergebnisse mit den Elementen B, C und O durchgeführt werden. Angaben über Nachweisgenauigkeit der quantitativen Analysen können deshalb nicht gemacht werden. Das Analysenverfahren wurde lediglich mit einigen bekannten Proben auf seine Tauglichkeit überprüft. Alle quantitativen Analyseergebnisse ergaben hierbei eine ausreichende Übereinstimmung mit der tatsächlichen Materialzusammensetzung (siehe Abb. 9 und 10 sowie Abb. 64 und 65).



27-May-1993 15:23:46

Analysenergebnisse von 10 verschiedenen Punkt.- und  
 Integralanalyse von CORA-16 / Probe 08

Element	Mittelwert Gew.-Prozent	Standard Abweichung
O	11.85	0.43
U	88.15	0.43

Soll:  
 UO2 - Standard O = 11.85 %  
 U = 88.15 %

11 12 13 14 15 16 17 18 19

Abb. 9: EDX-Analysenspektrum zur Überprüfung der Sauerstoff-Detektion

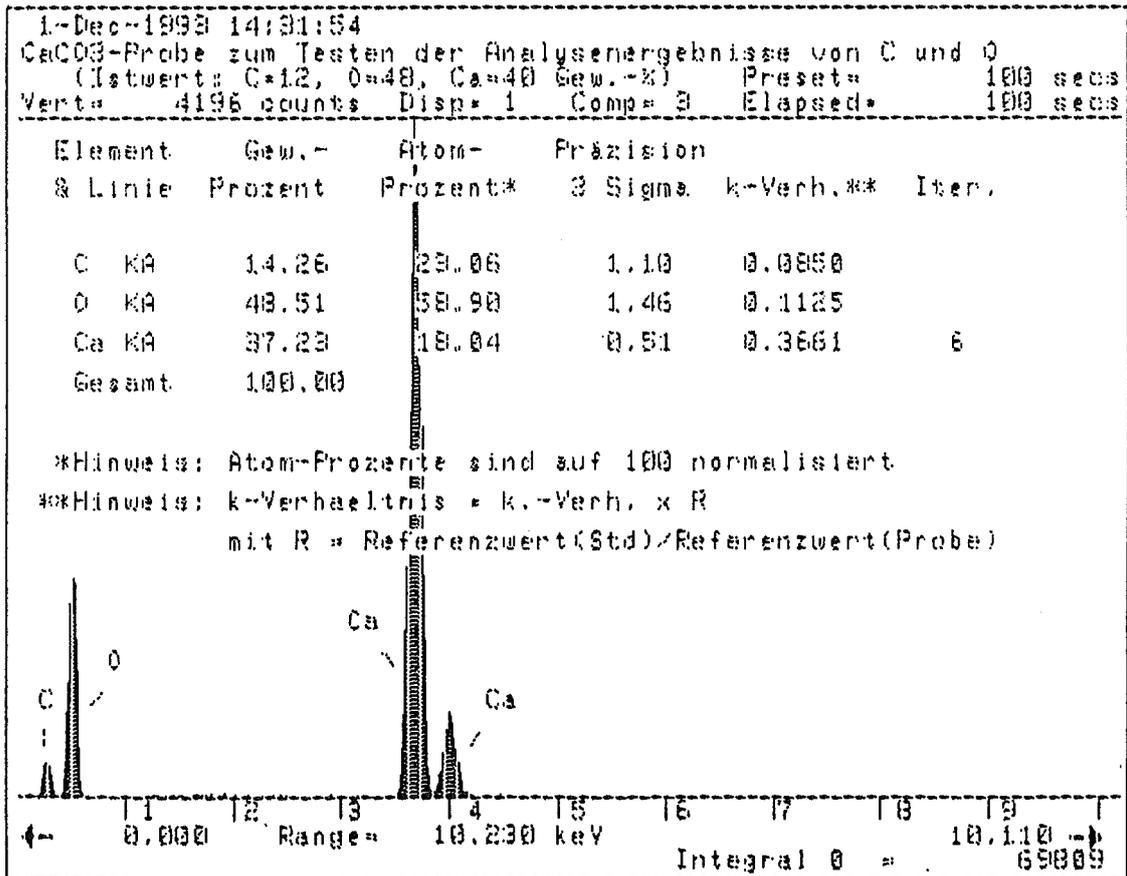
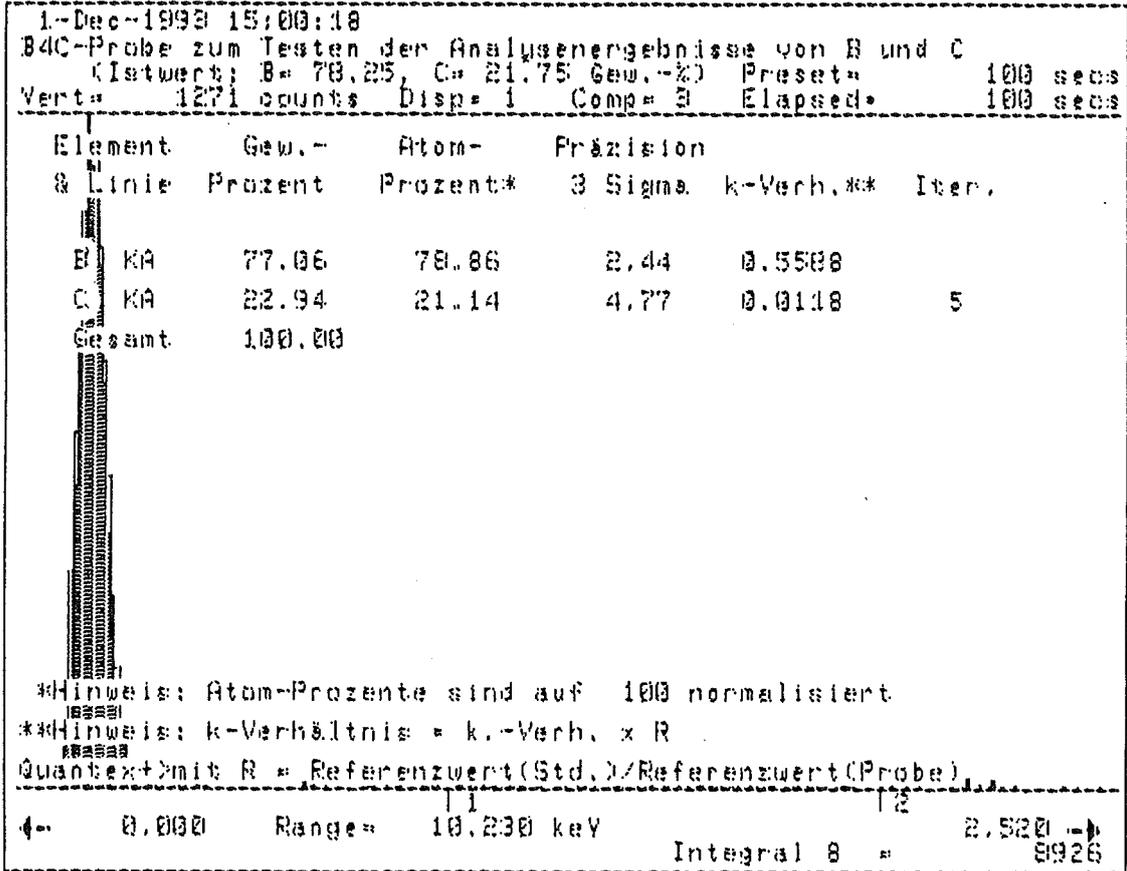


Abb. 10: EDX-Analysenspektren zur Überprüfung der Bor-, Kohlenstoff- und Sauerstoff-Detektion

## 5. Ergebnisse der Mikroanalysen

Ziel der Untersuchungen an den fünf Schliffproben von CORA-16 ist es, einen Vergleich der vorhandenen Schmelzreaktionszonen bei unterschiedlichen Brennstabbündelhöhen, d.h. bei unterschiedlichen Versuchstemperaturen, durchzuführen. Einen Überblick über die untersuchten Brennstabbündelzonen gibt die Tabelle 4. Die quantitativen EDX-Untersuchungsergebnisse wurden entweder als Integralanalysen oder als Punktanalysen ermittelt. Bei den quantitativen Integralanalysen wird der gesamte Bildausschnitt (oft 500-fache Vergrößerung) zur Röntgenmikroanalyse benützt. Um eine statistische Mittelwertbildung vornehmen zu können, wurden pro untersuchtes Schmelzgebiet jeweils fünf Analysen erstellt und der Mittelwert sowie die Standardabweichung errechnet. Bei den Untersuchungen des Druckwasserreaktor-Bündelabschmelzexperimentes CORA-13 [7] wurde festgestellt, daß fünf Analysen pro Schmelze eine ausreichende Statistik ergeben. Die quantitativen Punktanalysen wurden bei feststehendem Elektronenstrahl, der punktförmig (etwa bis  $0,1 \mu\text{m}\varnothing$ ) auf eine zu analysierende Probenposition trifft, erstellt. Die ausgewählte Probenposition entspricht jeweils einer typischen Phase, die bei den chemischen Reaktionen der Bündelkomponenten während der Temperaturtransiente oder bei der Abkühlung entstanden ist. Neben den Integral- und Punktanalysen sind die Elementeverteilungsabbildungen eine weitere Darstellungsvariante der ermittelten Untersuchungsergebnisse. Bei dieser Darstellungsart wird ein größerer Probenbereich (gesamter Bildausschnitt) mit dem Elektronenstrahl abgerastert. Die durch Wechselwirkungen von Elektronen und untersuchtem Material entstandenen Röntgenquanten, werden elementenspezifisch auf der Bildröhre des REM hell gesteuert. Der Vorteil dieser Elementverteilungsabbildungen ist eine übersichtliche Darstellung der Verteilung und der chemischen Reaktionen der Elemente miteinander in dem untersuchten Probenbereich. Die vierte und letzte im Bericht verwendete Darstellungsart ist die Linienanalyse (Line Scan). Hierbei wird der Elektronenstrahl langsam längs einer vom Operateur bestimmten Linie, über die zu untersuchende Probenoberfläche gefahren. Die beim Auftreffen auf die Probe vom Elektronenstrahl angeregte Röntgenquantenemission wird simultan über den EDX-Vielkanalanalysator in die Elemente-Kanäle eingelesen. Die impulszahlgesteuerten Ausdrücke der Ergebnisse von EDX-Linienanalysen, geben halbquantitativ einen guten Überblick über die Zunahme bzw. Abnahme von Elementanteilen längs der abgefahrenen Linie.

In den Abschnitten 5.1 bis 5.5 folgt die detaillierte Zusammenstellung der Analyseergebnisse von der Querschliffprobe Nr. 08 (1145 mm), Nr. 01 unten (97 mm), Nr. 01 oben (110 mm) und Nr. 09 (525 mm) sowie der Längsschliffprobe Nr. C (112 bis 195 mm), siehe auch Tabelle 3 und 4.

**Tabelle 4: Überblick über die untersuchten Brennstabbündelzonen von CORA-16**

Nr.	Analysebereich	Schliffprobe Nr.				
		- 08	- 01 unten	- 01 oben	- 09	- C
1	UO <sub>2</sub> -Brennstoff und Zry-Hüllrohr (rod)	ja	ja	ja	ja	nein
2	B <sub>4</sub> C-Absorberstab mit SS-Hüllrohr (B <sub>4</sub> C absorber rod)	ja	ja	ja	ja	ja
3	SS-Absorberkasten (SS-blade)	ja	ja	ja	ja	ja
4	Schmelzzonen (melt zone)	nein	ja	ja	ja	ja
5	Dampfführungsrohr (Zircaloy shroud)	ja	ja	nein	ja	nein

## 5.1 Versuchsprobe Nr. 08

Die Querschliffprobe Nr. 08 wurde am obersten Ende des Brennstabbündels in der Bündelhöhe 1145 mm entnommen. Die weder von den höchsten Temperaturen noch von herablaufenden Schmelzen beeinflusste Probe wurde ausgewählt, um Analysendaten über den Beginn der chemischen Reaktionen bei tieferen Temperaturen zu erhalten. In Abbildung Nr. 11 sind die Querschliffprobe Nr. 08 im Maßstab 1 : 1, der Bereichsausschnitt A im Maßstab 13 : 1 sowie die REM/EDX-Analysenpositionen übersichtlich dargestellt. Bei der visuellen Betrachtung der Querschliffabbildung fallen nur die geringen Veränderungen im Bereich des Absorberkastens und seiner elf B<sub>4</sub>C-Absorberstäbe auf.

In den Analysenpositionen Nr. 1 und Nr. 2, den Kontaktstellen von UO<sub>2</sub>-Brennstoff und Zry-Hüllrohr (Abb. 12 bis 15) fanden geringe chemische Reaktionen statt. Das UO<sub>2</sub> wird durch das Zr unter Bildung einer (U, Zr)-Legierung mit unterschiedlichen Sauerstoffgehalten und von sauerstoffstabilisiertem  $\alpha$ -Zr (O) reduziert [9]. Die (U, Zr)-Legierung ist oberhalb 1000°C flüssig. Während in dem untersuchten Bereich 1 nur die Elemente Zr, U, Sn und O nachgewiesen werden konnten, wurden in dem Bereich 2 darüberhinaus noch die Stahlbestandteile Fe, Cr und Ni festgestellt. Die Elemente Cr, Fe und Ni können nur von dem geschmolzenen, weit entfernten Absorberkasten oder den Absorberstab-Hüllrohren stammen. Auffallend in dieser Reaktionszone ist der hohe Ni-Anteil im Verhältnis zu den Stahlbestandteilen Cr und Fe. Die Linien-Profil-Analysen der Abbildungen Nr. 13 und 15 geben den relativen Elementanteil von O, Zr und U über den mit erstarrten Reaktionsprodukten ausgefüllten Spalt zwischen dem UO<sub>2</sub>-Brennstoff und Zry-Hüllrohr entlang einer Linie wieder.

Bei den Untersuchungen des Analysenbereichs Nr. 3 (Abb. 16) wurde die B<sub>4</sub>C-Auflösung durch die Stahlbestandteile der Absorberstab-Hüllrohre dokumentiert. Die Tabelle Nr. 5 zeigt den Versuch der Darstellung einer B<sub>4</sub>C-Auflösungssystematik. Die Abbildung Nr. 17 dient der Veranschaulichung der stattgefundenen chemischen Reaktionen entlang einer Linie: a) Das Zentrum der schwarzen Phase, des B<sub>4</sub>C-Korns, ist mit 80 Atom-% Bor und 20 Atom-% Kohlenstoff noch unverändert erhalten. b) Die 1.Zone um das B<sub>4</sub>C-Korn ist stark mit C angereichert, gleichzeitig ist der Ni-Anteil hoch. c) Die 2. Zone ist bei einem erhöhten Cr-Gehalt anscheinend borreicher. d) Die in unregelmäßiger Anordnung folgenden grauen Phasen haben einen Cr-Anteil bis ca. 37 Gew.-% und einen kleinen Ni-Anteil von nur 1 bis 2 Gew.-%. e) Die hellgraue Matrix hingegen, hat einen Cr-Anteil von ca. 7 Gew.-% und einen Ni-Anteil von bis zu 20 Gew.%. Die in d und e analysierten

Ergebnisse werden, in dem weit von der  $B_4C$ -Kornauflösung entfernten Bereich Nr. 4 (Abb. 18) weitestgehend bestätigt. f) Unregelmäßig zerstreut findet man sehr helle, scharfkantig geformte kleine Teilchen die aus Nb und Ta bestehen. Tantal stammt von den abgeschmolzenen Thermoelementen.

### Kurzfassung der wichtigsten Analysenergebnisse von Probe Nr. 08

#### UO<sub>2</sub>-Brennstoff und Zry-Hüllrohr

##### Bereich Nr. 1

(Abb. 12 u. 13): Der Spalt zwischen Brennstoff und Hüllrohr ist durch zwei verschiedene Schmelztypen ausgefüllt.  
Bestandteile: O, Zr, Sn, U

##### Bereich Nr. 2

(Abb. 14 u. 15): Der Spalt zwischen Brennstoff und Hüllrohr ist durch mehrere Schmelztypen ausgefüllt.  
Bestandteile: neben O, Zr, Sn und U sind auch die Stahlbestandteile Cr, Fe und Ni nachzuweisen.

### B<sub>4</sub>C-Absorberstab mit Edelstahl-Hüllrohr

Bereich Nr. 3  
(Abb. 16 u. 17  
sowie Tab. 5):

Um das B<sub>4</sub>C-Absorberkorn herum kann eine Systematik der chemischen B<sub>4</sub>C-Auflösung durch die Edelstahlbestandteile erkannt werden.

Bereich Nr. 4  
(Abb. 18):

In dem weiter von der B<sub>4</sub>C-Auflösung entfernten Bereich befinden sich chromreiche Phasen in einer chromarmen Edelstahlmatrix. Bor und Kohlenstoff sind als Reaktionspartner vorhanden.

### Edelstahl-Absorberkasten

(ohne Abb.)

Visuelle Betrachtung und EDX-Kontrollanalysen zeigen keine Veränderungen.

### Dampfführungsrohr (shroud)

(ohne Abb.)

Visuelle Betrachtung und EDX-Kontrollanalysen zeigen keine Veränderungen.

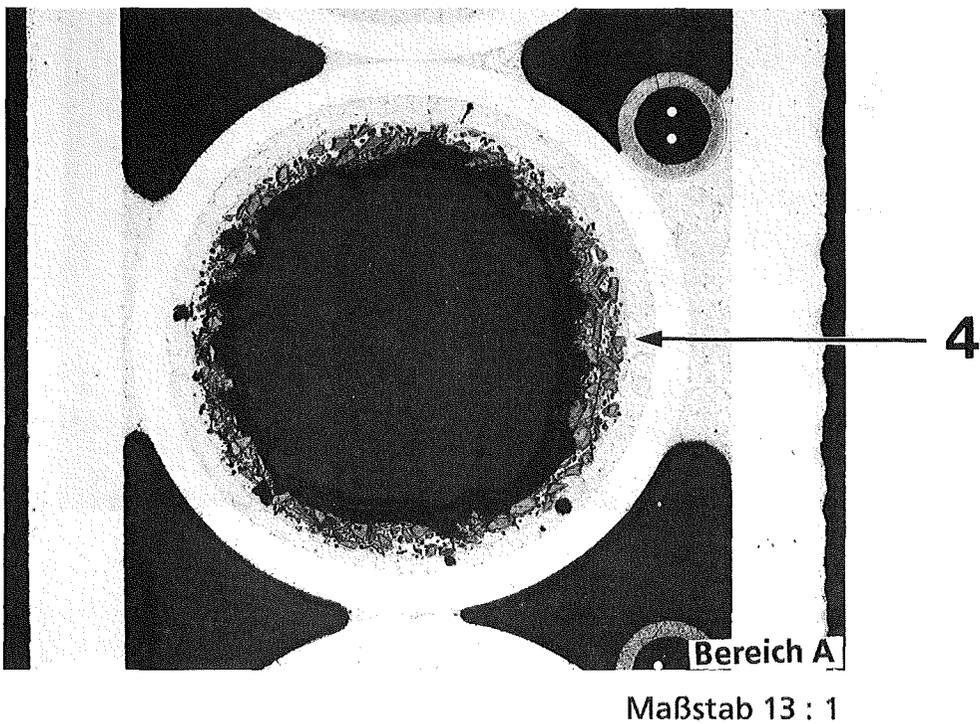
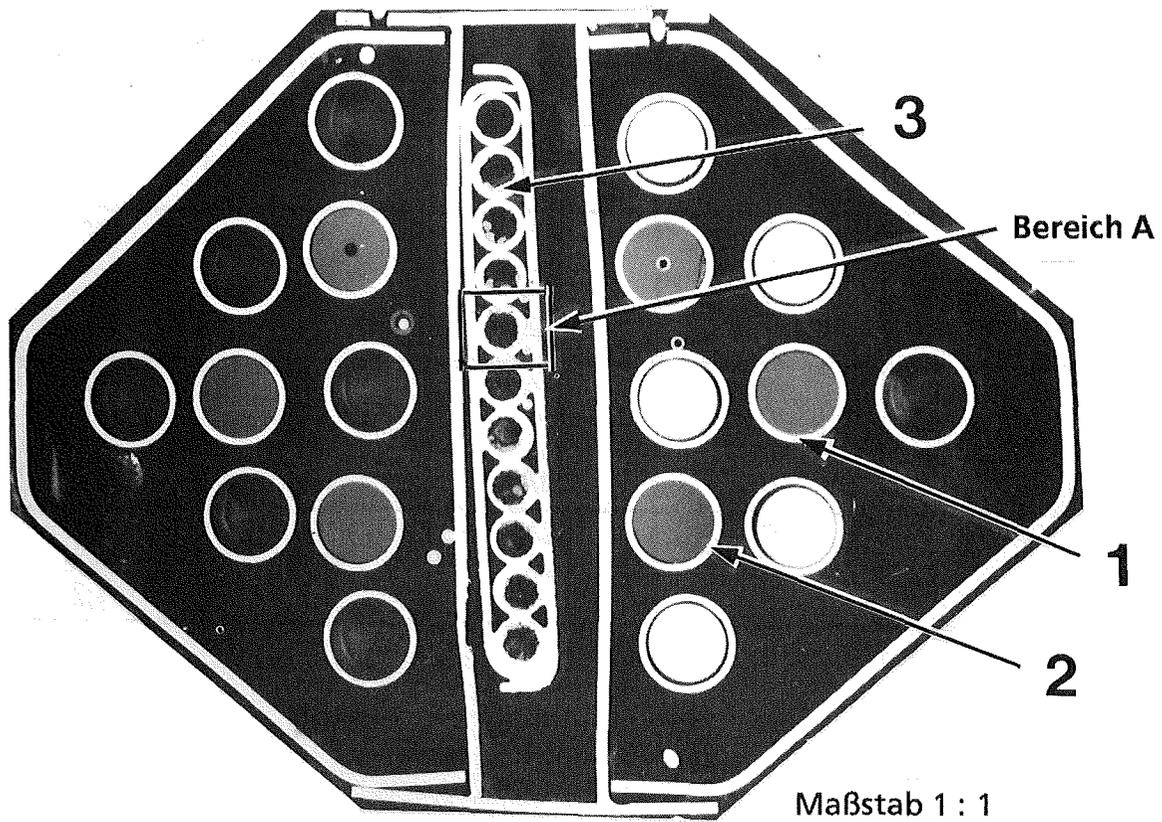
### Schmelzzonen

Nicht vorhanden

**Tabelle 5: B<sub>4</sub>C-Auflösung von CORA-16 / Proben Nr. 08 / Bereich Nr. 3**

REM- Analysenposition Nr.	Elemente, Gewichts-%						Entfernung vom B <sub>4</sub> C-Korn
	B	C	Cr	Mn	Fe	Ni	
10	77	23					Zentrum (vom Kornrand)
11	79	21					
8	9	21	11	3	48	8	0 bis ca. 15 µm
9	10	20	10	2	53	5	
6	15	9	32	1	42	1	ca. 7 µm bis ca. 25 µm
7	10	6	32	1	49	1	
3	3	6	34	1	54	2	ca. 20 µm bis über ? µm
4	3	6	32	2	55	2	
5	3	4	37	1	53	1	
1	0	6	5	2	67	20	ab ca. 20 µm
2	0	6	7	1	70	16	
12	0,3	15	13	1	63	7	Untypische Einzelphasen teils mit Nb und Ta
13	9	5	3	0	3	0	

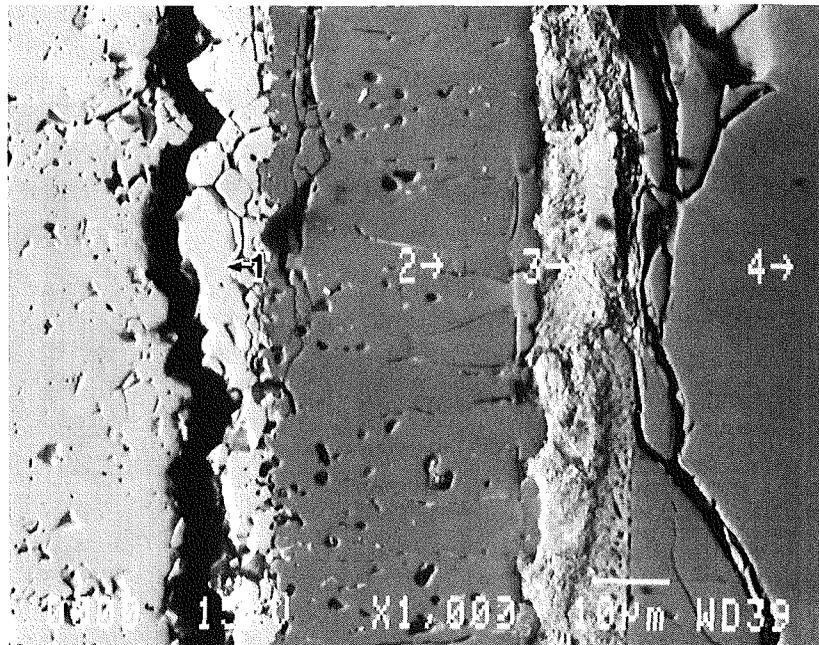
**Abb.11 REM/EDX-Analysenpositionen vom Bündelabschmelzexperiment  
CORA-16 / Probe Nr. 08  
(Bündelhöhe = 1145 mm)**

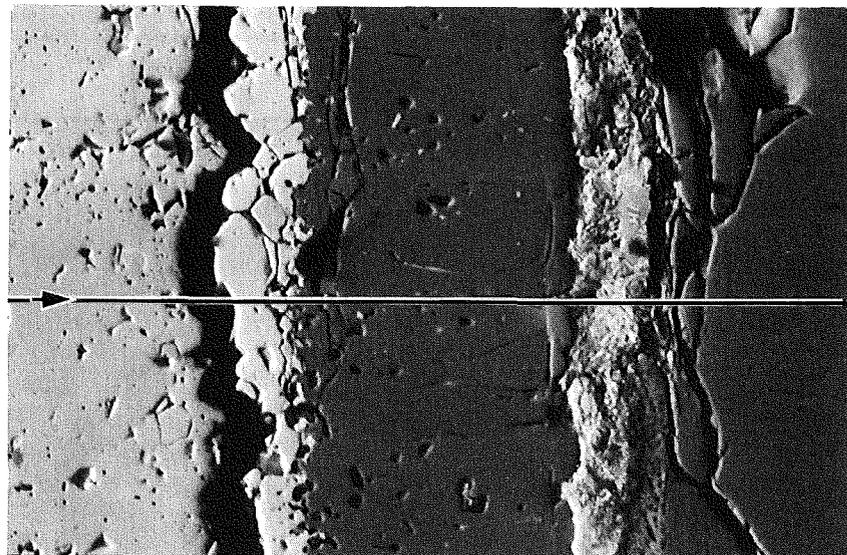
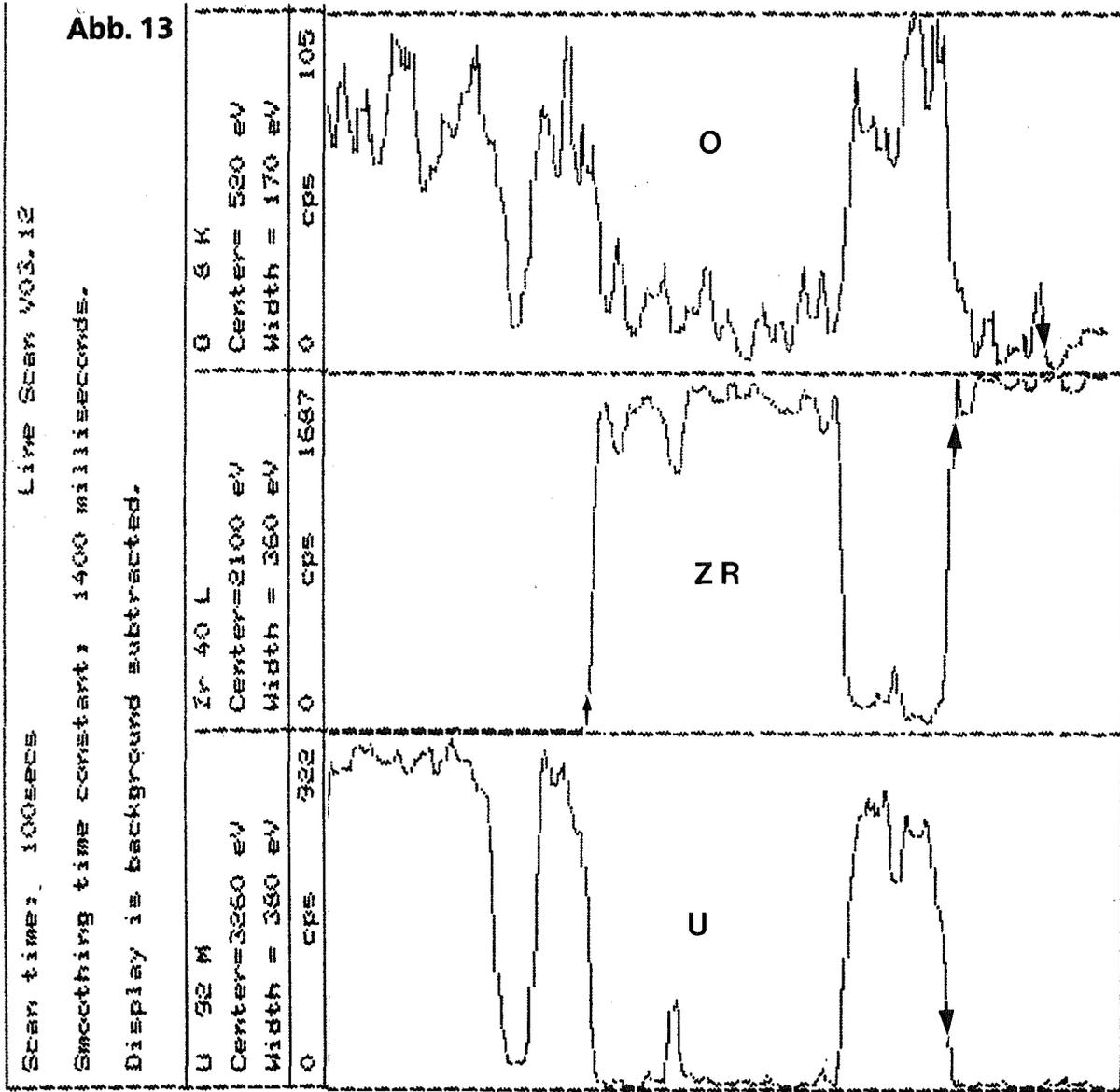


**Abb. 12** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 08**  
**Bereich Nr. 1**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	11	65
	U	MA	89	35
2	O	KA	4	20
	Zr	LA	91	78
	Sn	LA	1,5	1
	U	MA	3,5	1
3	O	KA	11	56
	Zr	LA	18	17
	Sn	LA	6	4
	U	MA	65	23
4	O	KA	0	0
	Zr	LA	98,5	98,8
	Sn	LA	1,5	1,2

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert





Linienanalyse (Line Scan) über den Reaktionsbereich von  $UO_2$ -Brennstoff und Zry-Hüllrohr

**Abb. 14** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 08**

**Bereich Nr. 2**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	5	24
	Zr	LA	93	75
	Sn	LA	2	1
2	O	KA	3	19
	Zr	LA	54	61
	Sn	LA	2	2
	U	MA	41	18
3	O	KA	6	26
	Fe	KA	3	4
	Ni	KA	13	15
	Zr	LA	74	54
	U	MA	3	1
4	O	KA	6	31
	Zr	LA	57	54
	Sn	LA	1	1
	U	MA	36	14
5	O	KA	5	25
	Cr	KA	6	9
	Fe	KA	9	11
	Ni	KA	4	5
	Zr	LA	52	42
	U	MA	24	8
6	O	KA	4	22
	Cr	KA	1	1
	Fe	KA	8	12
	Ni	KA	8	12
	Zr	LA	39	38
	U	MA	40	15
7	O	KA	8	33
	Zr	LA	92	67

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert

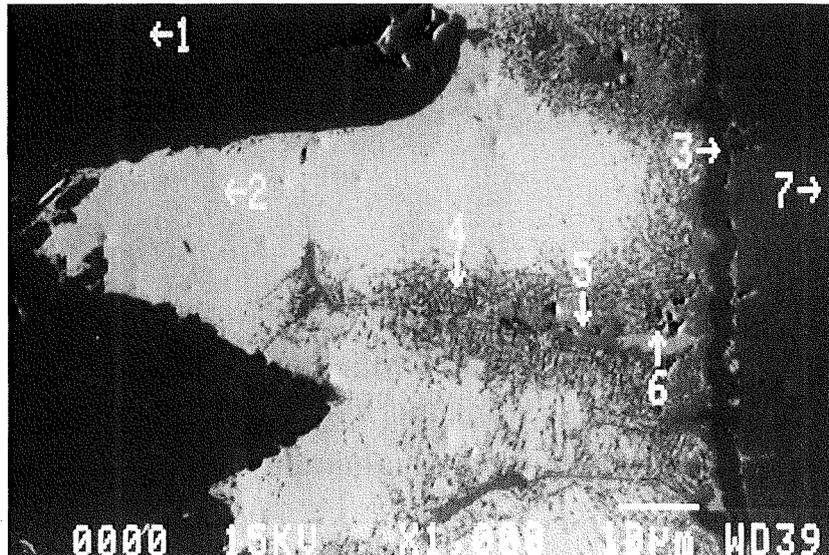
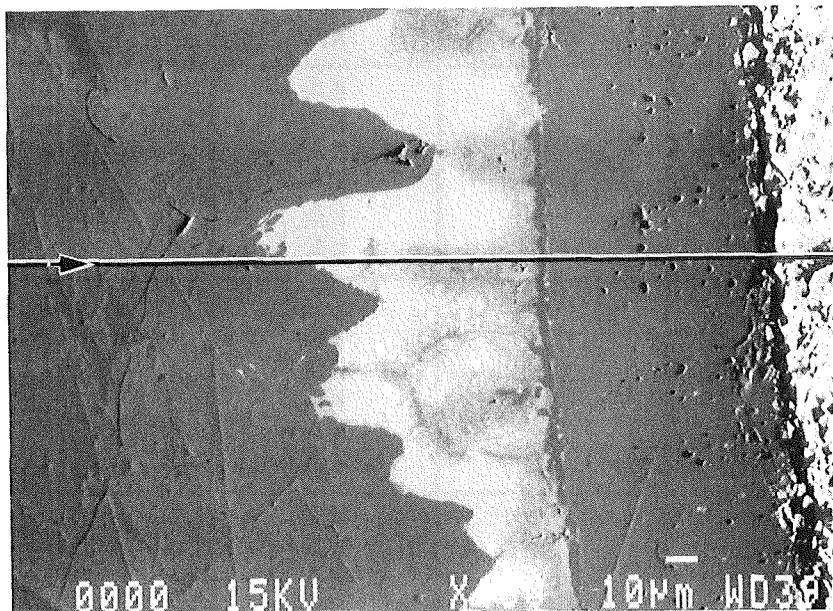
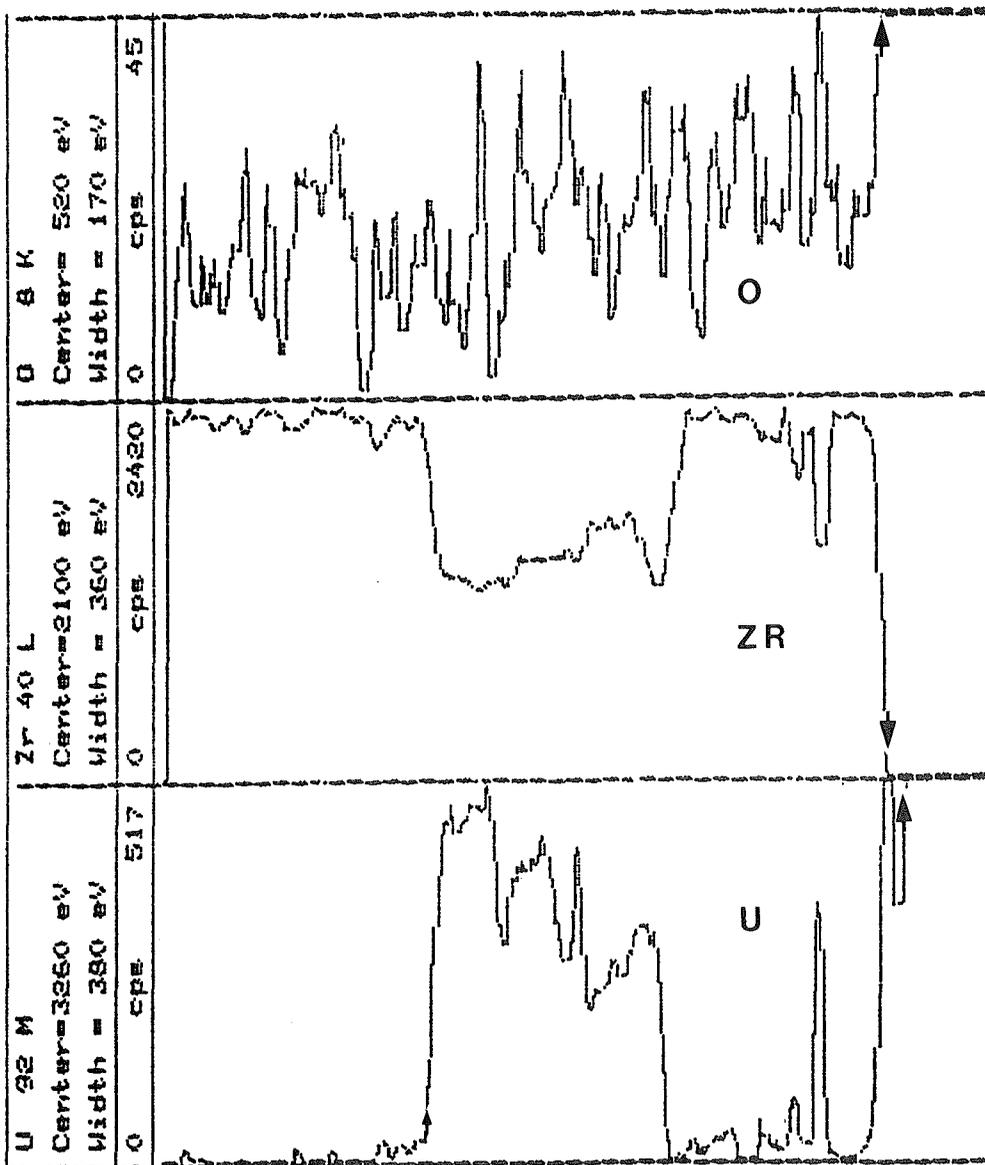


Abb. 15



Linienanalyse (Line Scan) über den Reaktionsbereich von UO<sub>2</sub>-Brennstoff und Zry-Hüllrohr

**Abb. 16 REM/EDX-Analyseenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
CORA-16 / Probe Nr. 08  
Bereich Nr. 3**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	C	KA	6	25
	Cr	KA	5	4
	Mn	KA	2	1
	Fe	KA	67	55
	Ni	KA	20	15
2	C	KA	6	23
	Cr	KA	7	6
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	70	58
	Ni	KA	16	12
3	B	KA	3	14
	C	KA	6	20
	Cr	KA	34	26
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	54	38
	Ni	KA	2	1
4	B	KA	3	13
	C	KA	6	21
	Cr	KA	32	25
	Mn	KA	2	1
	Fe	KA	55	39
	Ni	KA	2	1
5	B	KA	3	12
	C	KA	4	14
	Cr	KA	37	31
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	53	41
	Ni	KA	1	1
6	B	KA	15	38
	C	KA	9	22
	Cr	KA	32	17
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	42	21
	Ni	KA	1	1
7	B	KA	10	32
	C	KA	6	17
	Cr	KA	32	20
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	49	29
	Ni	KA	1	1
8	B	KA	9	22
	C	KA	21	45
	Cr	KA	11	5
	Mn	KA	3	2
	Fe	KA	48	22
	Ni	KA	8	4

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert

Abb. 16 REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment

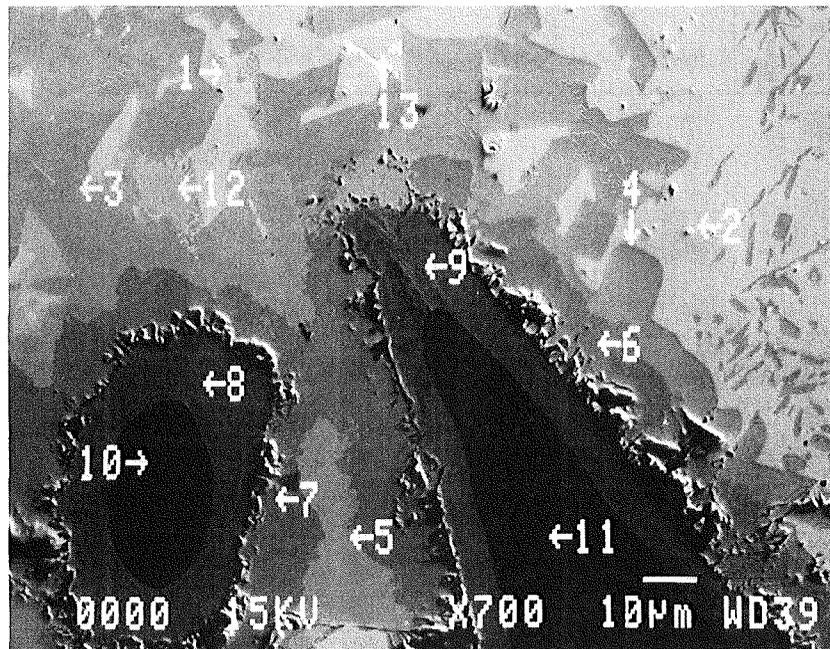
a

**CORA-16 / Probe Nr. 08**

**Bereich Nr. 3**

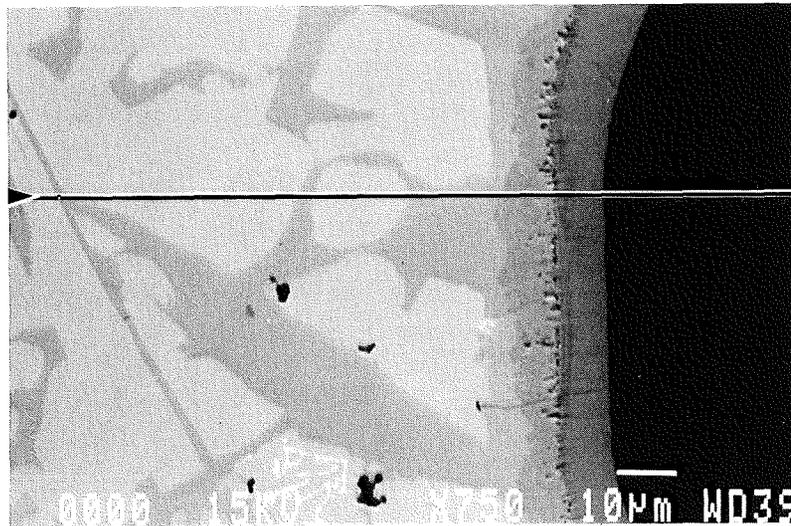
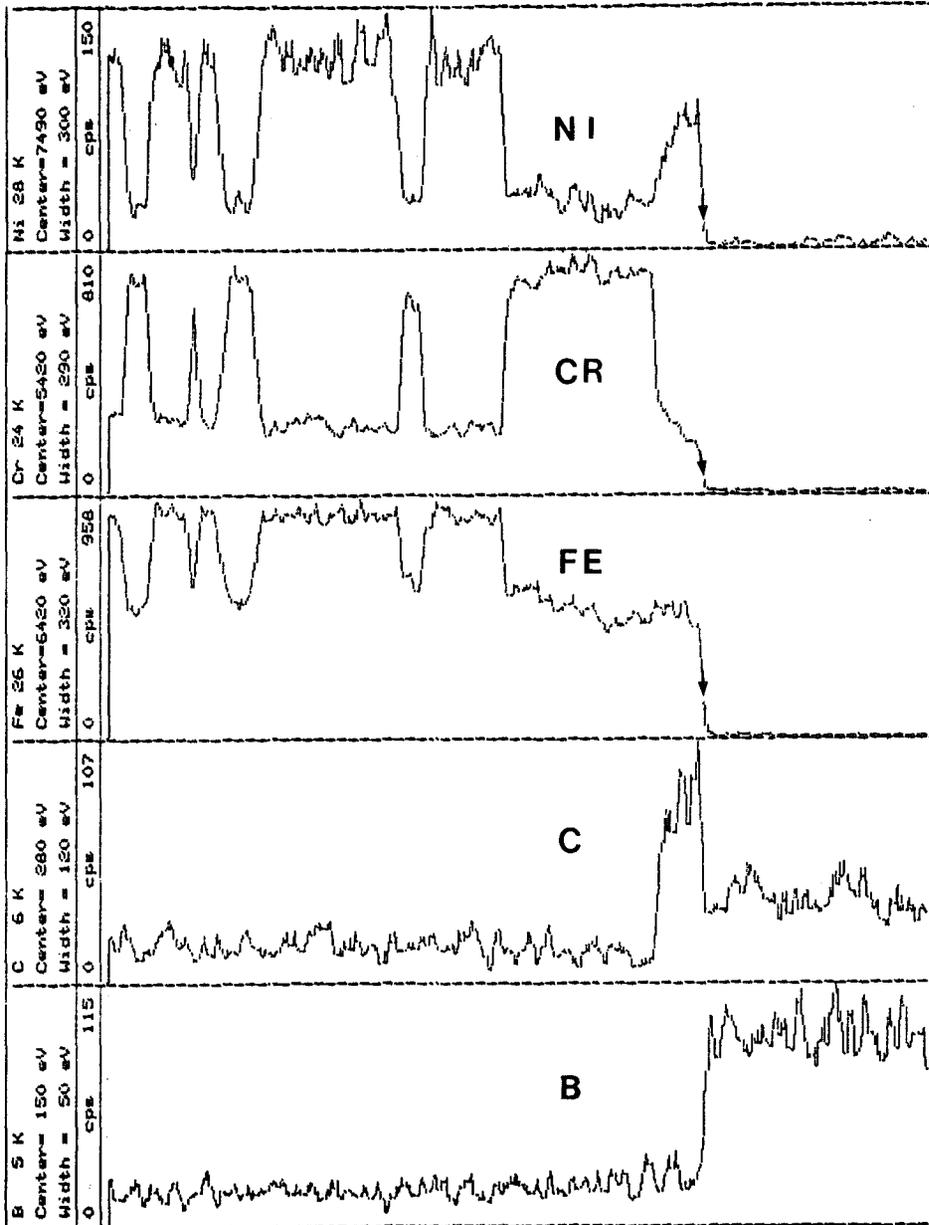
REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
9	B	KA	10	24
	C	KA	20	43
	Cr	KA	10	5
	Mn	KA	2	1
	Fe	KA	53	25
	Ni	KA	5	2
10	B	KA	77	79
	C	KA	23	21
11	B	KA	79	81
	C	KA	21	19
12	B	KA	0,3	1
	C	KA	15	45
	Cr	KA	13	9
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	63	40
	Ni	KA	7	4
13	B	KA	9	28
	C	KA	5	44
	Cr	KA	3	2
	Fe	KA	3	2
	Nb	LA	55	21
	Ta	MA	15	3

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



Line Scan V03.12

Abb. 17

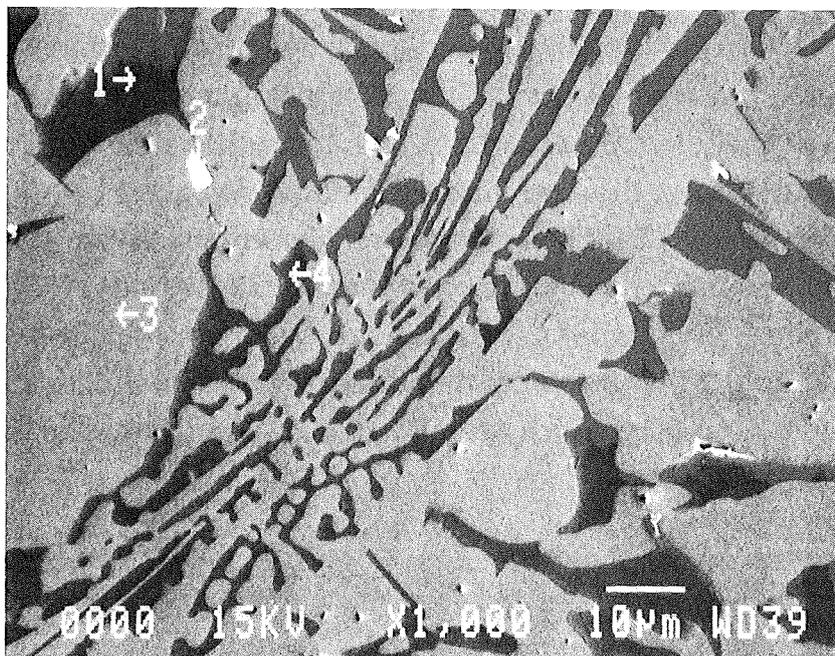


Linienanalyse (Line Scan) über den Reaktionsbereich von  $B_4C$ -Absorber und Edelstahlhüllrohr

**Abb. 18** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 08**  
**Bereich Nr. 4**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	C	KA	11	36
	Cr	KA	44	32
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	43	30
	Ni	KA	1	1
2	B	KA	4	16
	C	KA	16	57
	Cr	KA	2	2
	Fe	KA	3	3
	Nb	LA	20	10
	Ta	MA	55	12
3	C	KA	9	30
	Si	KA	0,1	0,2
	Cr	KA	12	10
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	68	52
	Ni	KA	10	7
4	B	KA	4	14
	C	KA	7	23
	Cr	KA	44	32
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	42	29
	Ni	KA	1	1

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



## 5.2 Versuchsprobe Nr. 01, unten

Die Querschliffprobe Nr. 01, unten, wurde aus der Brennstabbündelhöhe 97 mm entnommen. Diese im unteren Teil des Brennstabbündels liegende Probe ist bereits deutlich von chemischen Reaktionen beeinträchtigt, obwohl sie weit von der heißesten Zone entfernt war. Herablaufende Schmelzen aus den höhergelegenen heißeren Zonen des Bündels haben durch Kontaktreaktionen zu chemischen Veränderungen in fast allen Bündelkomponenten geführt. In Abbildung Nr. 19 sind die Querschliffprobe im Maßstab 1 : 1,25, der Bereichsausschnitt A im Maßstab 3 : 1 mit den REM/EDX-Analysenpositionen übersichtlich dargestellt. Bei der visuellen Betrachtung der Querschliffabbildung erkennt man viele erstarrte Schmelzen, die an nahezu allen Bündelkomponenten anhaften. Der Edelstahl-Absorberkasten ist fast völlig mit einer erstarrten Schmelze umhüllt, die von den Dampfleitungs Kanälen begrenzt wird. Links von der Absorberstab-Zone sind 6 Brennstäbe und rechts 4 Brennstäbe durch eine erstarrte Schmelze miteinander verbunden (Blockadebildung).

In dem Analysenbereich Nr. 1 wurden sowohl Integral- als auch Punktanalysen erstellt (Abb. 20 u. 21). Bei den Integralanalysen (Analysefeld je ca. 0,22 mm x 0,18 mm) wurden die Elemente Cr, Fe, Ni, Zr, Sn und U gefunden. Die Schmelze ist ziemlich homogen (Abb. 20). Bei den Punktanalysen (Analysefeld ca. 0,1 µm Ø), bei denen auch die Analyse kleinster Probenbereiche möglich ist, wurden neben den Elementen aus den Integralanalysen, auch die Elemente B, C, O, Si, Mn und Ta analysiert (Abb. 21). Diese Elemente stammen vom Absorber und dessen Umhüllung bzw. Ta vermutlich von den teilweise abgeschmolzenen Thermoelement-Hüllrohren. Bei den Punktanalysen wurde C in der am häufigsten vorkommenden dunkelgrauen Phase (Pos. 1) mit 14 Gew. % und B in der schwarzen Phase (Pos. 4) mit 19 Gew. % analysiert. Da C und B bei der Integralanalyse nicht nachgewiesen werden konnte, deutet dies auf eine Systemunstimmigkeit bei der Analyse von leichten Elementen hin. Durch Punktanalysen der Phasen und anschließende Auswertung der Phasenanteile über den gesamten Bildausschnitt (Bildanalysen) wurde versucht, diese Analysenungenauigkeit zu beheben. In dem Analysenbereich Nr. 2 (Abb. 22 und 23) wurden bei den Integralanalysen ähnliche Ergebnisse ermittelt wie vom Analysenbereich Nr. 1. Bei den Punktanalysen konnte erstmals eine ZrB<sub>2</sub>-Phase analysiert werden.

Der Absorberstab in den Bereichen 3 bis 5 (Abb. 24 bis 26) zeigt fortgeschrittene Reaktionen mit dem Edelstahl-Hüllrohr. Die B<sub>4</sub>C-Körner sind jedoch noch nicht

völlig chemisch aufgelöst. Folgende Gruppen von Phasen wurden zusammengefaßt:

Bezeichnung	Bereich	Pos.	Wichtigste Elemente (Gew. %)				
			B	C	Cr	Fe	Ni
B <sub>4</sub> C-Absorberkorn	3	4	82	18			
	3	5	81	19			
	4	1	75	24			
	5	1	61	39	0,1	0,2	-
	5	2	53	45	0,1	0,5	-
Zwischenzone	4	2	5	28	11	42	12
	5	3		21	13	52	11
Matrix	3	1	6	1	17	65	9
	3	2	12	1	24	58	4
	3	3	9	5	18	55	11
	4	4	10	3	14	65	7
	4	5	15	3	37	38	5

Aus der Zusammenstellung kann folgendes herausgelesen werden: a) Das B<sub>4</sub>C-Absorberkorn ist im Zentrum teils noch chemisch unverändert vorhanden. In Auflösungszone geht der B-Anteil zurück bei gleichzeitigem Anstieg des C-Anteils. b) Die Zwischenzone ist stark C-haltig bei erhöhten Ni-Anteil. c) In der Matrix findet man 6 bis 15 Gew. % Bor. Der Chromanteil ist im Verhältnis zu den anderen Stahlbestandteilen erhöht.

Im Bereich Nr. 6 von UO<sub>2</sub>-Brennstoff und Zry-Hüllrohr (Abb. 27) findet man fortgeschrittene Kontaktreaktionen mit Schmelzen aus heißeren Bündelebenen. An den chemischen Reaktionen nehmen neben UO<sub>2</sub> und Zry-4 auch Chrom und Eisen teil. Die Hüllrohräußenoberfläche besteht aus einer ca. 100 µm dicken ZrO<sub>2</sub>-Schicht. In den analysierten Phasen wurden 3,5 bis 7 Gew. % Sauerstoff gefunden.

Die Schmelze zwischen Edelstahl-Absorberkasten und Zry-Kanalwand (Bereich Nr. 7, Abb. 28) besteht aus einer ziemlich homogenen Schmelze. Ausser Bor und Kohlenstoff findet man alle verwendeten Elemente des Brennstabbündels in der Schmelze. Im Bereich der Zry-Kanalwand wurden reines Zr-, und auch verschiedene (Zr, O)-Mischphasen analysiert.

Das Dampfführungsrohr (shroud) (Bereich Nr. 8, Abb. 29) ist mit einer  $ZrO_2$ -Schicht bedeckt. Der anhaftende erstarrte Schmelztropfen im Bereich Nr. 9 (Abb. 30) besteht aus Elementen aller Komponenten des Brennstabbündels.

### Kurzfassung der wichtigsten Analysenergebnisse von Probe 01, unten

#### UO<sub>2</sub>-Brennstoff und Zry-Hüllrohr

Bereich Nr. 6  
(Abb. 27)

Fortgeschrittene Reaktionen im Spalt zwischen UO<sub>2</sub>-Brennstoff und Zry-Hüllrohr mit Schmelzen aus heißeren Bündelebenen; chemische Zusammensetzung der flüssigen Phase: O, Cr, Fe, Zr, Sn und U; Sauerstoffanteil 3,5 bis 7 Gew. %.

#### B<sub>4</sub>C-Absorberstab mit Edelstahl-Hüllrohr

Bereich Nr. 3 und 5  
(Abb. 24 bis 26)

Die B<sub>4</sub>C-Absorberkörner sind noch nicht vollständig chemisch aufgelöst. Die B<sub>4</sub>C-Kornauflösung geht einher mit einer Verringerung des B-Anteils, der in der das B<sub>4</sub>C umgebenden Matrix wiederzufinden ist. Die Zwischenzone ist mit C und mit Ni angereichert.

#### Edelstahl-Absorberkasten

Bereich Nr. 7  
(Abb. 28)

Der Absorberkasten ist zum Bestandteil einer großen Schmelzzone geworden. Die Schmelze besteht aus O, U, Zr, Sn und den Stahlbestandteilen Fe, Cr und Ni. Bor und Kohlenstoff wurden nicht nachgewiesen.

## Schmelzzonen

Bereich Nr. 7            Siehe oben

Bereich Nr. 1  
(Abb. 20 und 21)      In den Punktanalysen wurden alle Elemente der Bündelkomponenten gefunden. Die Integralanalysen ergaben ähnliche chemische Zusammensetzungen, was auf eine homogene Schmelze schließen läßt.

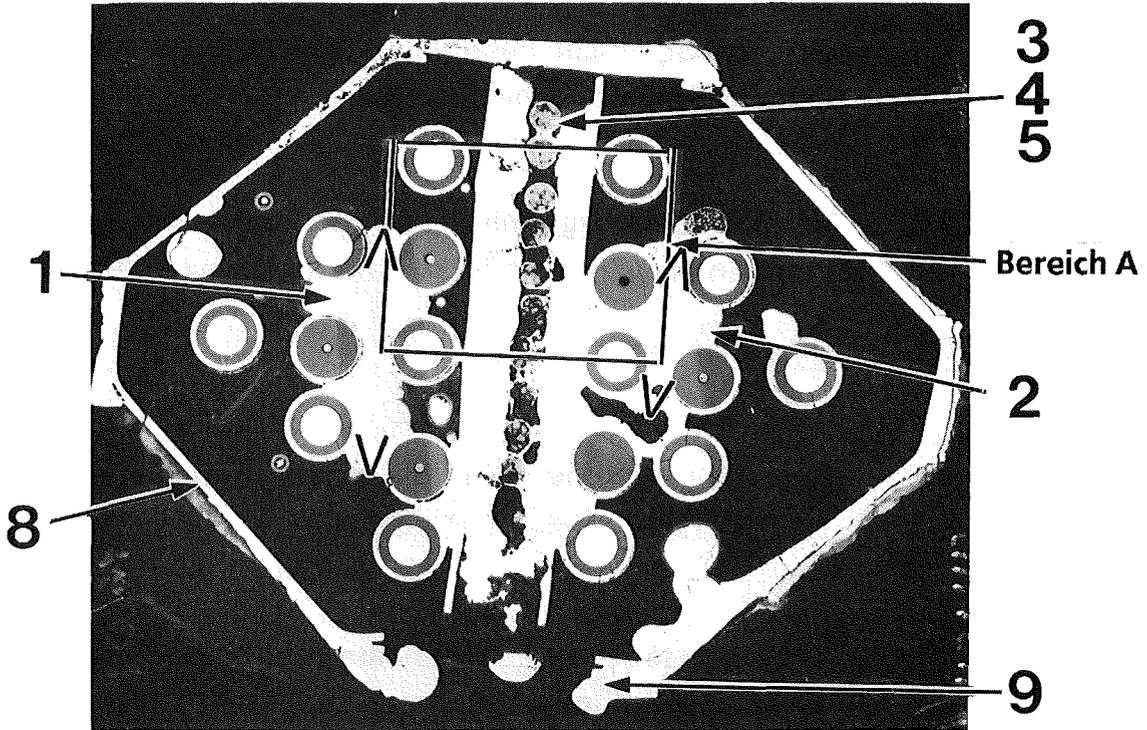
Bereich Nr. 2  
(Abb. 22 und 23)      Vergleichbare Ergebnisse wie in Bereich Nr. 1. Bei den Punktanalysen ist eine  $ZrB_2$ -Phase nachzuweisen.

## Dampfführungsrohr (shroud)

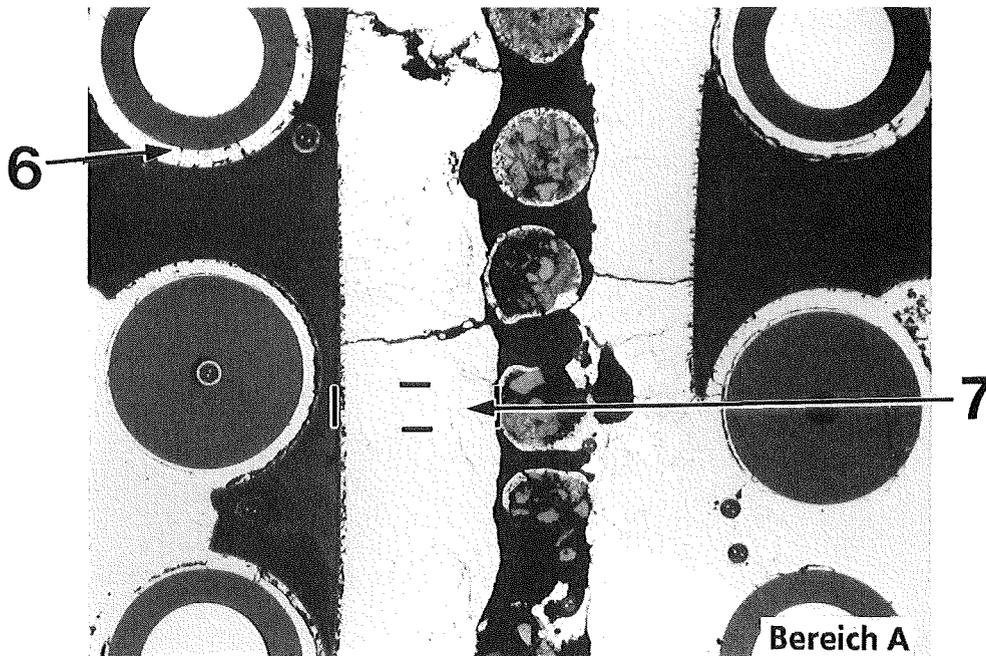
Bereich Nr. 8  
(Abb. 29)              Das Dampfführungsrohr ist überwiegend metallisch, die Oberfläche ist oxidiert ( $ZrO_2$ -Schicht).

Bereich Nr. 9  
(Abb. 30)              Die erstarrte Schmelztropfennase besteht aus Elementen aller Bündelkomponenten.

**Abb.19 REM/EDX-Analysenpositionen vom Bündelabschmelzexperiment  
CORA-16 / Probe Nr. 01, unten  
(Bündelhöhe = 97 mm)**



Maßstab 1 : 1,25



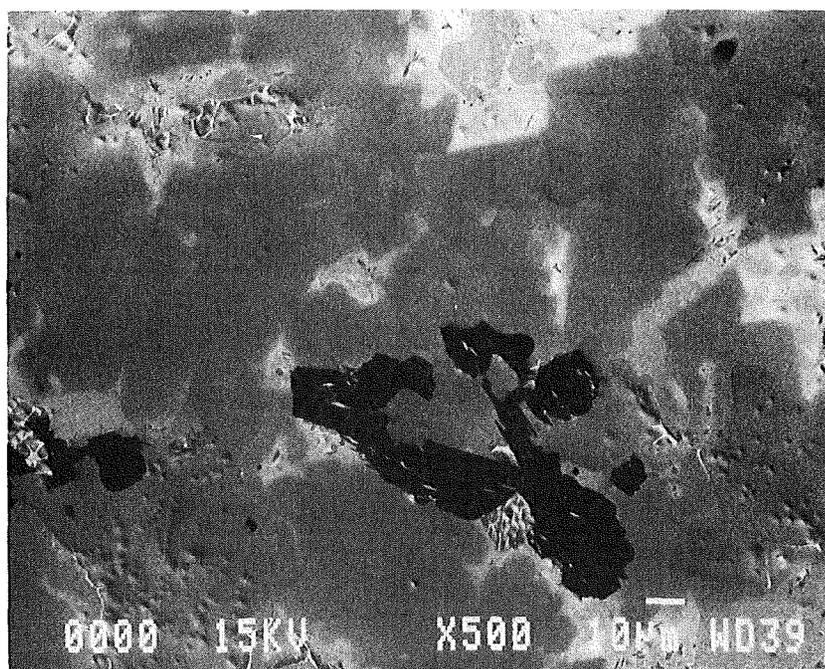
Maßstab 3 : 1

**Abb. 20** REM/EDX-Analysergebnisse vom  
Bündelabschmelzexperiment

**CORA-16 / Probe Nr. 01, unten**  
**Bereich Nr. 1**

Analysenfeld: 0,22 x 0,18 mm (500-fache Vergrößerung)  
Mittelwertsbildung von fünf verschiedenen Analysenfelder

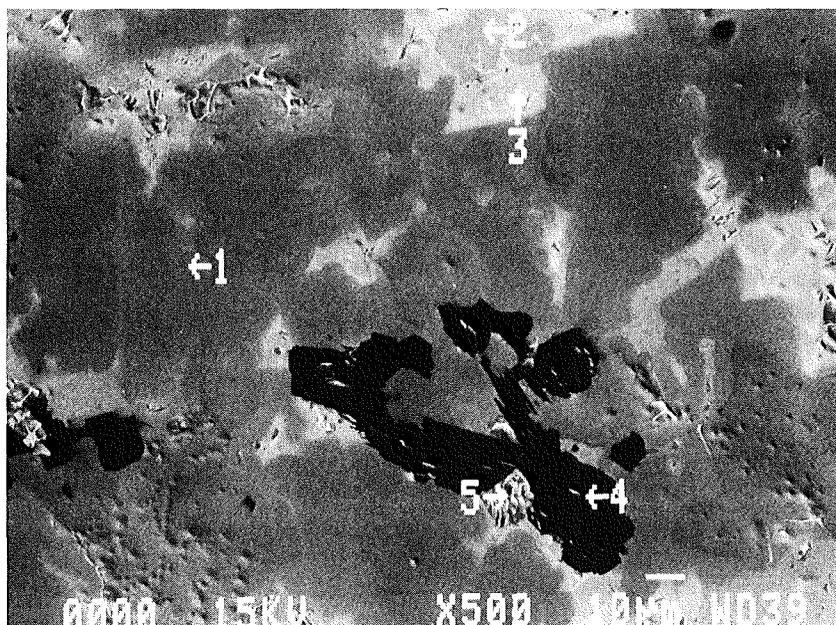
Element	Linie	Mittelwert Gewichts %	Standard- Abweichung
Cr	KA	2,2	0,9
Fe	KA	8,5	3,2
Ni	KA	1,5	0,5
Zr	LA	78,4	3,1
Sn	LA	1,6	0,4
U	MA	7,8	2,0



**Abb. 21** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 01, unten**  
**Bereich Nr. 1**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	C	KA	14	49
	O	KA	3	9
	Cr	KA	5	4
	Mn	KA	0,4	0,3
	Fe	KA	13	10
	Ni	KA	2	1
	Zr	LA	55	25
	Ta	MA	3	1
	U	MA	4	1
2	Si	KA	0,8	2,7
	Fe	KA	4,6	7,6
	Ni	KA	1,2	1,9
	Zr	LA	66,2	66,8
	Sn	LA	27,2	21,0
3	Cr	KA	0,7	1,3
	Fe	KA	15,0	24,8
	Ni	KA	3,9	6,1
	Zr	LA	58,6	59,4
	U	MA	21,8	8,4
4	B	KA	13	34
	C	KA	19	45
	Zr	LA	66	21
	Ta	MA	2	0.3
5	O	KA	2	11
	Fe	KA	1	2
	Zr	LA	86	82
	Sn	LA	3	2
	U	MA	8	3

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert

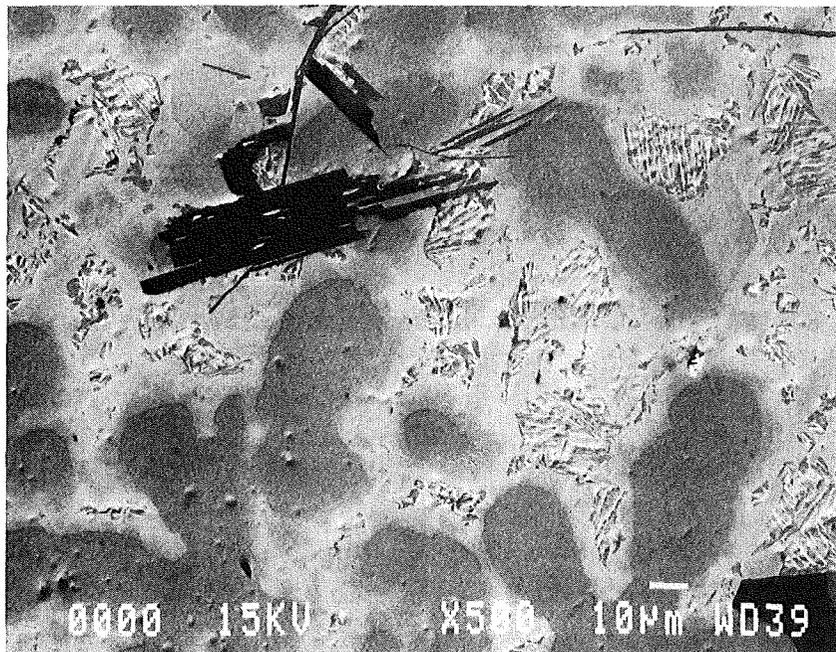


**Abb. 22** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment

**CORA-16 / Probe Nr. 01, unten  
Bereich Nr. 2**

Analysenfeld: 0,22 x 0,18 mm (500-fache Vergrößerung)  
Mittelwertbildung von fünf verschiedenen Analysenfelder

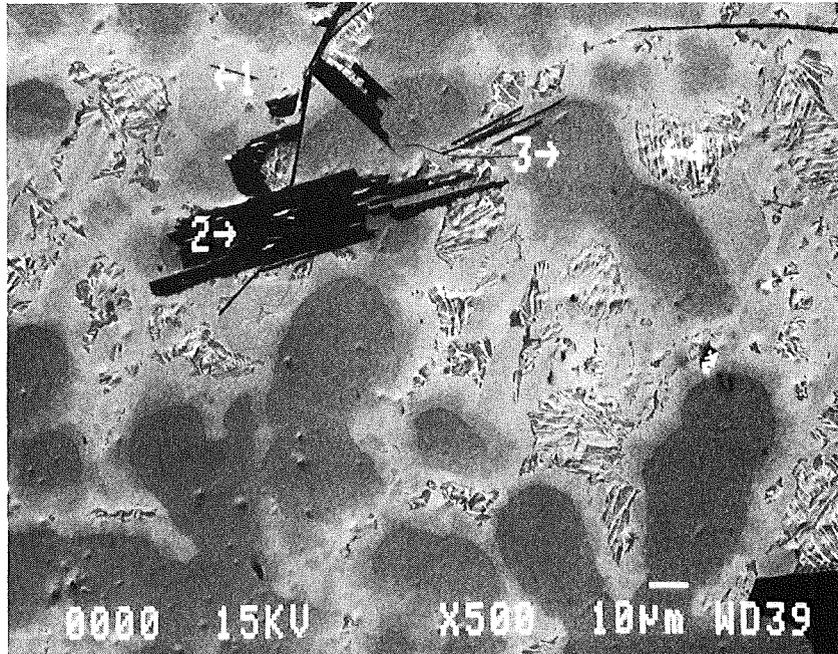
Element	Linie	Mittelwert Gewichts %	Standard- Abweichung
Cr	KA	1,6	0,5
Fe	KA	6,9	1,6
Ni	KA	1,3	0,3
Zr	LA	81,7	2,7
Sn	LA	1,5	0,5
U	MA	7,0	1,7



**Abb. 23** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 01, unten**  
**Bereich Nr. 2**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	Cr	KA	0,2	0,4
	Fe	KA	5,6	9,3
	Ni	KA	1,3	2,0
	Zr	LA	68,2	69,1
	Sn	LA	24,6	19,2
2	B	KA	16	62
	Zr	LA	84	38
3	O	KA	5	22
	Zr	LA	95	78
4	Zr	LA	90,3	94,6
	Sn	LA	3,3	2,7
	U	MA	6,6	2,7

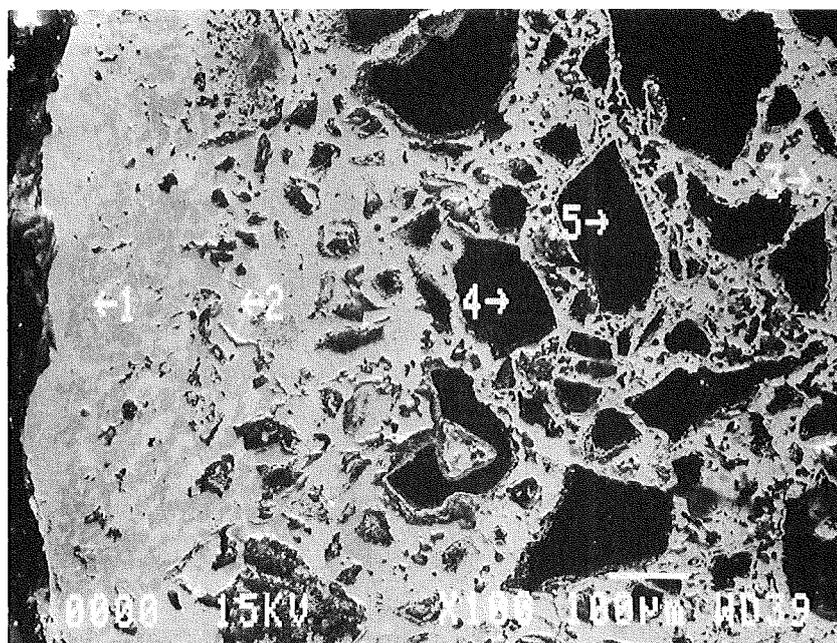
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 24** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 01, unten**  
**Bereich Nr. 3**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	B	KA	6	23
	C	KA	1	4
	Cr	KA	17	14
	Mn	KA	2	2
	Fe	KA	65	50
	Ni	KA	9	7
2	B	KA	12	40
	C	KA	1	2
	Cr	KA	24	17
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	58	37
	Ni	KA	4	3
3	B	KA	9	30
	C	KA	5	15
	Cr	KA	18	12
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	55	35
	Ni	KA	11	7
4	B	KA	82	84
	C	KA	18	16
5	B	KA	81	83
	C	KA	19	17

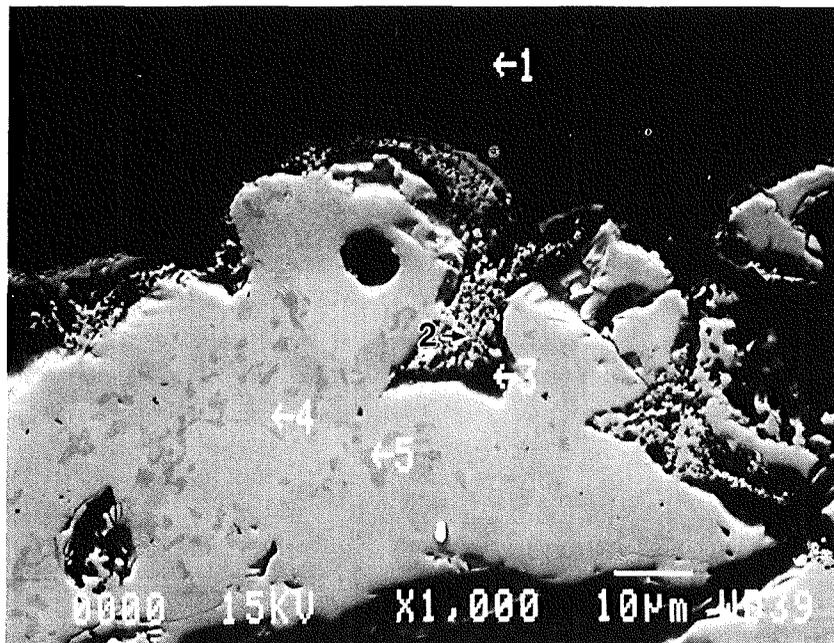
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 25** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 01, unten**  
**Bereich Nr. 4**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	B	KA	75	78
	C	KA	24	22
	Fe	KA	0,4	0,1
2	B	KA	5	12
	C	KA	28	58
	Cr	KA	11	5
	Mn	KA	2	1
	Fe	KA	42	19
	Ni	KA	12	5
3	Einbettmittel und Polierreste			
4	B	KA	10	34
	C	KA	3	9
	Cr	KA	14	10
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	65	42
	Ni	KA	7	4
5	B	KA	15	46
	C	KA	3	8
	Cr	KA	37	21
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	38	21
	Ni	KA	5	2,5
	Nb	LA	1,4	0,5

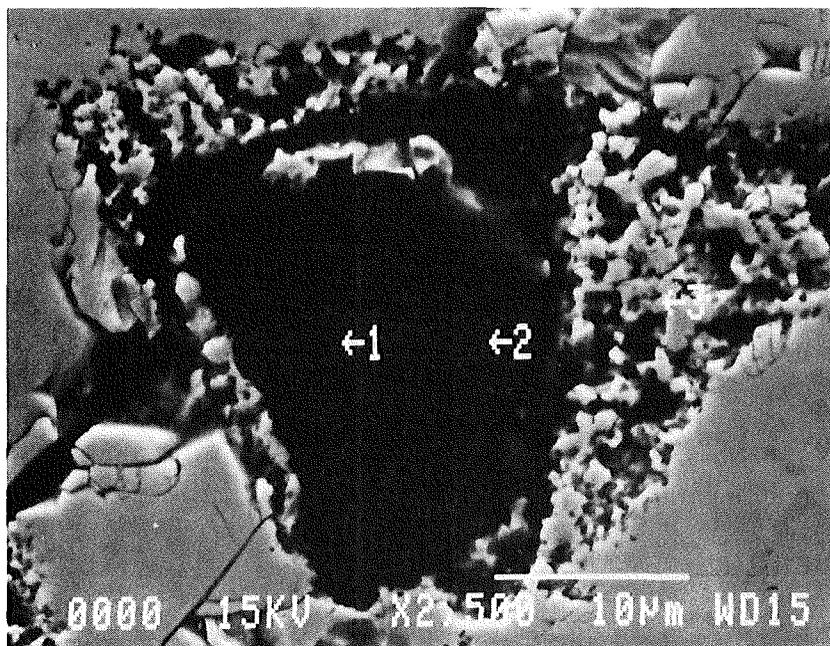
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 26** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16 / Probe Nr. 01, unten**  
**Bereich Nr. 5**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	B	KA	60,7	63
	C	KA	39	67
	Cr	KA	0,1	0,03
	Fe	KA	0,2	0,05
2	B	KA	53	56
	C	KA	45	43
	Si	KA	0.1	0,05
	O	KA	1	1
	Cr	KA	0,1	0,02
	Fe	KA	0,5	0,1
3	B	KA	0	0
	C	KA	21	53
	O	KA	1	3
	Cr	KA	13	8
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	52	29
	Ni	KA	11	6

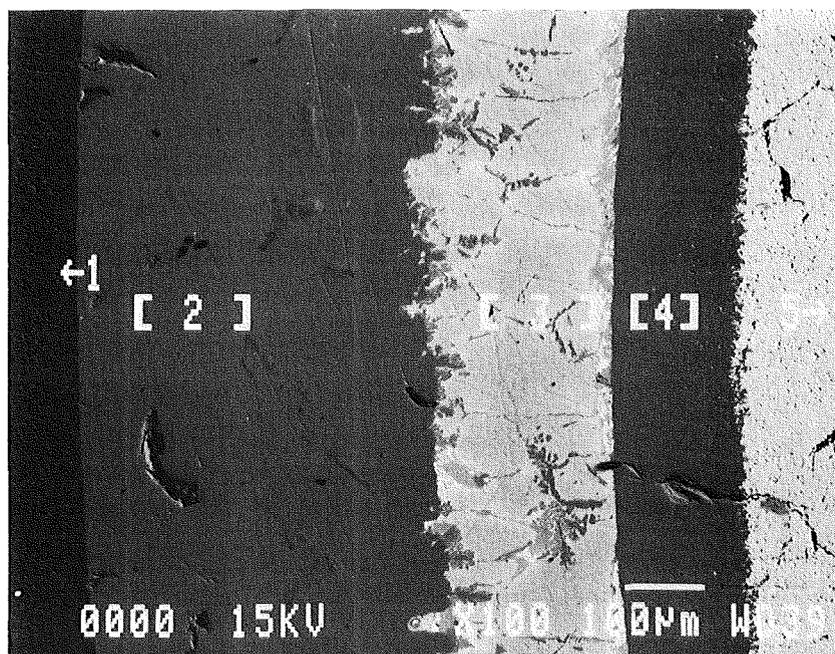
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 27** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 01, unten**  
**Bereich Nr. 6**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	25	66
	Zr	LA	75	34
2	O	KA	7	30
	Zr	LA	92	69
	Sn	LA	1	1
3	O	KA	3,5	22
	Cr	KA	0,5	1
	Fe	KA	1	2
	Zr	LA	52	57
	Sn	LA	2	1
	U	MA	41	17
	4	O	KA	6
Zr		LA	90	70
Sn		LA	1	1
U		MA	3	1
5	O	KA	12	66
	U	MA	88	34

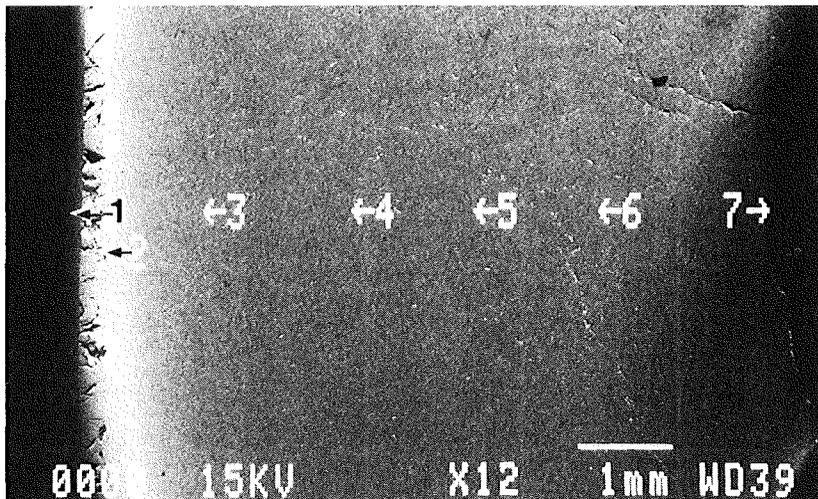
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 28** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 01, unten**  
**Bereich Nr. 7 (Absorberkasten)**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	24	64
	Zr	LA	74	35
	Sn	LA	2	1
2	O	KA	7	29
	Zr	LA	93	71
3	O	KA	3	15
	Cr	KA	1	1
	Mn	KA	0,4	0,5
	Fe	KA	6	8
	Ni	KA	1	2
	Zr	LA	83	71
	Sn	LA	1	1
	U	MA	4	1
4	O	KA	5	22
	Cr	KA	2	3
	Mn	KA	0	0
	Fe	KA	7	9
	Ni	KA	1	1
	Zr	LA	81	64
	Sn	LA	0	0
	U	MA	5	1
5	O	KA	5	21
	Cr	KA	1	1
	Mn	KA	0,1	0,1
	Fe	KA	7	10
	Ni	KA	1	2
	Zr	LA	75	62
	Sn	LA	1	0,5
	U	MA	10	3
6	O	KA	5	22
	Cr	KA	2	2
	Mn	KA	0,3	0,4
	Fe	KA	7	10
	Ni	KA	1	1
	Zr	LA	80	63
	Sn	LA	1	0,5
	U	MA	4	1
7	O	KA	6	26
	Cr	KA	3	4
	Mn	KA	0,1	0,1
	Fe	KA	8	10
	Ni	KA	1	1
	Zr	LA	80	58
	Sn	LA	0,1	0,1
	U	MA	2	0,5

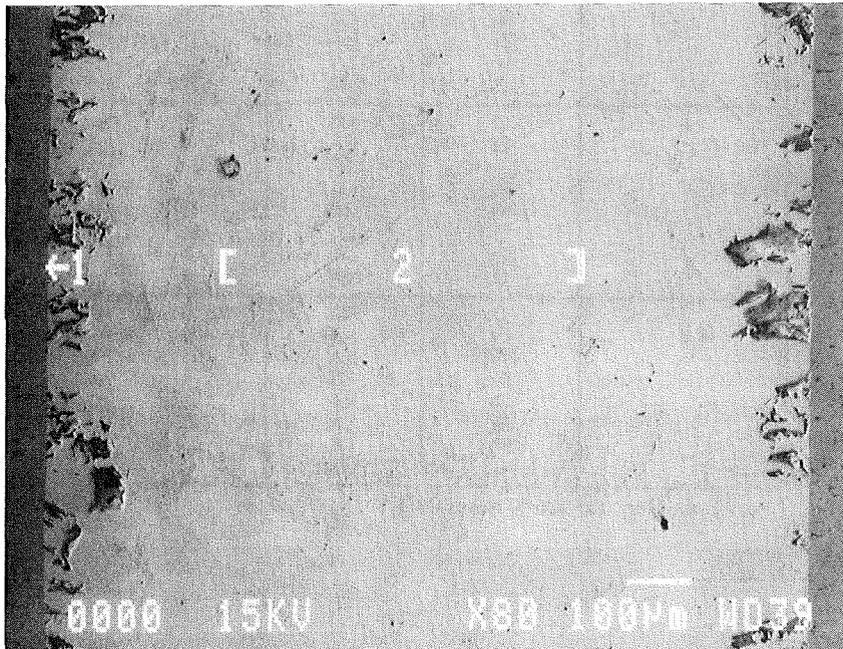
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 29** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 01, unten**  
**Bereich Nr. 8**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	27	67
	Zr	LA	73	33
2	Zr	LA	98,6	98,9
	Sn	LA	1,4	1,1

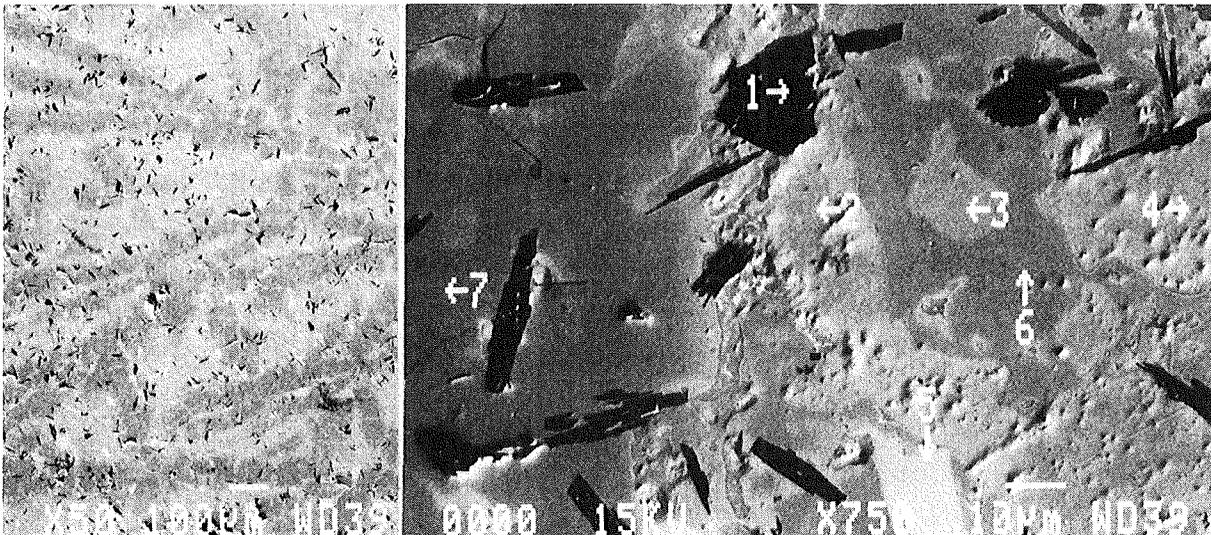
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 30 REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
CORA- 16/ Probe Nr. 01, unten  
Bereich Nr. 9**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	B	KA	13	36
	C	KA	17	42
	Zr	LA	70	22
2	B	KA	1	3
	C	KA	15	55
	Zr	LA	84	42
3	B	KA	0,3	1
	C	KA	17	59
	Zr	LA	83	40
4	B	KA	0,9	3
	C	KA	17	59
	Zr	LA	81	37
	Sn	LA	1	0,3
5	Fe	KA	6,3	10,5
	Zr	LA	70,1	71,1
	Sn	LA	23,6	18,4
6	C	KA	15	54
	Cr	KA	4	3
	Fe	KA	14	11
	Ni	KA	2	2
	Zr	LA	61	29
	U	MA	4	1
7	C	KA	14	51
	Si	KA	1	1
	Cr	KA	5	5
	Fe	KA	15	12
	Ni	KA	2	1
	Zr	LA	61	29
	U	MA	2	1

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



### 5.3 Versuchsprobe Nr. 01, oben

Um einen Vergleich über die chemischen Reaktionen bei geringer Höhendifferenz im Brennstabbündel, d. h. bei geringen Temperaturunterschieden zu erhalten, wurde die Querschliffprobe Nr. 01 beidseitig geschliffen und poliert. Die Bündelhöhe der Probe Nr. 01, oben, liegt bei 110 mm und damit nur 13 mm höher als die der Proben Nr. 01, unten. Die Bündelebene "oben" hat während der Temperaturtransiente etwas höhere Temperaturen erfahren als die Bündelebene "unten". In Abbildung Nr. 31 sind die Querschliffprobe im Maßstab 1 : 1, der Bereichsausschnitt A im Maßstab 3 : 1 sowie die REM/EDX-Analysenpositionen übersichtlich dargestellt. Bei der visuellen Betrachtung der Querschliffabbildung ist, im Vergleich zu der 13 mm tiefer liegenden Probe (01 unten), die Zerstörung erkennbar fortgeschritten. Besonders die  $B_4C$ -Absorberstabzone weist deutliche Veränderungen auf.

Die Absorberstäbe sind von der Schmelze teils aufgelöst oder eingeschlossen. Links von der Absorberstabzone sind 7 und rechts 8 Brennstäbe durch die erstarrte Schmelze umgeben.

Von dem Analysenbereich Nr. 1 wurden sowohl Integral- als auch Punktanalysen erstellt (Abb. 32 und 33). Bei den Integralanalysen wurden vergleichbare Werte wie in der 13 mm tieferliegenden Bündelhöhe von Probe Nr. 01, unten, gefunden.

Bei den Punktanalysen wurden teilweise andere Phasentypen analysiert. Interessant ist die  $ZrB_2$ -Phase in Pos. 4. Bei der Integralanalyse im Bereich Nr. 2 (Abb. 34) sind die Ergebnisse mit denen aus dem Bereich Nr. 1 gleichzusetzen. Bei den Punktanalysen (Abb. 35) wurde wiederum die  $ZrB_2$ -Phase gefunden. Weiter wurden auch reines Zr- sowie  $ZrSn$ -Phasen mit hohem Sn-Anteil analysiert.

Bei den Absorberstäben in den Bereichen Nr. 3 und Nr. 4 (Abb. 36 und 38) wurden keine großen Veränderungen (im Vergleich zu Probe 01 unten) in der chemischen Zusammensetzung analysiert. Wie bei der Proben Nr. 01, unten, wird wieder versucht die analysierten Phasen in Gruppen zusammenzufassen. Folgende Materialgruppen wurden gefunden:

Bezeichnung	Bereich	Pos.	Wichtigste Elemente (Gew. %)				
			B	C	Cr	Fe	Ni
B <sub>4</sub> C- Absorberkorn	4	3	66	34	-	-	-
	3	6	58	42	-	0,3	-
Zwischen- phase	3	4	0	53	2	22	16
	4	2	8	36	5	39	11
Matrix	3	1	10	8	15	62	3
	3	2	15	8	39	36	1
	3	3	7	15	5	59	12
	3	5	11	4	18	62	3
	4	1	15	0	23	58	2
	4	4	13	4	15	61	5

Die Ergebnisse sind ähnlich denen der Probe Nr. 01, unten. Lediglich der C-Anteil ist in der Matrix höher. Die Elementeverteilung (Abb. 37) soll die Reaktionsneigung veranschaulichen.

Im Bereich Nr. 6 von UO<sub>2</sub>-Brennstoff und Zry-Hüllrohr (Abb. 39) werden keine größeren Veränderungen im Vergleich zu der Probe 01, unten, sichtbar. Die Phasenzusammensetzung ist ähnlich.

Die Schmelze zwischen Edelstahl-Absorberkasten und Zry-Kanalwand im Bereich Nr. 7 und Nr. 5 (Abb. 40 bis 47) besteht aus vielen unterschiedlichen Phasen. Zum Teil sind die Absorberelemente B und C an den chemischen Reaktionen beteiligt. Die B- und C-Verbindungen findet man nur in der Randschicht, in der Nähe der Absorberstäbe. Die Integralanalysen zeigen ein großes Streuband. Bei den Punktanalysen im Bereich Nr. 7 und Nr. 5 (Abb. 40 und 41) wurden folgende Phasentypen analysiert:

Bereich	Pos.	Wichtigste Elemente (Gew. %)						
		B	C	Cr	Fe	Ni	Zr	U
7	2,3 u.4	0	0	3	14	2,2	70	8
7	6	0	0	15,7	71,4	8,9	1,9	0
7	7	6	0	3	14	2	64	8
7	5	15	0	1,7	12	2	68	0
5	6	15	0	1	29	6	46	0
5	3	0	7	4	72	15	0	0
5	7	5	5	31	52	1,4	0,3	0
5	1,2,4 u. 5	14	13	0	0	0	72	0

Abbildung 48 mit der Röntgenverteilung dient der Veranschaulichung der Verteilung der Elemente in dem Schmelzbereich Nr. 5.

Das Dampfführungsrohr (Shroud) wurde in dieser Bündelhöhe nicht chemisch analytisch nachuntersucht.

### Kurzfassung der wichtigsten Analysenergebnisse von Probe 01, oben

#### UO<sub>2</sub>-Brennstoff und Zry-Hüllrohr

Bereich Nr. 6

(Abb. 39)

Vergleichbare Ergebnisse wie bei den Proben Nr. 08 und Nr. 01, unten. Das Zry-Hüllrohr ist stärker oxidiert.

#### B<sub>4</sub>C-Absorberstab mit Edelstahl-Hüllrohr

Bereich Nr. 3 und 4

(Abb. 36 bis 38)

Vergleichbare Ergebnisse wie bei der Probe Nr. 01, unten. Lediglich der C-Anteil ist in der Matrixphase etwas höher.

## Edelstahl-Absorberkasten

### Bereich Nr. 5 und 7

(Abb. 40 bis 48)

Bildung einer großen Schmelzzone, die aus vielen unterschiedlichen Phasen besteht. Die Schmelze stammt aus höhergelegenen Bündelpositionen. B und C wurden nur im Randbereich zum Absorber gefunden.

## Schmelzzonen

Bereich Nr. 5 und 7 Siehe oben.

### Bereich Nr. 1

(Abb. 32 und 33)

Phasen mit allen Elementen der Bündelkomponenten.  $ZrB_2$ -Phase wurde nachgewiesen.

### Bereich Nr. 2

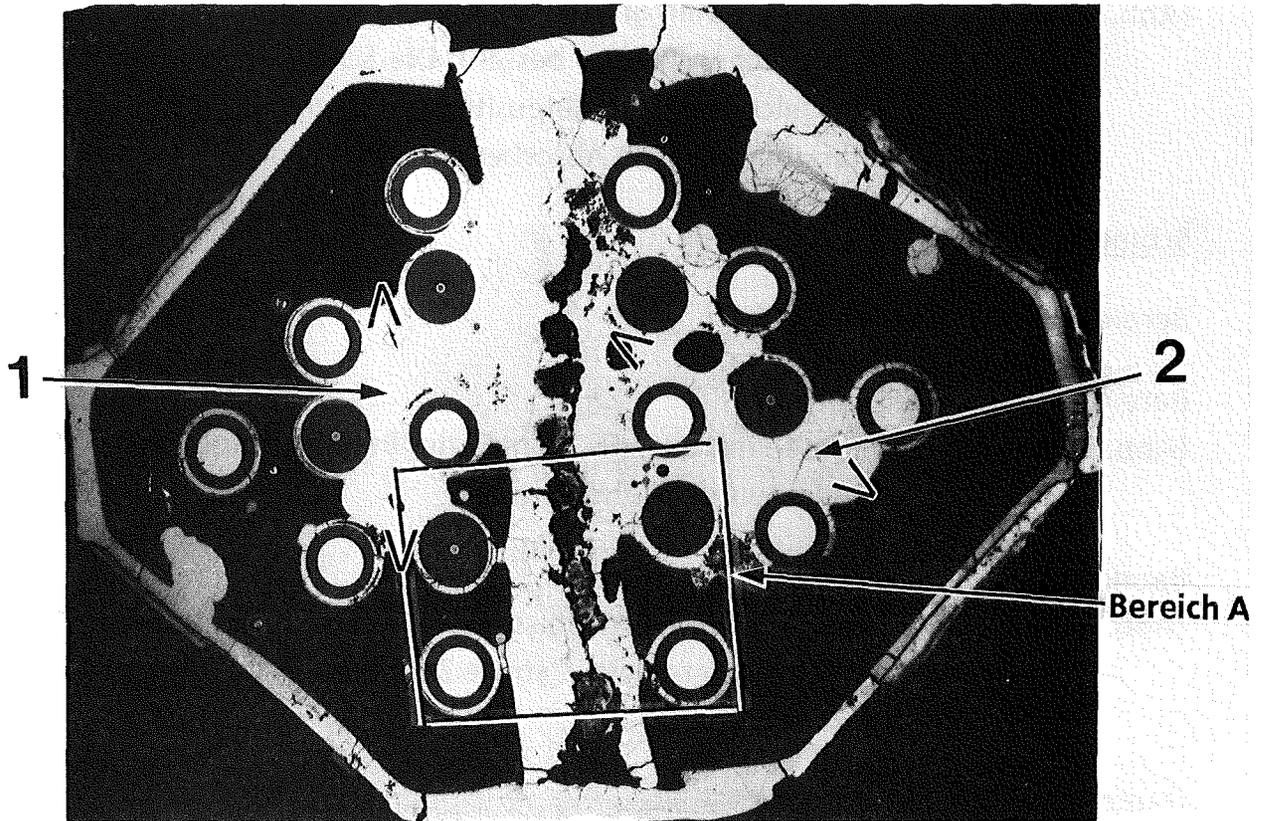
(Abb. 34 und 35)

Vergleichbare Ergebnisse wie im Bereich Nr. 1. Neben  $ZrB_2$  findet man reines Zr- sowie  $ZrSn$ -Phasen mit bis zu 44 Gew. % Sn-Anteil.

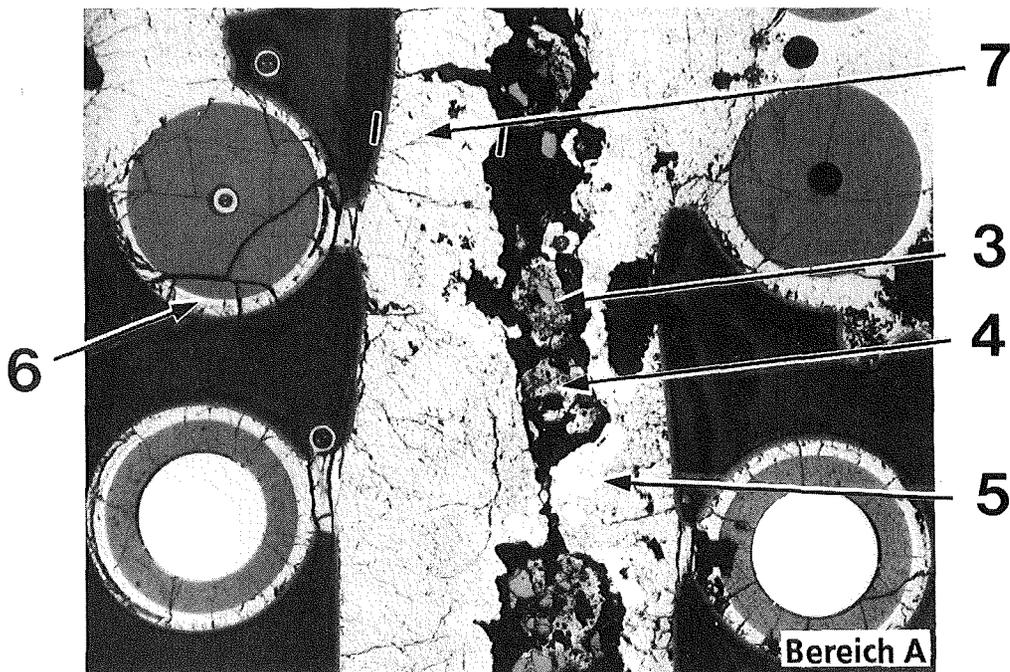
## Dampfführungsrohr (shroud)

Es wurden keine Analysen durchgeführt.

**Abb.31 REM/EDX-Analysenpositionen vom Bündelabschmelzexperiment  
CORA-16 / Probe Nr. 01, unten  
(Bündelhöhe = 110 mm)**



Maßstab 1: 1



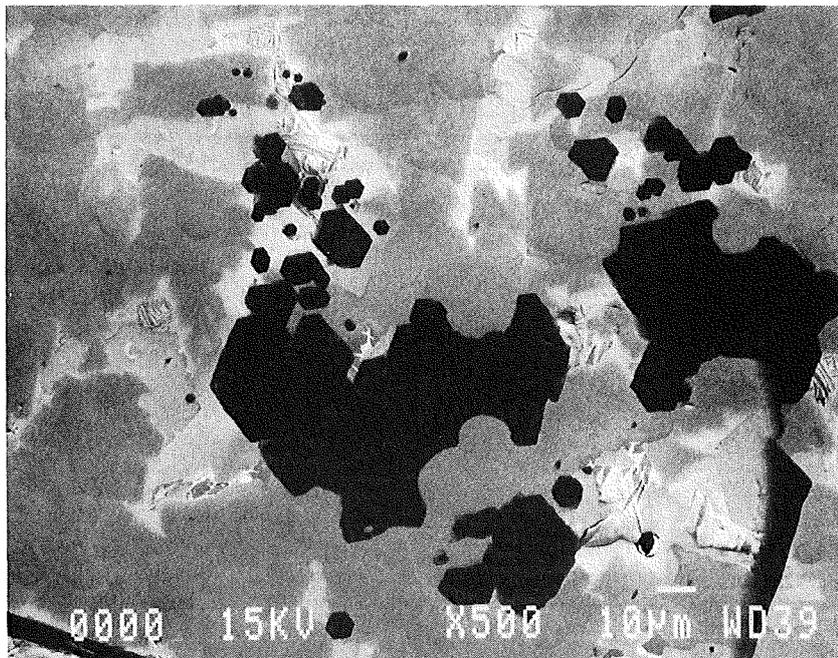
Maßstab 3: 1

**Abb. 32** REM/EDX-Analyseergebnisse vom  
Bündelabschmelzexperiment

**CORA-16 / Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 1**

Analysenfeld: 0,22 x 0,18 mm (500-fache Vergrößerung)  
Mittelwertbildung von fünf verschiedenen Analysenfelder

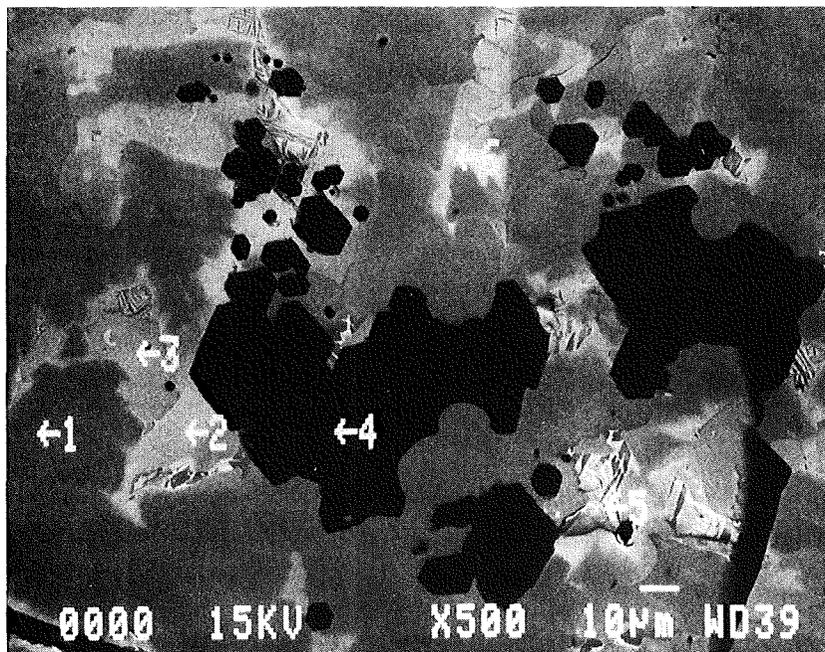
Element	Linie	Mittelwert Gewichts %	Standard- Abweichung
Cr	KA	2,2	0,3
Fe	KA	9,0	0,9
Ni	KA	1,4	0,1
Zr	LA	78,6	2,5
Sn	LA	1,8	0,7
U	MA	7,0	1,6



**Abb. 33 REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
CORA-16 / Probe Nr. 01, oben  
Bereich Nr. 1**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	Zr	LA	100	100
2	C	KA	10	46
	Cr	KA	2	2
	Fe	KA	14	14
	Ni	KA	3	2
	Zr	LA	57	33
	U	MA	13	3
3	B	KA	0	0
	C	KA	0	0
	Si	KA	1	3
	Fe	KA	5	8
	Zr	LA	66	67
	Sn	LA	28	22
4	B	KA	16	62
	Zr	LA	84	38
5	Fe	KA	0,8	1,5
	Zr	LA	79,7	90,0
	U	MA	19,5	8,4
6	Fe	KA	14,8	25,3
	Ni	KA	3,9	6,4
	Zr	LA	55,1	57,8
	U	MA	26,2	10,5

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert

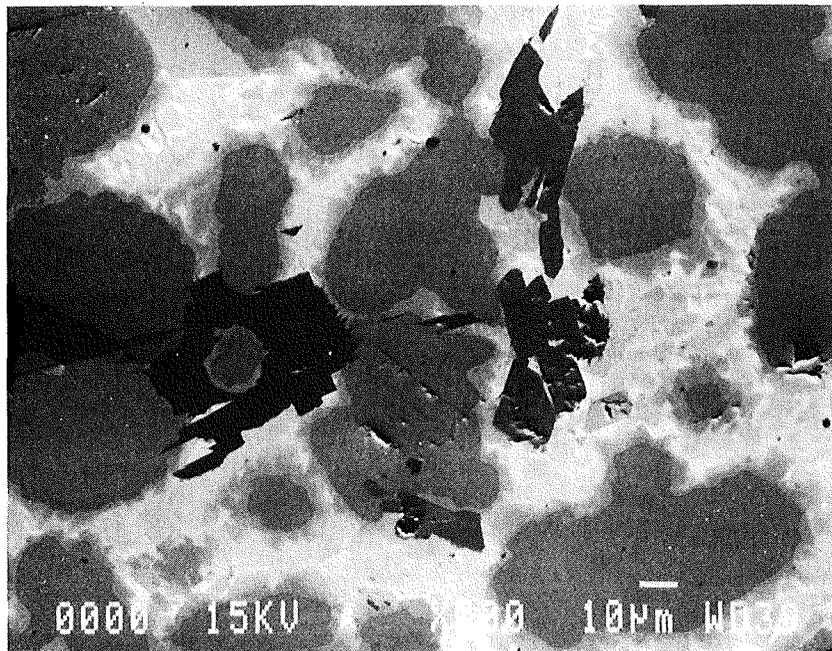


**Abb. 34** REM/EDX-Analysenergebnisse vom  
Bündelabschmelzexperiment

**CORA-16 / Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 2**

Analysenfeld: ca. 0,22 x 0,18 mm (500-fache Vergrößerung)  
Mittelwertbildung von fünf verschiedenen Analysenfelder

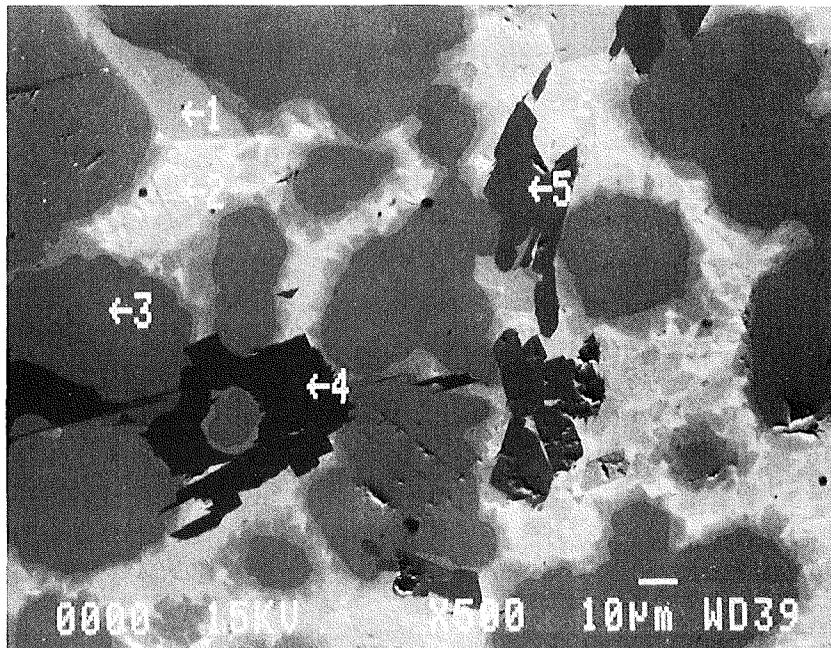
Element	Linie	Mittelwert Gewichts %	Standard- Abweichung
Cr	KA	1,4	0,6
Fe	KA	5,8	2,1
Ni	KA	1,0	0,4
Zr	LA	80,8	5,3
Sn	LA	2,3	2,3
U	MA	8,6	2,4



**Abb. 35** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 2**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	Zr	LA	55,8	62,1
	Sn	LA	44,2	37,9
2	Cr	KA	1,0	1,9
	Fe	KA	8,9	16,2
	Ni	KA	2,2	3,7
	Zr	LA	59,9	65,8
	U	MA	29,0	12,4
3	Zr	LA	100	100
4	B	KA	16	61
	Zr	LA	84	39
5	O	KA	5	22
	Zr	LA	95	78

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 36** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 3**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	B	KA	10	30
	C	KA	8	23
	Cr	KA	15	9
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	62	36
	Ni	KA	3	1
2	B	KA	15	39
	Ca	KA	8	19
	Si	KA	1	1
	Cr	KA	39	21
	Fe	KA	36	18
	Ni	KA	1	1
	Nb	LA	1	0.3
3	B	KA	7	20
	C	KA	15	38
	Cr	KA	5	3
	Mn	KA	1	1
	Fe	KA	59	32
	Ni	KA	12	6
4	C	KA	53	81
	O	KA	4	5
	Si	KA	1	1
	Cr	KA	2	1
	Mn	KA	0,6	0,2
	Fe	KA	22	7
	Ni	KA	16	5
5	B	KA	11	35
	C	KA	4	11
	Cr	KA	18	12
	Mn	KA	2	1
	Fe	KA	62	39
	Ni	KA	3	2
6	B	KA	58	61
	C	KA	42	39
	Fe	KA	0,3	0,1

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert

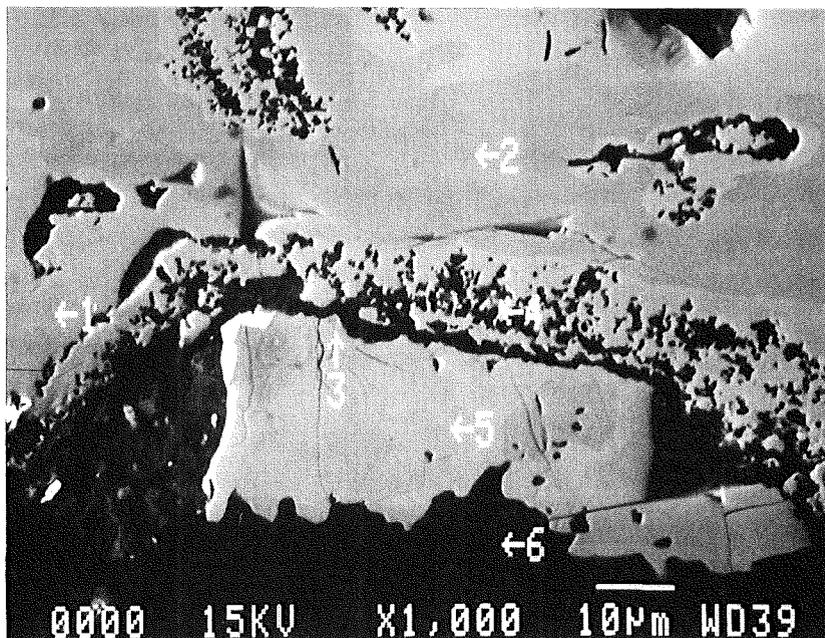
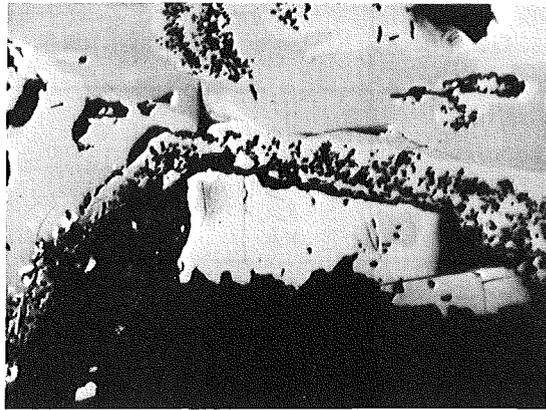


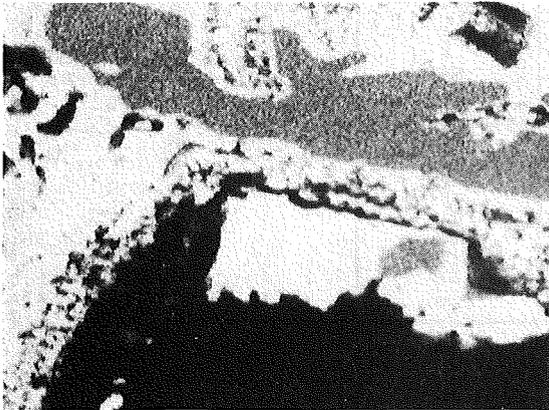
Abb. 37 CORA-16 / Probe 01 oben / Bereich Nr. 3



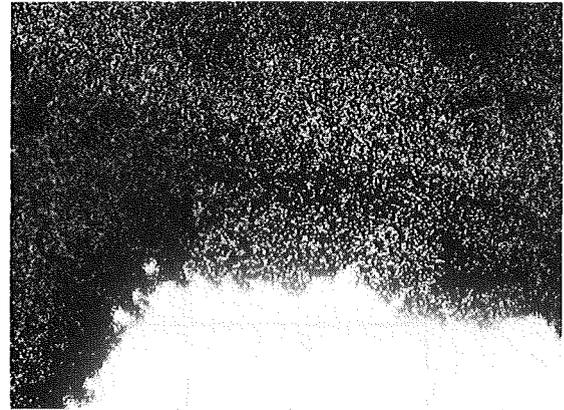
BE-Abbildung

10µm

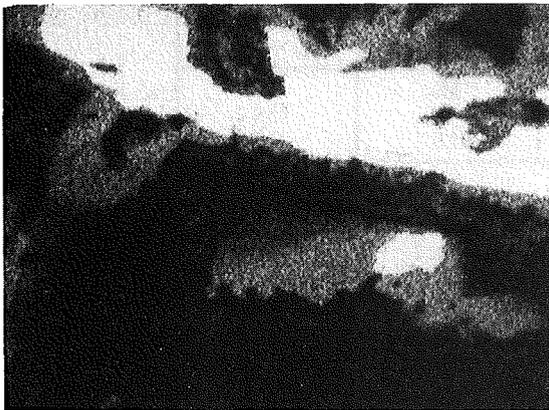
Abbildung der Röntgenverteilung ( X-ray maps )



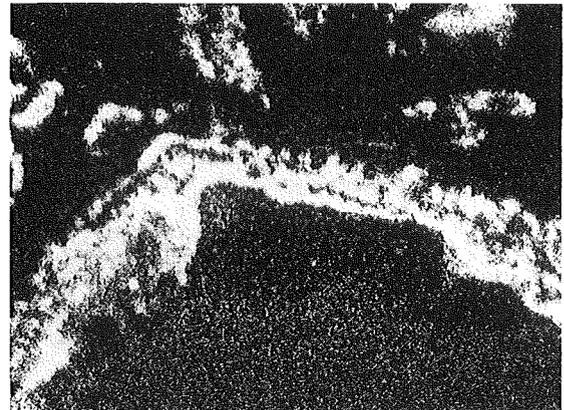
Fe



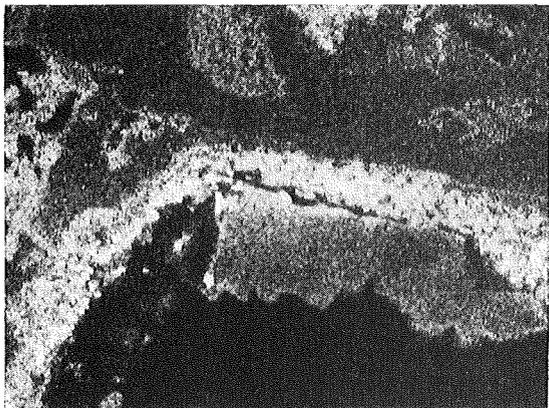
B



Cr



C

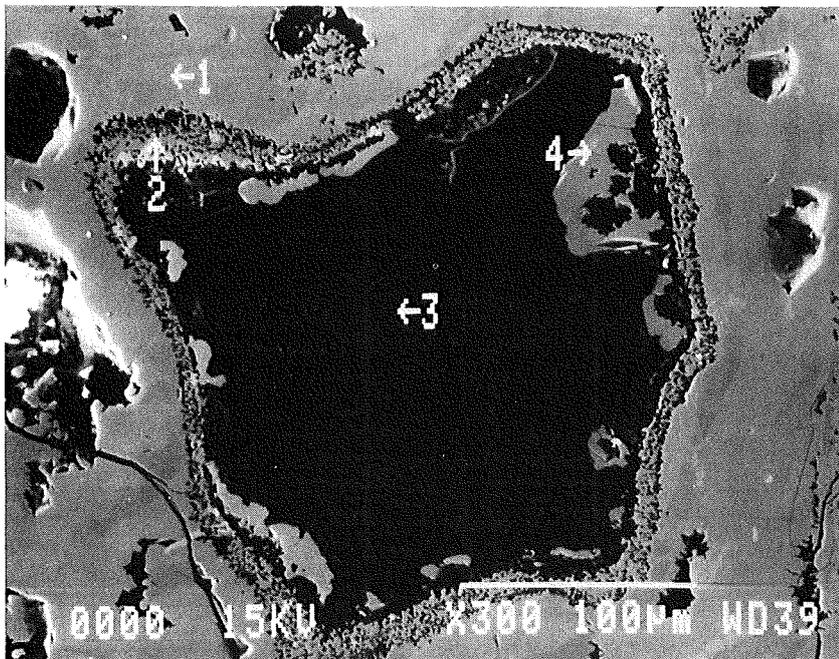


Ni

**Abb. 38** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 4**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	B	KA	15	47
	Cr	KA	23	15
	Mn	KA	1,5	1
	Fe	KA	58	36
	Ni	KA	2	1
	2	B	KA	8
C	KA	36	62	
Si	KA	0,5	0,4	
Cr	KA	5	2	
Mn	KA	1	0,4	
Fe	KA	39	15	
Ni	KA	11	4	
3	B	KA	66	69
	C	KA	34	31
4	B	KA	13	40
	C	KA	4	11
	Cr	KA	15	9
	Mn	KA	2	1
	Fe	KA	61	36
	Ni	KA	5	3

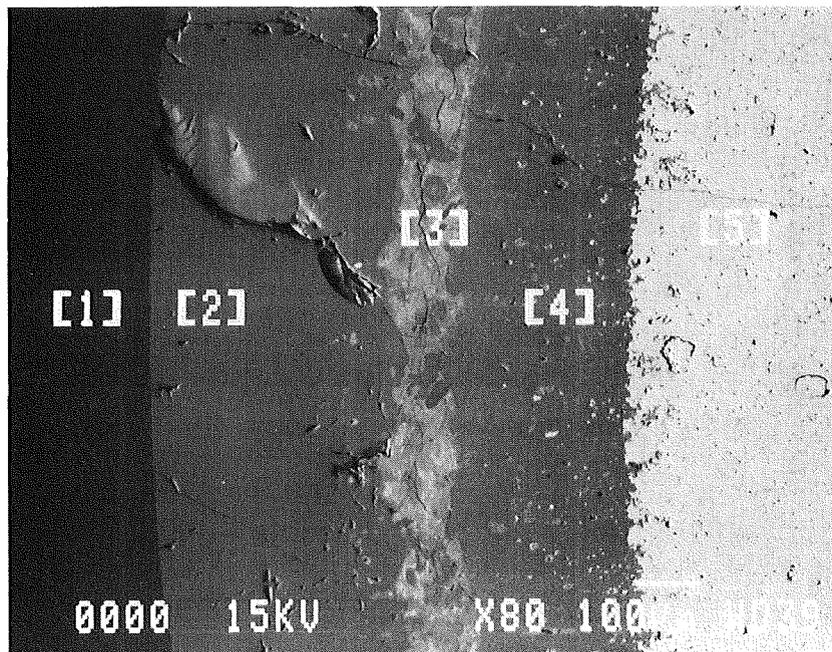
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 39** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 6**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	30	71
	Zr	LA	70	30
2	O	KA	4	18
	Zr	LA	95	81
	Sn	LA	1	1
3	Cr	KA	1,0	1,8
	Fe	KA	10,0	16,0
	Ni	KA	1,9	3,3
	Zr	LA	58,2	63,8
	Sn	LA	5,9	5,0
	U	MA	24,0	10,1
4	O	KA	3	17
	Cr	KA	0,4	0,6
	Fe	KA	1	1,5
	Ni	KA	0,6	0,8
	Zr	LA	89	78
	Sn	LA	1	0,7
	U	MA	5	1,4
5	O	KA	12	68
	U	MA	88	32

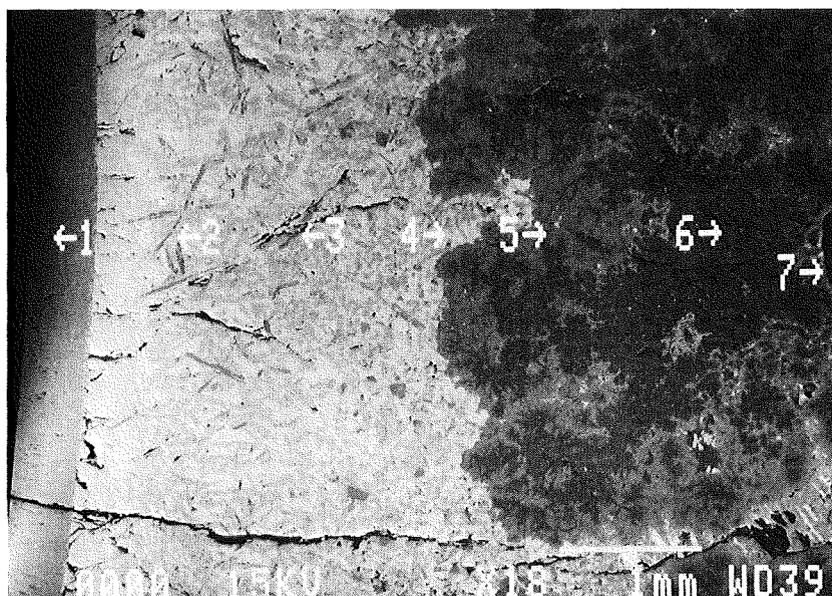
\* Bereichsanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 40** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 7**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	29	69
	Zr	LA	71	31
2	Si	KA	0,5	1,7
	Cr	KA	2,1	3,5
	Fe	KA	11,2	17,4
	Ni	KA	1,8	2,6
	Zr	LA	72,0	68,5
	Sn	LA	4,7	3,5
	U	MA	7,7	2,8
3	Si	KA	0,5	1,4
	Cr	KA	3,2	5,2
	Fe	KA	14,2	21,4
	Ni	KA	2,2	3,2
	Zr	LA	69,7	64,4
	Sn	LA	2,4	1,7
	U	MA	7,8	2,7
4	Si	KA	0,3	0,9
	Cr	KA	2,7	4,4
	Fe	KA	15,3	23,4
	Ni	KA	2,7	4,0
	Zr	LA	67,1	62,8
	Sn	LA	0,7	0,5
	U	MA	11,1	4,0
5	B	KA	15	57
	Si	KA	0,7	1
	Cr	KA	1,7	1,3
	Fe	KA	12	9
	Ni	KA	2	1,4
	Zr	LA	68	30
6	Si	KA	0,6	1,2
	Cr	KA	15,7	16,7
	Mn	KA	1,5	1,6
	Fe	KA	71,4	70,9
	Ni	KA	8,9	8,4
	Zr	LA	1,9	1,2
7	B	KA	6	33
	Cr	KA	3	4
	Mn	KA	0,4	0,4
	Fe	KA	14	15
	Ni	KA	2	2
	Zr	LA	64	43
	Ta	MA	2	0,7
	U	MA	8	2

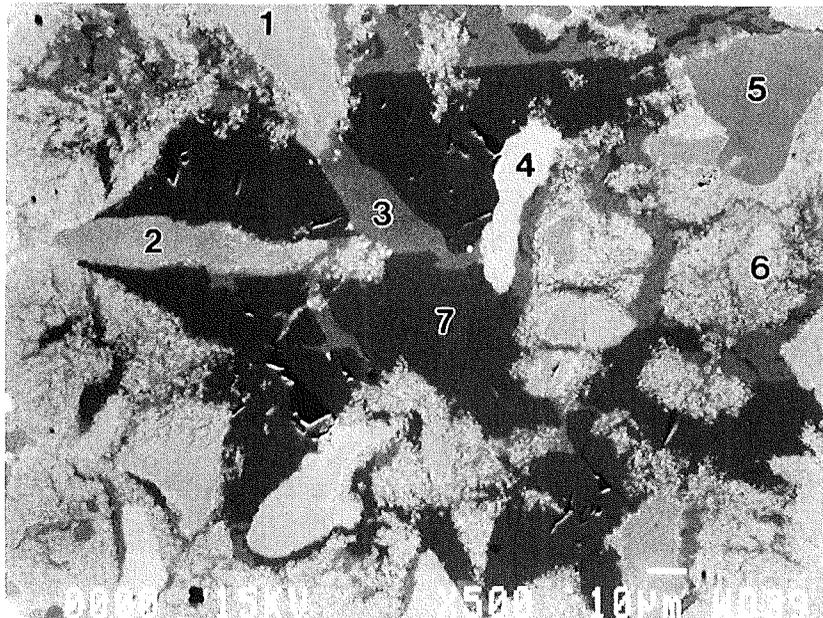
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 41** REM/EDX-Analysergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 5**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	B	KA	14	40
	C	KA	13	35
	Si	KA	0,7	0,7
	Zr	LA	72	24
2	B	KA	13	39
	C	KA	13	35
	Si	KA	0,6	0,6
	Zr	LA	73	25
3	C	KA	7	25
	Si	KA	0,7	1
	Cr	KA	4	3
	Mn	KA	1,7	1,4
	Fe	KA	72	58
	Ni	KA	15	11
4	B	KA	14	40
	C	KA	13	34
	Si	KA	0,5	0,6
	Fe	KA	1	0,5
	Zr	LA	72	25
5	B	KA	14	39
	C	KA	14	36
	Si	KA	0,4	0,5
	Zr	LA	71	24
6	B	KA	15	53
	Cr	KA	1	1
	Mn	KA	1	0,7
	Fe	KA	29	21
	Ni	KA	6	4
	Zr	LA	46	20
	Ta	MA	1	0,3
7	B	KA	5	18
	C	KA	5	16
	O	KA	5	10
	Cr	KA	31	21
	Fe	KA	52	34
	Ni	KA	1,4	0,9
	Zr	LA	0,3	0,1

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert

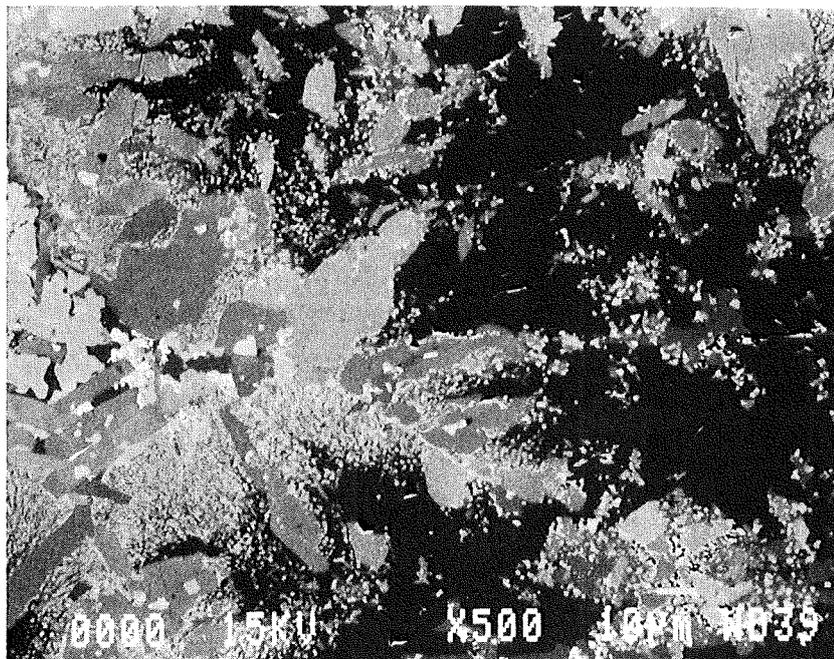


**Abb. 42** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16 / Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 5**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
a	B	KA	16	55
	C	KA	0	0
	Si	KA	0,4	0,6
	Cr	KA	7	5
	Mn	KA	0,7	0,5
	Fe	KA	26	17
	Ni	KA	3	2
	Zr	LA	47	20

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert

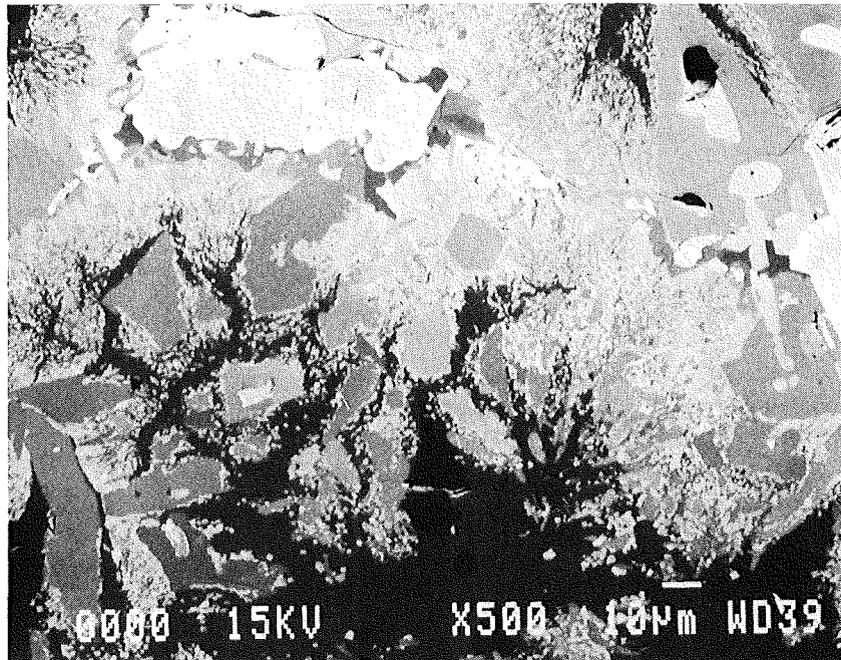


**Abb. 43** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 5**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
b	B	KA	16	48
	C	KA	3	9
	O	KA	4	9
	Cr	KA	6	4
	Mn	KA	0,4	0,3
	Fe	KA	17	10
	Ni	KA	2,3	1,3
	Zr	LA	50	18
	U	MA	1	0,1

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert

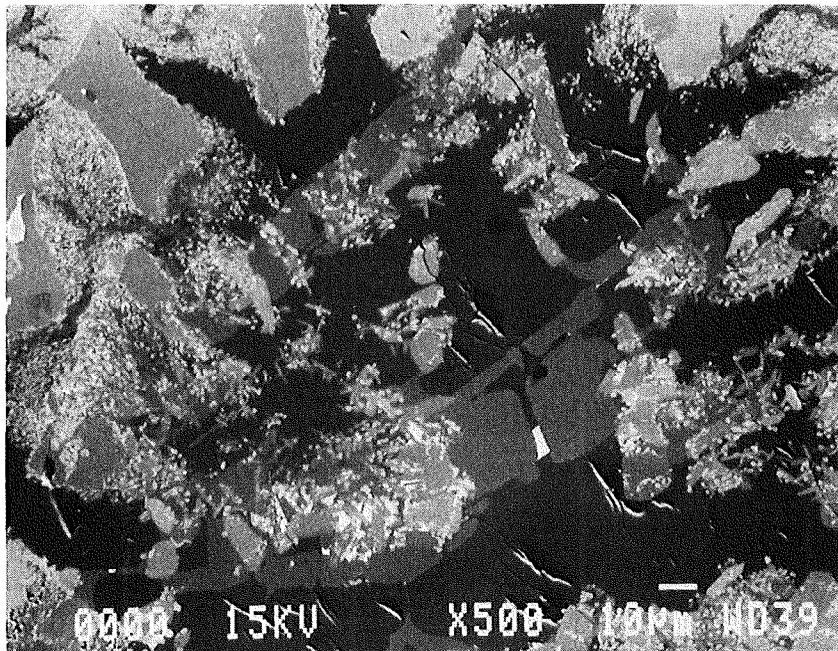


**Abb. 44** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16 / Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 5**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
c	B	KA	20	60
	C	KA	0	0
	Si	KA	0,3	0,3
	Cr	KA	10	6
	Mn	KA	1	0,5
	Fe	KA	35	20
	Ni	KA	3	2
	Zr	LA	31	11

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert

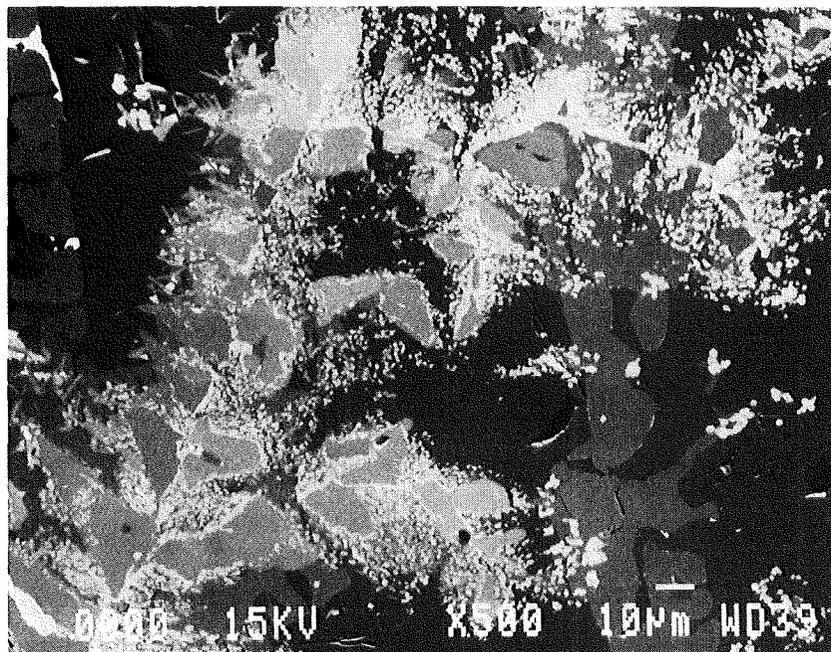


**Abb. 45** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 5**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
d	B	KA	7	29
	C	KA	1	3
	Si	KA	0,4	0,7
	Cr	KA	14	12
	Mn	KA	1,4	1,1
	Fe	KA	49	39
	Ni	KA	5	4
	Zr	LA	22	11

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert

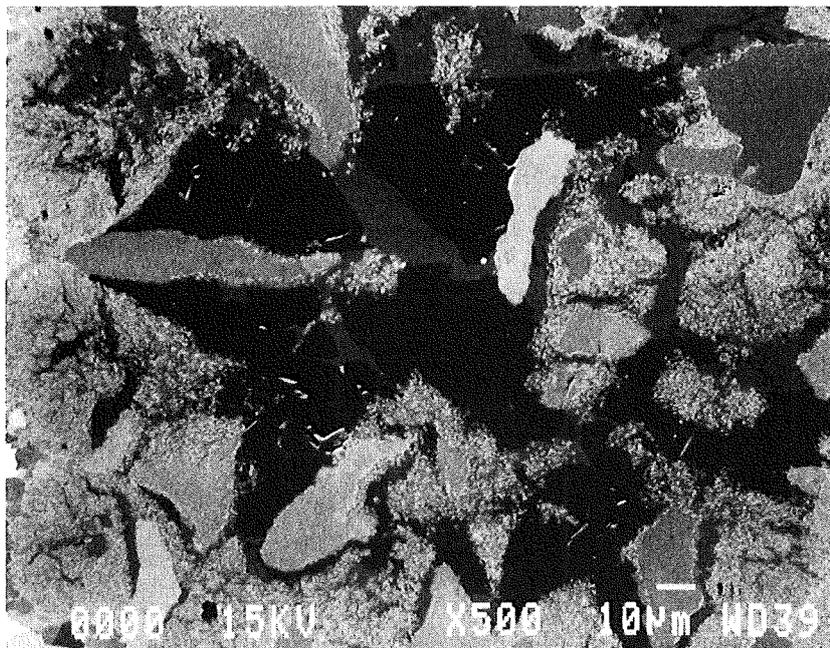


**Abb. 46** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 5**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
e	B	KA	12	47
	C	KA	0	0
	Si	KA	0,4	0,6
	Cr	KA	7	6
	Mn	KA	0,7	0,6
	Fe	KA	27	21
	Ni	KA	3,5	3
	Zr	LA	49	22

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert

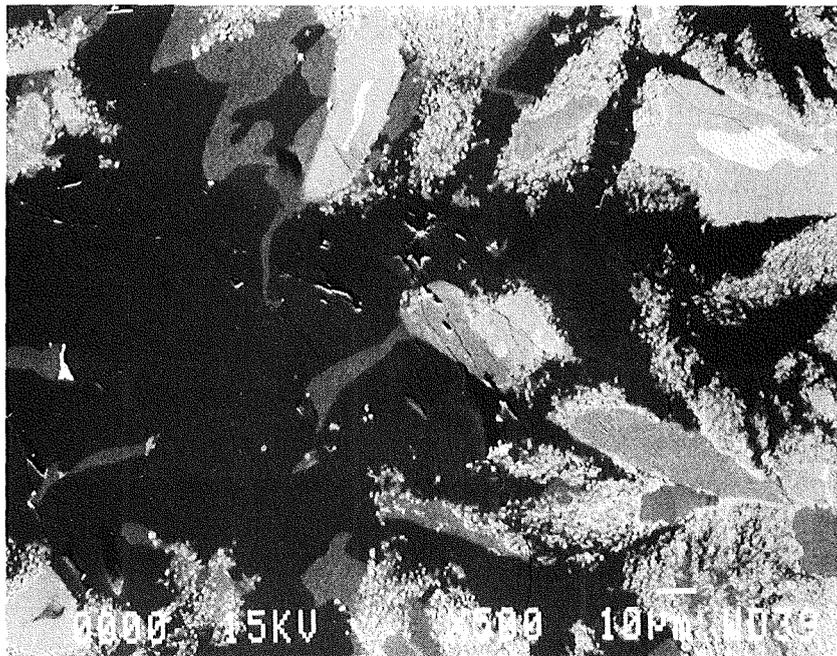


**Abb. 47** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 01, oben**  
**Bereich Nr. 5**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
f	B	KA	15	50
	Si	KA	0,3	0,3
	Cr	KA	14	10
	Mn	KA	1	0,7
	Fe	KA	41	27
	Ni	KA	3	2
	Zr	LA	25	10

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert



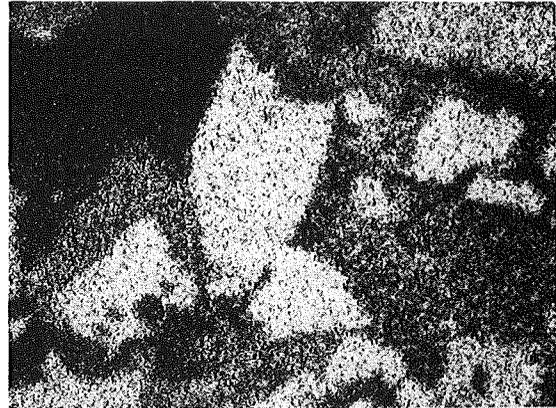
# Abb. 48 CORA-16 / Probe 01 oben / Bereich Nr. 5

BE-Abbildung und Röntgenverteilung ( X-ray maps )

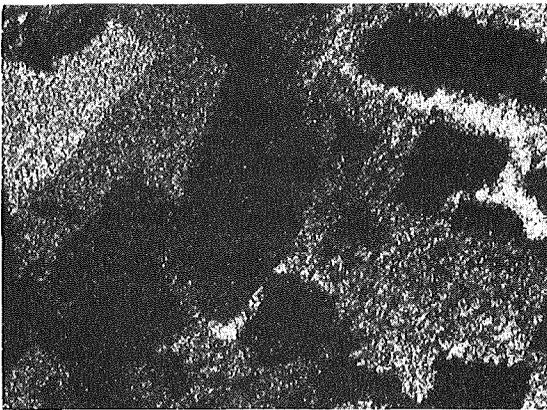


Abb.

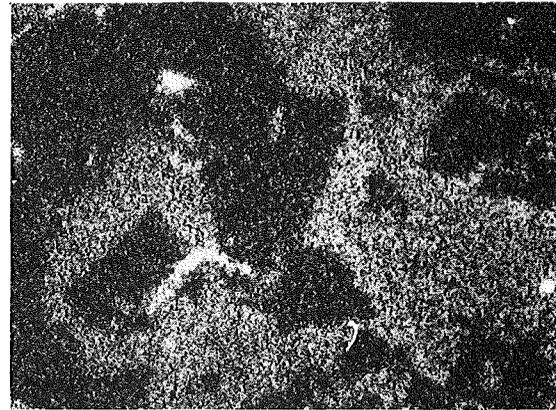
10µm



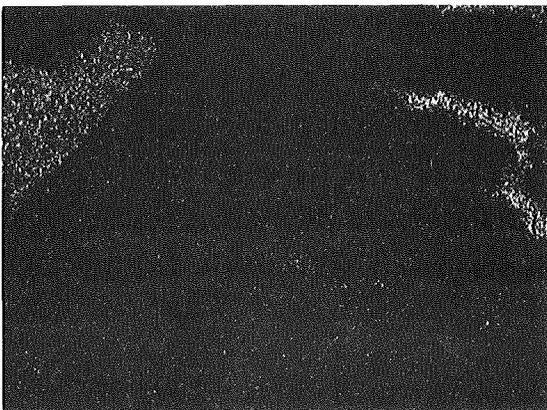
B



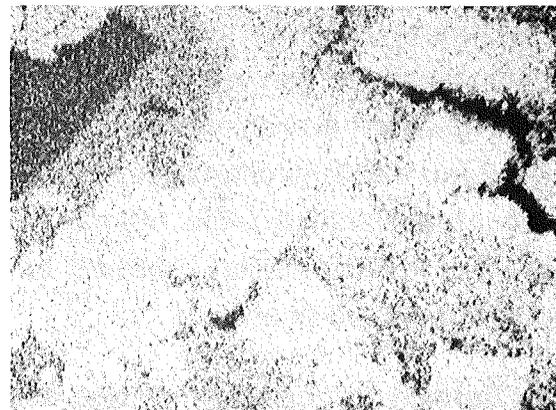
Fe



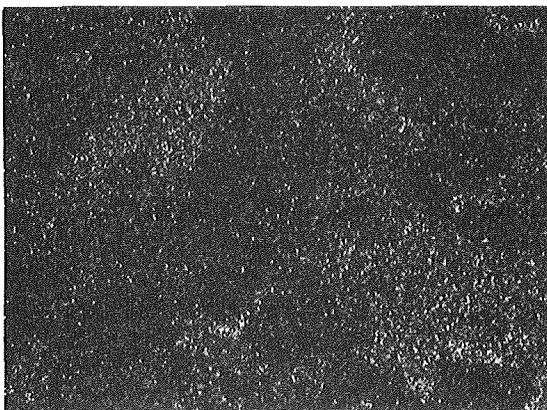
C



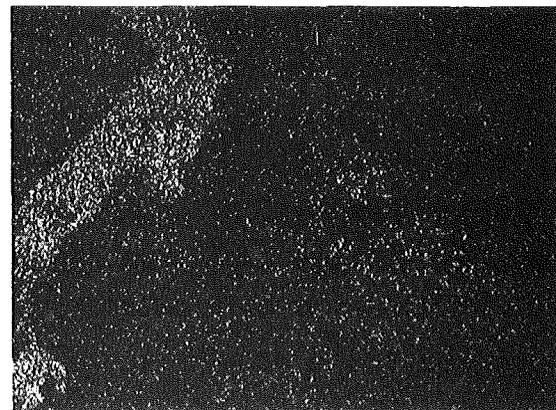
Cr



Zr



Ni



U

## 5.4 Versuchsprobe Nr. 09

Von den ausgewählten Versuchsproben ist dies die am meisten zerstörte Probe mit der höchsten Temperaturbelastung. In Abbildung Nr. 49 sind die Querschleifprobe im Maßstab 1 : 1, der Bereichsausschnitt A im Maßstab 3 : 1 sowie die REM/EDX-Analysenpositionen übersichtlich dargestellt.

Bei der visuellen Überprüfung der Querschleifabbildung erkennt man, daß die Zry-Hüllrohre nahezu überall verschwunden oder als aufgebogene Restrohrstücke vorhanden sind. Die Schmelzen um den Bereich der Absorberstäbe sind teils in tieferliegende Bündelebenen abgeflossen. Die Absorberstäbe sind nur noch als unförmige Gebilde vorhanden oder ganz verschwunden. Von den UO<sub>2</sub>-Pellets sind Teilbereiche an- bzw. abgeschmolzen. Von dem Dampfführungsrohr sind nur noch Bruchstücke in der Schleifprobe erkennbar.

Als Schmelzzonen bleiben nur die Reste um den ehemaligen Absorberkasten herum erhalten. Im Analysenbereich Nr. 1 wurden fünf Integralanalysen und von einem Integralanalysenbereich auch Punktanalysen erstellt (Abb. 50 bis 55). Bei den Integralanalysen Nr. a bis e (Abb. 50 - 54) wurden unterschiedliche Ergebnisse ermittelt. Bei den Punktanalysen (Abb. 55) wurden hauptsächlich ZrB<sub>2</sub>, reines Zr, (Zr, C)-Verbindungen sowie Phasen aus O, Zr und U gefunden. Die Abbildung der Röntgenverteilung (Abb. 56) soll die Materialzusammensetzung der verschiedenen Phasen räumlich veranschaulichen. Im Analysenbereich Nr. 2 wurden fünf Integralanalysen von verschiedenen Positionen erstellt (Abb. 57 bis 61). Die Analyseergebnisse waren ebenfalls sehr unterschiedlich. Der Bereich Nr. 5 (Abb. 68 bis 69) kann als Kontrollanalyse für die Bereiche Nr. 1 und Nr. 2 angesehen werden. Die Integralanalyse (Abb. 68) paßt in das Bild der Analysen von der Restschmelze. Bei den Punktanalysen (Abb. 69) erkennt man hauptsächlich ZrB<sub>2</sub>- sowie Chrom- und Eisenborid-Phasen.

Im Bereich Nr. 3 und Nr. 4, den Resten der B<sub>4</sub>C-Absorberstäbe (Abb. 62 bis 67), wurden sowohl Integralanalysen als auch Punktanalysen erstellt. Das an den chemischen Reaktionen sehr stark beteiligte Bor ist in den ehemaligen B<sub>4</sub>C-Partikeln nicht mehr vorhanden. An diesen Positionen findet man nur noch Kohlenstoff. Die Phasen um die C-Reste bestehen hauptsächlich aus den Verbindungen von B mit Cr und Fe und B mit Zr oder in Einzelfällen aus Zr mit U. Bei den Punktanalysen wurden folgende Phasentypen analysiert:

Bereich	Pos.	Wichtigste Elemente (Gew. %)							Anmerkung
		B	C	Cr	Fe	Ni	Zr	U	
3	2	0	95		1,5				ehemals B <sub>4</sub> C Korn
4	1	0	94		1,5				
4	2	0	92		1,1				
4	3	0	95		1,0				
3	3	14	2	26	53	2			Fe-Cr-B Phase
4	5	12	0	45	43	0			
3	1	13	0	17	65	3			
4	4	19	0		1		80		ZrB <sub>2</sub>
3	4	14	10	23	13	0,8	38		
4	8				1,8		70,1	28,1	Zr- U Phase
4	7				2		71,0	24,0	
4	6			8	83,3	6,5			Fe reiche "Stahlphase"

Im Bereich Nr. 6 und Nr. 7 von UO<sub>2</sub>-Brennstoff und Zry-Hüllrohr (Abb. 70 bis 72) werden (U, Zr)O<sub>2</sub> Verbindungen mit schwankender Elementezusammensetzung analysiert. In Einzelfällen wurden bis zu 3 Gew. % Fe in unmittelbarer Nähe zu den UO<sub>2</sub>-Pellets nachgewiesen.

Das Dampfführungsrohr in den Bereichen Nr. 8 und Nr. 9 besteht aus vielen Bruchstücken und ist teilweise voll zu ZrO<sub>2</sub> oxidiert (Abb. 73). Oftmals sind die Reste des Dampfführungsrohres durch anhaftende Schmelzen und die resultierenden Reaktionen chemisch verändert. Die Analysenergebnisse zeigen unterschiedliche (Zr,O)-Phasen, sowie Reaktionsprodukte aus den Elementen Cr, Fe, Ni und Sn (Abb. 74 - 78). Bei dem Bereich Nr. 10 (Abb. 79) ist ungewiß, ob das Reststück von dem Dampfführungsrohr oder von einem Zry-Hüllrohr stammt. Der Urananteil bei den Analysenergebnissen deutet allerdings auf ein Zry-Hüllrohrfragment hin.

## Kurzfassung der wichtigsten Analysenergebnisse von der Probe 09

### UO<sub>2</sub>-Brennstoff und Zry-Hüllrohr

Bereich Nr. 6 und Nr. 7

(Abb. 70 bis 72) Das Zry-Hüllrohr ist fast überall abgeschmolzen. Uran, Zr und Sauerstoff bilden Phasen mit unterschiedlicher Zusammensetzung.

### B<sub>4</sub>C-Absorberstab mit Edelstahl-Hüllrohr

Bereich Nr. 3 und Nr. 4

(Abb. 62 bis 67) In den ehemaligen B<sub>4</sub>C-Kornzonen findet man nur noch C. Bevorzugt bilden sich ZrB<sub>2</sub> bzw. Phasen mit Fe, Cr und B.

### Edelstahl-Absorberkasten

Bereich Nr. 1, 2 und Nr. 5

(Abb. 50 bis 61, 68 und 69) Der Absorberkasten ist in den Bereich der Schmelze einbezogen. Es bilden sich viele verschiedene Phasen. Bevorzugt wurde die Bildung von ZrB<sub>2</sub>, Zr-U- sowie Fe-Cr-B-Phasen beobachtet.

### Schmelzzonen

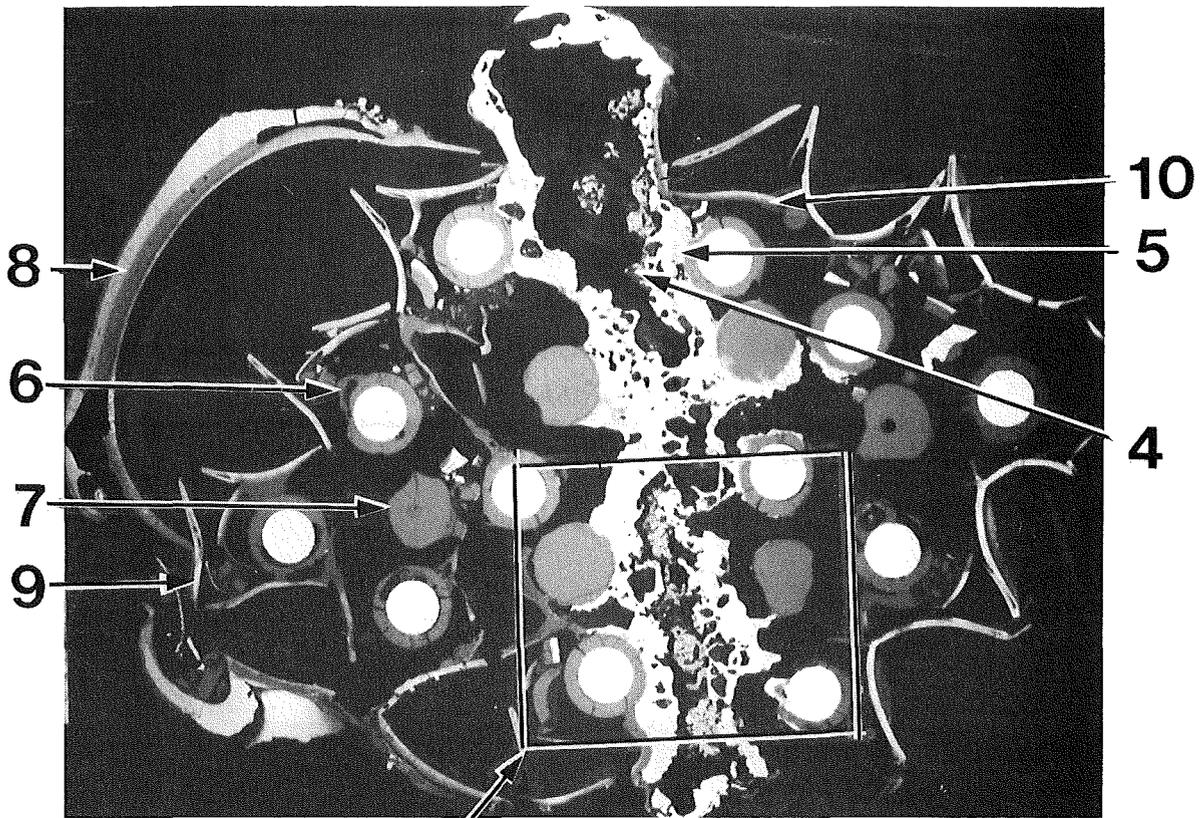
Siehe oben. Es sind keine separaten Schmelzen mehr vorhanden.

### Dampfführungsrohr (shroud)

Bereich Nr. 8 bis 10

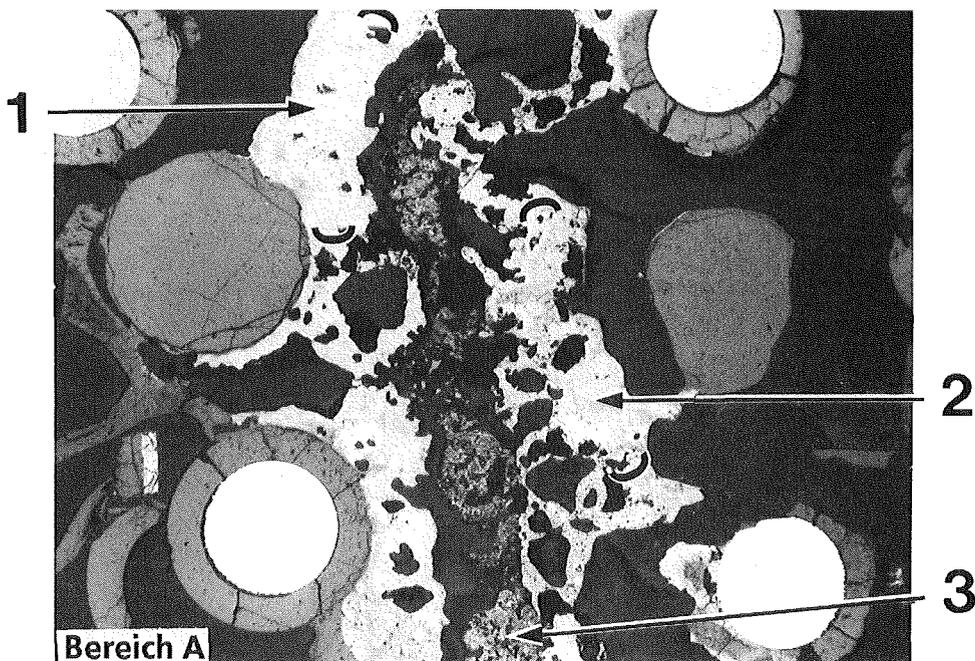
(Abb. 73 bis 79) Das Dampfführungsrohr ist meist nur noch in Form oxidierter ZrO<sub>2</sub>-Bruchstücke vorhanden. Große Anteile sind mit einer erstarrten Schmelze umgeben. Kontaktreaktionen mit den Schmelzen führten zu verschiedenen Zr-Verbindungen mit O, U sowie den Stahlbestandteilen.

**Abb.49 REM/EDX-Analysenpositionen vom Bündelabschmelzexperiment  
CORA-16 / Probe Nr. 09  
(Bündelhöhe = 525 mm)**



**Bereich A**

**Maßstab 1 : 1**



**Bereich A**

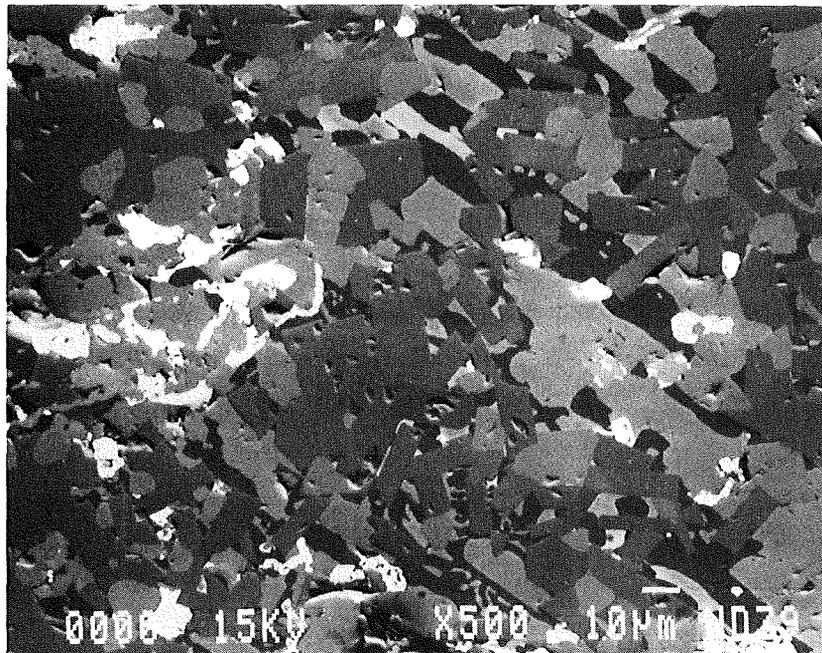
**Maßstab 3 : 1**

**Abb. 50** REM/EDX-Analyseenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 1**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
a	B	KA	11	44
	O	KA	3	8
	Si	KA	0,2	0,2
	Cr	KA	4	4
	Fe	KA	18	14
	Ni	KA	3	2
	Zr	LA	56	27
	U	MA	6	1

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert

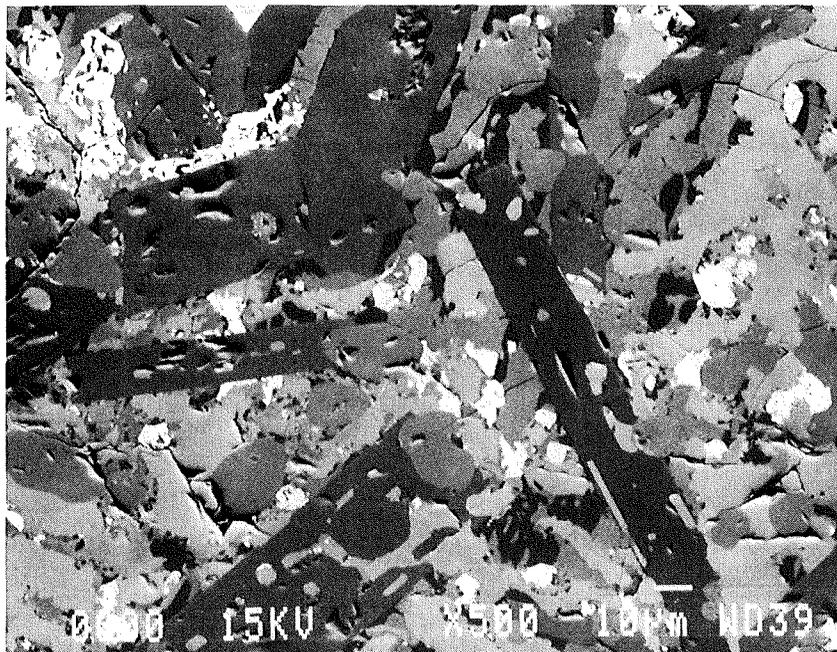


**Abb. 51** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 1**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
b	B	KA	2	10
	O	KA	9	33
	Si	KA	0,03	0,06
	Cr	KA	2	2
	Fe	KA	10	11
	Ni	KA	2	2
	Zr	LA	60	38
	U	MA	15	4

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert



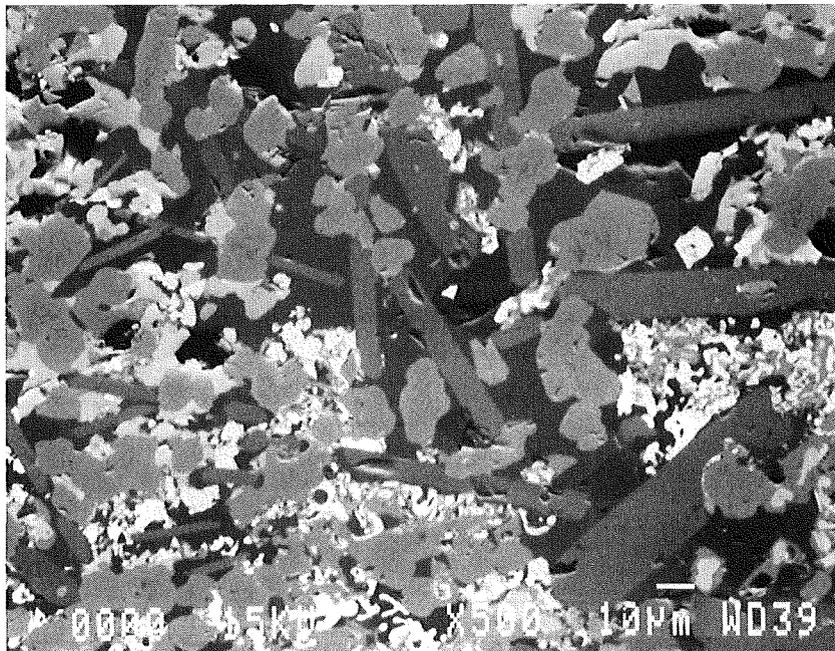
**Abb. 52** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 09**

Bereich Nr. 1

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
c	B	KA	0	0
	O	KA	5	22
	Cr	KA	6	7
	Mn	KA	0,7	0,9
	Fe	KA	20	24
	Ni	KA	3	4
	Zr	LA	52	38
	U	MA	13	4

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert

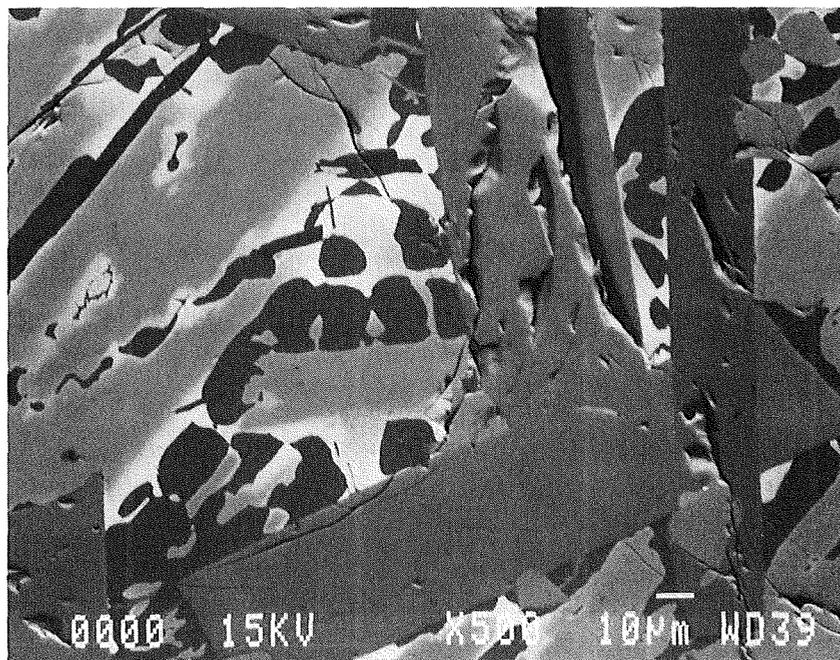


**Abb. 53** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 1**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
d	O	KA	2	10
	Cr	KA	8	10
	Mn	KA	0,7	0,9
	Fe	KA	32	38
	Ni	KA	5	6
	Zr	LA	43	32
	Sn	LA	2	1
	U	MA	7	2

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert

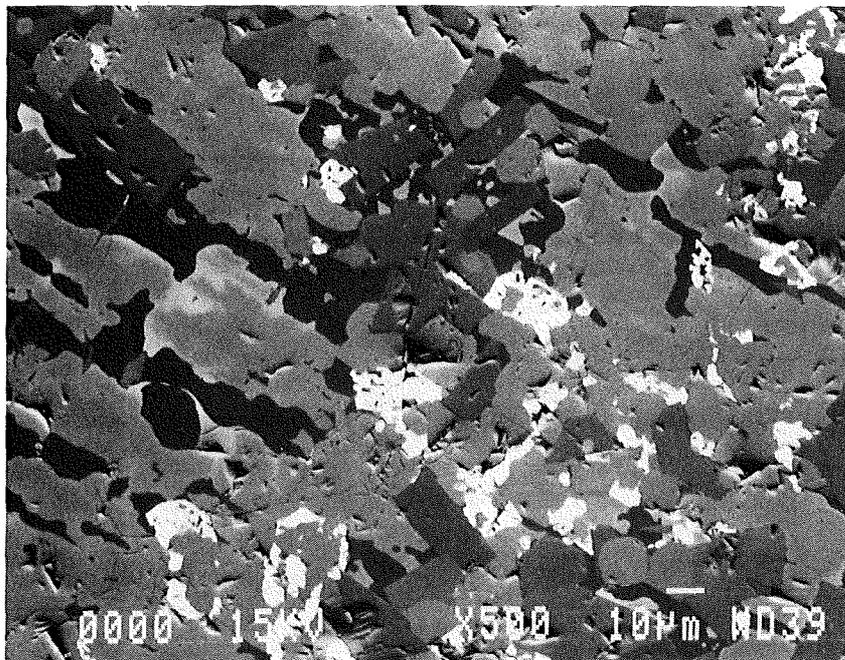


**Abb. 54** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 1**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
e	O	KA	3	12
	Cr	KA	8	10
	Mn	KA	0,6	0,7
	Fe	KA	31	37
	Ni	KA	5	6
	Zr	LA	43	32
	Sn	LA	1,5	0,8
	U	MA	8	2

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

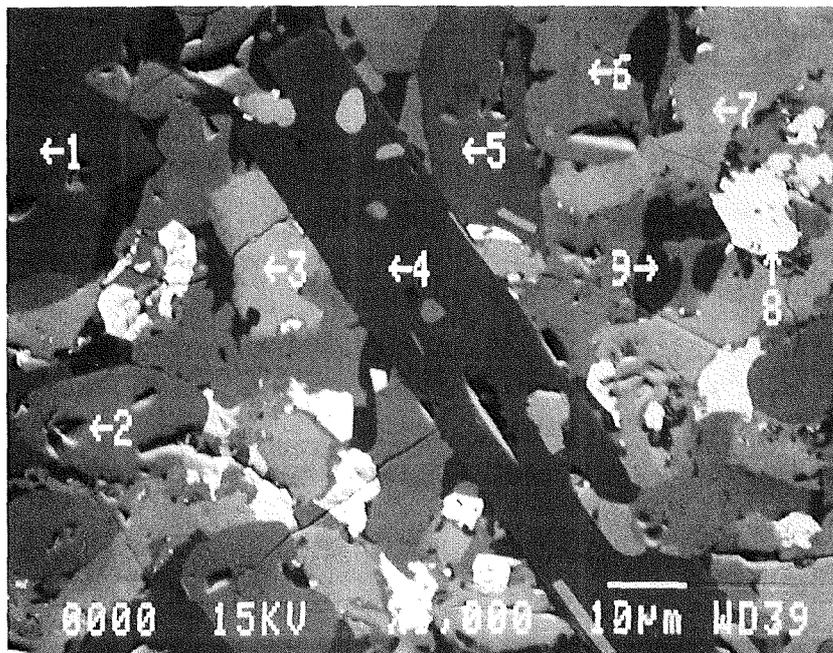
\* auf 100 % normalisiert



**Abb. 55** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 09**  
 Bereich Nr.1

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	B	KA	16	61
	Zr	LA	84	39
2	Zr	LA	100	100
3	O	KA	16	58
	Zr	LA	50	33
	U	MA	34	9
4	B	KA	16	61
	Zr	LA	84	39
5	O	KA	2	9
	Fe	KA	1	1,5
	Zr	LA	96	89
	U	MA	0,7	0,3
6	Zr	LA	100	100
7	O	KA	17	59
	Zr	LA	55	34
	U	MA	28	7
8	O	KA	14	67
	Zr	LA	7	6
	U	MA	79	27
9	Si	KA	0,3	0,5
	Cr	KA	24,6	25,9
	Mn	KA	0,9	0,9
	Fe	KA	71,3	69,9
	Ni	KA	2,9	2,8

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



# Abb. 56 CORA-16 / Probe 09 / Bereich Nr. 1

BE-Abbildung und Röntgenverteilung ( X-ray maps )

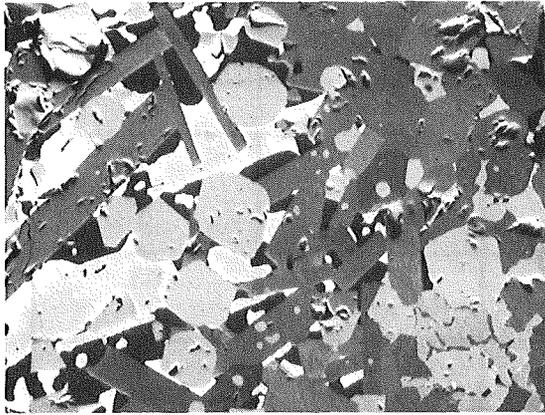
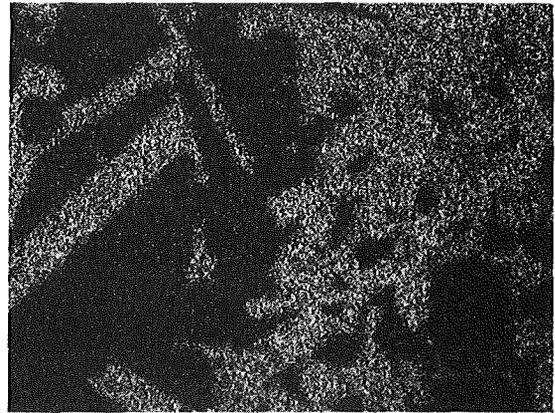
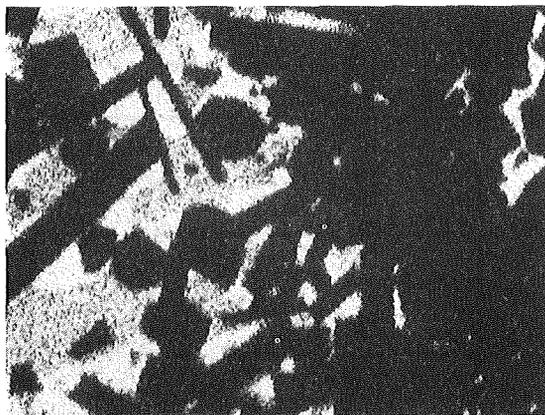


Abb.

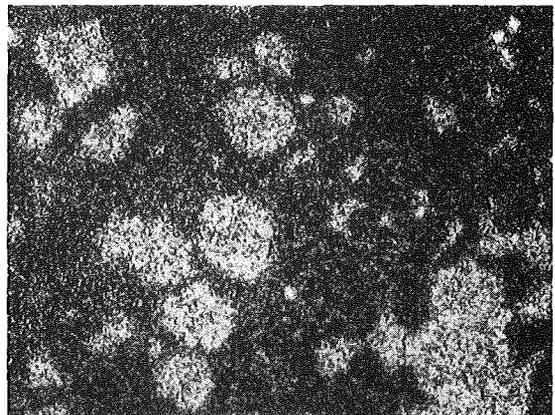


B

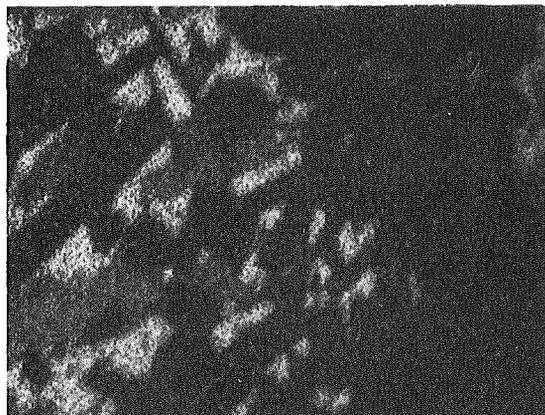
10µm



Fe



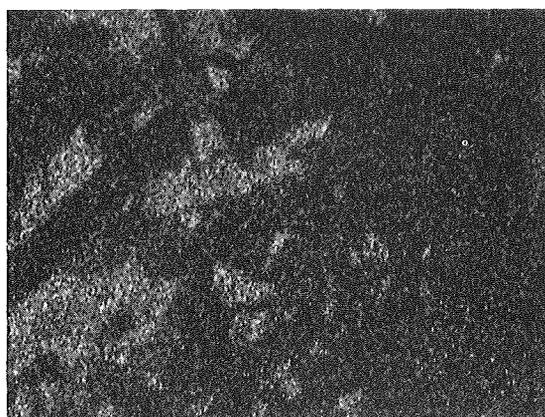
C



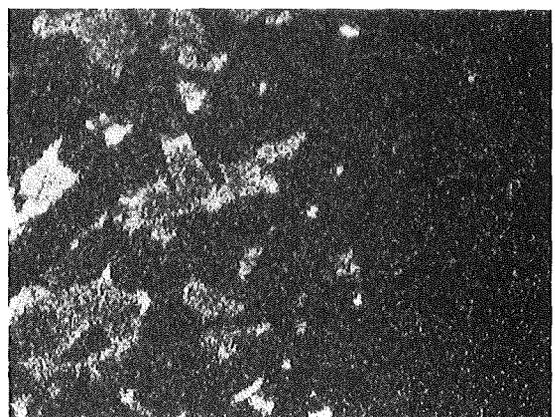
Cr



Zr



Ni



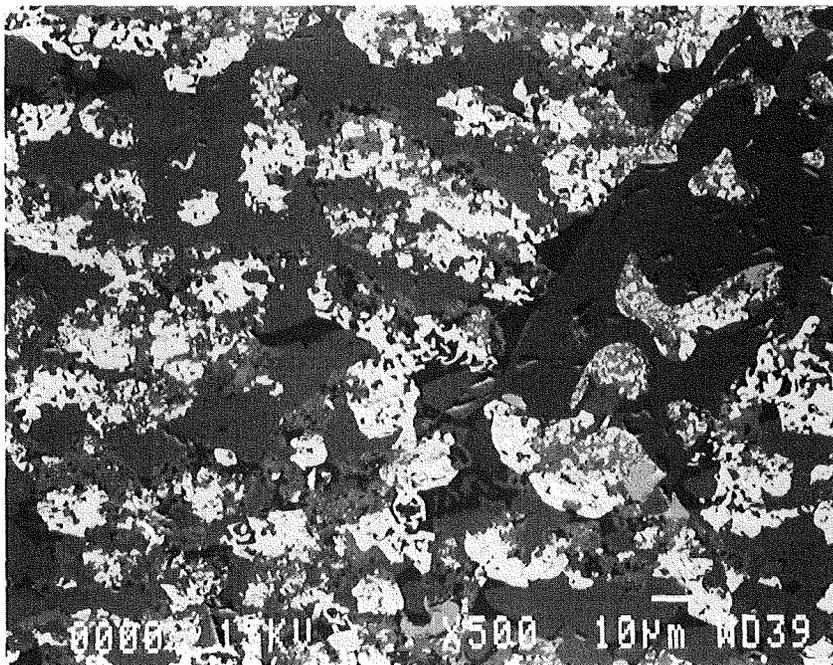
U

**Abb. 57** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 09**  
Bereich Nr. 2

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
a	O	KA	6	25
	Cr	KA	5	7
	Mn	KA	1	1,4
	Fe	KA	19	24
	Ni	KA	3	4
	Zr	LA	37	29
	U	MA	28	9

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert

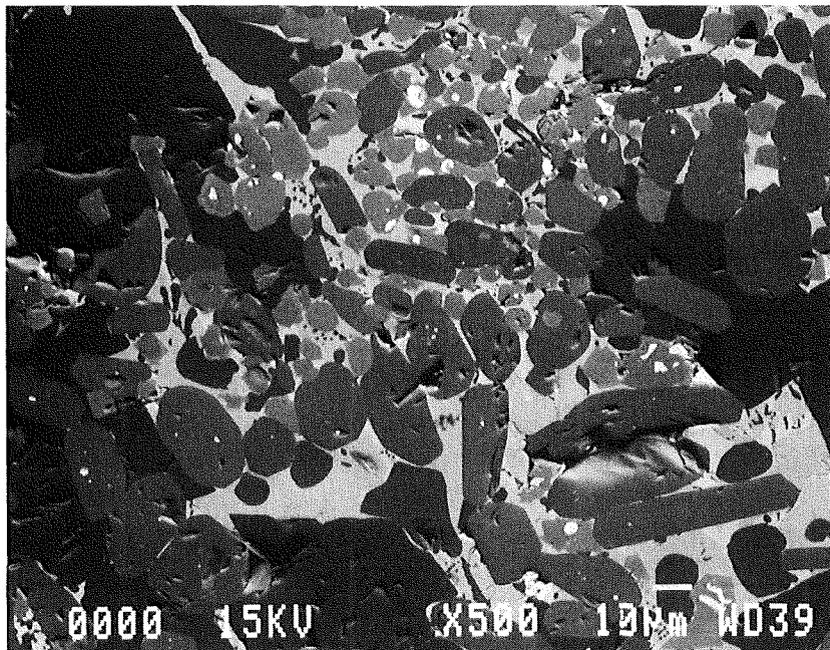


**Abb. 58** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 2**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
b	B	KA	15	53
	Cr	KA	11	8
	Mn	KA	1,2	0,9
	Fe	KA	28	20
	Ni	KA	3	2
	Zr	LA	36	15
	U	MA	6	1

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert

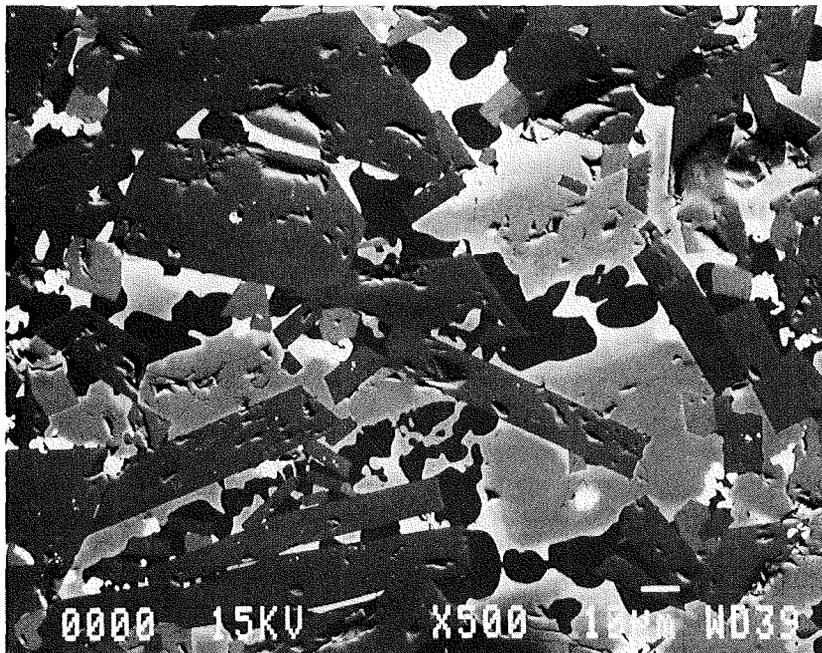


**Abb. 59** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 09**  
Bereich Nr. 2

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
c	B	KA	17	61
	Cr	KA	4	3
	Mn	KA	0,6	0,4
	Fe	KA	14	10
	Ni	KA	2,5	1,6
	Zr	LA	54	23
	Sn	LA	1	0,3
	U	MA	7	1

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert



## Abb. 60 REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment

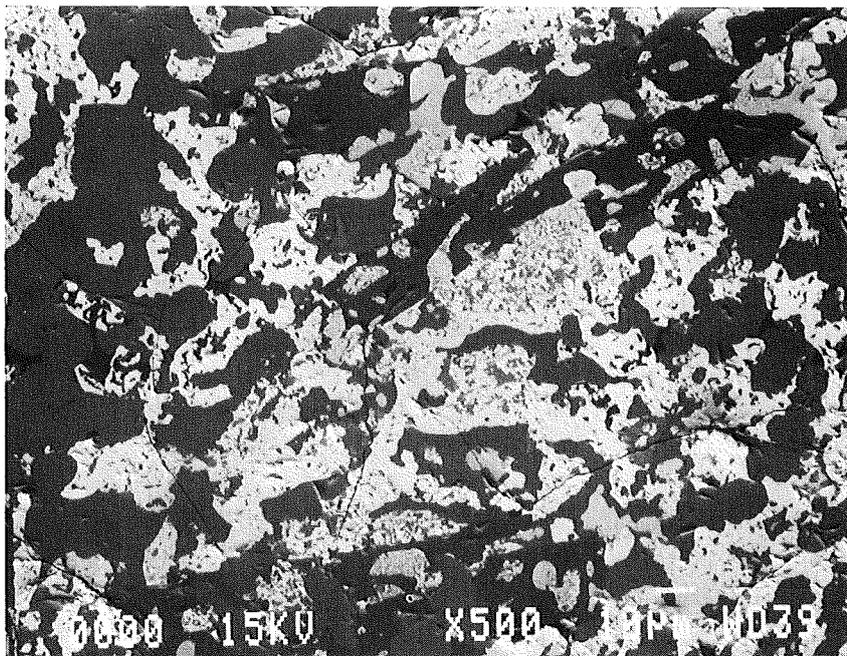
## CORA-16 / Probe Nr. 09

## Bereich Nr. 2

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
d	B	KA	5	24
	O	KA	7	26
	Cr	KA	4	4
	Mn	KA	0,6	0,6
	Fe	KA	13	13
	Ni	KA	2,5	2,5
	Zr	LA	34	22
	U	MA	34	8

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert

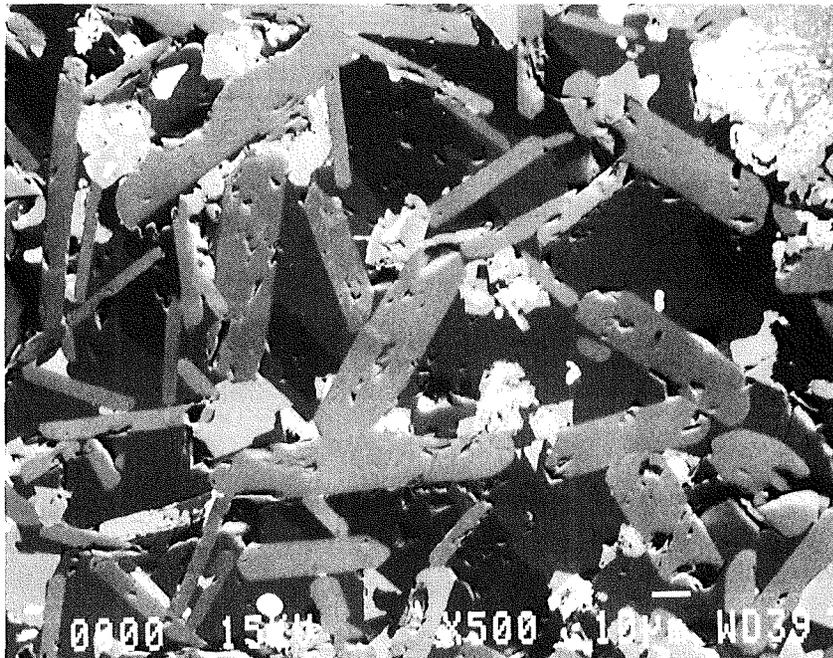


**Abb. 61** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 2**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
e	B	Ka	21	63
	O	KA	1	2
	Cr	KA	6	4
	Fe	KA	22	13
	Ni	KA	4	2
	Zr	LA	41	15
	Sn	LA	1,5	0,4
	U	MA	3	0,5

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert



**Abb. 62** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16 / Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 3**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
a	B	KA	7	13
	C	KA	42	69
	Si	KA	0,3	0,2
	Cr	KA	8	3
	Mn	KA	1	0,4
	Fe	KA	32	11
	Ni	KA	6	2
	Zr	LA	4	1

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert

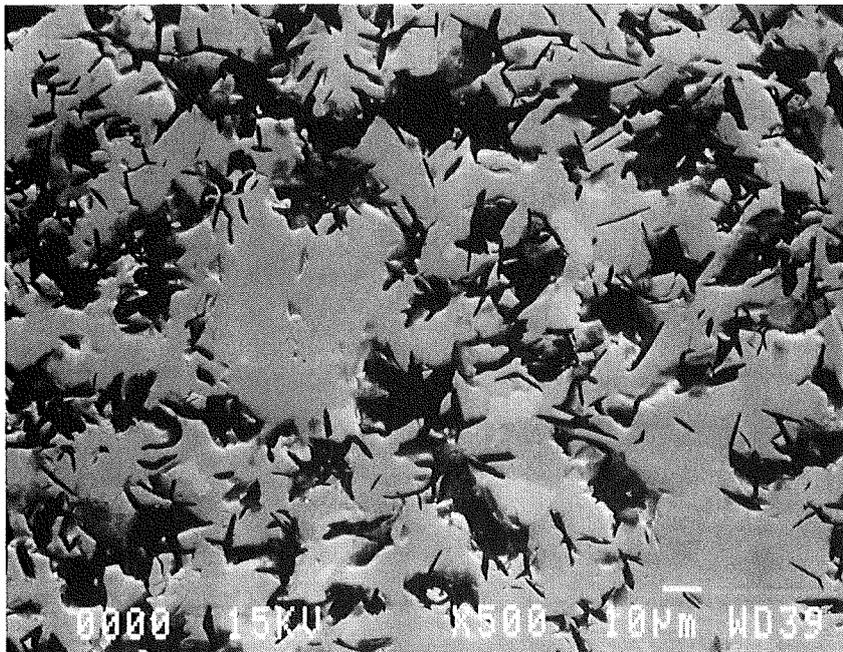


Abb. 63 REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment

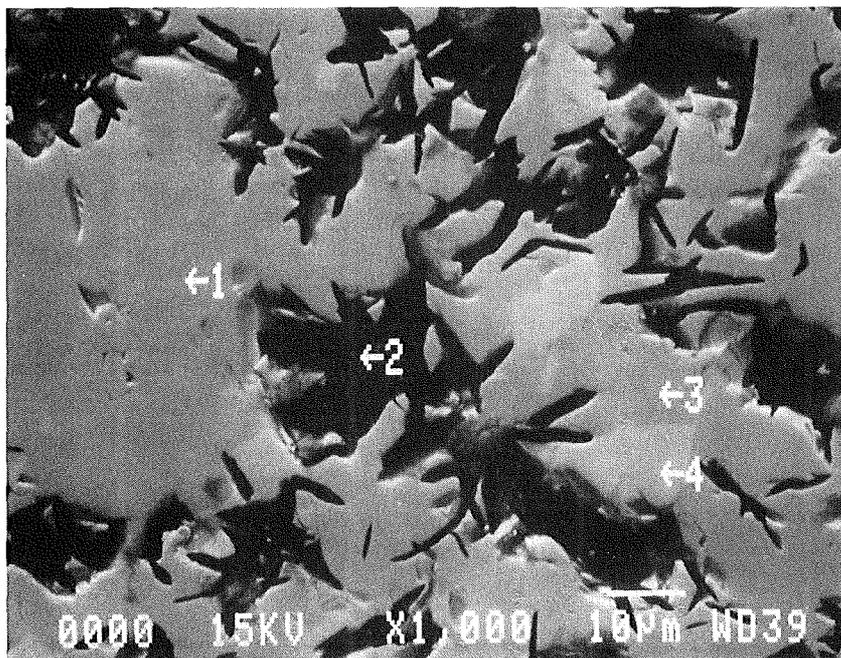
**CORA- 16/ Probe Nr. 09**

**Bereich Nr. 3**

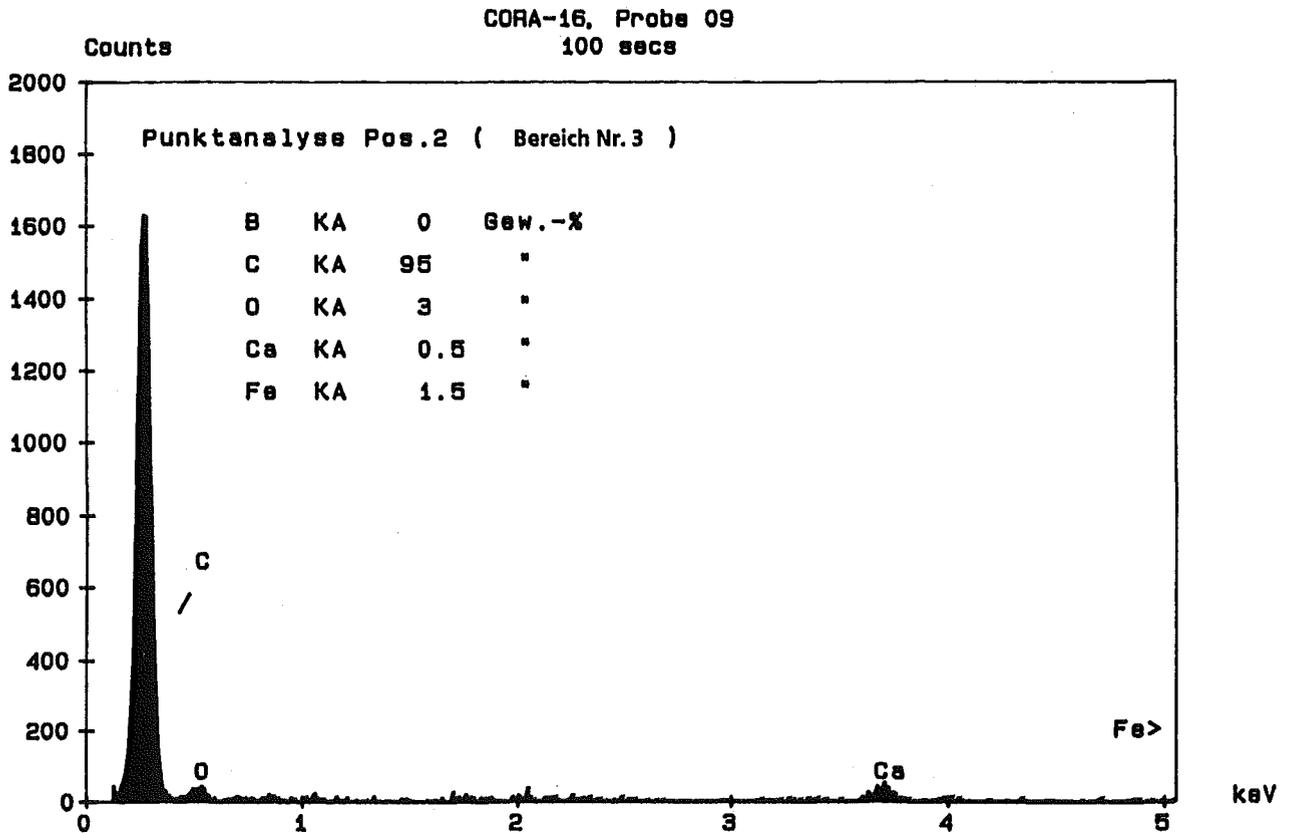
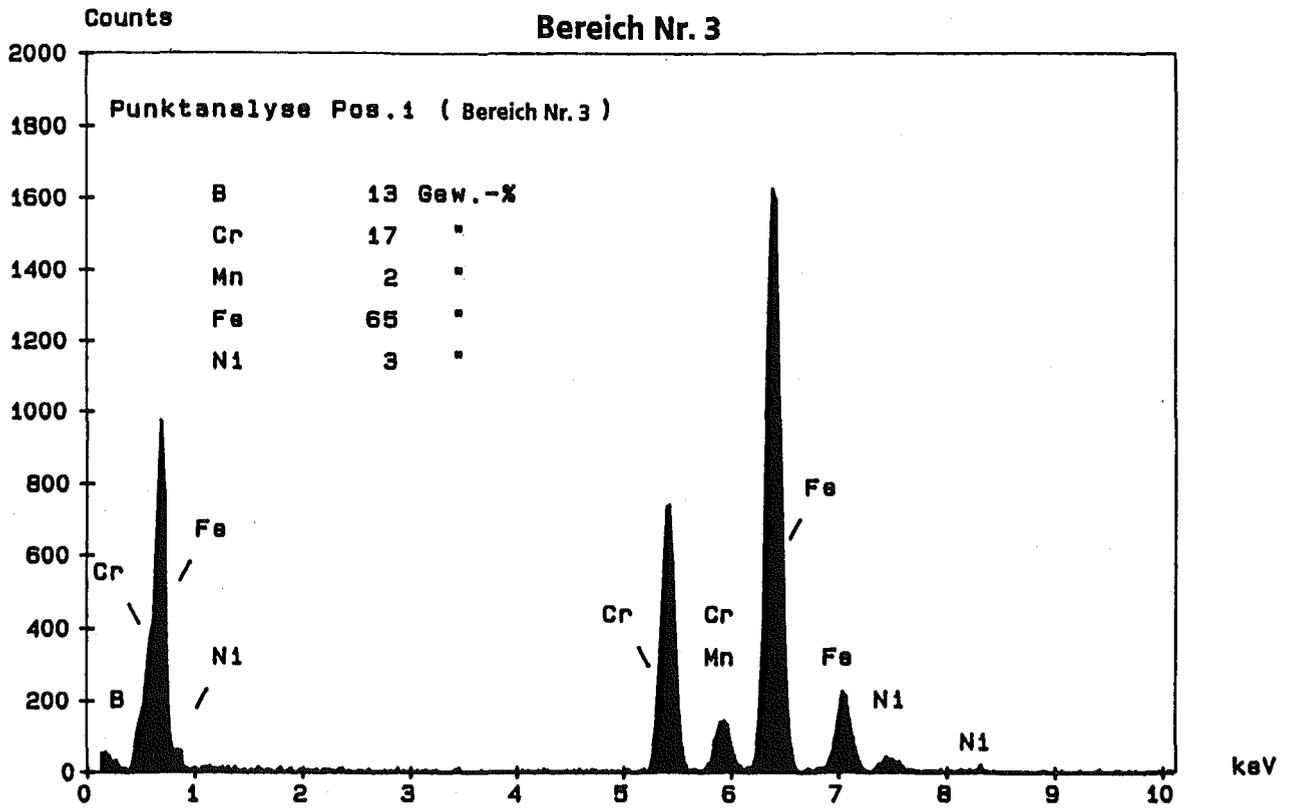
REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	B	KA	13	44
	Cr	KA	17	12
	Mn	KA	2	1
	Fe	KA	65	41
	Ni	KA	3	2
	2	B	KA	0
C	KA	95	97	
O	KA	3	2,5	
Ca	KA	0,5	0,2	
Fe	KA	1,5	0,3	
3	B	KA	14	44
	C	KA	2	6
	Cr	KA	26	17
	Mn	KA	2	1
	Fe	KA	53	31
	Ni	KA	2	1
	4	B	KA	14
C	KA	10	25	
Cr	KA	23	14	
Mn	KA	0,8	0,5	
Fe	KA	13	7	
Ni	KA	0,8	0,4	
Zr	LA	38	13	

Punktanalysen,

\* auf 100 % normalisiert

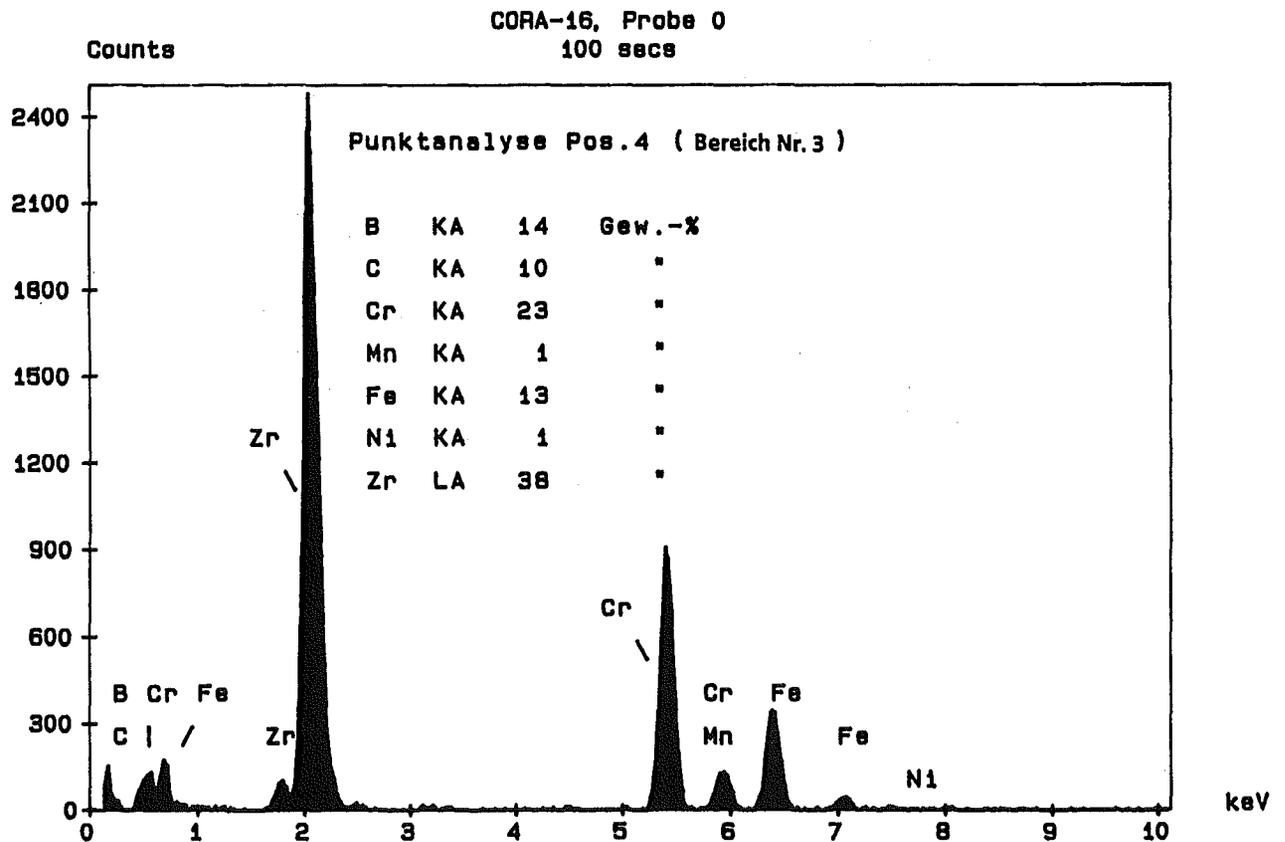
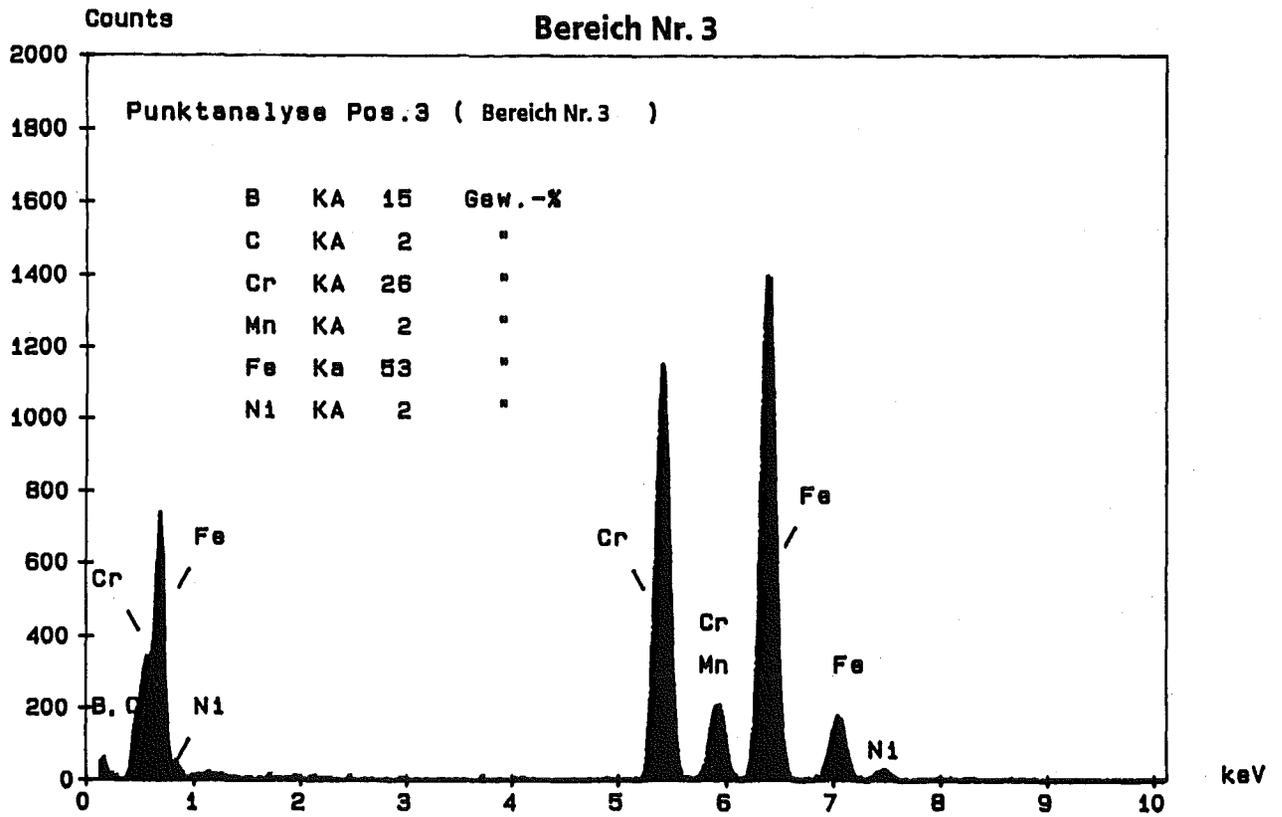


**Abb. 64** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA-16/ Probe Nr. 09**



EDX-Analysenspektren in Verbindung mit  
den leichten Elementen (B, C, O)

Abb. 65 REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
 CORA- 16/ Probe Nr. 09



EDX-Analysenspektren in Verbindung mit  
 den leichten Elementen (B, C)

**Abb. 66** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment

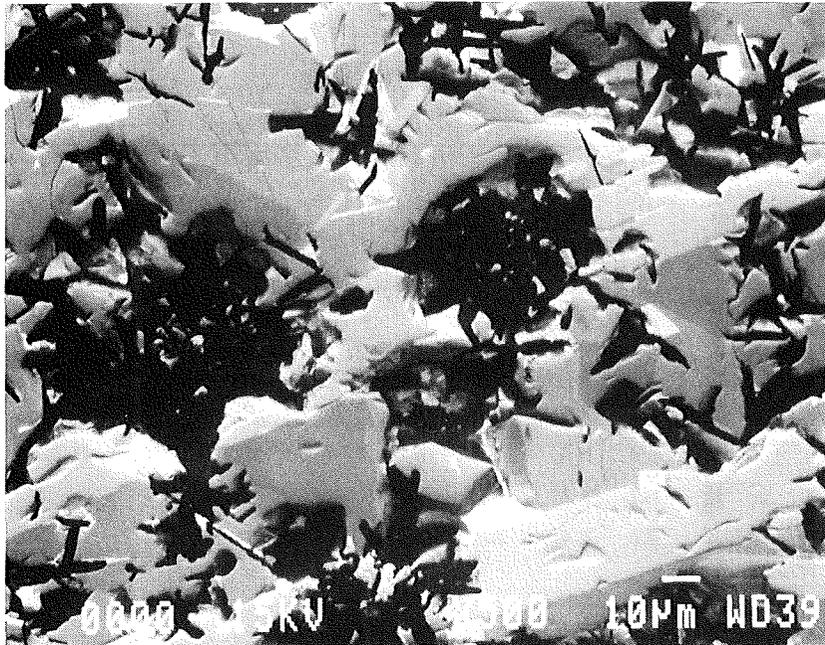
**CORA- 16/ Probe Nr. 09**

**Bereich Nr. 4**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
a	B	KA	9	18
	C	KA	36	64
	Si	KA	0,1	0,1
	Cr	KA	7	2
	Fe	KA	29	11
	Ni	KA	4	1,5
	Zr	LA	13	3
	Sn	LA	0,4	0,1
	U	MA	1	0,1

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

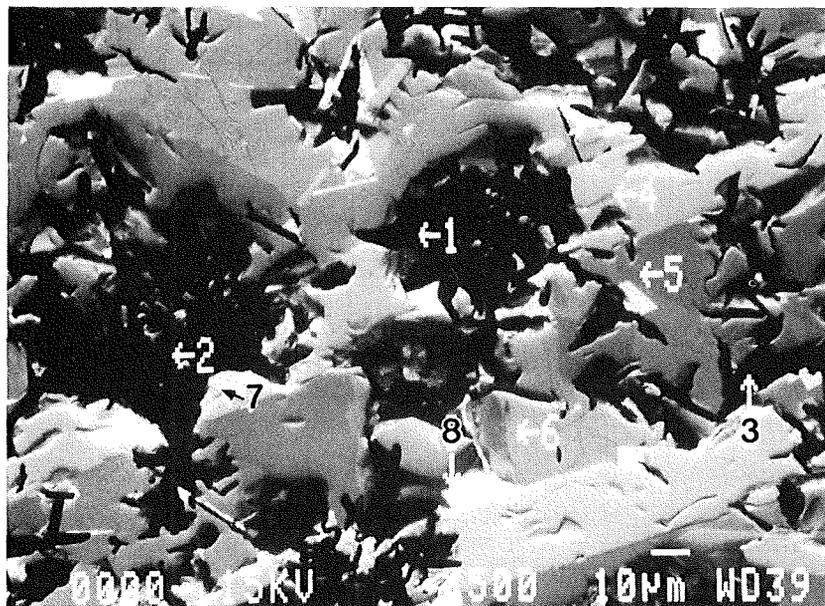
\* auf 100 % normalisiert



**Abb. 67** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 4**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	C	KA	94	96
	O	KA	4	3
	Ca	KA	0,3	0,1
	Fe	KA	1,5	0,3
	Zr	LA	0,7	0,1
2	C	KA	92	95
	O	KA	6	4
	Ca	KA	0,3	0,1
	Fe	KA	1,1	0,2
	Zr	LA	0,8	0,1
3	C	KA	95	97
	O	KA	3	2
	Ca	KA	0,3	0,1
	Fe	KA	1	0,2
	Zr	LA	0,6	0,1
4	B	KA	19	67
	Fe	KA	1	0,6
	Zr	LA	80	32
5	B	KA	12	40
	Cr	KA	45	32
	Fe	KA	43	28
6	Cr	KA	8,0	8,5
	Mn	KA	2,2	2,2
	Fe	KA	83,3	83,1
	Ni	KA	6,5	6,2
7	O	KA	2	11
	Si	KA	0,3	1
	Fe	KA	2	4
	Zr	LA	71	74
	U	MA	24	10
8	Fe	KA	1,8	3,5
	Zr	LA	70,1	83,7
	U	MA	28,1	12,8

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert

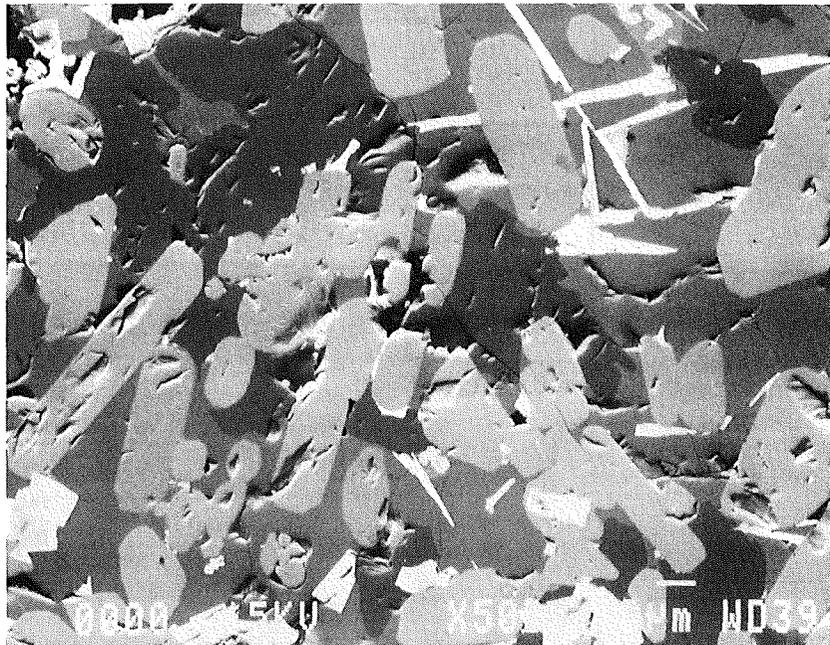


**Abb. 68** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 5**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
a	B	KA	20	61
	Si	KA	0,6	0,7
	Cr	KA	7	5
	Mn	KA	0,8	0,5
	Fe	KA	32	19
	Ni	KA	3	2
	Zr	LA	34	12
	Sn	LA	0,2	0,1
	U	MA	2	0,2

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert



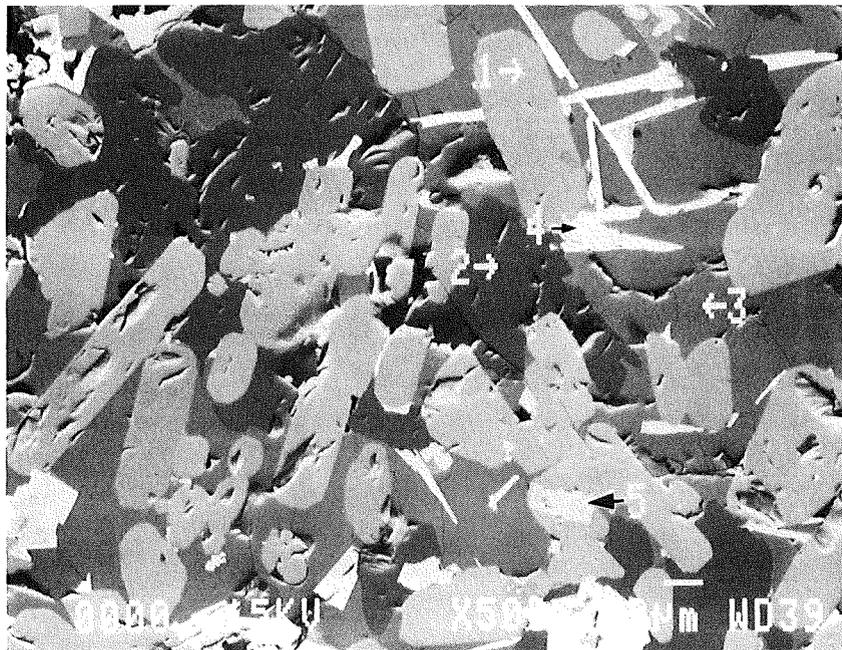
**Abb. 69** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment

**CORA-16 / Probe Nr. 09**

**Bereich Nr. 5**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	B	KA	16	61
	Zr	LA	84	39
2	B	KA	12	36
	C	KA	5	13
	Cr	KA	31	20
	Fe	KA	51	30
	Ni	KA	1	1
3	B	KA	5	20
	C	KA	5	16
	Cr	KA	8	6
	Fe	KA	76	54
	Ni	KA	6	4
4	Fe	KA	10,4	21,3
	Ni	KA	14,5	28,2
	Zr	LA	18,8	23,5
	U	MA	56,2	27,0
5	Zr	LA	77,2	89,8
	U	MA	22,8	10,2

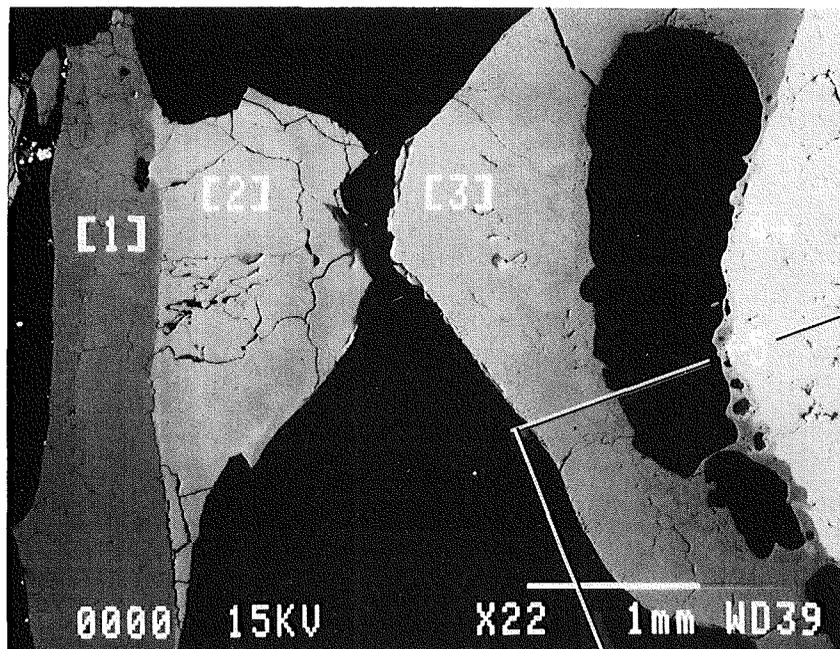
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 70** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 6 (1)**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	25	65
	Zr	LA	74	35
	U	MA	1,4	0,3
2	O	KA	19	65
	Zr	LA	45	27
	U	MA	36	8
3	O	KA	20	66
	Zr	LA	46	26,5
	U	MA	34	7,5
4	O	KA	12	67
	U	MA	88	33
5	O	KA	17	65
	Fe	KA	2	2
	Zr	LA	31	20
	U	MA	50	13

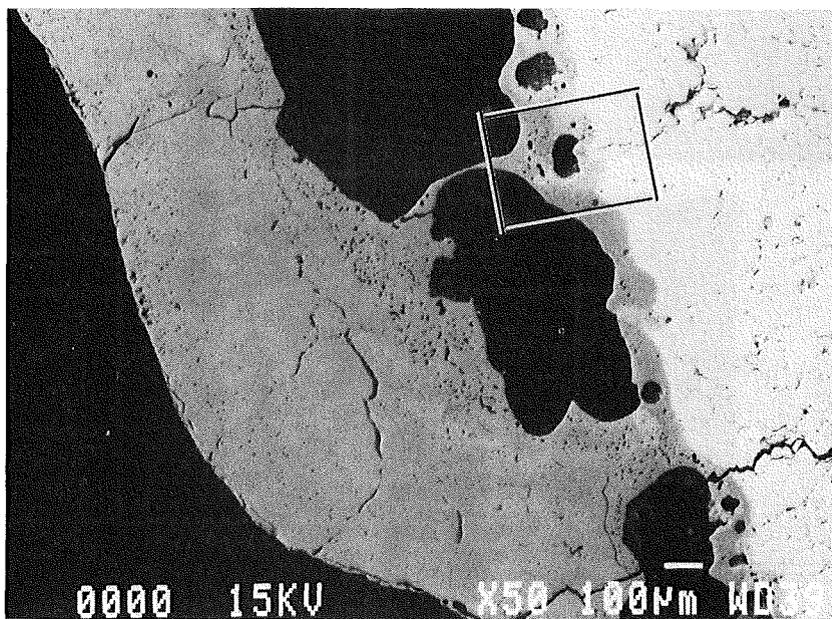
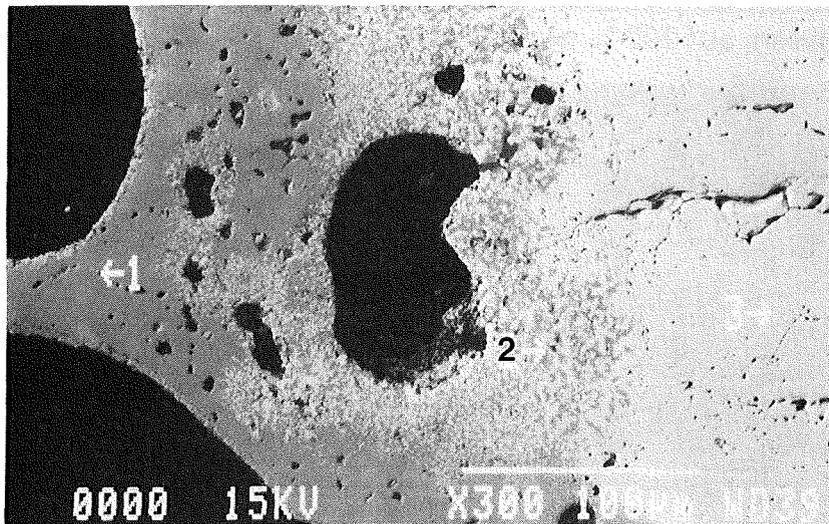
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 71** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 6 (2)**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	20	63
	Zr	LA	57	32
	U	MA	23	5
2	O	KA	19	65
	Fe	KA	3	3
	Zr	LA	33	21
	U	MA	45	11
3	O	KA	12	67
	U	MA	88	33

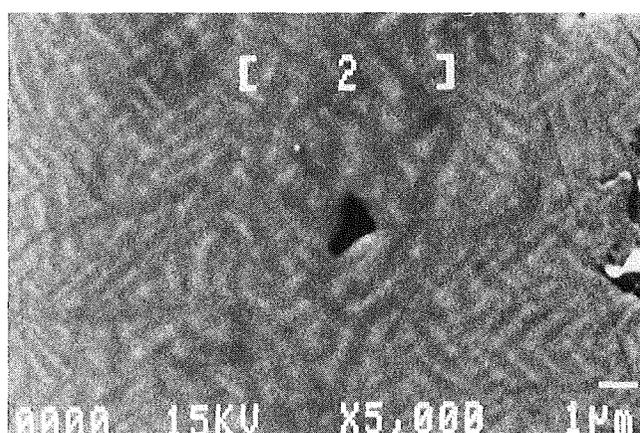
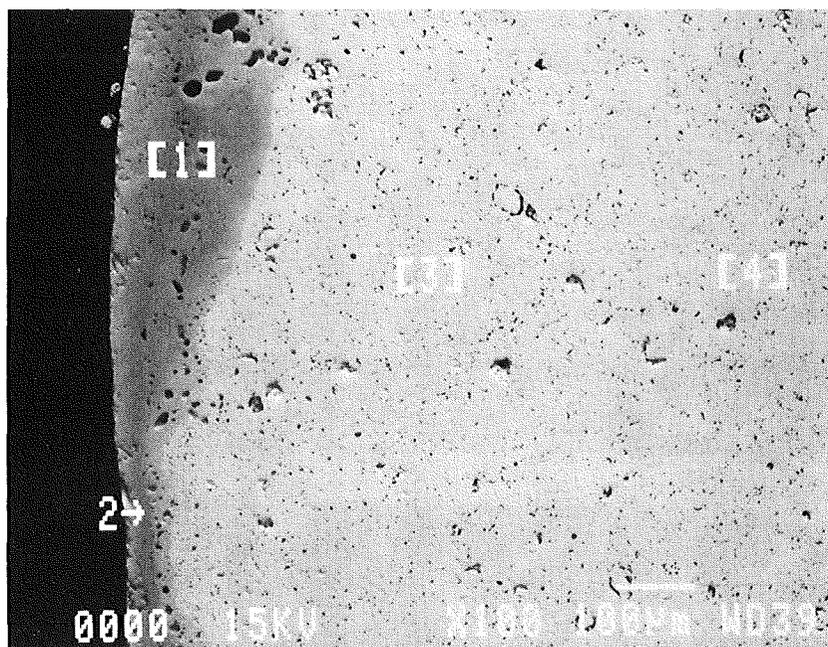
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 72 REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
CORA- 16/ Probe Nr. 09  
Bereich Nr. 7**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	19	64
	Fe	KA	1	1
	Zr	LA	41	26
	U	MA	39	9
2	O	KA	18	64
	Zr	LA	43	27
	U	MA	39	9
3	O	KA	11	66
	U	MA	89	34
4	O	KA	12	67
	U	MA	88	33

\* Bereichsanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 73** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 9**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	26	67
	Zr	LA	74	33
2	O	KA	27	68
	Zr	LA	73	32

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert

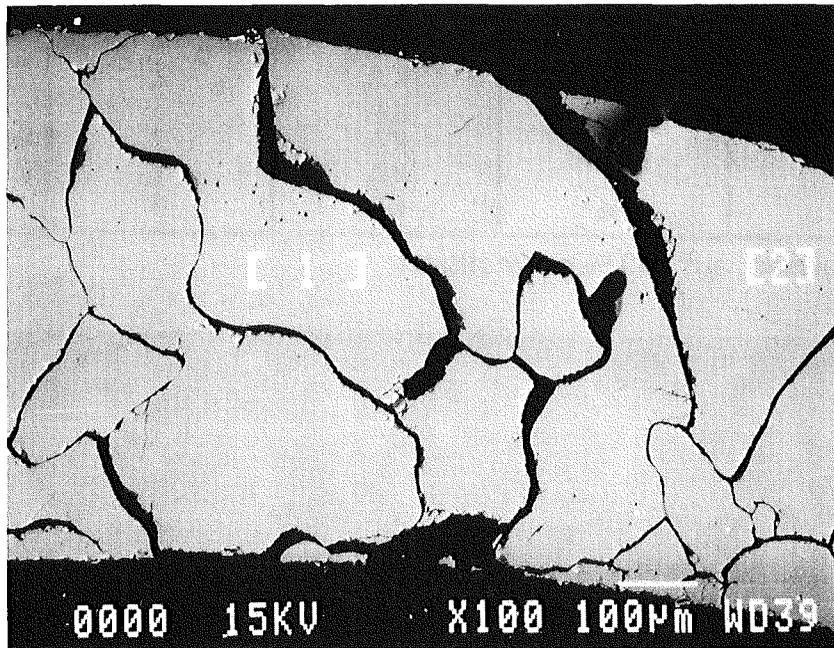


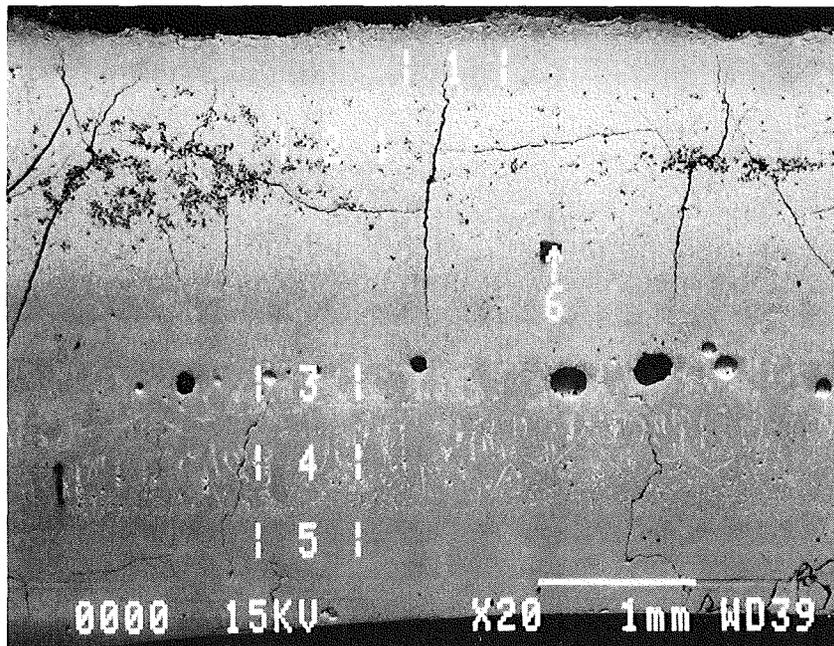
Abb. 74 REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment

**CORA- 16/ Probe Nr. 09**

**Bereich Nr. 8**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	25	66
	Fe	KA	1,5	1
	Zr	LA	73	33
2	O	KA	15	49
	Cr	KA	1	1
	Fe	KA	4	4
	Zr	LA	78	45
	Sn	LA	2	1
3	O	KA	19	58
	Zr	LA	81	42
4	O	KA	20	59
	Zr	LA	80	41
5	O	KA	25	66
	Zr	LA	75	34
6  (Einbettmittel bzw. Polierrückstände)	C	KA	31	42
	O	KA	45	46
	Si	KA	7	4
	Mg	KA	2	1
	Al	KA	5	3
	K	KA	2	1
	Ti	KA	1	0,3
	Fe	KA	6	2

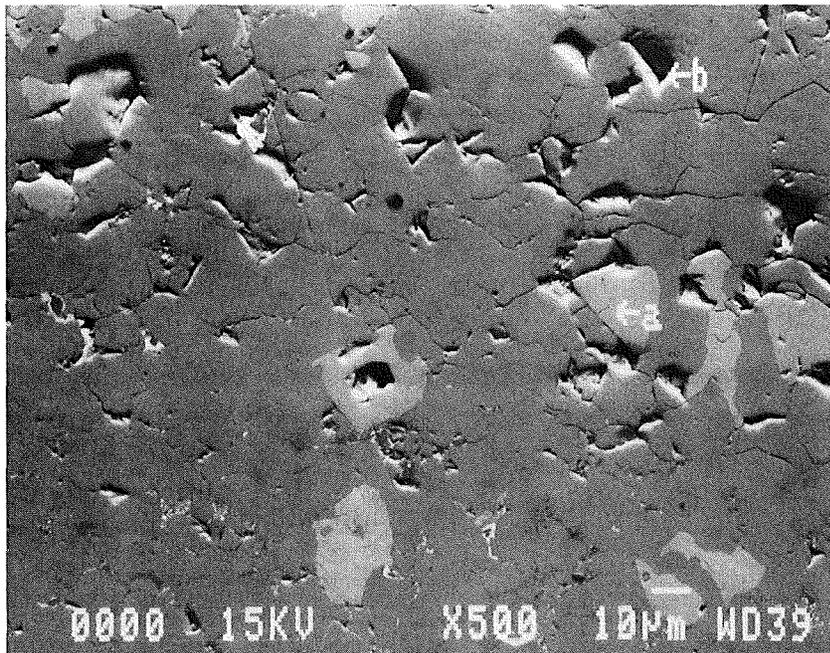
\* Bereichsanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 75** REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 8 (REM-Analyse 1)**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1/a	O	KA	7	28
	Zr	LA	93	72
1/b	C	KA	10	31
	O	KA	16	38
	Zr	LA	74	31

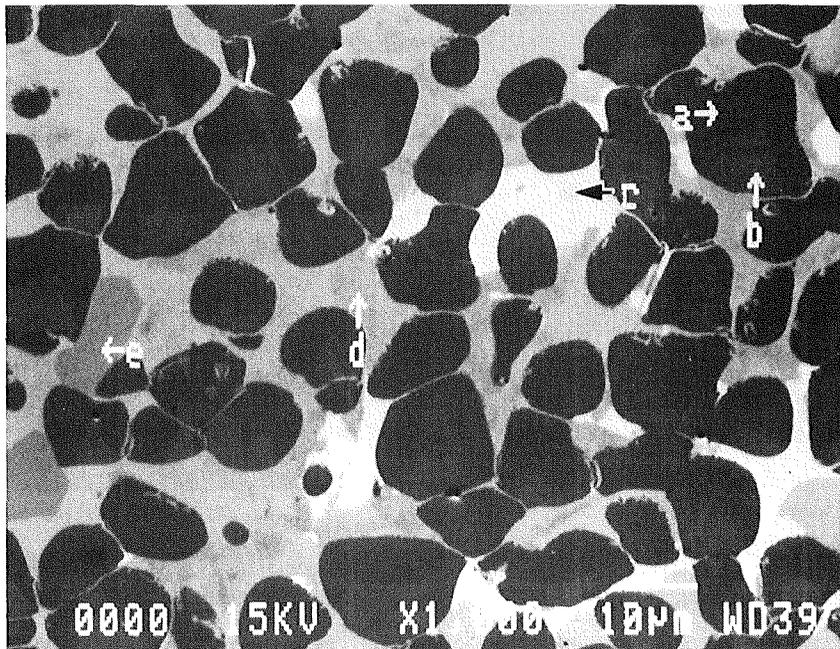
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 76** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 8 (REM-Analyse 2)**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
2/a	O	KA	21	60
	Zr	LA	79	40
2/b	O	KA	21	60
	Zr	LA	79	40
2/c	Zr	LA	56,8	63,1
	Sn	LA	43,2	36,9
2/d	Cr	KA	2,4	3,7
	Fe	KA	17,6	25,1
	Ni	KA	2,9	4,0
	Zr	LA	75,5	66,1
	Sn	LA	1,6	1,1
2/e	Zr	LA	100	100

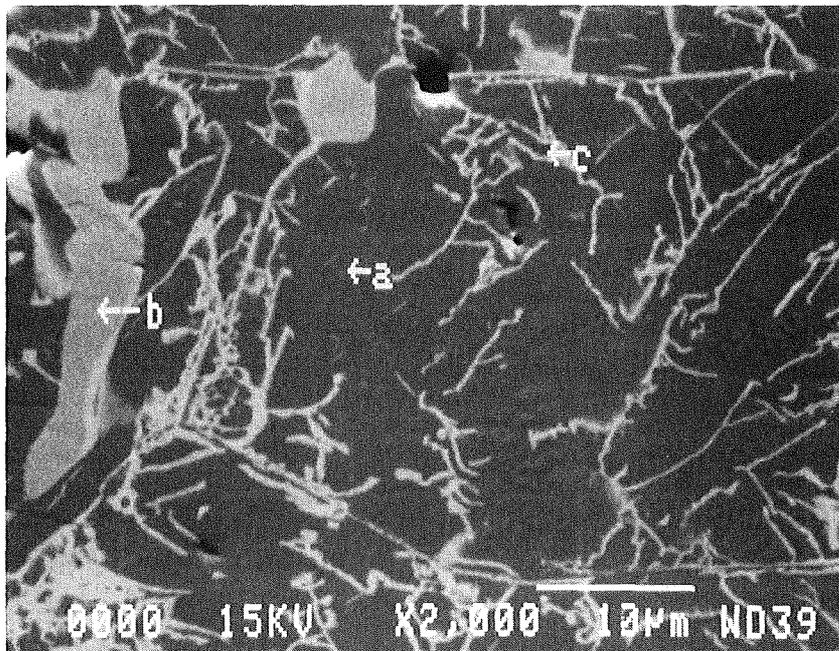
\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 77** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. 09**  
**Bereich Nr. 8 (REM-Analyse 3)**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
3/a	O	KA	21	60
	Zr	LA	79	40
3/b	Zr	LA	100	100
3/c	Zr	LA	100	100

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert



**Abb. 78** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment

**CORA- 16/ Probe Nr. 09**

**Bereich Nr. 8 (REM-Analyse 4)**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
4/a	Zr	LA	100	100
4/b	O	KA	20	59
	Zr	LA	80	41

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert

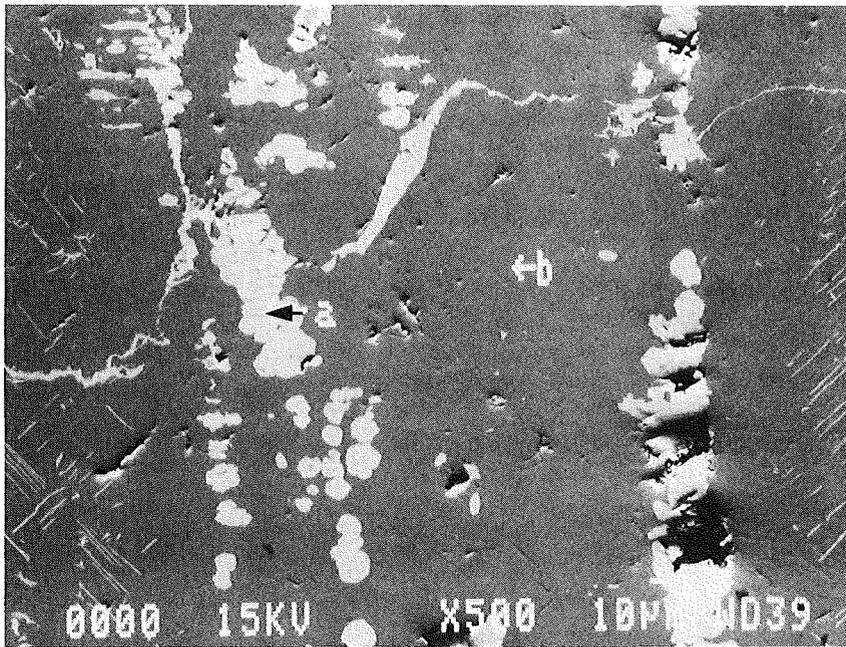


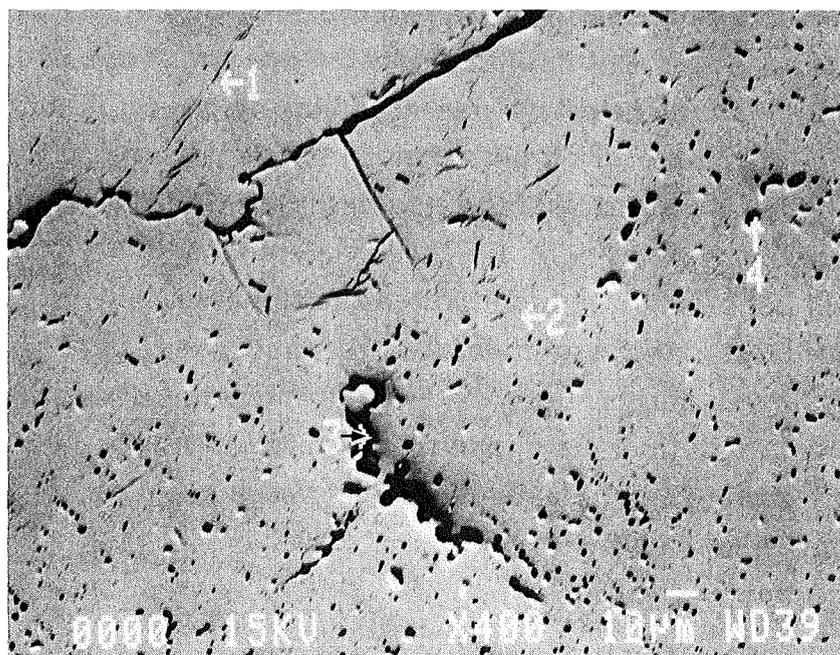
Abb. 79 REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment

**CORA- 16/ Probe Nr. 09**

**Bereich Nr. 10**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
1	O	KA	21	63
	Zr	LA	68	35
	U	MA	11	2
2	O	KA	22	63
	Zr	LA	68	35
	U	MA	10	2
3	C	KA	35	68
	O	KA	14	20
	Si	KA	1,7	1,4
	Zr	LA	39	10
	U	MA	10	1
4	C	KA	62	85
	O	KA	10	10
	Zr	LA	27	5
	U	MA	1,6	0,1

\* Punktanalysen, auf 100 % normalisiert

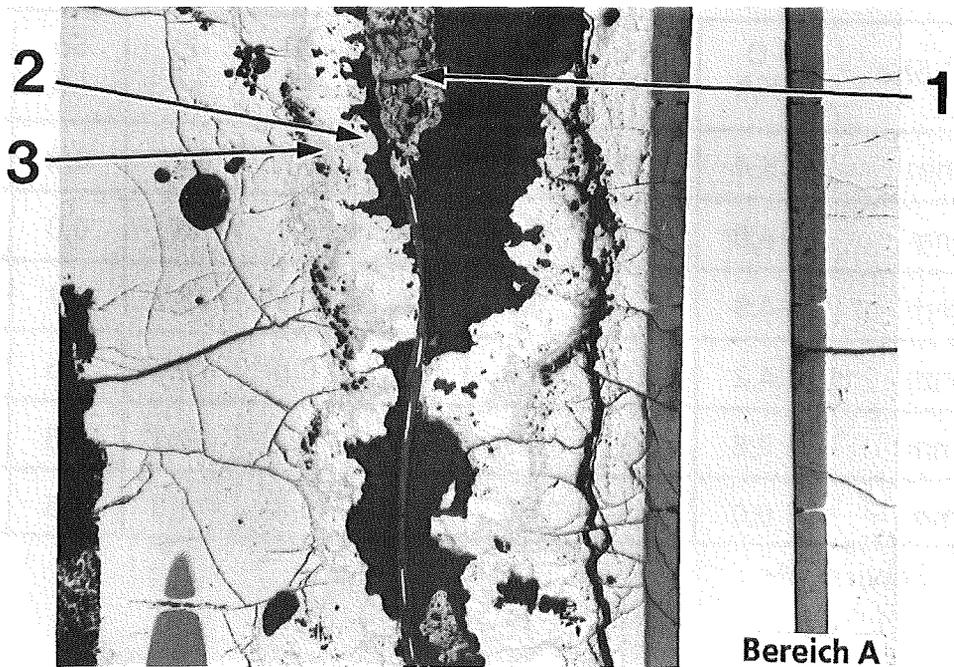
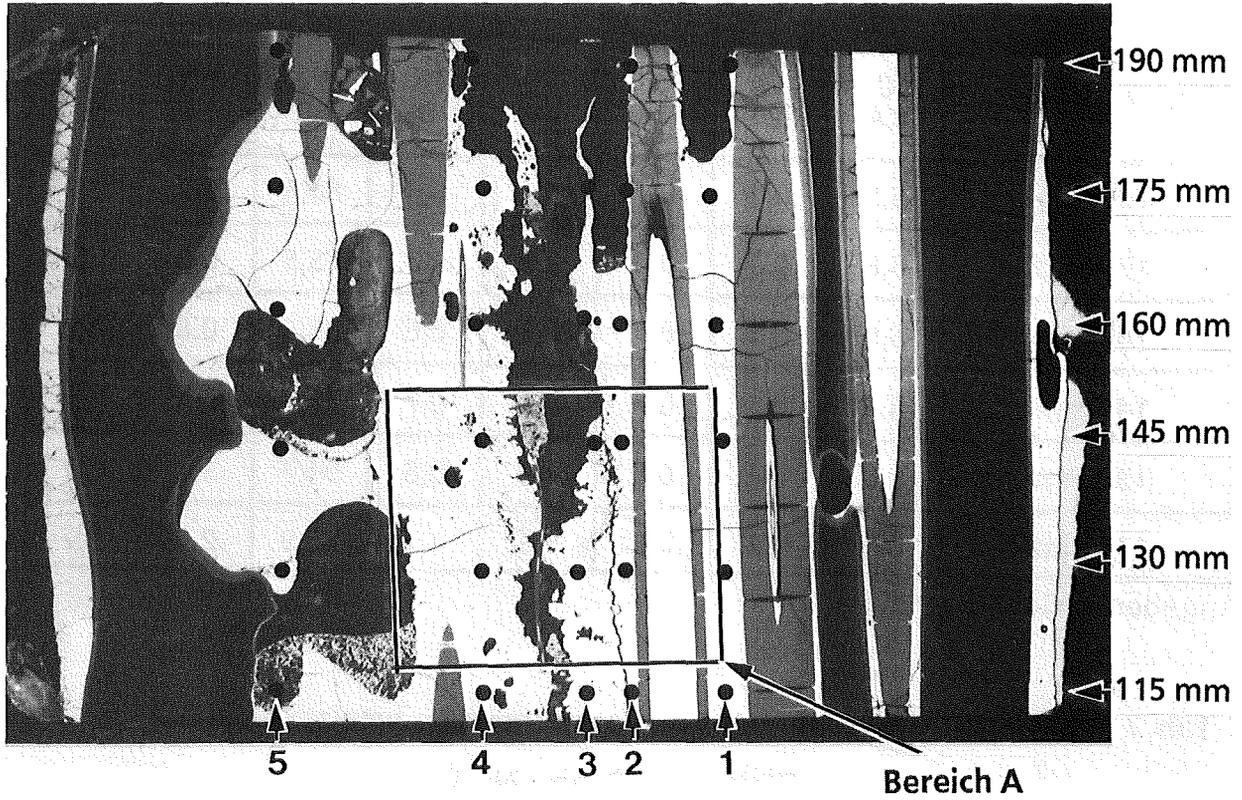


## 5.5 Versuchsprobe Nr. C

Die Längsschliffprobe Nr. C aus der Bündelhöhe 112 mm bis 195 mm wurde zur Untersuchung der von den heißeren Bündelebenen herabgelaufenen Schmelzen ausgewählt. Auf die systematische Untersuchung der Bündelbauteile und deren chemischer Reaktionen wurde bei der Probe Nr. C verzichtet. Lediglich im Zentrum der Absorbermaterialzone wurden separate Analysen erstellt. In Abbildung 80 sind die Längsschliffprobe im Maßstab 1 : 1, der Bereichsausschnitt A im Maßstab 3 : 1 sowie die REM/EDX-Analysenpositionen übersichtlich dargestellt.

Bei der visuellen Betrachtung der Längsschliffabbildung erkennt man, daß die Schmelze die Zwischenräume um die Brenn- und Absorberstäbe fast völlig ausfüllt. Die Oberflächen (Ränder) der Schmelze sind mit einer ca. 2 mm dicken Oxidschicht umgeben. Die Schmelze füllt fast alle verbliebenen Hohlräume in den Brennstäben aus. Zum Teil sind die Zry-Hüllrohre durch den Einfluß von Temperatur, Sauerstoff und dem eindringenden Schmelzgut deformiert. Der  $\text{UO}_2$ -Brennstoff weist Risse auf. Sämtliche Analysenergebnisse wurden integral bei 500-facher Vergrößerung erstellt. Zur Charakterisierung der Schmelze wurde die Probe radial in sechs Höhen und axial in fünf Zonen unterteilt. Die Integralanalysen wurden jeweils an den Schnittpunkten von den radialen und axialen Ebenen erstellt. Die insgesamt 30 Integralanalysenergebnisse sind in Tabelle 6 bis 10 dargestellt. Wie bereits bei den REM/EDX-Ergebnissen von Probe 01 unten und 01 oben wird Bor und Kohlenstoff bei den Integralanalysen vom EDX-Detektor nicht erfaßt. Die in Tab. 6 bis 10 dargestellten Integralanalysenergebnisse sind, wie durch einige separate Kontrollmessungen bestätigt, durch unterschiedliche Bor- bzw. Kohlenstoffanteile bis zu ca. 3 % zu korrigieren. Die B- bzw. C-Anteile befinden sich in der Regel in Einzelphasen. Diese Einzelphasen sind meist  $\text{ZrB}_2$  oder seltener Zr-Karbide. Die Analysen in der Absorberstabzone (Abb. 81 bis 83) zeigen, daß nur ein schmales Band entlang des Einflußbereiches des Absorbers durch chemische Reaktionen mit Bor stark beeinflusst ist. Aus den Tab. 6 bis 10 ist ersichtlich, daß Sauerstoff in den höherliegenden und auch etwas heißeren Bündelebenen etwas stärker vertreten ist.

**Abb.80 REM/EDX-Analysenpositionen vom Bündelabschmelzexperiment  
CORA-16 / Probe Nr. C  
(Bündelhöhe von 112 bis 195 mm)**



**Tab. 6 REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment**

**CORA-16 /Probe Nr, C**  
**Radius Nr, 1 (Schmelze zwischen den Brennstäben)**

**Element und Linie**

Bündelhöhe	O KA	Si KA	Cr KA	Fe KA	Ni KA	Zr LA	Sn LA	U MA
190 mm	5,5	0,2	0,2	1,2	0,4	84,5	0,2	7,9
175 mm	5,8	0,3	0,9	3,8	0,8	75,5	0,3	12,6
160 mm	3,9	0,4	0,7	2,0	0,6	86,9	0,8	4,9
145 mm	4,5	0,5	0,7	3,3	0,7	77,8	0,1	12,4
130 mm	0,0	0,4	0,5	1,9	0,6	91,7	1,2	3,7
115 mm	0,0	0,7	2,5	9,1	1,1	76,9	2,0	7,7

Angaben in Gewichts %

**Tab. 7 REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment**

**CORA-16 /Probe Nr, C**  
**Radius Nr, 2 (Schmelze in Kontaktnähe zum Brennstab in der Einflußnähe des Absorbers)**

**Element und Linie**

Bündelhöhe	O KA	Si KA	Cr KA	Fe KA	Ni KA	Zr LA	Sn LA	U MA
190 mm	5,4	0,3	1,2	5,1	0,9	61,2	0,4	25,5
175 mm	4,0	0,4	0,4	1,4	0,3	87	0,0	6,5
160 mm	4,9	0,4	0,9	3,4	0,8	76,7	0,7	12,2
145 mm	4,2	0,4	0,6	3,2	0,8	78,5	1,6	10,7
130 mm	2,6	0,3	0,3	2,0	0,2	90,1	0,8	3,7
115 mm	0,0	0,3	1,0	5,9	0,8	71,8	1,5	18,7

Angaben in Gewichts %

**Tab. 8 REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment**

**CORA-16 /Probe Nr, C**  
**Radius Nr, 3 (Schmelze rechts der Absorberzone)**

**Element und Linie**

Bündelhöhe	O KA	Si KA	Cr KA	Fe KA	Ni KA	Zr LA	Sn LA	U MA
190 mm	Keine Analysen möglich							
175 mm	12,1	0,4	1,8	6,4	1,1	66,1	0,5	11,6
160 mm	9,2	0,4	1,1	0,0	0,8	78,7	0,7	9,2
145 mm	7,6	0,5	2,9	11,8	1,8	66,9	0,7	7,8
130 mm	2,9	0,6	3,7	13,3	1,7	72,8	0,7	4,4
115 mm	0,0	0,5	1,2	6,8	1,3	80,7	1,8	7,8

Angaben in Gewichts %

**Tab. 9 REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment**

**CORA-16 /Probe Nr, C**  
**Radius Nr. 4 (Schmelze links der Absorberzone)**

**Element und Linie**

Bündelhöhe	O KA	Si KA	Cr KA	Fe KA	Ni KA	Zr LA	Sn LA	U MA
190 mm	7,3	0,0	1,3	5,8	1,3	64,5	0,0	19,9
175 mm	5,8	0,0	1,0	4,8	0,9	72,7	0,0	14,8
160 mm	8,0	0,0	0,0	1,0	0,0	75,4	0,0	15,6
145 mm	3,5	0,5	0,6	2,3	0,6	82,8	0,5	9,3
130 mm	4,1	0,5	1,3	3,2	0,7	81,4	0,9	7,9
115 mm	3,4	0,7	4,5	17,3	2,2	65,3	0,3	6,4

Angaben in Gewichts %

**Tab. 10 REM/EDX-Analysenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment**

**CORA-16 /Probe Nr, C**

**Radius Nr. 5 (völlig abgeschmolzene Brennstabzone)**

**Element und Linie**

<b>Bündelhöhe</b>	<b>O KA</b>	<b>Si KA</b>	<b>Cr KA</b>	<b>Fe KA</b>	<b>Ni KA</b>	<b>Zr LA</b>	<b>Sn LA</b>	<b>U MA</b>
<b>190 mm</b>	22,4	0,0	0,0	0,0	0,0	62,7	0,0	14,9
<b>175 mm</b>	4,4	0,3	0,2	0,7	0,1	86,0	0,3	7,9
<b>160 mm</b>	3,8	0,6	0,7	1,9	0,2	83,8	0,4	8,5
<b>145 mm</b>	2,5	0,3	0,3	1,2	0,2	92,3	0,4	2,8
<b>130 mm</b>	1,6	0,3	1,0	4,0	0,6	76,9	1,9	13,6
<b>115 mm</b>	0,4	0,4	1,6	6,1	0,7	74,8	0,9	15,1

Angaben in Gewichts %

**Abb. 81 REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
CORA- 16/ Probe Nr. C  
Bereich Nr. 1 (Bündelhöhe ca. 145 mm)**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
<b>Absorberzone</b>	B	KA	34	45
	C	KA	41	49
	Si	KA	0,2	0,1
	Cr	KA	5	1
	Mn	KA	0,7	0,2
	Fe	KA	17	4
	Ni	KA	2	0.6

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert



**Abb. 82** REM/EDX-Analyseenergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. C**  
 Bereich Nr. 2 (Bündelhöhe ca. 145 mm)

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
Rand der Schmelze	B	KA	13	51
	C	KA	0	0
	Cr	KA	4	35
	Fe	KA	16	13
	Ni	KA	2	2
	Zr	LA	62	30
	U	MA	2,5	0,5

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert



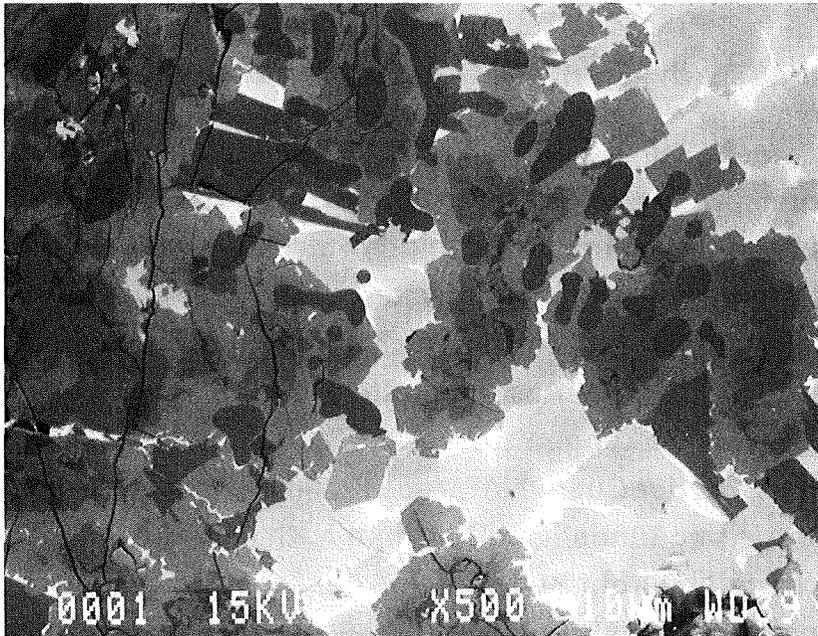
**Abb. 83** REM/EDX-Analyseergebnisse vom Bündelabschmelzexperiment  
**CORA- 16/ Probe Nr. C**

**Bereich Nr. 3 (Bündelhöhe ca. 145 mm)**

REM-Analysenpos. Nr.	Element	Linie	Gewichts %	Atom % *
Innere der Schmelze	B	KA	0	0
	C	KA	0	0
	O	KA	3	16
	Cr	KA	3	5
	Fe	KA	14	19
	Ni	KA	2,5	3
	Zr	LA	63	53
	U	MA	14	4

Integralanalyse bei 500-facher Vergrößerung

\* auf 100 % normalisiert



## 6. Zusammenfassung

Durch Einzeleffektuntersuchungen wurde bereits ein umfassendes Wissen über die chemischen Wechselwirkungen von  $\text{UO}_2$  mit geschmolzenem Zircaloy-Hüllmaterial [8,9], Stahl mit Zircaloy [10,11] sowie  $\text{B}_4\text{C}$  mit Zircaloy bzw. Stahl [11,12] erarbeitet. Die Deutung der in der CORA-Versuchsanlage ablaufenden Multi- oder Integral-Effekte, die das Resultat simultan ablaufender chemischer Reaktionen aller Einzelwechselwirkungen darstellt, ist erheblich komplexer als die der ohnehin zum Teil komplizierten Einzeleffekte. In dem vorliegenden Bericht wird versucht, einen repräsentativen Überblick der chemischen Wechselwirkungen in Abhängigkeit von der Temperatur (Bündelhöhe) zu geben. Die Auswertearbeit, besonders aber die Temperaturzuordnung zu den beobachteten Reaktionseffekten wird erschwert durch:

- Die aus heißeren und aus höhergelegenen Bündelebenen herablaufenden Schmelzen, die die Zuordnung zu einer maximalen Versuchstemperatur nahezu unmöglich machen.
- Das Versagen der Thermoelemente bei etwa  $2000^\circ\text{C}$ , wodurch eine eindeutige Temperaturmessung oberhalb  $2000^\circ\text{C}$  nicht mehr möglich ist.

Folgendes wurde durch REM/EDX-Mikrobereichsanalysen ermittelt:

Die Analysenergebnisse zeigen, daß während der Temperaturtransiente die Absorberstäbe zuerst versagen. In Vorversuchen wurde bereits der große Einfluß der Reaktion des  $\text{B}_4\text{C}$ -Absorbermaterials mit den Strukturmaterialien Zry-4 und Edelstahl auf das Brennelementversagen erforscht [12]. Borkarbid ist mit steigender Temperatur nicht mehr thermodynamisch stabil im Kontakt zum Edelstahl des Absorberhüllrohres bzw. des Absorberkastens und führt ab etwa  $1200^\circ\text{C}$  infolge eutektischer Wechselwirkungen zur Verflüssigung der Edelstahlbauteile des Absorberes. Bei der Querschliffprobe Nr. 08 erkennt man, daß der Edelstahl-Absorberkasten in der Bündelhöhe 1145 mm noch intakt ist. Im  $\text{B}_4\text{C}$ -Absorberstab mit seinem Edelstahlhüllrohr ist der Beginn der Zerstörung jedoch bereits erkennbar. In Tabelle 11 bis 13 wird versucht die angefallenen REM-EDX-Analysenergebnisse so zu ordnen, daß eine Systematik der chemischen Auflösung des Borkarbids durch den Edelstahl erkennbar wird. Aus den in Tabelle 11 wiedergegebenen Analysenergebnissen kann man deutlich das Abwandern des Bors aus den  $\text{B}_4\text{C}$ -Partikeln in Abhängigkeit von der Bündelhöhe bzw. der Temperatur erkennen. Der an den chemischen Wechselwirkungen geringer beteiligte Kohlenstoff verbleibt in sternförmigen Rückständen (z. T. als freies C). In dem

Auflösungs-Übergangsbereich sieht man bereits den Trend zur Verringerung des Bor- und Chromanteils und der Erhöhung der an den chemischen Wechselwirkung geringer beteiligten Elemente C und Ni (Tabelle 12). Sehr deutlich wird diese Systematik in Analysenergebnissen von Einzeleffektuntersuchungen. (Abb. 84). An den Werten der Tabelle 13 ist schließlich gut erkennbar, daß zunächst in den kälteren Bündelhöhen die Bildung von (Fe, Cr)-Boriden dominiert. Bei fortschreitender Vermischung, besonders in den heißeren Bündelhöhen, entstehen verstärkt  $ZrB_2$ -Phasen.

Von besonderem Interesse ist die Bildung von flüssigen Phasen, deren Verlagerung und die sich daraus bildenden Bündelblockaden. Die im CORA-Versuch Nr. 16 entstandenen Schmelzen verlagerten sich axial und radial und bilden beim Abkühlen (Erstarren) Blockaden im Bereich der Brennstäbe und des Absorberkastens. Die an den Blockaden beteiligten Schmelzen sind überwiegend metallisch und zeigen verschiedene Mikrostrukturen. In Tabelle 14 wurde versucht, etwas Ordnung in die Vielzahl der analysierten Schmelzphasen zu bringen. Nach dem Sortieren in Schmelztypen verbleiben nur noch 7 Phasentypen. In den vom Absorberbereich entfernten Schmelzen findet man  $ZrB_2$ , (Zr, C)-Phasen, (U,Zr)-Phasen, reines Zr- sowie verschiedene Phasenmischungen z. T. auch mit den Edelstahlbestandteilen. In der Zusammenstellung für Integralanalysenergebnisse von Schmelzen (Tabelle 15) sind die Ergebnisse teilweise sehr unterschiedlich. Die Analyse von Bor und Kohlenstoff mit dem EDX-Analysensystem ist, besonders bei den Proben 01 unten und 01 oben im Bereich Nr. 1 und Nr. 2, unterhalb der Auflösungsgrenze (siehe Abschnitt 4). In Tabelle 16 wird versucht die vorhandenen Nachweisprobleme für B und C bei den Integralanalysen durch Bildanalysen zu umgehen. In der Nähe des  $B_4C$  sind die Bor- und Kohlenstoffanteile höher und können deshalb auch bei den Integralanalysen erfaßt werden. Bei der Probe 09 sind die geringen zurückbleibende Restschmelzen in ihrer chemischen Zusammensetzung äußerst schwankend.

Neben dem  $B_4C$ -Absorbersversagen und der Blockadebildung durch Schmelzen sind noch die chemischen Wechselwirkungen zwischen dem  $UO_2$ -Brennstoff und dem Zircaloy (Zry)-Hüllmaterial von ausschlaggebender Bedeutung. In Einzeleffektuntersuchungen wurde ermittelt [8], daß das  $UO_2$  bereits  $1000^\circ C$  unterhalb seines Schmelzpunktes von der Zry-Schmelze verflüssigt (chemisch aufgelöst) werden kann. Das geschmolzene Zircaloy reagiert chemisch sowohl mit dem  $UO_2$  als auch mit dem auf der Hüllrohr-Außenoberfläche entstehenden  $ZrO_2$ . Die anfangs noch metallische (U, Zr)-Legierung wird bei fortschreitender Sauerstoffaufnahme in eine keramische (U, Zr) $O_2$ -Phase umgewandelt. Zur Beschreibung der

chemischen Reaktionen von  $\text{UO}_2$ -Brennstoff und Zry-Hülle wurde in Tabelle 17 versucht, eine Systematik der Reaktionen durch Zusammenfassung der Ergebnisse nach steigenden Temperaturen zu erhalten. Überraschend ist, daß in der höchstgelegenen Bündelhöhe von 1145 mm in der Reaktionszone von Brennstoff und Hüllrohr Stahlbestandteile zu finden sind. Diese Materialbestandteile können nur aus den tieferliegenden, heißeren Schmelzzonen als flüssige Materialien im Spalt zwischen  $\text{UO}_2$ -Brennstoff und Zry-Hüllrohr, in diese Bündelhöhe gelangt sein. Es kann der Schluß gezogen werden, daß bei entsprechend hohen Temperaturen flüssige Materialien in allen engen Spalten des Brennstabbündels und in allen Bündelhöhen auftreten. Hier verursachen die Schmelzen erste Reaktionen. Aufgrund ihres Wärmeinhaltes sind die Schmelzen auch in der Lage, selbst in kälteren Bündelbereichen Zerstörungen durch chemische Reaktionen zu bewirken. In der Probe Nr. 09 aus der untersuchten Bündelhöhe mit der höchsten Temperatur ist das Zry-Hüllmaterial fast überall abgeschmolzen und hat sich in tieferliegende Bündelhöhen verlagert. Das geschmolzene Zry-Hüllmaterial hat einen Teil des  $\text{UO}_2$ -Brennstoffes chemisch aufgelöst, so daß die Form der  $\text{UO}_2$ -Pellets stark verändert wurde. Der Tabelle 17 kann man entnehmen, daß die (U,Zr,O)-Schmelzen in vielen Zusammensetzungsvarianten erstarren.

Die ermittelten chemisch-analytischen Nachuntersuchungsergebnisse der verschiedenen Reaktionszonen und Schmelzen des überhitzten SWR-Bündels CORA-16 stellen eine umfangreiche Datenbank für eine detaillierte Deutung der abgelaufenen chemischen Wechselwirkungen während der Temperaturtransiente und der Abkühlphase dar. Diese Deutung ist nicht Aufgabe dieses Berichtes; sie wird an anderer Stelle vorgenommen werden.

**Tab. 11:** Zusammenstellung der REM/EDX-Analysenergebnisse  
im Bereich der  
B<sub>4</sub>C-Absorberpartikel

Probe	Bereich	Pos.	Bündel- höhe (mm)	Wichtigste Elemente (Gew. %)			
				B	C	Cr	Fe
08	3	10	1145	77	23		
08	3	11		79	21		
01 u	3	4	97	82	18		
01 u	3	5		81	19		
01 u	4	1		75	24		0,4
01 u	5	1		61	39	0,1	0,2
01 o	3	6	110	58	42		0,3
01 o	4	3		66	34		
09	3	2	525	0	95		1,5
09	4	1		0	94		1,5
09	4	2		0	92		1,1

**Tab. 12:** Zusammenstellung der REM/EDX-Analysenergebnisse im Bereich der Zone in Kontakt mit dem B<sub>4</sub>C (Reaktions-Zwischenzone)

Probe	Bereich	Pos.	Wichtigste Elemente (Gew. %)					
			B	C	Cr	Fe	Ni	Mn
08	3	8	9	21	11	48	8	3
08	3	9	10	20	10	53	5	2
01 u	4	2	5	28	11	42	12	2
01 u	5	3	0	21	13	52	11	1
01 o	3	4	0	53	2	22	16	0,6
01 o	4	2	8	36	5	39	11	1

Probe Nr. 09 / alle Bereiche zeigen keine sichtbare Zwischenzone

**Tab. 13:** Zusammenstellung der REM/EDX-Analyseergebnisse im Bereich der Matrix von Absorberstabschmelzen

Probe	Bereich	Pos.	Wichtigste Elemente (Gew. %)								Anmerkung
			B	C	O	Cr	Fe	Ni	Zr	U	
08	3	6	15	9		32	42	1			
08	3	7	10	6		32	49	1			
01 u	3	3	9	5		18	55	11			
01 u	4	4	10	3		14	65	7			
01 o	3	1	10	8		15	62	3			
01 o	4	1	15	0		23	58	2			
09	3	1	13	0		17	65	3			
09	3	3	14	2		26	53	2			
09	4	5	12	0		45	43				
09	3	4	14	10		23	13	0,8	38		
09	4	4	19	0			1		80		ZrB <sub>2</sub>
09	1	1	16	0					84		ZrB <sub>2</sub>
09	1	4	16	0					84		ZrB <sub>2</sub>
09	5	1	16	0					84		ZrB <sub>2</sub>

Tab. 14: Zusammenstellung der REM/EDX-Phasenanalysen (Punktanalysen) im Bereich der herabgelaufenen Schmelzen

Probe	Bereich	Pos.	Wichtigste Elemente (Gew. %)								Anmerkung
			B	C	O	Cr	Fe	Ni	Zr	U	
01 u	2	2	16						84		ZrB <sub>2</sub>
01 o	1	4	16						84		
01 o	2	4	16						84		
01 u	1	4	13	19					66		+ 2 Ta*
01 u	9	1	13	17					70		
01 u	9	2	1 (?)	15					84		ZrC oder ZrC <sub>2</sub> + 1 Sn*
01 u	9	3	0,3 (?)	17					83		
01 u	9	4	0,9 (?)	17					81		
01 u	1	1	0	14	3	5	13	2	55	4	+ 3 Ta*
01 u	9	6	0	15		4	14	2	61	4	
01 u	9	7	0	14		5	15	2	61	2	+ 1 Si*
01 o	1	2	0	10		2	14	3	57	13	
01 o	1	5					0,8		80	19	+ 3 Sn* + 3,3 Sn*
01 o	1	6					15	4	55	26	
01 u	1	3				0,7	15	4	58	22	
01 u	1	5			2		1		86	8	
01 u	2	4							90,3	6,6	
01 u	9	5					6,3		70,1		+ 20,6 Sn*
01 u	1	2					4,6	1,2	66,2		+ 27,2 Sn* + 0,8 Si*
01 u	2	1				0,2	5,6	1,3	68,2		+ 24,6 Sn*
01 o	2	1							55,8		+ 44,2 Sn*
01 u	2	3			5				95		
01 o	2	3							100		
01 o	2	5			5				95		

\* Gew. -%

Tab. 15: Zusammenstellung der REM/EDX-Integralanalysen im Bereich der (herabgelaufenen) Schmelzen

Probe	Bereich	Pos.	Wichtigste Elemente (Gew. %)								Anmerkung
			B	C	O	Cr	Fe	Ni	Zr	U	
01 u	1	1	ja*	ja*		2,2	8,5	1,5	78	8	+ B, C und andere
01 u	2	1	0*	ja*		1,6	6,9	1,3	82	7	+ C und andere
01 o	1	1	ja*	ja*		2,2	9	1,4	79	7	+ B, C und andere
01 o	2	1	ja*	0*		1,4	5,8	1	81	9	+ B und andere
01 o	5	a	16	0		7	26	3	47		Absorbernähe
01 o	5	b	16	3	4	6	17	2,3	50	1	Absorbernähe
01 o	5	c	20	0		10	35	3	31		Absorbernähe
01 o	5	d	7	1		14	49	5	22		Absorbernähe
01 o	5	e	12	0		7	27	3,5	49		Absorbernähe
01 o	5	f	15	0		14	41	3	25		Absorbernähe
09	1	a	11	0	3	4	18	3	56	6	
09	1	b	2	0	9	2	10	2	60	15	
09	1	c	?	0	5	6	20	3	52	13	
09	1	d	?	0	2	8	32	5	43	7	
09	1	e	?	0	3	8	31	5	43	8	
09	2	a	?	0	6	5	19	3	37	28	
09	2	b	15	0		11	28	3	36	6	
09	2	c	17	0		4	14	2,5	54	7	
09	2	d	5	0	7	4	13	2,5	34	34	
09	2	e	21	0	1	6	22	5	41	3	
09	5	a	20	0		7	32	3	34	2	

\* siehe Tabelle 16/b

**Tab. 16:** Auswertung der integralen Zusammensetzung von herabgelaufenen metallischen Schmelzen errechnet aus den Phasenanalysen (Punktanalysen)

a) Schmelzen aus Borkarbid und Edelstahl

Probe	Bereich	Wichtigste Elemente (Gew. %)					
		B	C	Cr	Mn	Fe	Ni
08	4	1,2	9	21,6	1	60,8	7,3
01 u	4	10	3	14	1	65	7
01 u	3	8	1	20	1,7	63	7

b) Schmelzen aus Borkarbid, Edelstahl, Zry-4 und UO<sub>2</sub>

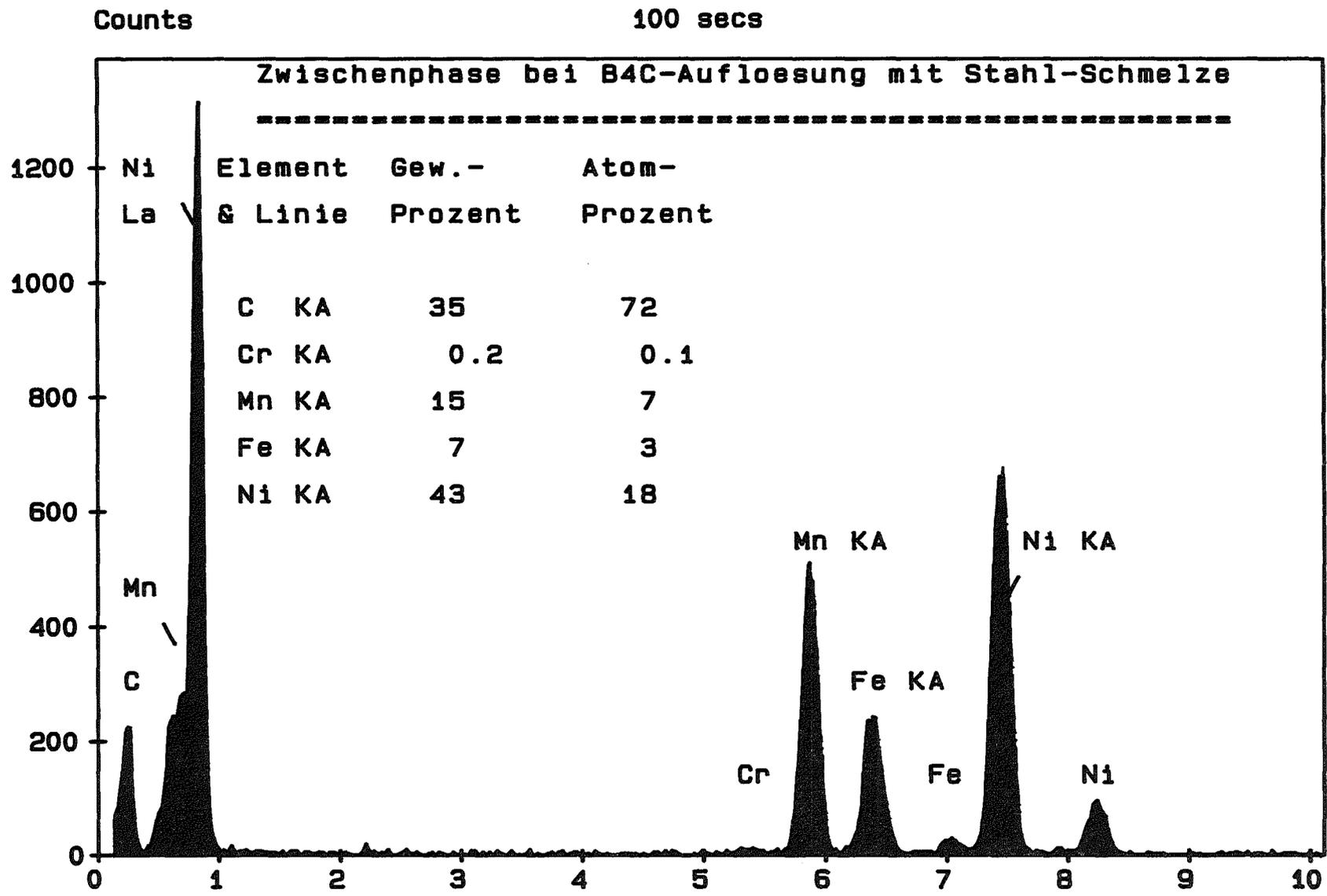
Probe	Bereich	Wichtigste Elemente (Gew. %)							
		B	C	Cr	Fe	Ni	Sn	Zr	U
01 u	1	1	1,3	2	8,1	1,4	1,4	76	8,4
01 u	2	0,7	0	2	7,3	1,2	1,5	80	7,2
01 u	9	1,6	14,6	2,5	8,6	1,1	1,3	68,5	1,6
01 o	1	3,2	0,4	0,1	1	0,1	1,7	93	1,4
01 o	2	0,6	0	0,2	1,5	0,4	1,3	90	4,9

**Bemerkung:** Die Auswertung erfolgte über die Auszählung von Flächenanteilen aus den REM-Abbildungen. Die Angaben beziehen sich auf ein Analysenfeld von jeweils ca. 0,22 x 0,18 mm (normales Analysenfeld bei den Integralanalysen).

**Tab. 17:** Zusammenstellung der REM/EDX-Phasen (Punkt)-Analysen im Kontaktbereich von UO<sub>2</sub>-Pellet und Zry-Hüllrohr

Probe	Bereich	Pos.	Wichtigste Elemente (Gew. %)						
			O	Cr	Fe	Ni	Zr	Sn	U
08	1	2	4				91	1,5	3,5
08	1	3	11				18	6	65
08	2	2	3				54	2	41
08	2	3	6		3	13	74		3
08	2	4	6				57	1	36
08	2	5	5	6	9	4	52		24
08	2	6	4	1	8	8	39		40
01 u	6	4	6				90	1	3
01 u	6	3	3,5	0,5	1		52	2	41
01 o	6	3		1	10		58	6	24
01 o	6	4	3	0,4	1	0,6	89	1	5
09	6,1	1	25				74		1,4
09	6,1	2	19				45		36
09	6,1	3	20				46		34
09	6,1	5	17		2		31		50
09	6,2	1	20				57		23
09	6,2	2	19		3		33		45
09	7	1	19		1		41		39
09	7	2	18				43		39

Abb. 84: EDX-Analysenspektrum von der B<sub>4</sub>C Absorber-Auflösungszwischenzone aus den Einzeleffektuntersuchungen



## 7. Danksagung

Für die Fachberatung bei der Erstellung dieses Berichtes danke ich Herrn Dr. P. Hofmann (IMF I), sowie Herrn Prof. Dr. W. Dienst (IMF I) für die kritische Durchsicht des Manuskriptes.

Die Erstellung dieses Berichtes wurde durch die Zusammenarbeit mit mehreren Mitarbeitern der Hauptabteilung Ingenieurtechnik (HIT) und des Institutes für Materialforschung I (IMF I) ermöglicht. Von Herrn L. Sepold (HIT) wurden die Abb. Nr. 1 bis Nr. 8 sowie die Tab. Nr. 2 zur Verfügung gestellt. Von den Herren L. Anselment (HIT) und H. Metzger (IMF I) wurden mir für den Bericht die lichtoptischen Übersichtsaufnahmen im Maßstab 1 : 1 und 3 : 1 überlassen. Herr Anselment war darüber hinaus für die Oberflächenpräparation der CORA-Versuchsproben verantwortlich. Herr H. Metzger dokumentierte die lichtoptischen Untersuchungen der verschiedenen Bündelproben, die für die nachfolgenden REM/EDX-Analysen eine wichtige Unterstützung im Hinblick auf die Auswahl der zu untersuchenden Schiffe und Positionen darstellten. Schließlich war Frau Porter (IMF I/Sekretariat) für das Schreiben der vielen Tabellen und des Textes des Berichtes zuständig.

Ihnen allen sei an dieser Stelle für Ihre Unterstützung gedankt.

## 8. Literatur

- [1] S. Hagen, K. Hain, "Out-of-pile Bundle Experiments on Severe Fuel Damage (CORA-Programm): Objectives, Test Matrix and Facility Description", KfK 3677, 1986.
- [2] S. Hagen, P. Hofmann; "Physical and Chemical Behaviour of LWR Fuel Elements up to very High Temperatures", KfK 4104, 1987.
- [3] L. Sepold; KfK Interner Bericht, 1988.
- [4] S. Hagen P. Hofmann, V. Noack, G. Schanz, G. Schumacher, L. Sepold; "Behavior of B<sub>4</sub>C Absorber Material in Zircaloy/UO<sub>2</sub> Fuel Rod Simulator Bundles at High Temperatures (CORA-16)", KfK 4560, to be published.
- [5] L. Reimer, G. Pfefferkorn; "Raster-Elektronenmikroskopie", Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York, 1977.
- [6] Brümmer; "Mikroanalyse mit Elektronen- und Ionensonden", VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig, 1980.
- [7] J. Burbach; "Ergebnisse von REM-Mikrobereichsanalysen des DWR-Bündelabschmelzexperimentes CORA-13", KfK 5162, 1993.
- [8] P. Hofmann; "Chemische Auflösung von festem UO<sub>2</sub>-Brennstoff durch geschmolzenes Zircaloy-Hüllmaterial", KfK 4000, 1986.
- [9] P. Hofmann, S. Hagen, G. Schanz, A. Skokan; "Chemical Interactions of Reactor Core Materials Up to Very High Temperatures", KfK 4485, 1989, and Nuclear Technology Vol. 87 (1989) 146 - 186.
- [10] P. Hofmann, M. Markiewicz; Chemical Interactions between as-received and pre-oxidized Zircaloy-4 and Stainless Steel at High Tempertures, KfK 5106, 1994.
- [11] W. Hering, P. Hofmann; Material Interactions During Severe LWR Accidents; Summary of Separate-Effects Test Results, KfK 5125, 1994.
- [12] P. Hofmann, M. Markiewicz, J. Spino; "Reaction Behaviour of B<sub>4</sub>C Absorber Material with Stainless Steel and Zircaloy in Severe LWR Accidents", KfK 4598, 1989, and Nuclear Technology Vol. 90 (1990) 226 - 244.