



**Forschungszentrum Karlsruhe**  
Technik und Umwelt

**Wissenschaftliche Berichte**  
FZKA 5632

# **Modellierung des Schwellens und der Tritium-Freisetzung von bestrahltem Beryllium**

**F. Scaffidi-Argentina**

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik  
Projekt Kernfusion

Oktober 1995

---



**Forschungszentrum Karlsruhe**

Technik und Umwelt

Wissenschaftliche Berichte

FZKA 5632

**Modellierung des Schwellens und der Tritium-Freisetzung  
von bestrahltem Beryllium**

**Francesco Scaffidi-Argentina**

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Projekt Kernfusion

Von der Fakultät für Maschinenbau der Universität Karlsruhe (TH)  
genehmigte Dissertation

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

1995

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

**Forschungszentrum Karlsruhe GmbH  
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe**

**ISSN 0947-8620**

## Kurzfassung

**SCAFFIDI-ARGENTINA, Francesco:**

**“Modellierung des Schwellens und der Tritium-Freisetzung von bestrahltem Beryllium”**

Beryllium ist einer der besten Neutronenmultiplikatoren für das Blanket eines Fusionsreaktors. Deshalb wurden Untersuchungen begonnen, um das Verhalten dieses Materials unter Neutronenbestrahlung sowohl während des normalen als auch anormalen Betriebs des Reaktors vorauszusagen. Das Schwellen, die Versprödung und die Tritium-Rückhaltung stellen die wichtigsten Folgen der Strahlungsschäden im Beryllium dar. Helium, das überwiegend durch die Reaktion  ${}^9\text{Be}(n,2n){}^4\text{He}$  erzeugt wird, ist der hauptsächliche Grund für das Schwellen des Berylliums und ist der entscheidende Faktor für die Lebensdauer dieses Materials. Daneben stellt das im Beryllium durch gleichzeitige Umwandlungsreaktionen entstandene Tritium ein Sicherheitsrisiko bei einem unkontrollierten Temperaturanstieg im Reaktor dar.

Es wurde deshalb ein Rechenprogramm entwickelt, das das Verhalten des durch Neutronenbestrahlung erzeugten Heliums und Tritiums in Beryllium beschreiben kann. Es basiert auf einem Rechenprogramm, das für die Analyse des Verhaltens gasförmiger Spaltprodukte in Spaltreaktor-Brennstäben entwickelt wurde. Das Programm beschreibt transiente und stationäre Vorgänge und es wurden die kristallographischen, die strukturellen (metallographischen) und die geometrischen Eigenschaften von Proben berücksichtigt. Außerdem wurden zwei weitere Modelle in das Programm eingebaut, die die chemischen Reaktionen von Berylliumoxyd und die Speicherung von Helium in Blasen beschreiben.

Der so entstandene neue Berechnungscode *ANFIBE* (ANalysis of Fusion Irradiated Beryllium) erlaubt, die Verteilung der Gase, das Schwellen und die Helium- und Tritium-Freisetzung von Beryllium zu berechnen. Die Zuverlässigkeit der Berechnungen wurde durch Vergleiche mit gemessenen Schwellwerten und mit Tritium-Freisetzungsexperimenten abgeschätzt. Die Übereinstimmung zwischen berechneten und gemessenen Daten ist ausgezeichnet. Schließlich sind Berechnungen für den Europäische *DEMO BOT*-Blanketentwurf durchgeführt worden.

## Abstract

**SCAFFIDI-ARGENTINA, Francesco:**

**"Modelling of swelling and tritium release from irradiated beryllium"**

Beryllium is one of the best neutron multipliers for the blanket of a fusion reactor, thus several studies have been initiated to evaluate this material behaviour under irradiation both for typical operating and accidental conditions. The most important effects of radiation damage in beryllium are swelling, embrittlement and tritium retention. The helium produced mainly by the reaction  ${}^9\text{Be}(n,2n)2\text{}^4\text{He}$  is the dominant cause of beryllium swelling which represents the major lifetime limiting factor for the material. Furthermore, the tritium inventory in beryllium, produced by simultaneous transmutation reactions, constitutes a safety hazard in case of accidental temperature excursions in the reactor. It was therefore decided to develop a computer code capable of describing the helium and tritium behaviour in beryllium. The approach used was to modify an existing code available for the modelling of gas behaviour in fuel elements irradiated in fission reactors.

The relevant effects occurring in irradiated beryllium under steady-state or transient temperature conditions have been considered from a microscopic (lattice and subgranular volume elements), structural (metallographic features of the material) and geometrical (specimen design parameters) point of view. A new model describing the trapping effects on tritium due to chemical reactions with beryllium oxide and capture in helium bubbles has been included in the code.

The resulting computer code *ANFIBE* (ANalysis of Fusion Irradiated BEryllium) allows the calculation of gas distribution, induced swelling and helium and tritium release from beryllium. The performance of the code was assessed by comparison with the available swelling and tritium release experiments. Good agreement between calculated and experimental data was found. Finally, analyses for the European *DEMO BOT* Ceramic Breeder Blanket have been performed.

# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b> .....	<b>1</b>
<b>2. Schwellen</b> .....	<b>9</b>
2.1 Mikroskopische Schwellvorgänge .....	12
2.1.1 Diffusion .....	12
2.1.2 Gasausscheidung .....	13
2.1.3 Blasenzerfall .....	14
2.1.4 Blasenbewegung .....	14
2.1.5 Blasenkoaleszenz und- wachstum .....	15
2.2 Makroskopische Schwellvorgänge und Gasfreisetzung .....	17
2.2.1 Spannungs-Verformungs-Gleichung .....	17
2.2.2 Gasfreisetzung .....	20
2.2.3 Kornwachstum .....	21
2.3 Gasdiffusion über längere Abstände unter Schwellen .....	22
2.3.1 Diffusionsmethode .....	22
2.3.2 Reaktionsgeschwindigkeitsmethode .....	23
2.4 Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen für Helium .....	25
<b>3. Tritium-Freisetzung</b> .....	<b>27</b>
3.1 Gaseinfang in Blasen .....	27
3.2 Chemischer Gaseinfang .....	28
3.3 Tritium-Freisetzungsvorgänge .....	29
3.4 Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen für Tritium .....	31
<b>4. Rechenprogramm</b> .....	<b>33</b>
4.1 Programm FUTURE .....	33
4.2 Programm ANFIBE .....	35
<b>5. Materialeigenschaften</b> .....	<b>41</b>
5.1 Diffusionskoeffizienten .....	46
5.2 Oberflächenspannung .....	51

5.3	Kriechgeschwindigkeitsgesetz	53
5.4	Dampfdruck	56
<b>6.</b>	<b>Empfindlichkeitsanalyse</b>	<b>57</b>
6.1	Referenzfall	57
6.1.1	He-Diffusionskoeffizient	61
6.1.2	Beryllium-Oberflächenspannung	64
6.1.3	Beryllium-Kriechgeschwindigkeit	66
<b>7.</b>	<b>Validierung des Rechenprogrammes</b>	<b>69</b>
7.1	Schwellen	69
7.2	Tritium-Freisetzungsdaten	80
<b>8.</b>	<b>Untersuchungen zum Feststoff-Blanketentwurf des FZK</b>	<b>91</b>
8.1	Beryllium-Schwellen	97
8.2	Tritium-Freisetzung aus Beryllium	109
<b>9.</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>113</b>
<b>Literatur</b>		<b>117</b>
<b>Anhang A.</b>	<b>Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen für Helium</b>	<b>125</b>
A.1	Helium-Konzentration in dynamischer Lösung	126
A.2	Helium-Konzentration in intragranularen Blasen	127
A.3	Dichte der intragranularen Blasen	128
A.4	Helium-Konzentration in Kornoberflächenblasen	129
A.5	Dichte der Kornoberflächenblasen	130
A.6	Helium-Konzentration in Korneckenblasen	131
A.7	Dichte der Korneckenblasen	132
<b>Anhang B.</b>	<b>Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen für Tritium</b>	<b>133</b>
B.1	Tritium-Konzentration in dynamischer Lösung	134
B.2	Tritium-Konzentration in intragranularen Blasen	135

B.3 Tritium-Konzentration in Kornoberflächenblasen .....	136
B.4 Tritium-Konzentration in chemischen Einfangstellen .....	137
<b>Dankesworte .....</b>	<b>139</b>

## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1. Tokamak	2
Abbildung 2. Blanket	3
Abbildung 3. Feststoff-Blanketentwurf des FZK	5
Abbildung 4. Beryllium Schwellen	11
Abbildung 5. Tritium-Freisetzung	30
Abbildung 6. Rechenprogramm	34
Abbildung 7. Rechenprogramm	36
Abbildung 8. Rechenprogramm	39
Abbildung 9. Materialeigenschaften	47
Abbildung 10. Materialeigenschaften	48
Abbildung 11. Materialeigenschaften	50
Abbildung 12. Materialeigenschaften	52
Abbildung 13. Materialeigenschaften	54
Abbildung 14. Materialeigenschaften	55
Abbildung 15. Referenzfall	59
Abbildung 16. Referenzfall	60
Abbildung 17. Referenzfall	62
Abbildung 18. Referenzfall	63
Abbildung 19. Referenzfall	64
Abbildung 20. Referenzfall	65
Abbildung 21. Referenzfall	67
Abbildung 22. Referenzfall	68
Abbildung 23. Beryllium Schwellen	71
Abbildung 24. Beryllium Schwellen	73
Abbildung 25. Beryllium Schwellen	74
Abbildung 26. Beryllium Schwellen	76
Abbildung 27. Beryllium Schwellen	78
Abbildung 28. Beryllium Schwellen	79
Abbildung 29. Tritium-Freisetzung	81
Abbildung 30. Tritium-Freisetzung	82
Abbildung 31. Tritium-Freisetzung	84

Abbildung 32. Tritium-Freisetzung .....	85
Abbildung 33. Tritium-Freisetzung .....	86
Abbildung 34. Tritium-Freisetzung .....	88
Abbildung 35. Tritium-Freisetzung .....	89
Abbildung 36. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	92
Abbildung 37. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	93
Abbildung 38. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	94
Abbildung 39. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	98
Abbildung 40. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	99
Abbildung 41. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	100
Abbildung 42. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	101
Abbildung 43. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	104
Abbildung 44. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	105
Abbildung 45. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	106
Abbildung 46. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	107
Abbildung 47. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	108
Abbildung 48. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	110
Abbildung 49. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	111
Abbildung 50. Feststoff-Blanketentwurf des FZK .....	112

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 1. Materialeigenschaften	42
Tabelle 1. Materialeigenschaften	43
Tabelle 2. Materialeigenschaften	44
Tabelle 2. Materialeigenschaften	45
Tabelle 3. Empfindlichkeitsanalyse	58
Tabelle 4. Feststoff-Blanketentwurf des FZK	96

## Zeichenerklärung

### *Lateinische Buchstaben*

$a$	Mittlerer Radius der Beryllium-Körner (m).
$A$	Avogadro-Zahl (Atome/Mol).
$a_f$	Radius der Kornfläche (m).
$b$	Helium-Konzentration in intragranularen Blasen, pro Beryllium-Volumeneinheit ( $\text{Mol/m}^3$ ).
$b_t$	Tritium-Konzentration in intragranularen Blasen, pro Beryllium-Volumeneinheit ( $\text{Mol/m}^3$ ).
$c$	Helium-Konzentration in intragranularer dynamischer Lösung, pro Beryllium-Volumeneinheit ( $\text{Mol/m}^3$ ).
$c_t$	Tritium-Konzentration in intragranularer dynamischer Lösung, pro Beryllium-Volumeneinheit ( $\text{Mol/m}^3$ ).
$c^0$	Gleichgewichtskonzentration der Helium-Atome, pro Beryllium-Volumeneinheit ( $\text{Mol/m}^3$ ).
$D$	Helium-Diffusionskoeffizient in Beryllium ( $\text{m}^2/\text{s}$ ).
$D_e$	Korneckenblasen-Diffusionskoeffizient ( $\text{m}^2/\text{s}$ ).
$D_f$	Kornoberflächenblasen-Diffusionskoeffizient ( $\text{m}^2/\text{s}$ ).
$D_i$	Intragranularenblasen-Diffusionskoeffizient ( $\text{m}^2/\text{s}$ ).
$D_s$	Kornoberflächen-Diffusionskoeffizient ( $\text{m}^2/\text{s}$ ).
$D_t$	Tritium-Diffusionskoeffizient in Beryllium ( $\text{m}^2/\text{s}$ ).
$D_v$	Leerstellen-Diffusionskoeffizient ( $\text{m}^2/\text{s}$ ).
$F$	Verhältnis der Flächen Kornoberflächenblasen/Gesamtoberfläche.
$g$	Helium-Konzentration in Kornoberflächenblasen, pro Beryllium-Volumeneinheit ( $\text{Mol/m}^3$ ).
$g_t$	Tritium-Atome in Kornoberflächenblasen pro Beryllium-Volumeneinheit ( $\text{Mol/m}^3$ ).
$k_e^2$	Verlust-Faktor für Korneckenblasen ( $1/\text{m}^2$ ).
$k_f^2$	Verlust-Faktor für Kornoberflächenblasen ( $1/\text{m}^2$ ).

$k_g^2$	Verlust-Faktor für Korngrenzen ( $1/m^2$ ).
$k_{gb}^2$	Verlust-Faktor für Blasen-Korngrenzen ( $1/m^2$ ).
$k_i^2$	Verlust-Faktor für intragranulare Blasen ( $1/m^2$ ).
$m_t$	Tritium-Konzentration in chemischen Fallen, pro Beryllium-Volumeneinheit ( $Mol/m^3$ ).
$N_e$	Dichte der Korneckenblasen ( $1/m^3$ ).
$N_f$	Dichte der Kornoberflächenblasen ( $1/m^3$ ).
$N_i$	Dichte der intragranularen Blasen ( $1/m^3$ ).
$N_n$	Konzentration der Leerstellen, die von Rückstoßatomen erzeugt werden ( $Mol/m^3$ ).
$N_T$	Konzentration der chemischen Fallen ( $1/m^3$ ).
$Q$	Zugeführte Wärme für Wärme-Diffusion ( $J/Mol$ ).
$R$	Gaskonstante ( $J/Mol$ ).
$r_e$	Radius der Korneckenblasen (m).
$r_f$	Radius der Kornoberflächenblasen (m).
$r_i$	Radius der intragranularen Blasen (m).
$R_T$	Mittlerer Radius der chemischen Fallen (m).
$t$	Bestrahlungszeit (s).
$T$	Absolute Temperatur (K).
$v_e$	Driftwanderungsgeschwindigkeit der Korneckenblasen (m/s).
$v_f$	Driftwanderungsgeschwindigkeit der Kornoberflächenblasen (m/s).
$v_i$	Driftwanderungsgeschwindigkeit der intragranularen Blasen (m/s).
$w$	Helium-Konzentration in Korneckenblasen, pro Beryllium-Volumeneinheit ( $Mol/m^3$ ).

### ***Griechische Buchstaben***

$\alpha$	Parameter ( $0 \leq \alpha \leq 1$ ). $\alpha$ stellt einen positiven Quellterm dar, der von der Blasenbildungsgeschwindigkeit gesteuert wird; er wird aus der Blasengröße abgeschätzt.
$\alpha'$	Entsprechend $\alpha$ , jedoch für ein anderes Glied der Gleichung.
$\beta$	Helium-Erzeugungsrate ( $Mol/m^3s$ ).

$\beta_i$	Tritium-Erzeugungsrate (Mol/m <sup>3</sup> s).
$\Delta T$	Temperaturgradient (K/m).
$\eta$	Lösungsrate (Atome/s).
$\eta^x$	Blasen-Vernichtungsrate (Blasen/s).
$\lambda$	Beryllium-Gitterabstand (m)
$\xi$	Chemische Aktivität von Tritium (Mol/m <sup>3</sup> )
$\chi$	Gasausscheidung-Aufschubfaktor.
$\psi$	Korngrenzen-Verdrängungsrate (1/s).

### *Indizes*

$e$	Index für Korneckenvariable.
$f$	Index für Kornoberflächenvariable.
$g$	Index für Korngrenzen.
$gb$	Index für Blasen-Korngrenzen.
$i$	Index für intragranulare Variable.
$t$	Index für Tritium Variable.
$T$	Index für Fallvariable.

# 1. Einleitung

Kernenergie lässt sich nach zwei physikalischen Prinzipien nutzen: Kernspaltung und Kernfusion. Während Spaltungsreaktoren bereits heute einen wesentlichen Anteil an der Elektrizitätserzeugung haben, stellt die Energieerzeugung durch Kernfusion noch eine Forschungsaufgabe dar. Neben grundsätzlichen Problemen der Plasmaphysik sind noch beträchtliche technische Probleme zu lösen.

Nach vielen Jahren international konkurrierender Entwicklung wird z. Zt. das *International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER)* Projekt von einer internationalen Studiengruppe geplant. Die Erfahrungen an Bau und Betrieb von *ITER* sollen den Bau des ersten Fusionsleistungsreaktors *DEMO* ermöglichen. Die Energieerzeugung bei der Kernfusion beruht auf der Reaktion eines Gemischs von Deuterium (*D*) und Tritium (*T*) nach folgender Reaktion:



Die quantitative Analyse für den *DT*-Fusionsprozeß ergibt, daß im Brennstoffgemisch eines Fusionsreaktors eine mittlere Temperatur von ca. 100 Millionen K herrschen muß. Bei dieser Temperatur sind die Bestandteile der Atome - die positiv geladenen Kerne und die negativ geladenen Elektronen - getrennt, jedoch erscheint das Gemisch nach außen hin neutral. Materie in diesem Zustand bezeichnet man als *Plasma*.

Da geladene Teilchen in einem Magnetfeld eingefangen werden können, besteht eine Möglichkeit, das Plasma einzuschließen darin, es in einen ringförmigen Behälter einzusperren. Mit stromdurchflossenen Spulen, die den Behälter umfassen, wird ein Magnetfeld erzeugt, dessen Feldlinien innerhalb des Behälters verlaufen. Ein derartiger Maschinentyp, bei dem das Plasma innerhalb eines Rings magnetisch eingeschlossen wird, wird *Tokamak* genannt. Das Prinzip des Tokamaks ist in Abbildung 1 dargestellt. Die bei der *D-T* Reaktion erzeugte Energie wird im Plasma als kinetische Energie der Fusionsprodukte *n* und  $\frac{1}{2}He$  ( $\alpha$ -Teilchen) frei. Da die Neutronen keine Ladung besitzen, werden sie vom Magnetfeld nicht beeinflusst und verlassen das Plasma. Über die Heliumkerne jedoch stehen dem Plasma pro Fusionsprozeß 3.5 MeV kinetischer Energie zur Verfügung, die über Stöße auf die Plasmateilchen übertragen wird. Durch diesen Prozeß kann der Energieabfluß durch Wärmeleitung und Strahlung kompensiert werden.

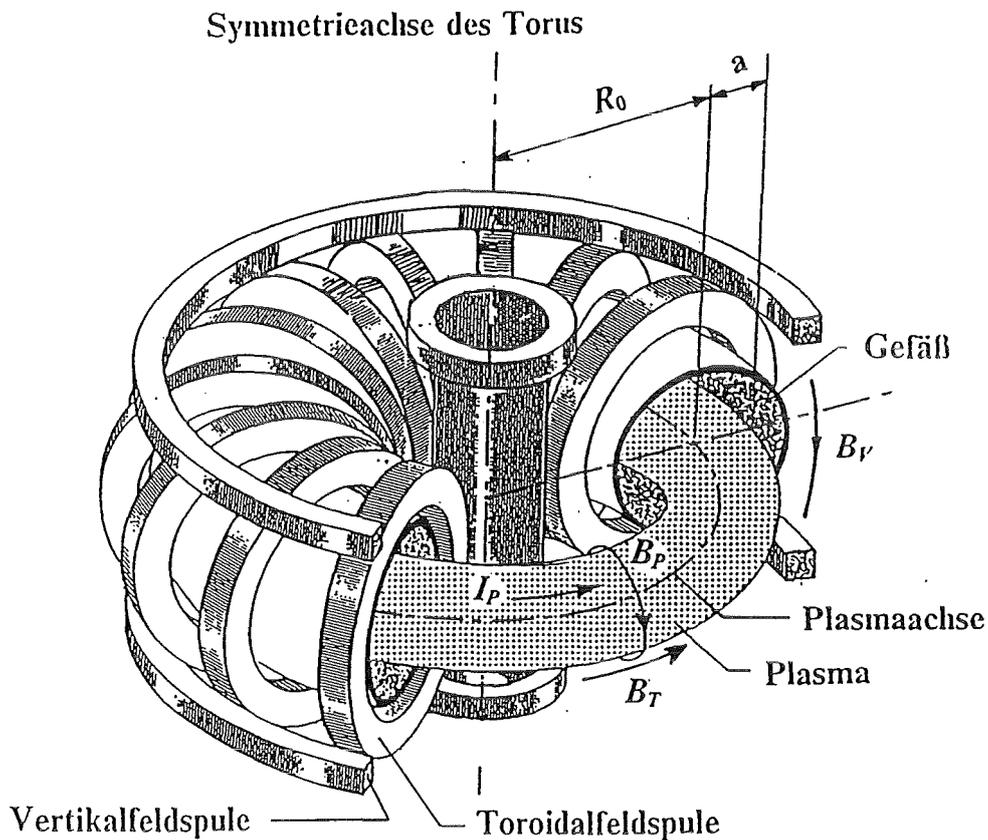
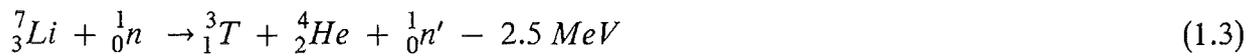


Abbildung 1. Tokamak: Funktionsschema eines Tokamaks.

Die Energie der Neutronen und der Energieabfluß aus dem Plasma sollen zur Stromerzeugung genutzt werden. Dazu umgibt man das Plasma allseitig mit einem Mantel, in dem diese Energie in Wärme umgewandelt wird.

Da das für die Fusionsreaktoren benötigte Tritium in ausreichender Menge in der Natur nicht vorkommt, muß es im Reaktor erbrütet werden. Es kann im Mantel durch folgende Neutronenabsorptions-Reaktionen



erzeugt werden.

Dieser Brutmantel, der zwischen dem Plasma und den Magnetfeldspulen liegt, wird *Blanket* genannt. Eine schematische Darstellung des Blankets ist in Abbildung 2 gezeigt.

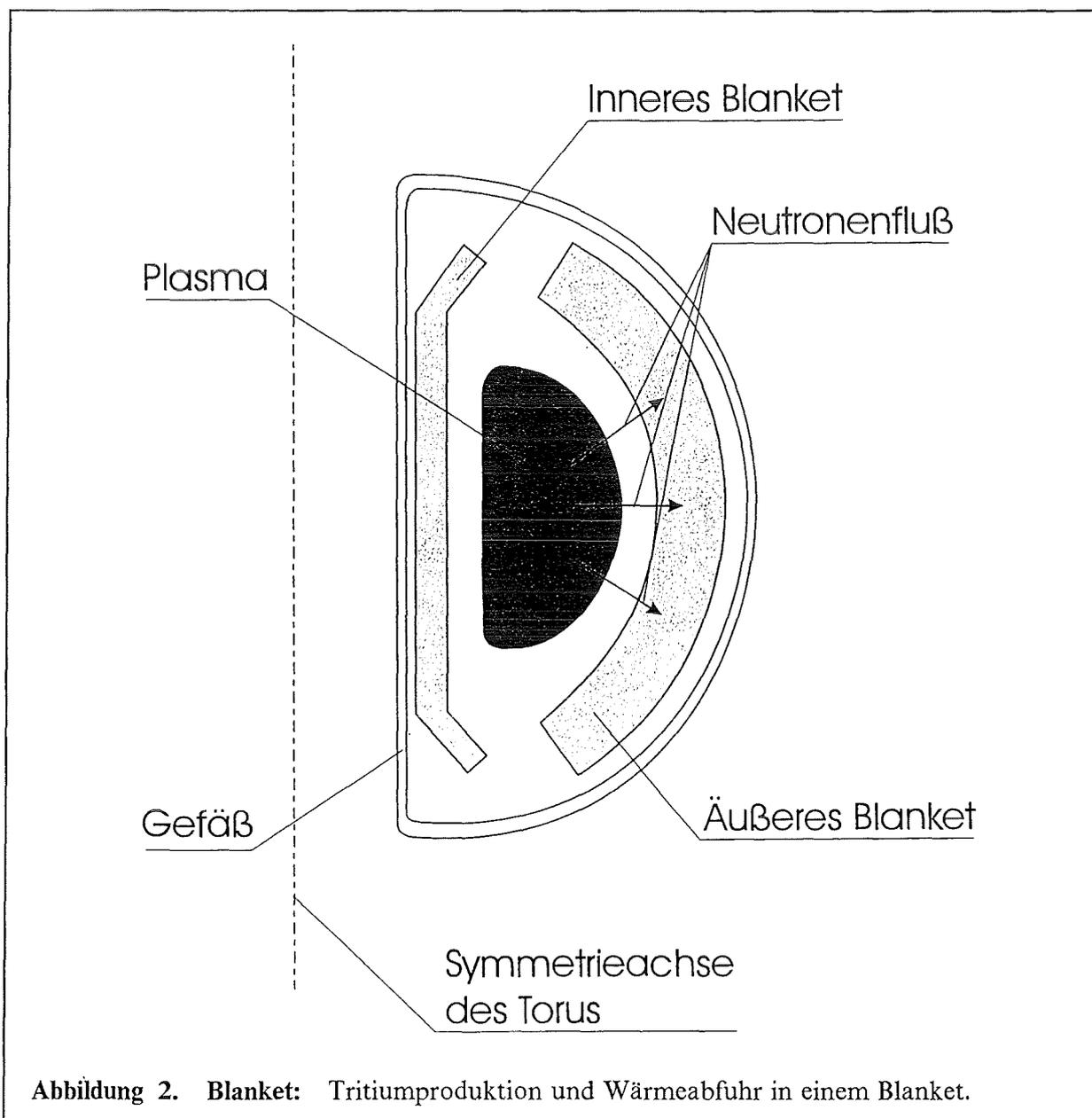


Abbildung 2. Blanket: Tritiumproduktion und Wärmeabfuhr in einem Blanket.

Aufgrund der parasitären Absorption in Strukturmaterial und der unvermeidbaren Verluste werden nicht alle Neutronen in Lithium eingefangen. Um eine ausreichende Tritiumproduktion zu erreichen, muß man die vom Plasma eindringenden Neutronen durch  $(n,2n)$ -Multiplikationsprozesse vermehren. Das beste Material dafür ist *Beryllium*, bei dem durch folgende  $(n,2n)$ -Reaktion



zwei Neutronen aus einem erzeugt werden (Energieschwelle der einfallenden Neutronen 2.7 MeV ).

Zusätzlich zu Helium wird während der Bestrahlung durch schnelle Neutronen in Beryllium eine geringe Menge an Tritium durch die folgenden Reaktionen erzeugt:



Beryllium wird als Schutzmaterial für die erste Wand (die Wand eines Fusionsreaktors, die mit dem Plasma direkt in Kontakt ist) des *JET* (Joint European Torus)-Reaktors verwendet und wird wahrscheinlich auch im *ITER*-Reaktor eingesetzt werden.

Im Feststoff-Blanketentwurf des Forschungszentrums Karlsruhe (FZK), das in Abbildung 3 gezeigt ist, werden keramisches  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  zur Tritiumerzeugung und Beryllium als Neutronenmultiplikator in Form von Kugelschüttungen verwendet [1].

Als Kühlmittel wird Helium benutzt.

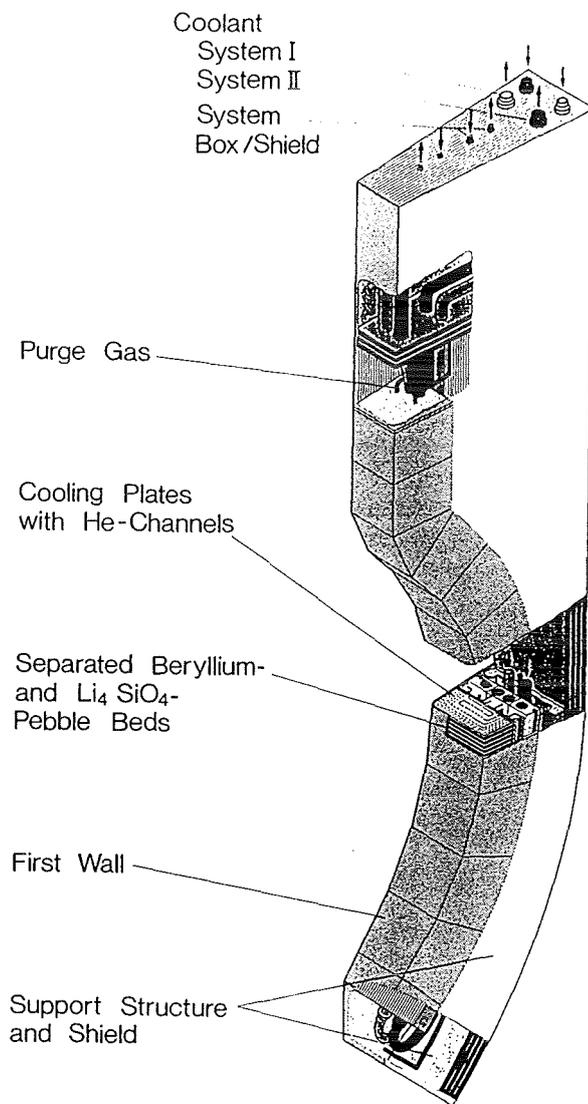


Abbildung 3. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Räumlicher Aufbau des Feststoff-Blankets des FZK

Sowohl in Lithium als auch in Beryllium wird Helium und Tritium erzeugt. In Beryllium ist besonders die Heliumproduktion von Bedeutung, weil sie zum Schwellen und zur Versprödung führen kann. Tritium wird für die Fusionsreaktoren benötigt, stellt aber gleichzeitig, wegen seiner Radioaktivität, ein erhebliches Sicherheitsrisiko dar.

Die Modellierung der strahlungsinduzierten Beryllium-Versprödung ist viel komplizierter als die des Schwellens und der Tritium-Freisetzung, deshalb sind experimentelle Untersuchungen notwendig. Im Gegensatz zum Schwellen erreicht die Beryllium-Versprödung jedoch ihren maximalen Wert schon bei ziemlich niedrigen Neutronenfluenzen, die einfach in Materialtestreaktoren erreichbar sind. Es wurde deshalb eine europäische Zusammenarbeit begonnen, um die strahlungsinduzierte Beryllium-Versprödung im BR2-Reaktor in Mol (Belgien) zu untersuchen. Die Ergebnisse dieser Bestrahlung werden 1995 veröffentlicht werden [2].

Das neutroneninduzierte Schwellen von Metallen wird durch zwei verschiedene Mechanismen verursacht. Der erste ist eine direkte Folge der Strahlungsschäden (dpa), die von schnellen Neutronen verursacht werden (*Leerstellen-Schwellen*). Der zweite tritt auf, wenn während der Neutronenbestrahlung ein Gas (Helium im Fall von Beryllium) erzeugt wird. Die He-Atome wandern innerhalb der Körner, übersättigen jedoch wegen ihrer sehr niedrigen Löslichkeit rasch das Beryllium und werden als intragranulare Blasen ausgeschieden. Die intragranularen Blasen können durch die Körner bis zur Korngrenze wandern (jedoch mit viel niedrigeren Geschwindigkeiten als die freien Atome), um dort Kornoberflächen- und Korneckenblasen (intergranulare Blasen), die üblicherweise größer als die intragranularen sind, zu bilden. Die Blasen können durch Gaseinfang und Koaleszenz größere Blasen mit niedrigerem Innendruck bilden, deren Wachstum eine plastische Verformung des Gitters verursacht, was zu einer zusätzlichen Materialschwellung führt. Bei relativ großer Volumenzunahme können Kornoberflächen- und Korneckenblasen sich miteinander verbinden und ein Netzwerk von offenen Poren bilden, aus dem das Gas freigesetzt werden kann.

Aufgrund des sehr hohen Verhältnisses He-Gehalt/dpa in Beryllium [3], wird das Schwellen im wesentlichen durch He-Produktion bestimmt. Das direkt durch die Strahlungsschäden über die Leerstellen verursachte Schwellen kann dagegen vernachlässigt werden.

Das Tritium, das während einer Bestrahlung mit schnellen Neutronen zusätzlich zu Helium in Beryllium erzeugt wird, kann durch das Gitter diffundieren, in "physikali-

schen" Fallen (z.B. intragranulare Blasen, geschlossene Porosität, Korngrenzen, usw.) eingefangen werden oder mit Berylliumoxyd, unter Bildung von Berylliumhydroxyd, reagieren. Die Entfernung des Tritiums aus dem Blanket soll möglichst schnell erfolgen, um die Menge an radioaktivem Tritium im Blanket klein zu halten, damit bei Störfällen mit Temperaturerhöhung keine größeren Tritiummengen freigesetzt werden.

Das nicht eingefangene Tritium diffundiert durch den Festkörper bis zur freien Oberfläche, wo es von einem vorbeiströmenden Spülgas, vorzugsweise Helium, mitgenommen wird. Ein zu hohes Schwellen kann sowohl die mechanische Integrität des Berylliums beeinträchtigen als auch den Fluß des Spülgases reduzieren oder unterbrechen. Es ist deshalb sehr wichtig, das Helium- und Tritiumverhalten in bestrahltem Beryllium genau zu beschreiben, und damit das Schwellen und das Tritium-Inventar zuverlässig voraussagen zu können. Eine genaue Beschreibung dieser Vorgänge ist Voraussetzung, um den Einsatz von Beryllium im Blanket hinsichtlich Temperatur und Materialdaten (Porosität, Form und Größe) zu optimieren.

Die Mehrzahl der veröffentlichten experimentellen Daten zum Schwellen gelten für Beryllium, das entweder bei niedrigen Temperaturen bis zu sehr hohen Neutronenfluenzen oder bei niedrigen Fluenzen bis zu sehr hohen Temperaturen bestrahlt wurde und als Reflektor in Materialtestreaktoren verwendet wurde. Es gibt einige empirische Korrelationen, die sich auf die bis jetzt verfügbaren Experimente stützen und sie sind verwendet worden, um das Schwellen, die Versprödung und die Tritium-Freisetzung von bestrahltem Beryllium vorauszusagen. Aufgrund der Kenntnisse, die nach dreißig Jahren theoretischer und experimenteller Arbeit zum Verhalten von Gasen in Feststoffen vorliegen, ist jedoch klar, daß eine zuverlässige Voraussage des Schwellens und der Tritium-Freisetzung im Beryllium durch empirische Korrelationen nicht möglich ist.

Da bisher kein Modell und kein entsprechendes Rechenprogramm verfügbar ist, wurde ein Code entwickelt, der die für das Verhalten von Gasen (Helium und Tritium) und für das Schwellen von Beryllium wichtigen Vorgänge modelliert. Ein am Institut für Transurane in Karlsruhe entwickeltes Rechenprogramm (*FUTURE*) [4] zur Analyse des Brennstabverhaltens bei Spaltreaktoren diente als Grundlage für diese Arbeit, wurde aber wesentlich modifiziert. Das so entstandene neue Rechenprogramm wurde *AN-FIBE* (ANalysis of Fusion Irradiated Beryllium) genannt.

In der vorliegenden Arbeit werden die Methoden und die Hilfsmittel, die bei der Durchführung der Untersuchungen verwendet wurden, dargestellt, die gewonnenen Er-

gebnisse erläutert und schließlich bewertet. In Kapitel 2 und 3 dieser Arbeit werden die wichtigsten Prozesse, welche das Verhalten von Gasen (Helium und Tritium) und das Schwellen von Beryllium beeinflussen sollen, dargestellt. Die benutzte mathematische Methode, bei der die räumlichen Diffusionsgleichungen in ein System von gekoppelten Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen zur Beschreibung der Freisetzung- und Diffusionsvorgänge von Helium und Tritium umgesetzt werden, wird ebenfalls diskutiert. In Kapitel 4 wird das Rechenprogramm, das zur Bewertung der Helium- und Tritium-Effekte in bestrahltem Beryllium entwickelt wurde, vorgestellt. In Kapitel 5 werden die in den Gleichungen von *ANFIBE* verwendeten konstitutiven Gesetze und die analytischen Beziehungen, die die Beryllium-Eigenschaften beschreiben, diskutiert; in Kapitel 6 werden die Ergebnisse einer Sensitivitätsanalyse dargestellt. In Kapitel 7 werden mit *ANFIBE* berechnete Schwellwerte und Tritium-Freisetzungsverläufe mit einer Vielzahl von in-pile Bestrahlungen und out-of-pile Ausheizungsexperimenten verglichen. Schließlich wird in Kapitel 8 eine qualitative und quantitative Bewertung des Berylliumverhaltens bei verschiedenen Temperaturen und Fluenzen für das Europäische *DEMO BOT*-Blanketentwurf [1] bei Normalbetrieb und für Störfall-Bedingungen gegeben.

## 2. Schwellen

Das Schwellen in durch Neutronen bestrahlten Materialien läßt sich durch das Zusammenspiel zweier Prozesse erklären. Der erste ist die Voidbildung während der Neutronenbestrahlung, der zweite spielt eine Rolle, wenn chemisch neutrale, gasförmige Kernreaktionsprodukte erzeugt werden. Voidschwellen in metallischen Stoffen ist dann möglich, wenn mikrostrukturelle Senken im Kristallgitter vorhanden sind, welche unterschiedliche Absorptionsraten für Zwischengitteratome und für Leerstellen aufweisen. Im allgemeinen werden in Metallen Zwischengitteratome vorzugsweise von Versetzungslinien und Leerstellen vorwiegend von schon vorhandenen Leervolumina aufgenommen. Die bevorzugte Auflagerung von Zwischengitteratomen an Versetzungslinien ist als *Versetzungslinien-Einfluß* (Bias) bekannt. In anisotropen Materialien wie Beryllium, hängt das Bias von der Orientierung der Versetzungslinien ab [5]. Als Folge des anisotropen Verhaltens erwartet man, daß die strahlungsinduzierte Volumenänderung die Berylliumkörner in der c-Gitterrichtung dehnt und die transversalen Abmessungen zu verringern strebt. Die Größe dieses Effekts ist stark vom Dichteverhältnis der Versetzungslinien mit Burgers-Vektor  $c$  und derer mit Burgers-Vektor  $a$  abhängig. Dieses Verhältnis ist im Falle vom Beryllium sehr klein [5].

Die im Beryllium aus der  $(n,2n)$ -Reaktion (1.4) erzeugte Heliummenge ist, verglichen mit anderen Materialien, relativ hoch und außerdem ist das Verhältnis zwischen erzeugter Heliummenge und Verschiebungen pro Atom (dpa) hoch. Das zeigt der Vergleich zwischen Beryllium und Edelstahl vom Typ 316: bei Beryllium beträgt das Verhältnis *He*-Erzeugung/dpa ungefähr 600 bis 1000 appm-*He*/dpa, bei Stahl ca. 0.5 bis 20 appm-*He*/dpa, je nach dem betrachteten Neutronenflußspektrum [5].

Die Untersuchung des Versetzungslinien-Bias (Vorherrschen der Versetzungslinien vom Typ  $a$  in Verbindung mit der bevorzugten Absorption von Leerstellen) und das hohe Verhältnis *He*-Gehalt/dpa in bestrahltem Beryllium deuten darauf hin, daß in Beryllium durch schnelle Neutronen hervorgerufene räumliche Veränderungen durch *He*-Blasenschwellen bestimmt sind, was auch durch die Versuche von Carpenter und Fleck bestätigt wird [6]. Die Voidbildung durch Strahlungsschäden wurde deshalb in der vorliegenden Untersuchung vernachlässigt.

Von einem phänomenologischen Standpunkt aus kann Beryllium als eine räumliche Anordnung von Körnern angesehen werden, in denen die vorwiegend von der Reaktion (1.4) herrührenden Helium-Atome zu der freien Oberfläche wandern und dort, aufgrund der äußerst geringen Löslichkeit, rasch das Beryllium übersättigen und sich in *intragranularen Blasen* niederschlagen. Durch intensive Neutronenbestrahlung können die intragranularen Blasen zerstört und die Gasatome erneut in das Gitter geschossen werden. Darum scheint Helium eine von Null verschiedene Löslichkeit zu besitzen. Diese Art von Löslichkeit nennt man *dynamische Löslichkeit*, um sie von der thermodynamischen Gleichgewichtslöslichkeit zu unterscheiden, die praktisch gleich Null ist.

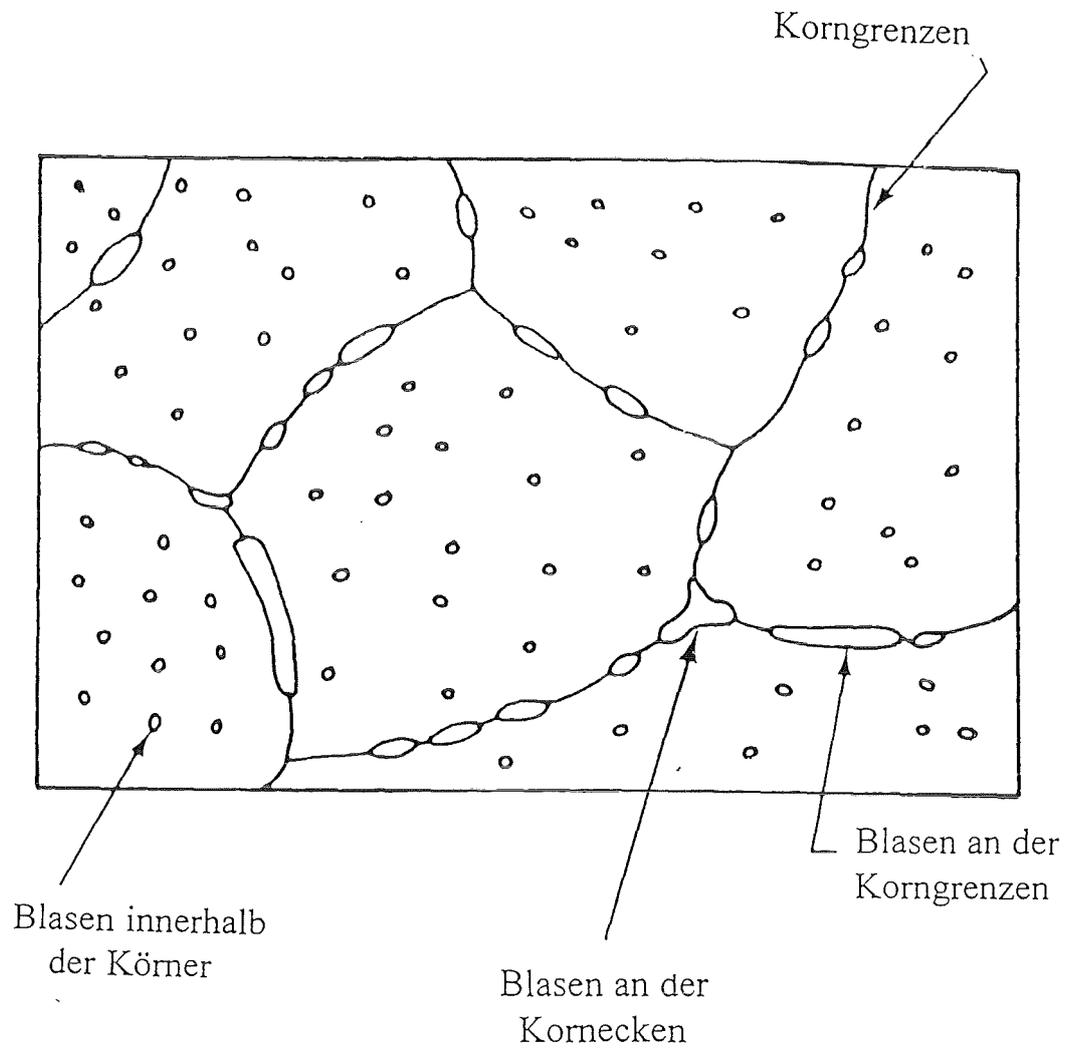
Bei hohen Bestrahlungstemperaturen und -fluenzen wachsen Berylliumkörner mit einer stark von der Temperatur abhängigen Geschwindigkeit. Aufgrund der Korngrenzenbewegung wird ein Teil des dynamisch gelösten Gases und der Blasen verdrängt und an den Korngrenzen irreversibel eingefangen.

Die intragranularen Blasen können sich viel langsamer bewegen als freie Atome. Ihre Bewegungsart ist entweder zufällig (*Brownsche Bewegung*) oder wird durch von lokalen thermischen Gradienten hervorgerufene Kräfte gesteuert (*Biased- oder Driftbewegung*). Dabei wandern sie durch das Gitter bis zu den Korngrenzen und bilden dort Kornoberflächenblasen und Korneckenblasen (*intergranulare Blasen*), die normalerweise größer als die intragranularen sind.

Sowohl die intragranularen als auch die intergranularen Blasen können durch das Auffangen freier Gastome und durch Koaleszenz wachsen. Ihr Wachstum kann eine plastische Verformung des Gitters verursachen, die zum Materialschwellen führt.

Bei relativ großer Volumenzunahme können sich Kornoberflächen- und Korneckenblasen miteinander verbinden und in einem Netzwerk von offenen Poren zusammenlaufen, durch welches das Gas aus der Materialprobe freigesetzt werden kann.

Abb. 4 zeigt eine typische Verteilung von intra- und intergranularen Blasen in bestrahltem Beryllium. Im folgenden Kapitel werden die wesentlichen, die Gaskinetik und -dynamik bestimmenden physikalischen Gesetze und die entsprechenden Elementarvorgänge erläutert.



**Abbildung 4. Beryllium Schwellen:** Schematische Darstellung eines Schnitts durch eine neutronenbestrahlte Be-Probe mit einer typischen Blasenverteilung.

## 2.1 *Mikroskopische Schwellvorgänge*

Die Untersuchung des Berylliumsschwellens erfordert gute Kenntnisse der wichtigsten Abläufe, die das Verhalten des während der Bestrahlung durch schnelle Neutronen in dem Festkörper bestimmen. Wenn man die Voidbildungseffekte aus Strahlungsschäden vernachlässigt, wird das Berylliumsschwellen durch die Expansion der erzeugten Gase verursacht, die gegen die hemmenden Kräfte des Feststoffes, wie z.B. Oberflächenspannung und mechanischer Widerstand, wirkt. Die physikalischen Grundsätze, welche dem gaskinetischen Beharrungs- und Einschwingverhalten sowie deren Elementarabläufen zugrundeliegen, werden im folgenden beschrieben.

### 2.1.1 Diffusion

Die Kurzreichweitengitterdiffusion stellt den ersten einer Reihe von Vorgängen dar, die zum Schwellen von und zur Gasfreisetzung aus mit Neutronen bestrahlten Materialien führen. In der klassischen Theorie wird angenommen, daß die Gasdiffusion in Feststoffen innerhalb begrenzter Bereiche, wie beispielsweise Körner oder Subkornbereiche (Zwischenräume in Versetzungsliniennetzen oder auch Einfanggebiete von Senken) stattfindet. Wenn der Transport durch Diffusion erfolgt, läßt sich der integrierte Fluß über Diffusionsgrenzen als Produkt des zugehörigen Diffusionskoeffizienten  $D$  mit dem örtlichen Konzentrationsgradienten ausdrücken (*erstes Ficksches Gesetz*). Dieser Fluß wird allerdings in der Praxis manchmal als das Produkt der über das Volumen gemittelten Konzentration  $c(t)$  mit dem Faktor  $H = Dk_g^2$  ausgedrückt. Dieser Faktor stellt die Wahrscheinlichkeit dar, daß ein wanderndes Atom an eine Grenze gelangt, wenn längs seiner Wege Einfangstellen vorhanden sind [7]. Den Beiwert  $k_g^2$  bezeichnet man als *Sinkstellenstärke* und seine Größe hängt von den Besonderheiten der in Betracht gezogenen Sinkstelle ab. Im einfachsten Fall, wenn nämlich die Sinkstellen reaktionsträge, sphärische und gleichmäßig im Material (mit Konzentration  $N_i$ ) verteilte Einschlüsse mit gleichem Radius  $r_i$  sind, ergibt sich  $k_g^2 = 4\pi N_i r_i$  [7]. Im Falle der intragranularen Blasen, die als kugelförmig und im Gitter gleichmäßig verteilt betrachtet werden können, wird im Rahmen dieser Arbeit der oben genannte Ausdruck angenommen. Für andere Sorten von Sinkstellen, wie intergranulare Blasen wird näherungsweise

ein vereinfachter, aus den allgemeinen Formeln in [7] hergeleiteter Ausdruck von  $k_g^2$  angenommen.

### 2.1.2 Gasausscheidung

Die Löslichkeit von *He* in Beryllium ist sehr niedrig. Während einer Reaktorbestrahlung wird daher sehr schnell Übersättigung erreicht.

Wenn das Gas diffundieren kann, fällt es in Form von Gasblasen aus. Die Ausscheidung von Helium aus dem im Feststoff gebundenen Zustand in Gasblasen hinein kann in der Regel nicht von den inneren Spannungen verhindert werden. Allerdings wird die Diffusion entlang der Kompressionsspannungsgradienten infolge der im Feststoff durch die gebundenen Atome hervorgerufenen Verformungsfelder verzögert und entsprechend in der entgegengesetzten Richtung gesteigert [8]. Hinsichtlich der Thermodynamik bewirkt die mechanische Spannung eine Kraft in der Massendurchsatzgleichung, welche entgegen dem Gaskonzentrationsgradienten wirkt, obwohl der Unterschied im chemischen Potential zwischen dem Gas im Feststoff und dem Gas in den Blasen durch die Spannungen fast nicht verändert wird. Entsprechend benötigt - bei identischen Gasübersättigungsbedingungen - eine unter hohem Überdruck stehende Blase eine längere Zeit, um ein zusätzliches Atom anzuziehen und einzufangen, als eine gleichartige Blase, die im elastischen Gleichgewicht mit der umgebenden Materie steht [8]. Dieser selektive Ausscheidungsvorgang erweist sich bei massiver Gasausscheidung, die insbesondere bei Temperaturänderungen auftritt, als besonders effektiv. Wegen des spannungsbedingten Aufschubfaktors  $\chi$  [8] können Blasen, die aufgrund ihrer Nachbarschaft zu ausgedehnten Fehlstellen leichter wachsen können, letzten Endes mehr Gas als im Durchschnitt einfangen. Dies ergibt eine bevorzugte Gasausscheidung an den Korngrenzen und an anderen ausgedehnten Gitterfehlstellen. Ohne diesen Effekt würden die Gase fast ausschliesslich in Form fein verteilter intragranularer Blasen ausscheiden. Es sei angemerkt, daß im Gegensatz zu anderen von den Gleichgewichtsbedingungen (siehe z.B. Ostwald-Entwicklung) beeinflussten selektiven Ausscheidungsvorgängen, dieser Vorgang mit der differenzierten Ausscheidungskinetik zusammenhängt. Darum sind die resultierenden Effekte vom betreffenden Temperaturzeitverlauf abhängig. Die intragranulare Ausscheidungsgeschwindigkeit läßt sich als Produkt des Zufalleinfangkoeffizienten  $k_i^2 D(c - c^0)$  und des spannungsbedingten Aufschubfaktors  $\chi$ , der den möglichen

Ausscheidungsverzögerungen während Temperaturänderungen Rechnung trägt [8], ausdrücken.

### 2.1.3 Blasenzerfall

Elastische Zusammenstöße von im Feststoff bzw. in Blasen befindlichen Helium-Atomen mit Neutronen und Rückstoßatomen wirken dem Gasblasen-Wachstum entgegen. Die Gasatome werden wieder in das Gitter zurückgeschossen und zwar mit einer durch den Zerfallsparameter  $\eta$  [9] gekennzeichneten Häufigkeit. Somit kann die Zerfallsrate als das Produkt der Zerfallshäufigkeit mit der Konzentration  $i$  der Atome in den Blasen  $b_i(t)$  ausgedrückt werden. Gleichzeitig steigert die große Anzahl der durch Neutronenkollisionen generierten Leerstellen die Gitterdiffusionsvorgänge, so daß die Blasenkernebildungs- und Blasenwachstumsgeschwindigkeit durch das Gleichgewicht zwischen ausscheidungsbedingter Zunahme und zerfallsbedingter Abnahme bestimmt wird. Üblicherweise nehmen die atomare Ausscheidung und der Zerfall nach einer gewissen Zeit denselben Wert an, so daß der Blasenzuwachs anhält. Dies führt normalerweise zu einer ausgeprägten Zunahme des Gastransports zu den Korngrenzen und dementsprechend zu einem asymptotischen Wert [9] und damit zu einer Stabilisierung der Gaskonzentration in intragranularen Blasen und in dynamischer Lösung.

### 2.1.4 Blasenbewegung

Wenn die Blasen gebildet sind, können sie sich zufällig (*Brownsche Bewegung*) oder in der Richtung der von den lokalen thermischen Gradienten verursachten treibenden Kräften (*Driftbewegung*) durch das Gitter bewegen. Die wichtigsten Blasenbewegungsabläufe werden durch die Volumen- und Oberflächendiffusion bewirkt. Erstere tritt auf, wenn Leerstellen von einer zur anderen Seite der Blase wandern, letztere, wenn sich die Leerstellen in atomaren Sprüngen entlang der Blasenoberflächen bewegen und dabei den Blasenschwerpunkt verschieben [10]. Diese Bewegungsabläufe werden durch einen atomaren *Selbstdiffusionskoeffizienten*  $D_v$  bzw. einen *Oberflächendiffusionskoeffizienten*

$D_s$ , sowie die Blasengröße beschreiben <sup>1</sup>. Damit wird der *Blasendiffusionskoeffizient* [10]

$$D_b(r) = \left( \frac{3\lambda^3}{2\pi r^3 f} \right) D_v + \left( \frac{3\lambda^4}{2\pi r^4} \right) D_s \quad (2.1)$$

definiert, und zwar als Summe der Produkte zwischen den Diffusionskoeffizienten der die Zuwachsgeschwindigkeit steuernden atomaren Teilchen (Blasenoberflächenatome oder Leerstellen) und einem die Funktionalbeziehung zwischen der Häufigkeit der atomaren Sprünge und der Verschiebung des Blasenschwerpunktes wiedergebenden Geometriefaktors. In Gl. (2.1) ist  $\lambda$  der Abstand zwischen Beryllium-Atomen,  $r$  der Blasenradius,  $f$  der von der Struktur des Berylliumskristalls abhängige Korrelationsfaktor,  $D_v$  der Selbstdiffusionskoeffizient und  $D_s$  der Oberflächendiffusionskoeffizient.

### 2.1.5 Blasenkoaleszenz und- wachstum

Das Blasenwachstum wird im wesentlichen durch die Gasausscheidung, den Leerstellen- Einfang und/oder vom Einfang freier Gasatome (*Verdrängung*) sowie von Koaleszenzvorgängen bestimmt. Wenn zwei Blasen zusammenprallen, neigen sie dazu sich zu vereinigen, indem sie eine größere Blase mit niedrigerem Kapillardruck bilden. Die Form der neu entstandenen Blase ist erst beständig, wenn zwischen allen lokal wirkenden Kräften Gleichgewicht erreicht ist, wenn nämlich:

$$p = \frac{2\gamma}{r} + p_{ext} \quad (2.2)$$

ist, wobei  $p$  der innere Gasdruck,  $\gamma$  die Oberflächenspannung,  $r$  der Blasenradius und  $p_{ext}$  der von den äußeren Kräften, die ihrerseits vom Gesamtschwellen abhängen, ausgeübte Druck ist. Da die Koaleszenz zweier Blasen nach Erreichen des Endgleichgewichtszustands ein flächeninhalterhaltender und kein rauminhalterhaltender Vorgang ist, folgt, daß die neu entstandene Blase ein Gleichgewichtsvolumen besitzt, das größer ist als die Summe der einzelnen Blasen volumina.

---

<sup>1</sup> Ein dritter Bewegungsablauf tritt auf, wenn sich Blasen infolge Transports von verdampfendem Material bewegen. Dies spielt jedoch erst bei sehr hohen Temperaturen eine Rolle.

Es ist allgemein bekannt, daß Blasen einer Brownschen Bewegung in der Materie unterliegen, so daß nach einer gegebenen Zeit  $t$ , die von der Blase zurückgelegte mittlere quadratische Entfernung

$$x(t) = \sqrt{6D_b(r)t} \quad (2.3)$$

beträgt, wobei  $D_b$  der Blasendiffusionskoeffizient und  $r$  der Blasenradius sind [10]. Die von einer wachsenden Blase zurückgelegte Gesamtentfernung wird, bedingt durch die starke Abnahme von  $D_b$  und wachsenden Blasenradius, ziemlich rasch einen asymptotischen Wert erreichen, welcher überwiegend von der während der Blasenfrühlebenszeit durchlaufenen Entfernung bestimmt wird. Diese Eigenschaft der Brownschen Blasenbewegung ermöglicht eine wesentliche Vereinfachung der Beschreibung des Koaleszenzablaufes. Da eine Blase, beginnend mit der Kernbildungszeit  $t$ , ein sphärisches Volumen vom Radius  $x$  verdrängt, kann - unter der Annahme, daß alle innerhalb dieses Volumens vorhandenen Blasen zu einer einzigen verschmelzen - der Zeitverlauf von  $x$  mit der zeitlichen Entwicklung der mittleren Konzentration  $n$  der größten, möglicherweise unbeweglichen Blasen korreliert werden. In diesem Falle gilt [10]:

$$n(t) \simeq \frac{1}{\frac{4}{3} \pi x^3(t)}. \quad (2.4)$$

Die Beziehung ist trotzdem nur scheinbar einfach, weil die Berechnung von  $x(t)$  die Kenntnis der gesamten Gaskinetik erfordert.

Wenn die Blasengröße wächst, wird die Anzahl der zur Herstellung eines elastischen Gleichgewichts mit der Grundmasse benötigten Leerstellen pro eingefangenen Atom zunehmend größer und dieser Zuwachs wird letztlich von einem erheblichen Material(Leerstellen-)fluß begleitet, der das von der wachsenden Blase eingenommene Volumen durchströmt. In der frühen Bildungsstufe, wo die Gasbüschel von umfangreichen Gitterverformungen umgeben sind, kann das Blasenwachstum durch die Abgabe von Zwischengitteratomen oder Versetzungsringen erfolgen. In diesem Stadium wird Blasenwachstums hauptsächlich von der Gasausscheidung bestimmt, weil die durch die ausgefallenen Gasatome hervorgerufene Druckspannung um Größenordnungen höher ist als der Fließpunkt der Grundmasse. Deshalb ist die Blasenausdehnung nach dem Gaseinfang schlagartiger Natur. Das Blasenwachstum ist darum ein von den aus dem inneren Blasenüberdruck um die Blasen herum sich aufbauenden, mechanischen Span-

nungsgradienten gesteuerter Vorgang und reagiert sehr empfindlich auf hemmende Belastungsverhältnisse, wenn die Blase größer wird [10].

## ***2.2 Makroskopische Schwellvorgänge und Gasfreisetzung***

Die oben genannten Phänomene beziehen lediglich mikroskopische Vorgänge ein. In Wirklichkeit kann eine Vielfalt weiterer Phänomene, z.B. die Zunahme der Korngrenzendurchlässigkeit, das Schwellen und die Gasfreisetzung bei hohen Temperaturen und insbesondere unter Einschwingbedingungen stark beeinflussen.

Nachdem das Gasverhalten im Berylliumgitter beschrieben worden ist, besteht der zweite Schritt darin, die auf die Gasausscheidung in Blasen und Poren folgenden Dehnungsgeschwindigkeiten zu berechnen. Da das Wachstum der drei typischen Blasensorten (intragranulare, intergranulare auf Kornoberflächen, intergranulare an Kornecken) der Zunahme des Eigenvolumens der entsprechenden Blasen entspricht, ergibt sich das makroskopische Materialschwellen aus der Summe der einzelnen, dynamisch aufeinander einwirkenden Schwellungsanteile, die den jeweiligen Blasenbevölkerungen entsprechen. Im Endeffekt bewirkt das beim Auftreten mikroskopischer plastischer Verformungsvorgänge entstehende Blasen- bzw. Porenwachstum eine irreversible plastische Verformung der Grundmasse.

Bei verhältnismäßig starkem Schwellen können sich Verbindungen zwischen Poren und offenen Porositäten und schließlich Freisetzungspfade in der Berylliumgrundmasse bilden. Schwellen und Gasfreisetzung sind einander ergänzende Vorgänge. Wenn der Feststoff einen hohen Anteil des darin erzeugten Gases freisetzt, schwillt er wenig, da nur noch wenig Gas vorhanden ist, um neue Blasen zu bilden. Umgekehrt führt die Rückhaltung von erzeugtem Gas grundsätzlich zu großen Schwellwerten.

### **2.2.1 Spannungs-Verformungs-Gleichung**

Die Beschreibung des Blasenwachstums erfordert prinzipiell eine atomare Behandlung und die Berücksichtigung einer Materialtransportgleichung, welche im allgemeinen schwer lösbar ist. Es ist jedoch bewiesen worden [10], daß die Lösung der Blasenwachstumsgeschwindigkeitsgleichung formal der für das Einsetzen eines Kriechvorgangs einer Anordnung von Kugeln entspricht. In diesem Falle und unter der Annahme, daß

die Blasen bzw. Poren wie hohle, dem Außendruck  $p_0$  und Innendruck  $p_i$  ausgesetzte Kugeln wirken, gilt für die Verformungsgeschwindigkeit:

$$\dot{\varepsilon}_e = \frac{2}{3} |\dot{\varepsilon}_r - \dot{\varepsilon}_t| = 2|\dot{\varepsilon}_t| = K\sigma_e^n \exp\left(-\frac{\Delta E}{kT}\right). \quad (2.5)$$

Dabei sind  $\dot{\varepsilon}_r$  und  $\dot{\varepsilon}_t$  die Verformungsgeschwindigkeiten in der Radial- bzw. Tangentialrichtung,  $\varepsilon_e$  und  $\sigma_e$  die entsprechenden Verformungen bzw. Spannungen und  $\Delta E$  die Kriechaktivierungsenergie<sup>2</sup>. Die anderen zwei Parameter  $K$  und  $n$ , die rein theoretisch je nach dem vorherrschenden Verformungsablauf von Temperatur und Spannung abhängig sind, wurden im Rahmen dieser Arbeit als temperatur- und spannungsunabhängig angenommen.

Wenn man Beryllium in hierarchisch aufgebaute "Zellen" ideal unterteilt, sodaß die größeren Zellen die Zellen niedrigeren Ranges<sup>3</sup> einschließen, dann lautet die Radialspannungskomponente für eine Zelle mit Radius  $R$  [10]:

$$\sigma_r(R) = GR^{-\frac{3}{n}} + D, \quad (2.6)$$

wobei

$$G = (p_i - p_0)a^{\frac{3}{n}}b^{\frac{3}{n}}\left(a^{\frac{3}{n}} - b^{\frac{3}{n}}\right)^{-1} \quad (2.7)$$

$$D = \left(p_0b^{\frac{3}{n}} - p_ia^{\frac{3}{n}}\right)\left(a^{\frac{3}{n}} - b^{\frac{3}{n}}\right)^{-1}. \quad (2.8)$$

$a$  und  $b$  stellen die Blasen-/Poren- bzw. Zellenradien dar.

<sup>2</sup> Falls die Nabarro-Herring-Bedingungen gelten, kann Gl. (2.5) als grundlegende Berechnungsformel für die Auswanderung von Leerstellen aus Blasen angesehen werden und es gilt  $n = 1$ . Allerdings läßt sich Gl. (2.5) auch auf andere Verformungsarten (z.B. Abscheiden von Versetzungsringen, Leerstellenwechselwirkung usw.), für die  $n > 1$  gilt, verallgemeinern.

<sup>3</sup> Die typische Reihenfolge sieht folgendermaßen aus: 1) die isotherme makroskopische Zylinderschicht bei einer gegebenen Temperatur  $T$ , 2) die um eine Korneckenblase zentrierte Kugelzelle, 3) die um eine Kornoberflächenblase zentrierte Kugelzelle und 4) die im Mittelpunkt einer intragranularen Blase gelegene, ebenfalls kugelförmige Zelle.

Aufgrund der vorausgesetzten sphärischen Geometrie lautet die Spannungsgleichgewichtsgleichung:

$$R \frac{d\sigma_r}{dR} = 2(\sigma_t - \sigma_r), \quad (2.9)$$

und daher erhält man für die Tangentialspannung:

$$\sigma_t = \sigma_r \left( 1 - \frac{3}{2n} \right) + \frac{3D}{2n}. \quad (2.10)$$

Ist  $\dot{\epsilon}$  die Verformungsgeschwindigkeit der Zelle dann läßt sich unter Benutzung der Gl. (2.5), (2.6) und (2.9) herleiten:

$$\dot{\epsilon} = A \left| \bar{\sigma} + p_b - \frac{2\gamma}{a} \right|^n \quad (2.11)$$

wobei

$$A = \frac{3}{2n} a^{\frac{3}{n}} \left( b^{\frac{3}{n}} - a^{\frac{3}{n}} \right) K \exp\left( - \frac{\Delta E}{kT} \right). \quad (2.12)$$

Die hydrostatische Spannung in der Zelle ist:

$$\sigma = \frac{1}{3} (2\sigma_t + \sigma_r) = \frac{\bar{\sigma} - p_i \mu^{\frac{1}{n}}}{\mu^{\frac{1}{n}} - 1} + \sigma_r \left( 1 - \frac{1}{n} \right) \quad (2.13)$$

wobei  $\mu = \left( \frac{a}{b} \right)^3$ .

Das einzige unbekannte Glied in den Gl. (2.11) und (2.13) ist  $\bar{\sigma}$ , welches aus dem mittleren Spannungsfeld in der größeren Zelle bestimmt wird.

Für das Verformungsfeld der größeren Zelle ergeben sich folgende Beziehungen [11]

$$\dot{\epsilon}_t = \frac{3\dot{\epsilon}_e}{2\sigma_e} (\sigma_t - \sigma) + \dot{\epsilon} \quad (2.14)$$

$$\dot{\epsilon}_r = \frac{3\dot{\epsilon}_e}{2\sigma_e} (\sigma_r - \sigma) + \dot{\epsilon}. \quad (2.15)$$

Unter Benutzung der Gl. (2.14) und (2.15) und aus der Gleichgewichtsgleichung (2.9) und der Kompatibilitätsbedingung:

$$\dot{\varepsilon}_r + \dot{\varepsilon}_t = R \frac{d\dot{\varepsilon}_t}{dR} \quad (2.16)$$

und unter Benutzung der Randbedingungen  $-\sigma_r(a) = p_i$  und  $-\sigma_r(b) = p_0$  kann man schließlich die Veränderlichen  $\dot{\varepsilon}_r$ ,  $\dot{\varepsilon}_t$ ,  $\sigma_r$ ,  $\sigma_t$  bestimmen [10 – 11]. Die Kenntnis des Verformungsfeldes ermöglicht damit die Berechnung des Materialschwellens.

### 2.2.2 Gasfreisetzung

Bei niedrigen Temperaturen ist die Beweglichkeit eines Edelgases so klein, daß eine Bewegung der Gasatome zu den freien Oberflächen oder gar bis zu den Stellen, wo sich Blasen bilden können, nicht feststellbar ist. Das Gas ist in der Grundmasse praktisch eingefroren und nur der Gasanteil, welcher sehr nahe der freien Oberfläche erzeugt wurde, kann freigesetzt werden. Im Beryllium wird die Helium-Beweglichkeit erst bei Temperaturen oberhalb 250 °C merklich, und nur in diesem Temperaturbereich ist das Gas in der Lage, innerhalb realistischer Zeiten an die Korngrenzen zu gelangen, wo es dann intergranulare Blasen bildet. Beim Auftreten von relativ großem Schwellen können Kornoberflächen- und Korneckenblasen ineinanderfließen und in einem Netz von offenen Poren zusammenlaufen, wodurch das Gas aus der Materialprobe entweichen kann<sup>4</sup>.

Zur Beschreibung der Verkettung von intergranularen Blasen und Poren bedient man sich der *Perkolationstheorie* [12]. Nach dieser Theorie sind die intergranularen Blasen und die Poren nach einem Verzweigungsmuster verteilt, das ein potentiell Netzwerk von durchlässigen Kanälen bildet. Die Verzweigungspunkte dieses Musters gelten als *besetzt*, wenn sie eine Blase oder eine Pore enthalten. Sei  $P$  der Anteil der besetzten

---

<sup>4</sup> Dies ist nur teilweise richtig, denn auch wenn das Porennetzwerk vollkommen verkettet ist, braucht man einen Überdruck der Größenordnung von ungefähr hundert bar bezogen auf den Umgebungsdruck, damit Gasfreisetzung auftritt. Derartige Druckwerte findet man in den Poren vor und nur die viel niedrigeren Kapillaritätsdrucke von wenigen bar wirken ihnen entgegen [10].

Verzweigungspunkte und  $N$  die Gesamtanzahl der Musterverzweigungspunkte. Die besetzten Verzweigungspunkte neigen dazu, untereinander verbundene Bündel zu bilden, deren Größe von  $P$  abhängt. Ein Bündel kann eine "Kette" enthalten, die als *ungebunden* bezeichnet wird, wenn sie an ein offenes Durchlässigkeitsnetz (mit freien Oberflächen) anschließt. Es ist nachgewiesen worden [12], daß es für jede Musterart einen kritischen Wert von  $P$ , hier  $P_c$  genannt, gibt, unter welchem ein besetzter Punkt sicherlich einer ungebundenen Kette angehört. Für jeden  $P$ -Wert größer als  $P_c$  besteht eine endliche Wahrscheinlichkeit, daß ein gegebener besetzter Verzweigungspunkt zu einer ungebundenen Kette gehört. Diese Wahrscheinlichkeit ist als *Perkolationswahrscheinlichkeit*  $p(P)$  bekannt und ist selbstverständlich Null, wenn  $P \leq P_c$  ist.

Für Berechnungszwecke wird angenommen, daß intergranulare Blasen und Poren auf einem Muster verteilt sind, bei welchem jeder Knoten mit drei anderen Knoten verknüpft ist. Für diese Art von Muster, auch *gestreckter Kaktus* genannt, kann bewiesen werden [12], daß der kritische Wert 0.637 beträgt. Das bedeutet, daß das Gas nur dann aus dem Feststoff entweichen kann, wenn mindestens 63.7% der gesamten Musterknoten von intergranularen Blasen und/oder Poren belegt sind. Nach dieser Theorie ist die Perkolationswahrscheinlichkeit erst abschätzbar, wenn die Korngröße und die intergranulare Porenverteilung bekannt sind. Schließlich kann die Gasfreisetzung aus durchlässigem Material berechnet werden, wenn der Prozentsatz von offenen Poren bekannt ist.

### 2.2.3 Kornwachstum

Bei hohen Bestrahlungstemperaturen und -fluenzen hängt die Geschwindigkeit des Kornwachstums in Beryllium sehr stark von der Temperatur ab. Vom mikroskopischen Gesichtspunkt aus betrachtet wird das Kornwachstum von beweglichen Gitteratomen verursacht, welche die mittlere Krümmung der Korngrenzen zu reduzieren versuchen. Dabei wachsen größere Körner, während die kleineren schrumpfen. Dieser Vorgang vermindert den Flächeninhalt der Kornränder. Wegen der Bewegung der Kornränder wird ein Teil des dynamisch gelösten Gases und der Blasen verdrängt und an den Kornrändern, wo die Blasen leicht koaleszieren können, irreversibel eingefangen. Dieses Phänomen wird mittels eines *Korngrenzenverdrängungskoeffizienten*  $\psi = \frac{3}{a} \frac{da}{dt}$  beschrieben, wobei  $a$  der mittlere Kornradius ist [4]. Es sei angemerkt, daß der Blasen-

zuwachs von intergranularen Blasen eingeschränkt wird - sie verhindern die Vergrößerung der Körner - wenn der Abdeckungsgrad (von den intergranularen Blasen abgedeckter Anteil der Kornoberfläche) sich dem Wert eins nähert. Das Blasenwachstum kann nur dann fortschreiten, wenn der Abdeckungsgrad wieder abgenommen hat, beispielsweise durch Freisetzung des intergranularen Gases oder beim erneuten Sintern der Körner.

## **2.3 *Gasdiffusion über längere Abstände unter Schwellen***

Die Gasmigration in einem Feststoff ergibt sich aus einem komplexen Zusammenspiel von Diffusions-, Einfang- und Freisetzungsvorgängen. Die diffundierenden Arten können allgemein sowohl von Gitterfehlern als auch von festen Fällprodukten oder von Blasen, welche die effektivsten intragranularen Sinkstellen darstellen, eingefangen werden. Da diese Einfangstellen beweglich sind, können sie für den Sekundärtransport sorgen. Der Diffusionsprozeß wird von den räumlichen Gegebenheiten, d.h. von der kristallographischen Struktur des bestrahlten Stoffes bestimmt. Zur Beschreibung des Langreichweitentransports von Gasatomen und Blasen kann man die folgenden zwei theoretischen Ansätze heranziehen. Die erste Methode besteht darin, die Diffusionsgleichung unter Berücksichtigung aller Vorgänge, die das Gasverhalten in der Grundmasse unter Bestrahlung steuern, zu lösen. Bei der zweiten Methode wird die Diffusionsgleichung in ein für die verschiedenen Blasenarten zweckmäßig formuliertes Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungssystem umgewandelt. In den nächsten Abschnitten wird auf die Vor- und Nachteile der genannten Methoden kurz eingegangen.

### **2.3.1 Diffusionsmethode**

Die Transportgleichung für die Gasdiffusion in einem Festkörper beschreibt die Bewegung im Gitter einschließlich der den Quellen und Sinkstellen Rechnung tragenden Verlust- und Quellterme. Ein Metall wie Beryllium läßt sich als ein Körper betrachten, der die verschiedenen Einfangstellen (z.B. Gasblasen, Kornbegrenzungen, usw.) für das diffundierende, aus der Reaktion (1.4) stammende Helium enthält. Das Hauptproblem bei der Lösung der Diffusionsgleichung in einem solchen Material stellt die Berechnung des Gasflusses über die Korngrenzen dar, weil man die Wahrscheinlichkeit, daß die je-

weils diffundierende Spezies von einer intragranularen Sinkstelle eingefangen wird, berücksichtigen muß. Darüber hinaus sollte man beachten, daß die Ausscheidung unter Neutronenbestrahlung ein reversibles Phänomen ist, weil die Helium-Atome infolge von Zusammenstößen mit Neutronen und Rückstoßatomen von den Blasen wieder aufgelöst werden können [9]. Weiterhin unterliegen die Gasblasen Zufallsbewegungen und/oder einer Driftbewegung längs der Spannungs- bzw. Temperaturgradienten sowie der Koaleszenz. Selbst wenn man davon ausgeht, daß die verfügbaren Theorien zur Beschreibung von Vorgängen wie Blaskernbildung, -zerfall, -bewegung und -koaleszenz vollständig und richtig sind, ist dieses Verfahren doch sehr problematisch, weil die Lösung der Diffusionsgleichung selbst von modernsten Rechnersystemen kaum zu bewältigen ist.

Eine alternative Methode, die zeitliche Entwicklung von Gasatomen und Blasen in Feststoffen unter Bestrahlung sowohl für stationäre als auch transiente Zustände zu beschreiben, beruht auf der Anwendung der Reaktionsgeschwindigkeitstheorie auf das Diffusionsproblem und wird im nächsten Abschnitt erläutert.

### 2.3.2 Reaktionsgeschwindigkeitsmethode

Die Reaktionsgeschwindigkeitstheorie wurde erstmals von Brailsford und Bullough [13] auf das Diffusionsproblem unter Einbeziehung eines geeigneten Verlusttermes angewandt, und es wurden damit eine Vielzahl von für die Reaktionskinetik in Festkörpern interessante Fragestellungen untersucht. Die Vorgehensweise besteht darin, die ortsabhängige Materialdiffusionsgleichung in ein System von Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen, bei denen die Zeitdifferentiale der Konzentrationen der diffundierenden Gasteilchen als Summen der räumlich gemittelten Gewinn- und Verlustglieder geschrieben werden, zu verwandeln. Diese Gleichungen erlauben die im Diffusionsbereich sowie in bestimmten Teilbereichen (z.B. im Falle der inter- und intragranularen Ausscheidung) stattfindenden relevanten Abläufe zu beschreiben.

Formal beschreiben die Gleichungen die effektive Gaskonzentration  $c$  in dynamischer Lösung, deren zeitliche Änderung durch die Gaserzeugungsgeschwindigkeit abzüglich der Summe der Nettogeschwindigkeiten der Gasausscheidung in alle vorhandenen Blasen hinein, und abzüglich der Verluste durch Diffusion über die Korngrenzen [10] gegeben ist. Die Nettogeschwindigkeit der Gasausscheidung in die Blasen wird als Diffe-

renz zwischen Ausscheidungs- und Zerfallsgeschwindigkeit berechnet. Diese Geschwindigkeiten lassen sich als Funktionen des Blasenradius  $r_k$  der  $k$ -ten Blasensorte, der Gaskonzentration  $c$  und der Blasendichte  $n_k$  berechnen. Die Zeitableitungen von  $n_k$  und  $r_k$  hängen noch von Modellvariablen ab, die im nächsten Abschnitt beschrieben werden. Bei der Reaktionsgeschwindigkeitstheorie wird angenommen, daß eine diskrete Zufallsreihe von Sinkstellen einer kontinuierlichen Verteilung der einzelnen Sinkstellenarten mit entsprechenden Dichten und Stärken gleichgesetzt werden kann [13]. Der Hauptvorteil dieser Methode im Vergleich zur Diffusionsmethode basiert auf der Möglichkeit, den Begriff der *statistischen Blasenbevölkerung* einführen zu können [10]. Dieser Begriff, der formal in das die Gaskinetik in der Grundmasse beschreibende Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungssystem eingesetzt werden kann, vermeidet den innewohnenden Nachteil einer detaillierten Beschreibung eines idealisierten Systems, wie es bei einer strengen Lösung der örtlichen Diffusionsgleichung notwendig ist. Selbst im einfachsten Falle ist das durch die Feststoffanordnung eines bestrahlten Materials charakterisierte System zu heterogen, um analytisch genau behandelt werden zu können. Da überdies die Gasverteilung im Gitter grundsätzlich von den statistischen Erzeugungsvorgängen und den darauffolgenden Wanderungsvorgängen bestimmt wird, sind Entstehung und Wachstum von Gasblasen in einem Festkörper unter Neutronenbestrahlung durchaus stochastischer Natur. Deswegen sollte ein analytisches Modell auch den stochastischen Aspekt des untersuchten Phänomens berücksichtigen, was eine starke Einschränkung der deterministischen Analyse bedeutet.

Bei einer nicht strengen Behandlung, wie sie die Methode der Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen darstellt, muß der Fehler, der durch die Einführung des Begriffs der statistischen Bevölkerung verursacht wird, abgeschätzt werden. Dies ist eine sehr wichtige begriffliche Aufgabe, zu deren Lösung Versuchsergebnisse sowie analytische Voraussagen herangezogen werden müssen. Für die Lösung ingenieurtechnischer Aufgaben scheint insbesondere unter Berücksichtigung der großen Schwierigkeiten einer deterministischen Vorgehensweise die Reaktionsgeschwindigkeitsmethode der praktikabelste Weg, um den langreichweitigen Gastransport in einem Festkörper beim Vorliegen von Schwellen zu beschreiben [4] [10].

## 2.4 Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen für Helium

Anders als bei den meisten Modellen, bei denen das Verhalten der Gasblasen im Gleichgewichtszustand beschrieben wird (der Gasdruck wird von der Oberflächenspannung des Materials ausgeglichen), werden in der vorliegenden Arbeit bei der Beschreibung des Blasenwachstums die kinetischen Effekte (Zufallsgaseinfang, Wanderung und Koaleszenz der Blasen) von den dynamischen Effekten (lokale Spannung-Verformungsgleichungen) getrennt behandelt.

Das zur Ermittlung aller notwendigen Variablen, welche in die nachfolgende Berechnung des Materialschwellens eingehen, zu lösende Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungssystem lautet:

**Helium-Konzentration in dynamischer Lösung:**

$$\begin{aligned} \frac{\partial c}{\partial t} = & \beta - \chi k_i^2 D(c - c^0) - k_g^2 Dc - \frac{\chi \pi r_i^2 N_i D c Q \Delta T}{RT^2} - \frac{\alpha D c Q \Delta T}{a RT^2} \\ & - \frac{6 \pi r_i c N_i D_i}{\lambda} - \pi r_i^2 c N_i v_i + \eta b - \psi c \end{aligned} \quad (2.17)$$

**Helium-Konzentration in intragranularen Blasen:**

$$\frac{\partial b}{\partial t} = \chi k_i^2 D(c - c^0) + \frac{\chi \pi r_i^2 N_i D c Q \Delta T}{RT^2} + \frac{6 \pi r_i c N_i D_i}{\lambda} - \eta b - \frac{3 v_i b}{a} - k_{gb}^2 D_i b - \psi b \quad (2.18)$$

**Dichte der intragranularen Blasen:**

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = \chi 16 \pi \lambda D N_n c A^2 - \eta^x N_i - \alpha' r_i^2 v_i N_i^2 - 16 \pi r_i D_i N_i^2 - \frac{\alpha 3 v_i N_i}{a} - k_{gb}^2 D_i N_i \quad (2.19)$$

**Helium-Konzentration in Kornoberflächenblasen:**

$$\frac{\partial g}{\partial t} = F k_g^2 D c + F k_{gb}^2 D_i b + \frac{F 3 v_i b}{a} + \frac{F \alpha D c Q \Delta T}{a RT^2} + F \psi (c + b) \quad (2.20)$$

**Dichte der Kornoberflächenblasen:**

$$\frac{\partial N_f}{\partial t} = \frac{F3v_i N_i}{a} + Fk_{gb}^2 D_i N_i - \frac{\alpha v_f N_f}{a_f} - \alpha' r_f^2 v_f N_f^2 - 16\pi r_f D_f N_f^2 \quad (2.21)$$

**Helium-Konzentration in Korneckenblasen:**

$$\begin{aligned} \frac{\partial w}{\partial t} = & (1 - F)k_g^2 D c + (1 - F)k_{gb}^2 D_i b + (1 - F) \frac{3v_i b}{a} + (1 - F) \frac{\alpha D c Q \Delta T}{a R T^2} \\ & + (1 - F)\psi(c + b) \end{aligned} \quad (2.22)$$

**Dichte der Korneckenblasen:**

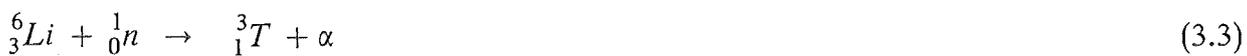
$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = (1 - F) \frac{3v_i N_i}{a} + (1 - F)k_{gb}^2 D_i N_i + \frac{\alpha v_f N_f}{a_f} - \alpha' r_e^2 v_e N_e^2 - 16\pi r_e D_e N_e^2 \quad (2.23)$$

Diese Formulierung der Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen basiert auf derjenigen, die im Rechenprogramm *FUTURE* [4] verwendet wird, und wurde an den Fall von Beryllium angepaßt. Man sieht leicht, daß jedes Glied in den Gleichungen, die die einzelnen Elementarvorgänge beschreiben, eine Quelle bzw. einen Verlust der jeweiligen Konzentrationen darstellt. Die meisten Terme sind selbsterklärend oder entsprechen klassischen Formulierungen, andere basieren auf den in den Abschnitten 2.1 und 2.2 gegebenen Erklärungen.

Eine ausführlichere Beschreibung der Terme enthält Anhang A.

### 3. Tritium-Freisetzung

Zusätzlich zu Helium wird während einer Schnellneutronenbestrahlung von Beryllium auch Tritium, und zwar hauptsächlich über die Reaktionskette



erzeugt.

Die Schwelle der Reaktion (3.1) liegt bei 600 keV mit einer starken Resonanz bei 3 MeV, wohingegen die Reaktion (3.3) keine Schwelle aufweist. Im Gegensatz zu Helium, das im wesentlichen als in Beryllium unlöslich angesehen werden kann, weist das Tritium eine endliche Löslichkeit sowie ein viel höheres Diffusionsvermögen als das der Selbstdiffusion von Beryllium-Atomen auf. Die Diffusion von Tritium ist wegen der niedrigen Aktivierungsenergie auch viel weniger temperaturabhängig als die von Helium. Deshalb diffundiert das Tritium im Beryllium-Gitter auch bei niedrigen Temperaturen schnell zu Stellen mit niedrigerer freier Energie (z.B. Blasen, Helium-Büschel, Korngrenzen oder auch Fremdstoffe) und kann dort durch chemische Reaktionen neue Teilchen bilden.

Die Freisetzungskinetik hängt vom jeweiligen Einfangvorgang ab und wird sowohl von strukturellen Senken (*physikalischer Einfang*) als auch von Berylliumoxydeinschlüssen (*chemischer Einfang*) verzögert.

#### 3.1 Gaseinfang in Blasen

Es wird in diesem Modell hinsichtlich des physikalischen Einfangs angenommen, daß das erzeugte Tritium durch das Gitter hindurchwandern bzw. von strukturellen Einfangstellen wie intragranularen Helium-Blasen, geschlossenen Porennetzen, Kornrändern usw. eingefangen werden kann. Anders als bei Helium kann für Tritium angenommen werden, daß es wegen seiner relativ hohen Löslichkeit im Beryllium und seiner viel

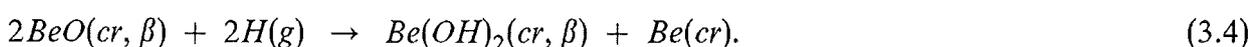
niedrigeren Produktionsrate nur in Helium-Blasen eingefangen werden kann, d.h. daß in bestrahltem Beryllium Gasblasen die einzigen wirksamen Senken für Tritium darstellen. Diese Annahme ermöglicht eine deutliche Vereinfachung der Beschreibung der physikalischen Einfangvorgänge. Aufgrund der Tatsache, daß nur eine Blasenart wirksam ist, gelten die für Helium berechneten Strukturparameter (z.B. Sinkstellenstärke, Zerfallsparameter, usw.) und es müssen nur noch die für Tritium charakteristischen Parameter (z.B. Diffusionskoeffizient, chemische Aktivität) definiert werden. Vom mathematischen Standpunkt aus erlaubt das eine Formulierung der die Tritium-Kinetik beschreibenden Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen, die mit der für Helium identisch ist.

Wenn das Tritium in Helium-Blasen eingefangen wird, wird sein Schicksal durch das der Blase bestimmt. Es wird freigesetzt, und zwar mit Aktivierungsenergie Null, wenn die Blase in ein offenes Porositätsnetzwerk eingespeist wird.

### 3.2 Chemischer Gaseinfang

Das üblicherweise verwendete Beryllium enthält immer einige  $BeO$ -Einschlüsse, die dazu neigen, sich an den Korngrenzen zu sammeln, wo sie kugelartige Phasen bilden.  $BeO$  kann mit Tritium zu Beryllium-Hydroxyd reagieren. Obwohl diese Verbindung stabil ist, erfolgt die Reaktion mit molekularem Tritium nicht spontan. Die Erklärung dafür liegt in der unterschiedlichen Bildungsenthalpie von  $Be(OH)_2$  unter Normaldruck und -temperatur, die bei der Bildung aus  $BeO$  und  $H$  ungefähr  $-0.7$  eV beträgt, während sie bei  $BeO$  und  $H_2$  bei ungefähr  $3.1$  eV liegt. Vermutlich erfolgt die Bildung von Beryllium-Hydroxyd über  $BeOT$  als Zwischenprodukt, auch wenn dies thermodynamisch nicht günstig ist [14]. Experimente [15] zeigen, daß die  $BeOT$ -Phase nicht geschwindigkeitsbegrenzend ist. Es wird daher in diesem Modell angenommen, daß nur die Hydroxyd-Phase für den chemischen Einfang des Tritiums verantwortlich ist.

Weiter wird angenommen, daß Tritium mit Berylliumoxyd zu Beryllium-Hydroxyd reagiert und zwar nach folgender Reaktion:



Die Bildungsenergie unter Normaldruck und -temperatur beträgt ca.  $-78$  kJ/Mol [16].

Die Gleichgewichtskonzentration von gelöstem Tritium (*chemische Aktivität*) läßt sich durch eine Arrhenius-ähnliche Beziehung beschreiben (van't Hoff- Gleichung):

$$[H] = \frac{[Be(OH)_2]^{\frac{1}{2}} [Be]^{\frac{1}{2}}}{[BeO]} e^{-\frac{\Delta G}{2RT}}. \quad (3.5)$$

Der Vorfaktor ergibt sich aus dem Massenwirkungsgesetz; im Exponent steht die freie Bildungsenergie  $\Delta G$ .

Die Freisetzung des bei Oxydeinschlüssen in Form von Beryllium-Hydroxyd gebundenen Tritiums erfordert eine genügend hohe Wärmeenergie. Während der Aufwärmphase kann sich nämlich  $Be(OH)_2$  zersetzen und die gebildeten Tritium-Atome können wieder in das Gitter eingeschossen werden. Das schüssige, im Gitter nicht gelöste Tritium diffundiert entweder durch das Gitter und verläßt die Probe oder wird, abhängig von der Blasendichte und -größe, von Gasblasen eingefangen.

### 3.3 Tritium-Freisetzungsvorgänge

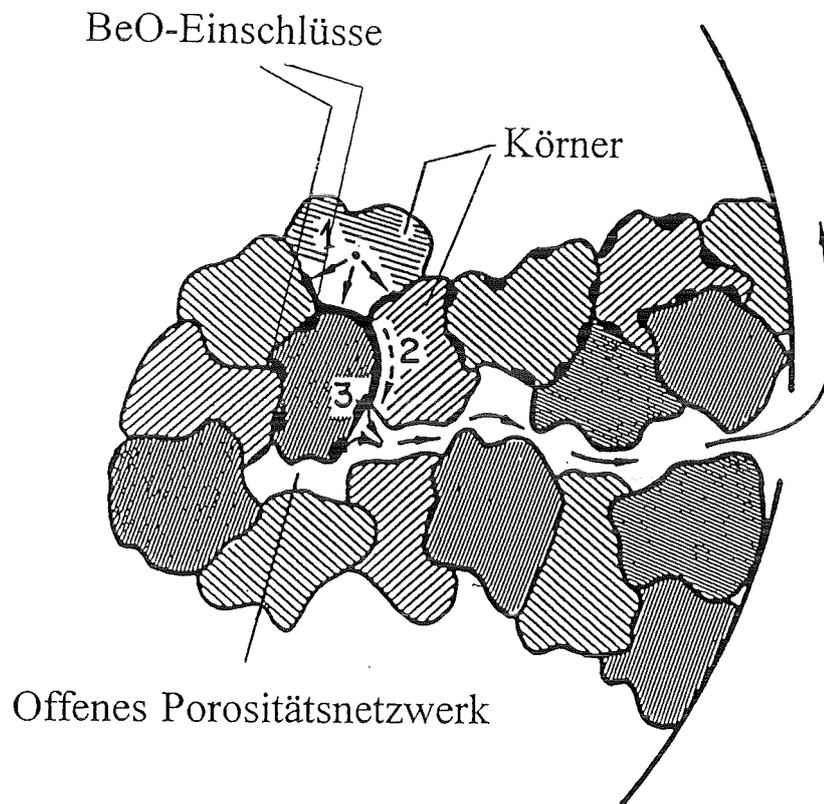
Die zwei unterschiedlichen Einfangvorgänge von Tritium in Beryllium bewirken einen unterschiedlichen Ablauf der Freisetzungskinetik, der von der Blasendichte und -größe und von der Bestrahlungs- bzw. Aufheizungstemperatur abhängt.

Die Tritium-Freisetzung aus Oxyd ist ein thermisch aktivierter Vorgang und findet nur statt, wenn die Beryllium-Temperatur die Umkehrtemperatur der chemischen Reaktion (3.4) übersteigt.

Das sich in physikalischen Einfangstellen befindende Tritium wird dagegen durch das Schicksal der Helium-Blasen bestimmt und wird erst freigesetzt, wenn die Blasen sich mit einer offenen Porosität vereinigt haben.

Abb. 5 zeigt schematisch die wichtigsten Einfang- und Transportprozesse von Tritium in einer idealisierten Beryllium-Probe.

Aufgrund der Annahme, daß nur eine Blasenart wirksam ist, kann die Tritium-Freisetzung an den physikalischen Einfangstellen genau so berechnet werden wie für Helium.



### Tritium-Freisetzungsvorgänge

- 1) Intragranulare Diffusion
- 2) Freisetzung aus physikalischen Einfangstellen
- 3) Freisetzung aus chemischen Einfangstellen

**Abbildung 5. Tritium-Freisetzung:** Schematische Darstellung der wichtigsten Tritium-Freisetzungsvorgänge in bestrahltem Beryllium.

### 3.4 Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen für Tritium

Für die Beschreibung der Tritium-Kinetik im Beryllium gilt der gleiche Formalismus wie für Helium. Entsprechend wurde das Modell durch Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen, die die Tritium-Kinetik in Beryllium beschreiben, erweitert. Damit können diejenigen Veränderlichen ermittelt werden, die für die Abschätzung der Tritium-Freisetzung gebraucht werden.

Es sind dies im einzelnen:

**Tritium-Konzentration in dynamischer Lösung:**

$$\frac{\partial c_t}{\partial t} = \beta_t - \chi k_i^2 D_t (c_t - \xi) - k_g^2 D_t c_t + \eta b_t - \psi c_t - 4\pi R_T N_T D_t (c_t - \xi) \quad (3.6)$$

**Tritium-Konzentration in intragranularen Blasen:**

$$\frac{\partial b_t}{\partial t} = \chi k_i^2 D_t (c_t - \xi) - \eta b_t - \psi b_t \quad (3.7)$$

**Tritium-Konzentration in Kornoberflächenblasen:**

$$\frac{\partial g_t}{\partial t} = k_g^2 D_t c_t + \psi (c_t + b_t) \quad (3.8)$$

**Tritium-Konzentration in chemischen Einfangsstellen:**

$$\frac{\partial m}{\partial t} = 4\pi R_T N_T D_t (c_t - \xi) \quad (3.9)$$

Dieser Satz von, die Einfang- und Freisetzungsvorgänge für das Tritium im bestrahlten Beryllium berücksichtigenden, Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen lag in der Originalversion des Rechenprogrammes nicht vor [4] und wurde in das Rechenmodell von *ANFIBE* zusätzlich eingebracht. Auch hier stellt jedes Glied in den Gleichungen eine Quelle bzw. einen Verlust der jeweiligen Konzentration aufgrund von entsprechenden Elementarvorgängen dar, wie in Kapitel 2 und vorher in diesem Kapitel erklärt worden ist. Eine ausführlichere Erläuterung aller Terme ist in Anhang B enthalten.



## 4. Rechenprogramm

Um die Eignung von Beryllium als Blanketmaterial bis zu hohen Neutronenfluenzen bewerten zu können, ist es wegen des engen Zusammenhanges zwischen der Helium-Blasenverteilung und der Tritium-Freisetzung notwendig, die Helium- und Tritium-Transportvorgänge mittels eines umfassenden Modells genau zu beschreiben.

Da bisher keine numerischen Modelle zur Erfassung der wichtigsten Vorgänge (Diffusion, Gasausscheidung, Blasenkoaleszenz, Heliumblaseneinfang, chemischer Einfang), die das Gas- und Schwellverhalten im Beryllium während einer Neutronenbestrahlung beeinflussen, vorhanden sind, wurde der Rechencode *ANFIBE* (ANalysis of Fusion Irradiated Beryllium) entwickelt, der alle relevanten Prozesse beschreibt und es ermöglicht, schnelle parametrische Rechnungen bezüglich des Beryllium-Verhaltens durchzuführen. Als Grundlage für *ANFIBE* diente ein bereits existierendes Rechenprogramm, das für die Modellierung des Spaltgasverhaltens in keramischen, in Kernspaltreaktoren bestrahlten Spaltstoffen eingesetzt wird [4].

In diesem Kapitel wird das zur Berechnung des Helium- und Tritium-Transports in Beryllium verwendete Rechenprogramm erläutert und es werden die wesentlichen Anwendungen diskutiert, die an dem ursprünglichen Programm angebracht wurden, um eine umfassende Beschreibung des Schwellens (einschließlich sämtlicher bekannter zur Beryllium-Ausdehnung beitragender Verformungsarten) und der Tritium-Einfangvorgänge in physikalischen und chemischen Senken zu ermöglichen.

### 4.1 Programm *FUTURE*

Das am Europäischen Institut für Transurane in Karlsruhe konzipierte und entwickelte Rechenprogramm *FUTURE* (Fuel Transient Ultimate Response) [4], welches das zeitliche Spaltstoffverhalten in LWR-Brennstäben im Normalbetrieb und unter Störfallbedingungen simuliert, diente als Grundlage für die vorliegende Arbeit.

Der Programm (Abb. 6) besteht aus zwei Zentralblöcken, MOTION und ACTION, die den kinetischen und dynamischen Zeitverlauf der betrachteten Systemgrößen beschreiben. Ein dritter damit verknüpfter Block, ESCAPE, dient zur Auswertung der Spaltgasfreisetzung.

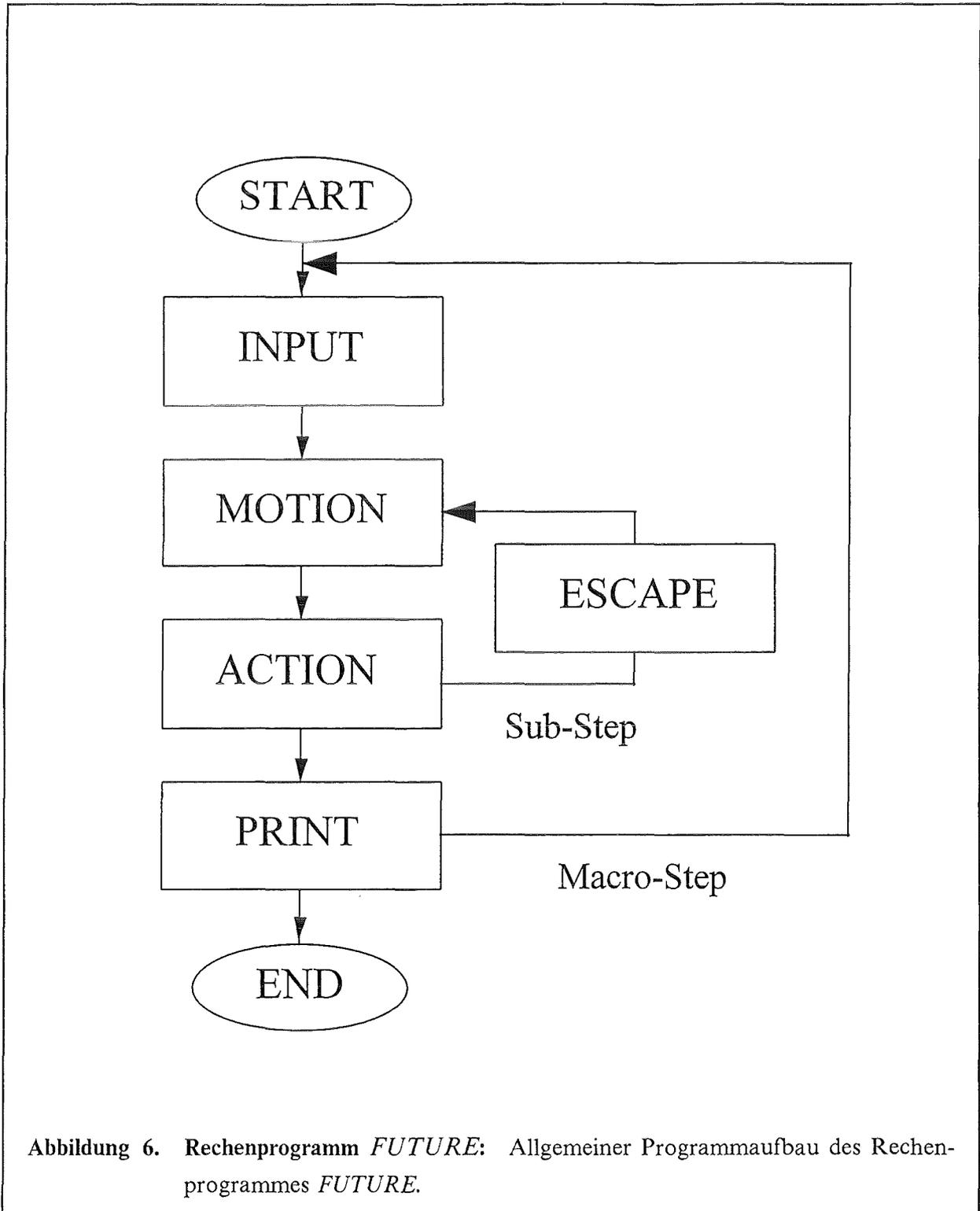


Abbildung 6. Rechenprogramm *FUTURE*: Allgemeiner Programmaufbau des Rechenprogrammes *FUTURE*.

Das Rechenmodell beruht auf einem System von sieben Differentialgleichungen, womit die Gaskonzentration in dynamischer Lösung, der in intragranulare Blasen ausgefällte Gasanteil und die Gaswanderungsgeschwindigkeit zu den Poren und Kornbegrenzungen berechnet werden können. Mit Hilfe von vorher berechneten Variablen (z.B. Blasendichte und-größe) und entsprechend den vorgegebenen Randbedingungen (z.B. Außendruck), führt das Programm die Integration der Spannung-Verformungsgleichungen aus und berechnet die sich durch die Gasausscheidung in Poren und Blasen ergebende Verformungsgeschwindigkeit und Materialschwellgeschwindigkeit.

Eine detaillierte Codebeschreibung findet sich in [4].

## 4.2 Programm ANFIBE

Wie schon erwähnt, ist im Rahmen dieser Arbeit eine neu Version des Codes *FUTURE*, genannt *ANFIBE*, erstellt worden.

Der allgemeine Programmaufbau (kinetische Phänomene werden weiterhin im Block *MOTION* und dynamische Spannungen im Block *ACTION* behandelt) ist unverändert geblieben (Abb. 7). Allerdings ist ein für die Beschreibung der Tritiumefang- und Tritiumfreisetzungsvorgänge entworfener Rechenbaustein eingefügt worden.

Der Code *ANFIBE* setzt sich aus mehreren Unterprogrammen zusammen, deren jeweilige Aufgabe es ist, die Gasgeschwindigkeit bestimmter Vorgänge zu berechnen, wobei der wesentliche Punkt die Integration der grundlegenden Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen ist. Die Unterprogramme werden aufgerufen, um die entsprechenden Veränderungen innerhalb eines oder nach einem Integrationsschritt weiterzuverarbeiten. Die grundsätzlichen Größen (Ausscheidung in Blasen und Poren, Koaleszenz, Migration zu den Kornrändern) werden parametrisch als Funktionen der Temperatur bestimmt. Ausgehend von der in die verschiedenen Senken ausgefällten Gasmenge, wird die Wachstumsrate von Poren und Blasen errechnet.

Dem numerischen Modell liegt, wie bereits erwähnt, ein System von elf Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen zugrunde, die den Atom- und Blasentransport von Helium und Tritium in einer Beryllium-Matrix sowie die Einfangabläufe bei gleichzeitigem Vorliegen von unter Druck stehenden Senken und chemischen Einfangstellen beschreiben.

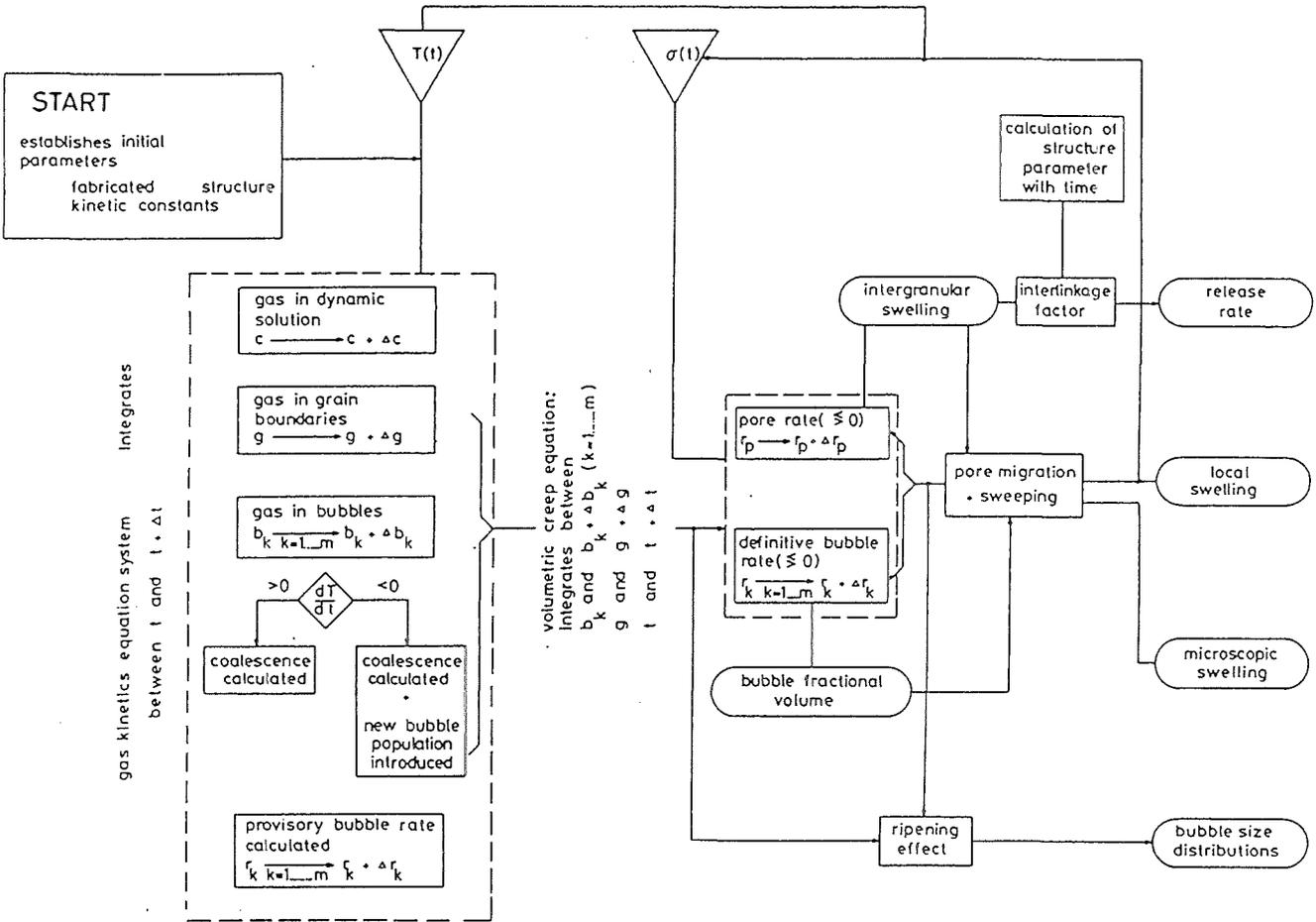


Abbildung 7. Rechenprogramm ANFIBE: Aufbau des gasdynamischen Modells im Rechenprogramm ANFIBE.

Die modellierte Berylliumprobe besteht aus einer regelmäßigen Anordnung von kugelförmigen Körnern, in denen die erzeugten Gase (Helium und Tritium) wandern und ausscheiden können, um intragranulare Blasen zu bilden. Zusätzlich können an den Oberflächen und Ecken der Körner Blasen entstehen. Jede Blasenart wird durch ihre in der entsprechenden Reaktionsgeschwindigkeitsgleichung vorkommende Dichte und mittlere Größe beschrieben. Der Aufbau der Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen und die wichtigsten in dem Gesamtsystem vorkommenden Parameter sowie die Teilmodelle mit den zugehörigen Transportgleichungen wurden in den zwei vorhergehenden Kapiteln erläutert.

Es soll noch auf die Spannung-Verformungsbeziehung in einem porösen Medium eingegangen werden, die in *ANFIBE* verwendet wird. Wie erwähnt, läßt sich die Wachstumsgeschwindigkeitsgleichung als eine für die Bereiche um die verschiedenen, unter Druck stehenden Hohlräume (intragranulare Blasen, Kornoberflächen- und Korneckenblasen) geltende Diffusionskriechgeschwindigkeitsgleichung schreiben. Jeder Bereich ist ein sphärisches, die jeweilige Blase umgebendes Volumen, genannt *Zelle*, dessen Durchmesser dem mittleren Abstand zwischen zwei Blasen entspricht. Der Ausdehnungsvorgang wird dann, ausgehend von der einfachsten Zellenanordnung (eine von 100%-dichtem Stoff umschlossene intragranulare Blase), abgeschätzt. Danach wird eine komplexere Zelle betrachtet, die in ihrem Zentrum eine von dichtem Stoff und intragranularen Blasen umschlossene Blase enthält. Diese Vorgehensweise wird über immer komplexere Zellen fortgesetzt. Zugleich werden die Spannung-Verformungsbeziehungen für den gesamten Körper basierend auf den plastischen Verformungen der einzelnen Zellen bestimmt.

Folgende Zellen werden im Modell betrachtet:

- a) *Mikrozelle*, die zu einer intragranularen Blase zentriert ist. Die Ausdehnung dieser Zelle erfolgt nur über Fehlstellen (z.B. Leerstellen bzw. Gasatome).
- b) *Lokale Zelle*, die zu einer Kornoberflächenblase zentriert ist. Sie baut auf einer endlichen Anzahl von Mikrozellen auf. Die Ausdehnung dieser Zelle wird von den Mikrozellenverformungen und den Kornoberflächenblasen verursacht.

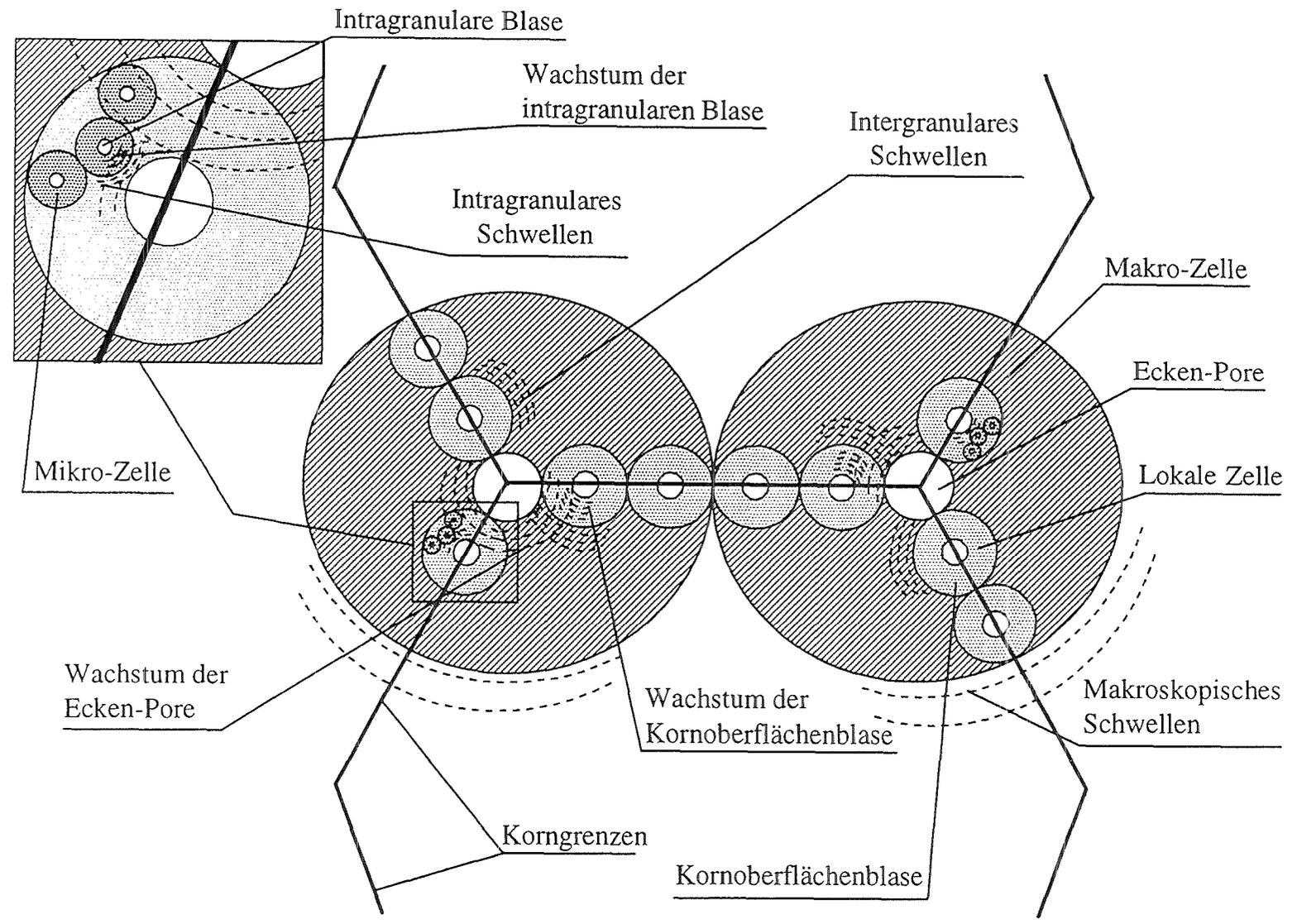
- c) *Makrozelle*, die zu einer Korneckenpore zentriert ist. Sie besteht aus einer Ansammlung von lokalen Zellen. Die Ausdehnung dieser Zelle kann durch Aufblähung von inter- und intragranularen Blasen sowie durch Porenaufweitung verursacht werden.
- d) *Geometrische Zelle* (zylindrische makroskopische Probe). Sie ist die einzige zylindrische Zelle und wird von Makrozellen gebildet. Diese Zelle kann sich infolge des Makrozellenwachstums und infolge von Schubspannungen im geometrischen Spannungsfeld der Probe ausdehnen.

Dem Spannungsfeld in all den Zellen sind bestimmte Rahmenbedingungen so zugeordnet, daß sich die Spannung auf der Innenfläche der Zellen aus dem Ungleichgewicht zwischen dem Helium-Druck und der Oberflächenspannung ergibt. Auf der Außenfläche nimmt die Spannung den lokalen Wert des geometrischen Außenfelds an. Auf den Zellenrandflächen herrschen nahezu isotrope Spannungszustände, die als Funktionen des Drucks angesehen werden können. Eine schematische Darstellung dieser Schwellvorgänge in porösem Material zeigt Abb. 8.

Die Verformungsgeschwindigkeiten der untergeordneten Zellen werden auf die höherrangigen Zellen, die ihr eigenes Kriechgesetz besitzen, übertragen, sodaß die mittlere Spannung, die von den ersteren Zellen geliefert wird, nach den Verformungsvorschriften der letzteren mitwirkt. Mit diesem Ansatz ist es möglich, die Ausdehnung der verschiedenen Blasensorten in eine geometrische Außenverformung umzusetzen, wobei ein Teil der Blasen in Porennetzen mit niedrigerem Druck untergebracht wird.

Auf der Grundlage der vorher im Block MOTION berechneten Variablen (z.B. Blasendichte und -größe) und den vorgegebenen Randbedingungen (z.B. Außendruck usw.), führt der Programmblock ACTION die Integration der Spannungs-Verformungsgleichungen für die oben beschriebenen vier Zellsorten durch. Dabei wird gleichzeitig die Materialschwellgeschwindigkeit mitberechnet, welche sich aus der resultierenden Verformungsgeschwindigkeit der geometrischen Zelle ergibt. Da das Gesamtschwellen im hohen Maße von der im Innern des Materials enthaltenen Gasmenge abhängig ist, liefert der Programmblock ESCAPE mittels der beschriebenen Perkolationstheorie eine Abschätzung des freigesetzten Gasanteils als Funktion des Materialaufbaus [12].

Abbildung 8. Rechenprogramm ANFIBE: Schematische Darstellung des Grundvolumens für die Berechnung des Wachstums von Poren und Blasen.



Die Verbindung zwischen MOTION, das die Gaskinetik simuliert, ACTION, das die nachfolgenden Verformungen berechnet und ESCAPE, das die Freisetzungseffekte berücksichtigt, erfolgt innerhalb einer Teilzeitschrittskala. Mit anderen Worten, es werden zuerst die Gaskonzentrationsänderungen im Rahmen der vorgegebenen Struktur und dann die Strukturänderungen infolge der gegenseitigen Wechselwirkungen zwischen den Zellen ausgewertet. Schließlich wird die Gasfreigabe durch Abschätzen der innerhalb eines Zeitschrittes stattfindenden Strukturänderungen errechnet.

Der Hauptteil der vorliegenden Arbeit beschäftigt sich mit folgenden Punkten:

- a) Umformulierung der konstitutiven Beziehungen für die wesentlichen physikalischen Phänomene, welche die Gaskinetik und -dynamik im Beryllium bestimmen.
- b) Auswahl von analytischen Beziehungen zur Beschreibung der Beryllium-Eigenschaften und deren Eingliederung in das Modell.
- c) Erstellung eines neuen mathematischen Modells zur Beschreibung der Tritiumkinetik und -dynamik im Beryllium sowie der Einfangvorgänge bei Vorhandensein von unter Druck stehenden Senken und chemischen Einfangstellen.
- d) Einbau der neuen Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen für Tritium in Beryllium in das Modell.

Ein beträchtlicher Teil dieser Arbeit befaßt sich mit der Umformulierung der im Differentialgleichungssystem benutzten konstitutiven Beziehungen und mit der Auswahl der berylliumspezifischen Parameter. Zu diesem Zweck wurde eine vertiefte Literaturrecherche durchgeführt, um die wichtigsten physikalischen Phänomene, die voraussichtlich auf das Gasverhalten in Beryllium unter Schnellneutronenbestrahlung wirken, bestimmen zu identifizieren.

Die verhältnismäßig hohe Unsicherheit mit der die physikalischen und mechanischen Berylliumeigenschaften behaftet sind, sowie die unzureichende Kenntnis mancher Phänomene in bestrahltem Beryllium, erfordern umfangreiche Anpassungs- und Eichanalysen. Diese stellen einen wesentlichen Teil der Programmentwicklung dar, wie in den folgenden zwei Kapiteln erläutert wird.

## 5. Materialeigenschaften

Die Wiedergabe der Versuchsergebnisse durch ein Modell erfordert eine Kenntnis der das Helium- und Tritiumverhalten im Beryllium bestimmenden Parameter und der physikalischen und mechanischen Eigenschaften von Beryllium. Zur Überprüfung der Voraussagen des Modells zum Schwellen und zur Tritiumfreisetzung werden Versuche verwendet, deren Bedingungen (z.B. Bestrahlungstemperatur, Helium- und Tritiumerzeugungsrate, Verunreinigungsgehalt) ziemlich gut bekannt sind. Dafür war eine sorgfältige Literaturrecherche notwendig, um eine Reihe von vergleichbaren Versuchsdaten von Proben bereitzustellen, die ähnlich gefertigt wurden und einen ähnlichen Verunreinigungsgehalt aufweisen, wie das für das Blanket in Betracht gezogene Beryllium.

Zwei Datensätze wurden schließlich ausgewählt: der erste, hier *westlicher* genannt, bezieht sich auf neueres, durch Warmpressen in den westlichen Ländern hergestelltes Beryllium, während der zweite, hier *russischer* genannt, sich auf relativ altes (Anfang der sechziger Jahre) russisches Beryllium bezieht, das einen höheren Verunreinigungsgrad aufweist als das westliche.

Leider sind einige für die Modellierung des Verhaltens von Tritium und Helium in bestrahltem Beryllium wesentliche Versuchsergebnisse und Materialeigenschaften zur Zeit kaum auffindbar oder überhaupt nicht verfügbar. Diese Tatsache machte eine Eichungsanalyse des *ANFIBE*-Modells notwendig, und diese Analyse ist ein wesentlicher Teil der Programmentwicklung. Die bei den vorliegenden Untersuchungen verwendeten Eigenschaftswerte und Parameter für westliches und russisches Beryllium sind in den Tabellen 1 und 2 jeweils aufgeführt.

Besondere Aufmerksamkeit wurde der Reduktion der Anzahl von Parametern gewidmet, die zur Erreichung einer Übereinstimmung von Modellvoraussagen mit Versuchsergebnissen notwendig sind.

Eigenschaften	Physikalische Beziehungen	Ref.
Oberflächen- spannung des Festberylliums [ $\frac{N}{m}$ ]	$\gamma = 3.13$ für $T < 780 K$	[40]
	$\gamma = 1.96 - 1.5 \times 10^{-3} \times (T - 1560.16)$ für $T < 1560 K$	[41]
	$\gamma = 1.96$ für $T \geq 1560 K$	
Oberflächen- spannung der Korngrenze [ $\frac{J}{m^2}$ ]	$\gamma_{gb} = 1.08$ für $T < 780 K$	
	$\gamma_{gb} = 0.69 - 0.5 \times 10^{-3} \times (T - 1560.16)$ für $T < 1560 K$	[42]
	$\gamma_{gb} = 0.69$ für $T \geq 1560 K$	
Selbst- Diffusions- koeffizient [ $\frac{m^2}{s}$ ]	$D_{v\perp} = 5.2 \times 10^{-5} \times e^{\frac{-18916.15}{T}}$ für $T \geq 838 K$	[17]
	$D_{v\parallel} = 6.2 \times 10^{-5} \times e^{\frac{-19844.55}{T}}$ für $T \geq 838 K$	[24]
	$D_v = 3.14 \times 10^{-10} \times e^{\frac{-9105.03}{T}}$ für $T < 838 K$	
Oberflächen- Diffusions- koeffizient [ $\frac{m^2}{s}$ ]	$D_{v\perp} = 5.2 \times 10^{-5} \times e^{\frac{-18916.15}{T}}$ für $T \geq 838 K$	[17]
	$D_{v\parallel} = 6.2 \times 10^{-5} \times e^{\frac{-19844.55}{T}}$ für $T \geq 838 K$	[24]
	$D_v = 3.14 \times 10^{-10} \times e^{\frac{-9105.03}{T}}$ für $T < 838 K$	
Diffusions- koeffizient der Heliumblasen [ $\frac{m^2}{s}$ ]	$D_b = \left( \frac{3\lambda^3}{2\pi r^3 f} \right) D_v + \left( \frac{3\lambda^4}{2\pi r^4} \right) D_s$	[5]

Tabelle 1. Materialeigenschaften: Materialeigenschaften für westliches Beryllium (Fortsetzung siehe nächste Seite).

<p>Helium- Diffusions- koeffizient [ <math>\frac{m^2}{s}</math> ]</p>	$D_{He} = 3.1 \times 10^{-6} \times e^{-\frac{25817.8}{T}} \quad \text{für } T \geq 873 \text{ K} \quad [20]$ $D_{He} = 9.889 \times 10^{-17} \times e^{-\frac{4718.87}{T}} \quad \text{für } T < 873 \text{ K} \quad [24]$	
<p>Tritium- Diffusions- koeffizient [ <math>\frac{m^2}{s}</math> ]</p>	$D_T = 9.18 \times 10^{-7} \times e^{-\frac{7702.89}{T}} \quad \text{für } T \geq 873 \text{ K} \quad [26]$ $D_T = 1.73 \times 10^{-9} \times e^{-\frac{2225.16}{T}} \quad \text{für } T < 873 \text{ K}$	
<p>Thermische Kriechge- schwindigkeit [ <math>\frac{1}{s}</math> ]</p>	$\dot{\epsilon}_t = 0.02 \times \sigma^{3.6} \times e^{-\frac{26000}{T}}$	<p>[43] [44]</p>
<p>Beryllium Bestrahlungs- kriechrate [ <math>\frac{1}{dpa}</math> ]</p>	$\dot{\epsilon}_i = 3.2 \times 10^{-12} \times \sigma$	[47]
<p>Beryllium Dampfdruck [ Pa ]</p>	$\log p = 6.186 \times 10^5 + 14.54 \times T - \frac{1.673 \times 10^9}{T}$	[50]

Tabelle 1. Materialeigenschaften: (Fortsetzung).

Eigenschaften	Physikalische Beziehungen	Ref.
Oberflächen- spannung des Festberylliums $\left[ \frac{N}{m} \right]$	$\gamma = 0.94$ <span style="float: right;"><i>für</i> <math>T &lt; 780 K</math></span>	[36]
	$\gamma = 0.59 - 0.45 \times 10^{-3} \times (T - 1560.16)$ <i>für</i> $T < 1560 K$	[40]
	$\gamma = 0.59$ <span style="float: right;"><i>für</i> <math>T \geq 1560 K</math></span>	
Oberflächen- spannung der Korngrenze $\left[ \frac{J}{m^2} \right]$	$\gamma_{gb} = 0.32$ <span style="float: right;"><i>für</i> <math>T &lt; 780 K</math></span>	
	$\gamma_{gb} = 0.21 - 0.15 \times 10^{-3} \times (T - 1560.16)$ <i>für</i> $T < 1560 K$	[42]
	$\gamma_{gb} = 0.21$ <span style="float: right;"><i>für</i> <math>T \geq 1560 K</math></span>	
Selbst- Diffusions- koeffizient $\left[ \frac{m^2}{s} \right]$	$D_{v\perp} = 5.2 \times 10^{-5} \times e^{-\frac{18916.15}{T}}$ <span style="float: right;"><i>für</i> <math>T \geq 838 K</math></span>	[17]
	$D_{v\parallel} = 6.2 \times 10^{-5} \times e^{-\frac{19844.55}{T}}$ <span style="float: right;"><i>für</i> <math>T \geq 838 K</math></span>	[24]
	$D_v = 3.14 \times 10^{-10} \times e^{-\frac{9105.03}{T}}$ <span style="float: right;"><i>für</i> <math>T &lt; 838 K</math></span>	
Oberflächen- Diffusions- koeffizient $\left[ \frac{m^2}{s} \right]$	$D_{v\perp} = 5.2 \times 10^{-5} \times e^{-\frac{18916.15}{T}}$ <span style="float: right;"><i>für</i> <math>T \geq 838 K</math></span>	[17]
	$D_{v\parallel} = 6.2 \times 10^{-5} \times e^{-\frac{19844.55}{T}}$ <span style="float: right;"><i>für</i> <math>T \geq 838 K</math></span>	[24]
	$D_v = 3.14 \times 10^{-10} \times e^{-\frac{9105.03}{T}}$ <span style="float: right;"><i>für</i> <math>T &lt; 838 K</math></span>	
Diffusions- koeffizient der Heliumblasen $\left[ \frac{m^2}{s} \right]$	$D_b = \left( \frac{3\lambda^3}{2\pi r^3 f} \right) D_v + \left( \frac{3\lambda^4}{2\pi r^4} \right) D_s$	[5]

Tabelle 2. Materialeigenschaften: Materialeigenschaften für russisches Beryllium (Fortsetzung siehe nächste Seite).

Helium- Diffusions- koeffizient [ $\frac{m^2}{s}$ ]	$D_{He} = 3.1 \times 10^{-6} \times e^{\frac{-25817.8}{T}}$ für $T \geq 873 K$ [20] $D_{He} = 9.889 \times 10^{-17} \times e^{\frac{-4718.87}{T}}$ für $T < 873 K$ [24]
Tritium- Diffusions- koeffizient [ $\frac{m^2}{s}$ ]	$D_T = 9.18 \times 10^{-7} \times e^{\frac{-7702.89}{T}}$ für $T \geq 873 K$ [26] $D_T = 1.73 \times 10^{-9} \times e^{\frac{-2225.16}{T}}$ für $T < 873 K$
Thermische Kriechge- schwindigkeit [ $\frac{1}{s}$ ]	$\dot{\epsilon}_t = 0.02 \times \sigma^{3.6} \times e^{\frac{-26000}{T}}$ für $T < 923 K$ [44] $\dot{\epsilon}_t = 1.99 \times 10^{26} \times \sigma^{3.6} \times e^{\frac{-85504}{T}}$ für $T \geq 923 K$ [45]
Beryllium Bestrahlungs- kriechrate [ $\frac{1}{dpa}$ ]	$\dot{\epsilon}_i = 3.2 \times 10^{-12} \times \sigma$ [47]
Beryllium Dampfdruck [ $Pa$ ]	$\log p = 6.186 \times 10^5 + 14.54 \times T - \frac{1.673 \times 10^9}{T}$ [50]

Tabelle 2. Materialeigenschaften: (Fortsetzung).

## 5.1 Diffusionskoeffizienten

Die meisten der bekannten Beschreibungen des Diffusionskoeffizienten für Beryllium als Funktion der Temperatur gelten für Temperaturen oberhalb ungefähr der Hälfte der Schmelztemperatur  $T_m$ . Insbesondere wurde für den Selbstdiffusionskoeffizienten von Beryllium nur ein Datensatz gefunden, und die dort angegebene Beziehung gilt für Temperaturen höher als  $565\text{ °C}$  [17]. Was den Diffusionskoeffizienten für Helium in Beryllium betrifft, ist nur ein beschränkter und ziemlich streuender Datensatz vorhanden [18 – 23] und nur zwei Autoren [18 – 19] betrachten auch Temperaturen unterhalb  $0.5 T_m$ . Dieser Mangel an Daten ist dadurch bedingt, daß, wenn die Versuchstemperatur niedriger als die oben genannte Schwelle ist, Selbstdiffusion- und Heliumdiffusionskoeffizienten so klein sind, daß unerträglich lange Meßzeiten nötig wären, um meßbare Effekte zu erzielen.

Von den verfügbaren Daten für den Heliumdiffusionskoeffizienten wurde die Bupalov-Beziehung [20] für diese Arbeit benutzt, weil sie sehr gut dokumentiert und am zuverlässigsten ist, auch wenn sie nur für Temperaturen höher als  $600\text{ °C}$  gültig ist.

Es war notwendig, einige Annahmen über das Verhalten der Diffusionskoeffizienten im Niedertemperaturbereich zu machen. Die Extrapolation wurde analog zu der durch Bestrahlung *erhöhten Diffusion* durchgeführt. Für die Diffusionsenthalpie wurde angenommen, daß sie im Niedertemperaturbereich zunimmt, was einen "Knick" im Arrhenius-Diagramm hervorruft. Wenn man zum Vergleich die durch Strahlenschäden geänderte Diffusion in  $UO_2$  heranzieht, läßt sich ein asymptotischer Wert von  $1 \times 10^{-23}\text{ m}^2/\text{s}$  für die Diffusionskoeffizienten bei Raumtemperatur abschätzen [24]. Die Werte des Diffusionskoeffizienten zwischen Raumtemperatur und ungefähr  $0.5T_m$  wurden mittels einer Exponentialfunktion interpoliert, wie es in den Abb. 9 und 10 gezeigt ist.

Die theoretische Erklärung für die strahlungsbedingte Erhöhung der Diffusion ist bekannt; sie ist auf das sogenannte "*displacement mixing*", der aus Kollisionen entstehenden Fehlstellen im Gitter zurückzuführen [25]. Dies ist der vorherrschende Transportmechanismus für Atome bei niedrigen Bestrahlungstemperaturen. Bei diesen Temperaturen bewegen sich die Fehlstellen praktisch nicht. Bei höheren Temperaturen beschleunigen überzählige, durch Bestrahlung erzeugte Fehlstellen die Diffusionsvorgänge und führen dabei zu einer strahlungsbedingten erhöhten Diffusion, sodaß die Fortentwicklung der Mikrostruktur in Richtung des thermodynamischen Gleichgewichts be-

schleunigt wird. Bei Temperaturen oberhalb  $0.5T_m$  überwiegen die thermisch stabilen Fehlstellen und die Bestrahlungsauswirkungen können vernachlässigt werden. In den Abb. 9 und 10 wird gezeigt, daß bei Raumtemperatur das displacement mixing überwiegt, während die strahlungsbedingte, erhöhte Diffusion bei mittleren Temperaturen dominiert, bei denen die Beweglichkeit der Leerstellen genügend groß ist, die Gleichgewichtskonzentration der Leerstellen jedoch noch niedrig ist. Bei höheren Temperaturen schließlich überwiegt die thermische Diffusion.

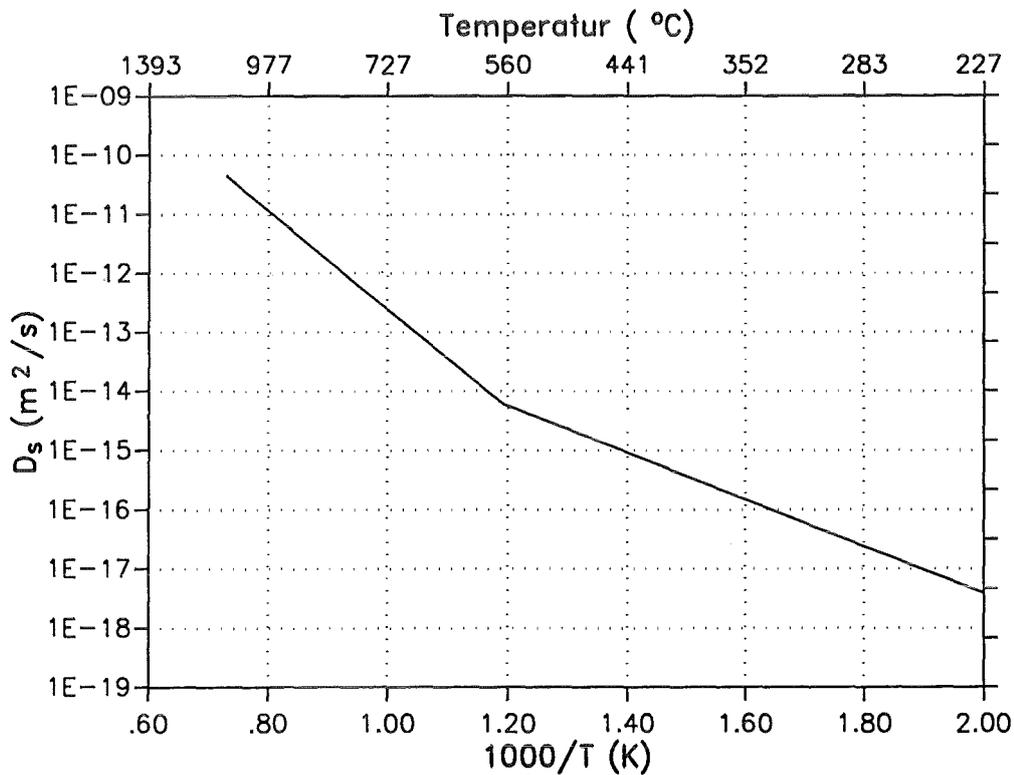


Abbildung 9. Materialeigenschaften: Beryllium-Selbstdiffusionskoeffizient [17].

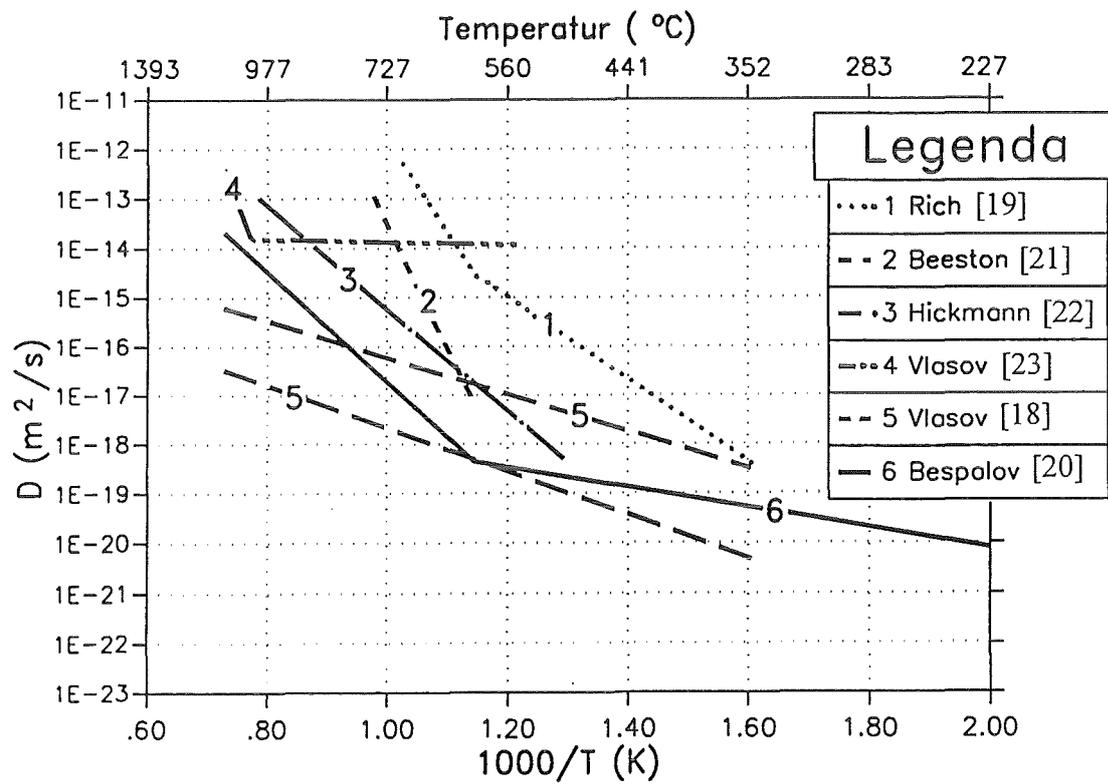


Abbildung 10. Materialeigenschaften: Helium-Diffusionskoeffizient in Beryllium. Die Beziehung 6 wurde in der vorliegenden Arbeit verwendet.

Besondere Aufmerksamkeit gebührt der Berechnung des Oberflächendiffusionskoeffizienten. Leider sind, aufgrund der Schwierigkeiten bei den Messungen dieses Parameters, gegenwärtig keine Daten verfügbar. Deshalb wird hier der Oberflächendiffusionskoeffizient dem Selbstdiffusionskoeffizienten gleichgesetzt<sup>5</sup>.

Was den Tritiumdiffusionskoeffizienten angeht, steht eine umfangreiche Datenbank über Wasserstoffdiffusion in Beryllium zur Verfügung [26 – 34] (Abb. 11). Da die Parameter stark von der Reinheit des Berylliums abhängen (wie durch die extreme, über sechs Größenordnungen sich erstreckende Streuung der Werte veranschaulicht wird), wurde die Beziehung von Jones und Gibson benutzt [26], weil damit eine bessere Übereinstimmung zwischen Modell und verfügbaren Meßwerten erreicht wird als mit anderen Beziehungen, wie in Kapitel 7 erläutert wird.

---

<sup>5</sup> Der Oberflächendiffusionskoeffizient steuert die Blasenbeweglichkeit [10]. Eine Unter- bzw. Überschätzung seines Wertes hat eine Abnahme/Zunahme der Koaleszenzgeschwindigkeit zur Folge. Da allerdings der Blasendiffusionskoeffizient mit der Blasengröße abnimmt, hängt der integrierte Blasenwanderweg genügend lange Zeit nicht empfindlich von dem angenommenen Oberflächendiffusionskoeffizienten ab.

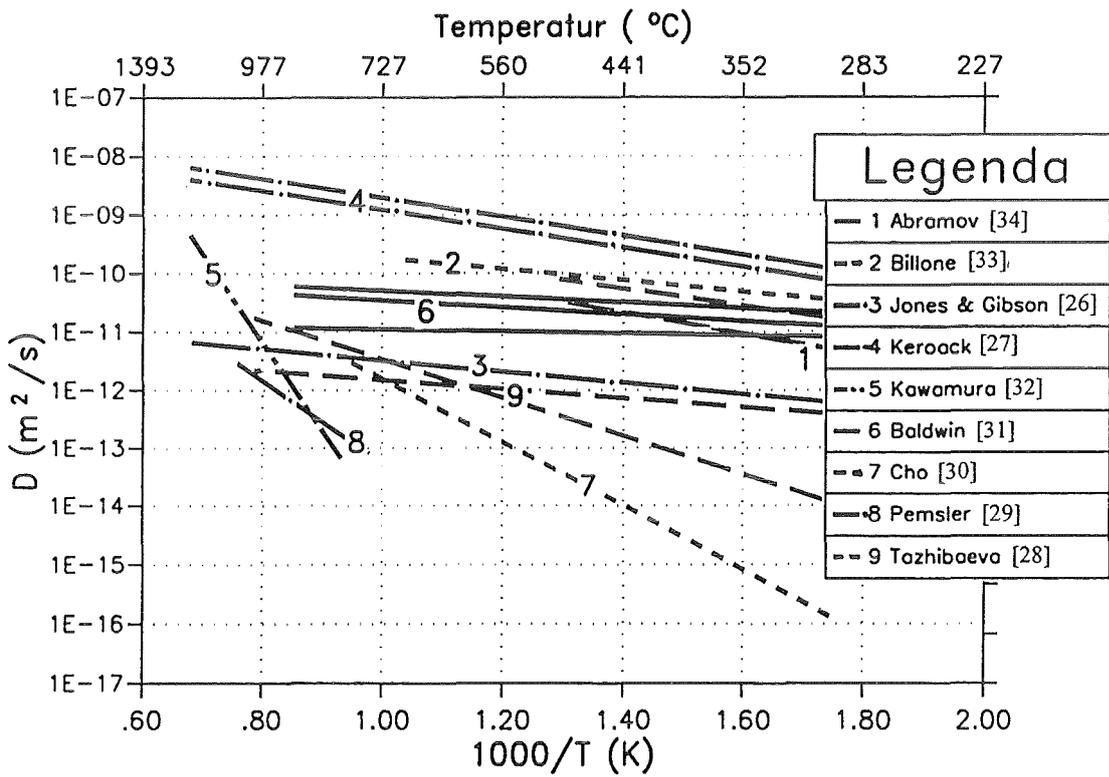


Abbildung 11. Materialeigenschaften: Tritium-Diffusionskoeffizient in Beryllium.

## 5.2 Oberflächenspannung

In den theoretischen Modellen für das gasgesteuerte Schwellen in Metallen spielt die Oberflächenspannung des Feststoffes als Funktion der Temperatur im Niedertemperaturbereich eine wesentliche Rolle. Diese Materialeigenschaft hängt jedoch sehr empfindlich von dem Fertigungsverfahren und Verunreinigungen ab. Demzufolge streuen die experimentellen Werte über einen großen Bereich.

Es ist bekannt, daß Verunreinigungen in einer Metallmatrix die Oberflächenspannung stark beeinflussen. Aus diesem Grunde wurden die Oberflächenspannungsgesetze für westliches und russisches Beryllium mit besonderer Sorgfalt ausgewählt. Die in dieser Untersuchung verwendeten Beziehungen wurden zunächst einmal mit Hilfe vorhandener Literaturdaten überprüft [35 – 39] und darüberhinaus durch Untersuchungen eines Beryllium-Herstellers (Brush-Wellman) bestätigt [40].

Leider gibt es keine experimentellen Werte für die Oberflächenspannung als Funktion der Temperatur für Beryllium. Für Temperaturen, bei denen die atomare Diffusion merklich ist ( $T > 0.5T_m$ ), nimmt die Oberflächenspannung dieselben numerischen Werte an wie die freie Oberflächenenergie [38]. Ihre Temperaturabhängigkeit lautet [39 – 40]:

$$\gamma(T) = \gamma(T_m) - 1.5(T - T_m). \quad (5.1)$$

Die Oberflächenspannung bei Schmelztemperatur  $\gamma(T_m)$  ist für modernes westliches Beryllium bekannt [41]. Für Temperaturen unterhalb  $0.5T_m$  wurde ein konstanter, sich aus der Gl. (5.1) für  $T = 0.5T_m$  ergebender Wert der Oberflächenspannung angenommen. Dieser Wert ist jedoch ca. dreimal größer als der für Anfang der sechziger Jahre hergestelltes Beryllium [36] (das dem russischen Beryllium ähnlich ist). Für dieses Material wurde deshalb ein Oberflächenspannungsverlauf angenommen, der demjenigen vom westlichen Beryllium entspricht, jedoch in den Absolutwerten einen Faktor drei darunterliegt. Die Oberflächenspannung für westliches und russisches Beryllium als Funktion der Temperatur zeigt Abb. 12.

Für die Oberflächenenergie an den Korngrenzen im Beryllium gibt es keine Daten. Deshalb wurde für diese Arbeit, analog zu anderen hexagonalen, enggepackten Feststoffen [42] ein Wert, entsprechend etwa einem Drittel der Oberflächenspannung des Feststoffes gewählt.

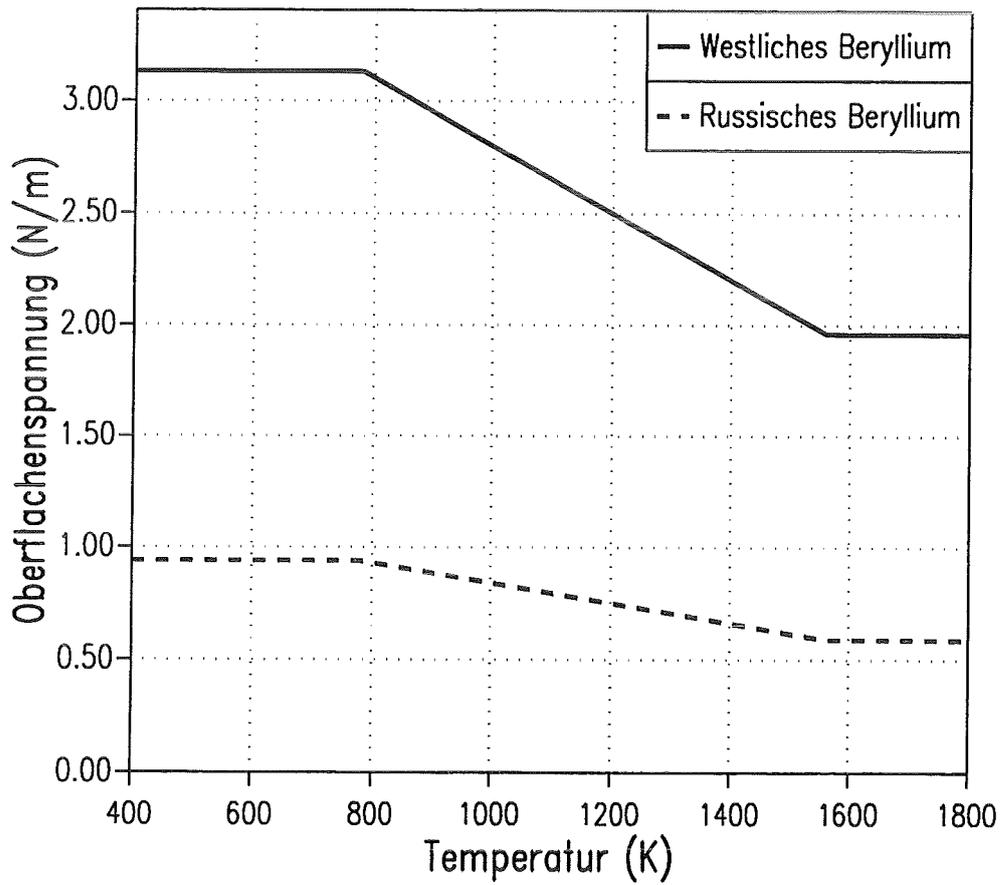


Abbildung 12. Materialeigenschaften: Oberflächenspannung des festen Berylliums.

### 5.3 Kriechgeschwindigkeitsgesetz

Auch im Hinblick auf das thermische Kriechgesetz muß man zwischen westlichen und russischen experimentellen Werten unterscheiden. Für westliches Beryllium existiert ein thermisches Kriechgesetz; dieses wurde für unsere Analyse verwendet [43 – 44]. Für russisches Beryllium (und allgemeiner für jegliche Sorte von altem Beryllium) wurden nur stark streuende Werte in der Literatur [45] gefunden, die sich zudem nicht direkt auf die russischen, bei hohen Temperaturen bestrahlten Proben beziehen, die hier betrachtet werden.

Es wurde gezeigt [45], daß die Kriechgrenzen von Beryllium durch Korngröße, Oxydverteilung, anfängliche Versetzungsdichte und Konzentration von gewissen Fremdstoffen beeinflußt werden können. Der wichtigste, die Zeitstandfestigkeit von Beryllium beeinflussende Faktor ist ohne Zweifel der Fremdstoffgehalt. Die hauptsächlichsten Verunreinigungen von Beryllium sind Berylliumoxyd, Kohlenstoff, Eisen, Aluminium, Silizium und Magnesium. Die *BeO*-Verunreinigungen haben einen indirekten Einfluß auf die Zeitstandfestigkeit und zwar über die Rekristallisationstemperatur und die Korngrenzenbeweglichkeit. Kohlenstoff und Eisen haben offenbar nur einen geringen Einfluß auf die Zeitstandfestigkeit [45 – 46]. Im Gegensatz dazu wird die Beryllium-Zeitstandfestigkeit durch Aluminium, Magnesium und Silizium oberhalb 650-700 °C drastisch reduziert, und zwar umso stärker je höher die Temperatur ist. Aufgrund ihrer beinahe vollständigen Unlöslichkeit in Beryllium können diese drei Elemente (die sich normalerweise an den Korngrenzen befinden, wo sie Linsentröpfchen bilden) tiefschmelzende Phasen bilden, die sich bei Temperaturen oberhalb 650-700 °C verflüssigen. Wenn sich z.B. nur einfache binäre Eutektika bilden würden, wären diese bereits bei 450 °C im Fall eines *Al-Mg*-Eutektikums und bei 577 °C im Fall eines *Al-Si*-Eutektikums flüssig [45 – 46]. Haben sich solche flüssigen Phasen einmal auf den Kornrändern gebildet, verhalten sie sich, da Flüssigkeiten keine Schubspannung übertragen können, wie ein Hohlraum und führen zu einer Spannungsverdichtung an ihrer Spitze. Das führt zu einem beschleunigten Korngrenzenschub sowie -riß um jedes Tröpfchen und das zieht ein ausgeprägtes Korngrenzengleiten und eine erhöhte Kriechgeschwindigkeit nach sich. Das aus der Literatur bekannte Zeitstandfestigkeitsverhältnis zwischen den weichsten und den standfestesten Materialien beträgt ungefähr 20 und das Kriechgeschwindigkeitsverhältnis ca.  $10^8$ . Um die beste Übereinstimmung zwischen Modell und Versuchs-

ergebnissen zu erreichen, wurde durch systematische Untersuchungen der beste Parametersatz für das Kriechgesetz ausgewählt (Exponentialvorfaktor, Exponent des die Spannung beschreibenden Gliedes und Aktivierungsenergie für das thermische Kriechen). Die gewählten Kriechgeschwindigkeitsgesetze für Beryllium sind in den Abb. 13 und 14 für westliches bzw. russisches Beryllium dargestellt.

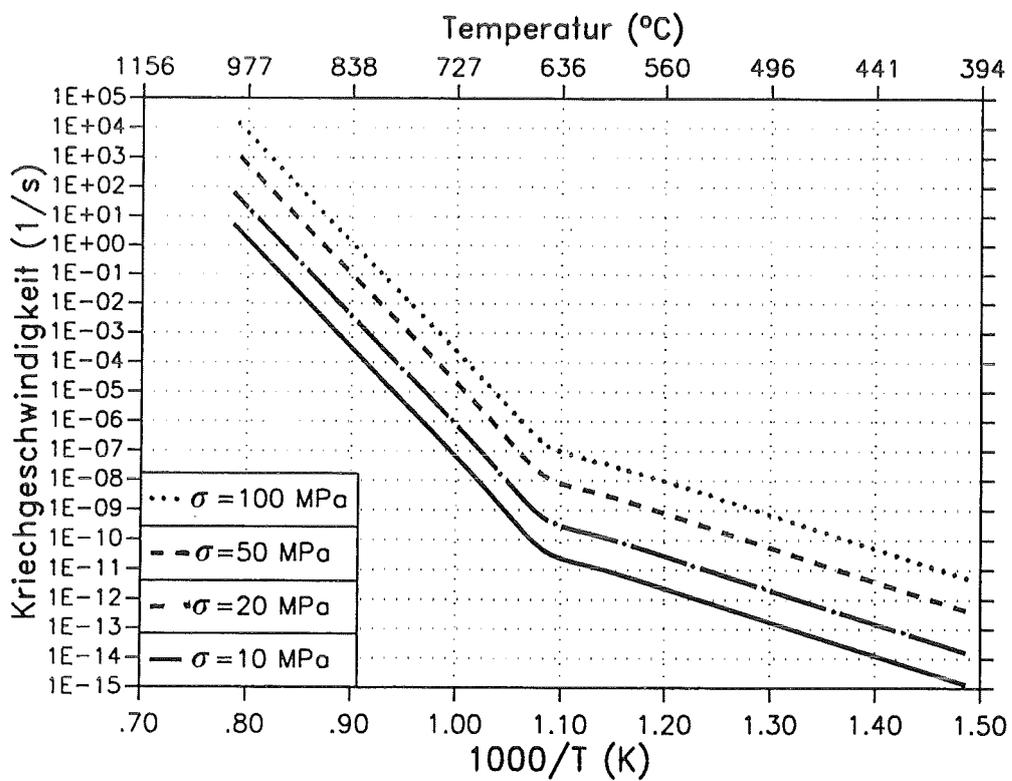


Abbildung 13. Materialeigenschaften: Thermische Kriechgeschwindigkeit für russisches Beryllium.

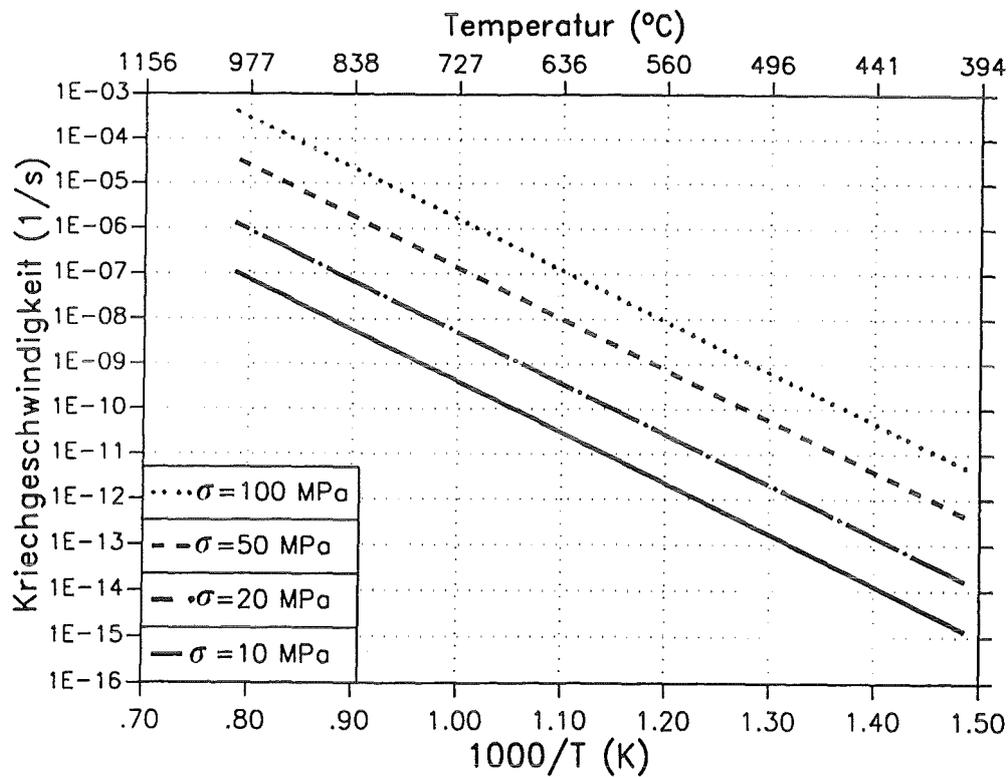


Abbildung 14. Materialeigenschaften: Thermische Kriechgeschwindigkeit für westliches Beryllium.

Es ist klar, daß die Zeitstandfestigkeit eine sehr wichtige Rolle beim Wachstumsverlauf von Oberflächen- und Eckenporen spielt. Diese besonderen Kriechgeschwindigkeiten können jedoch nicht unmittelbar auf den Zuwachs von intragranularen Blasen angewandt werden, da dieser nur von auf die homogene Feststoffmasse bezogenen Größen beeinflusst ist.

Aus den Tab. 1 und 2 ist zu ersehen, daß der Exponent des Spannungsgliedes im Kriechgesetz in beiden Fällen größer als 1 ist. Das heißt, daß die Kriechvorgänge im Beryllium Versetzungsgleiten zur Folge haben und daher nicht als einfache Diffusionskriechphänomene gedeutet werden können.

Die dem Bestrahlungskriechen zugrundeliegenden Elementarvorgänge in Beryllium sind noch nicht gut bekannt und darum ist es unmöglich, über einen größeren Temperaturbereich die Erhöhung des Krieches unter Bestrahlung vorherzusagen. Bisher ist nur ein einziges Bestrahlungskriechexperiment mit Beryllium durchgeführt worden [47]. Das entsprechende Kriechgeschwindigkeitsgesetz für den Beharrungszustand ist in den Berechnungen verwendet worden, deren Ergebnisse in Tab. 1 aufgeführt sind. Obwohl diese Beziehung auf einem einzigen Versuch basiert, kann sie doch als Referenz für die Bestrahlungskriechgeschwindigkeit bei allen Temperaturen, bei denen die Selbstdiffusion unbedeutend ist, dienen. Es sei jedoch angemerkt, daß die Erhöhung des Kriechens durch Bestrahlung wegen des Überwiegens des thermischen Kriechens nur eine untergeordnete Rolle bei der Bestimmung des Schwellverhaltens von Beryllium bei Temperaturen oberhalb 250 °C spielt.

#### **5.4 Dampfdruck**

Es gibt mehrere Dampfdruckmessungen für festes Beryllium und zwar von verschiedenen Autoren, die unabhängig voneinander in unterschiedlichen Versuchsanlagen durchgeführt wurden [48 – 50]. Die Meßergebnisse sind in guter Übereinstimmung und die in [50] angegebene Beziehung wurde für diese Untersuchung ausgewählt (Tab. 1 und 2).

## 6. Empfindlichkeitsanalyse

Wie bereits im vorhergehenden Kapitel erwähnt, ist eine Empfindlichkeitsanalyse zur Abschätzung des Vertrauensbereichs der Vorausrechnungen mit den gewählten Parametern und der Betriebsbedingungen unter denen der Code eingesetzt werden darf, unbedingt notwendig. Sie dient auch dazu, die Bedeutung von Schlüsselvariablen für die gesamte Helium- und Tritiumkinetik und -dynamik in Beryllium während einer Schnellneutronenbestrahlung abzuschätzen.

Ein kürzlich verfügbar gewordener Satz von Versuchsdaten zum Beryllium-Schwellen [51] wurde als Vergleichsmaßstab für die Untersuchung gewählt. Unter den verfügbaren Beryllium-Schwellversuchen bietet dieser einen vollständigen Informationssatz, einschließlich der Materialeigenschaftswerte und der Bestrahlungsgeschichte und eignet sich daher für die Genauigkeitsprüfung des *ANFIBE*-Modells im Beharrungs- und Einschwingzustand und über einen großen Temperaturbereich.

Der Einfluß der drei wichtigsten Parameter, welche das Beryllium-Schwellen beeinflussen - der *Helium-Diffusionskoeffizient*, die *Oberflächenspannung* des Feststoffes und das *thermischen Kriechen* - ist eingehend untersucht worden. Die Modellvorausrechnungen werden im folgenden vorgestellt und erörtert.

### 6.1 Referenzfall

Eine bei niedriger Temperatur ( $T = 50 \text{ }^{\circ}\text{C}$ ) und einer Schnellneutronenfluenz von  $8 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$  im BR2-Reaktor für 513 Tage bestrahlte Berylliumprobe ist für die Eichungsanalyse benutzt worden. Sie enthält 3900 appm Helium und wurde außerhalb des Reaktors bei  $800 \text{ }^{\circ}\text{C}$  und für 24 Stunden aufgeheizt. Die Probe wurde deshalb als Vergleichsmaßstab gewählt, weil sie auf eine hohe Temperatur aufgeheizt wurde. In Tab. 3 sind die Hauptparameter des Versuchs, dessen zeitlicher Temperaturverlauf in Abb. 15 gezeigt ist, eingetragen. Ein Vergleich zwischen Meßergebnissen und berechnetem Berylliumschwellen ist in Abb. 16 gezeigt.

Experimentelle Parameter	Daten
Reaktor	BR2
Beryllium Korngröße	10-13 $\mu m$
Bestrahlungstemperatur	50 °C
Bestrahlungszeit	513 Tage
Neutronenfluenz	$8 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$
Energie der Neutronen	> 1 MeV
Helium-Gehalt	3900 appm
Glühtemperatur	800 °C
Glühzeit	24 Stunden

Tabelle 3. Empfindlichkeitsanalyse: Hauptparameter des Versuchs.

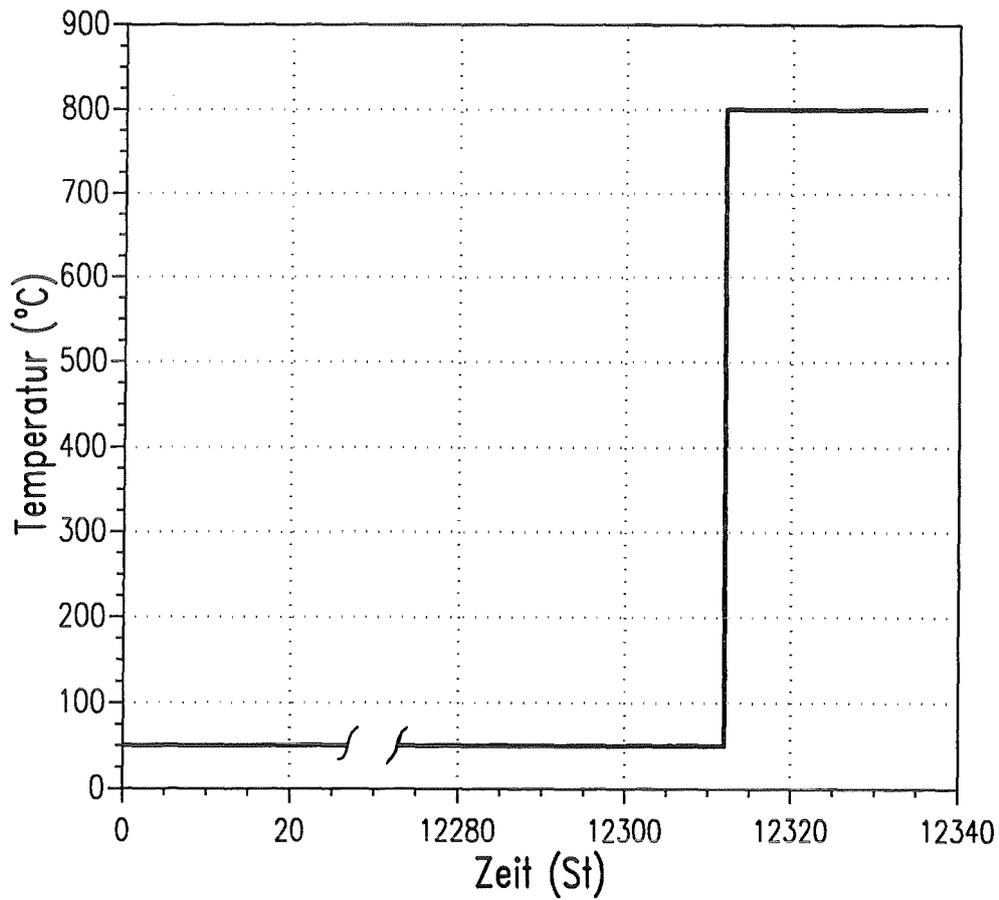


Abbildung 15. Referenzfall: Zeitlicher Temperaturverlauf des Experimentes.

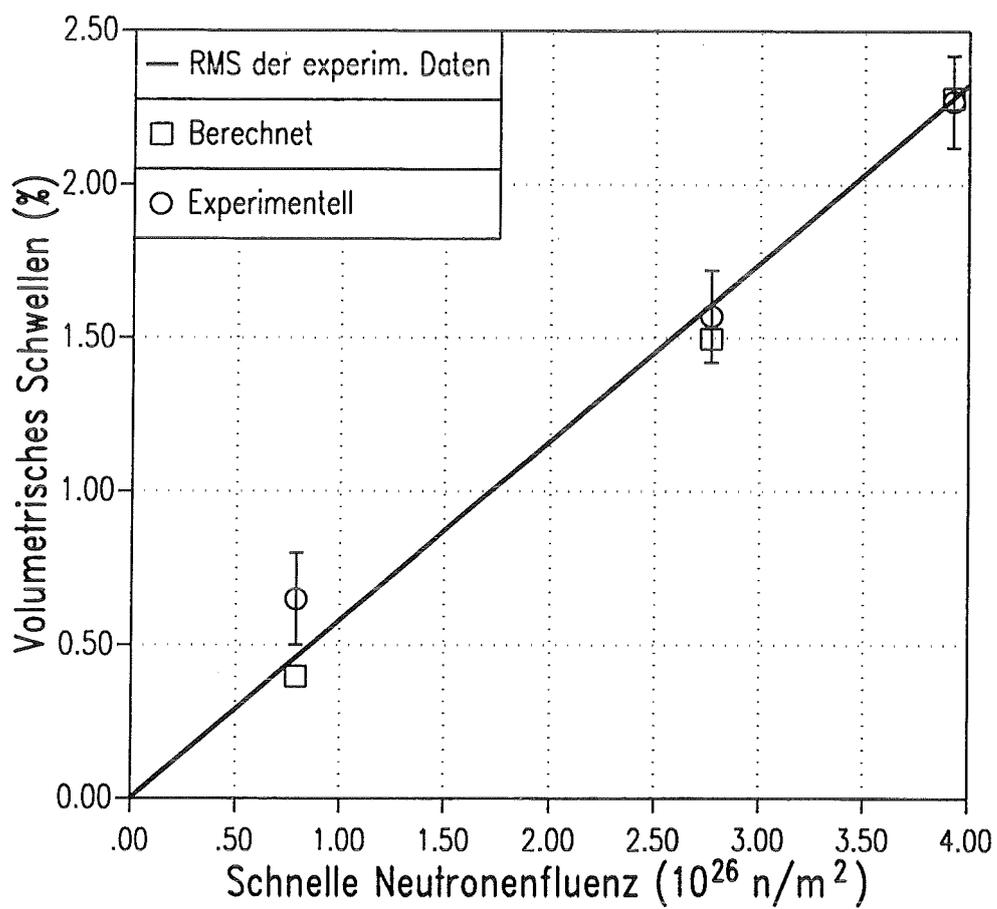


Abbildung 16. Referenzfall: Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Schwellen [51].

### 6.1.1 He-Diffusionskoeffizient

Der erste Parameter, der variiert wurde, ist der Helium-Diffusionskoeffizient in Beryllium. Die Diffusion innerhalb der Körner wird stark von den Gitterfehlern beeinflusst, insbesondere bei niedrigen und mittleren Temperaturen, wo der Fremdstoffgehalt und die durch Bestrahlung erhöhte Diffusion wichtig sind <sup>6</sup>.

Unter Benutzung der in Tab. 1 aufgeführten Werte von  $D$ ,  $0.1D$  und  $10D$  wurden drei Fälle rechnerisch untersucht. Da die Löslichkeit von He in Beryllium annähernd Null ist, wird sehr früh während der Reaktorbestrahlung Übersättigung erreicht. Wenn das Gas diffundieren kann, erfolgt eine Ausscheidung in Form gleichmäßig verteilter, kleiner intragranularer Blasen. Je höher der Gasdiffusionskoeffizient ist, desto größer ist der Gasanteil in intragranularen Blasen und damit das entsprechende Volumenschwellen. Der Einfluß des Helium-Diffusionskoeffizienten auf das Beryllium-Schwellverhalten während der 513 Bestrahlungstage bei niedriger Temperatur geht klar aus Abb. 17 hervor.

Im Gegensatz dazu hat der Gasdiffusionskoeffizient keine merklichen Auswirkungen während der kurzzeitigen Aufheizungsphase außerhalb des Reaktors bei hoher Temperatur (Abb. 18). In diesem Falle führt die gesteigerte atomare Beweglichkeit und das Fehlen von Zerfallsprozessen (infolge der Beendigung der Neutronenbestrahlung) zu einer intensiveren Ausscheidung des dynamisch gelösten Gases in intragranulare Blasen hinein. Da allerdings die Konzentration von dynamisch gelöstem Gas bei niedrigeren Diffusionskoeffizienten größer ist als bei höheren, ist auch die Ausscheidung bei niedrigeren Diffusionskoeffizienten ausgeprägter. Darum erreicht die Blasendichte, nach einer anfänglichen Temperungszeit für hohe und niedrige Diffusionskoeffizienten fast das gleiche Niveau. Die mit der Temperatur zunehmende Blasenbeweglichkeit bewirkt zugleich eine Blasenvereinigung, schließlich eine weitreichende Wanderung mit womöglich

---

<sup>6</sup> Helium-Atome können von den Fehlstellen eingefangen werden. Jede Fehlstelle kann i.a. mehr als ein Gasatom aufnehmen. Die Verteilung der Gasatome auf die unterschiedlichen Gitterfehlstellen (Zwischengitter- und Fremdatome oder Atombüschel) hängt von der Dichte der Gasatome, der Leerstellen und der Atombüschel ab. Im Falle vom Helium, das eine sehr geringe Löslichkeit in Beryllium aufweist, ist jedoch eine ausgeprägte Tendenz zum Bündeln der Atome zu erwarten [25].



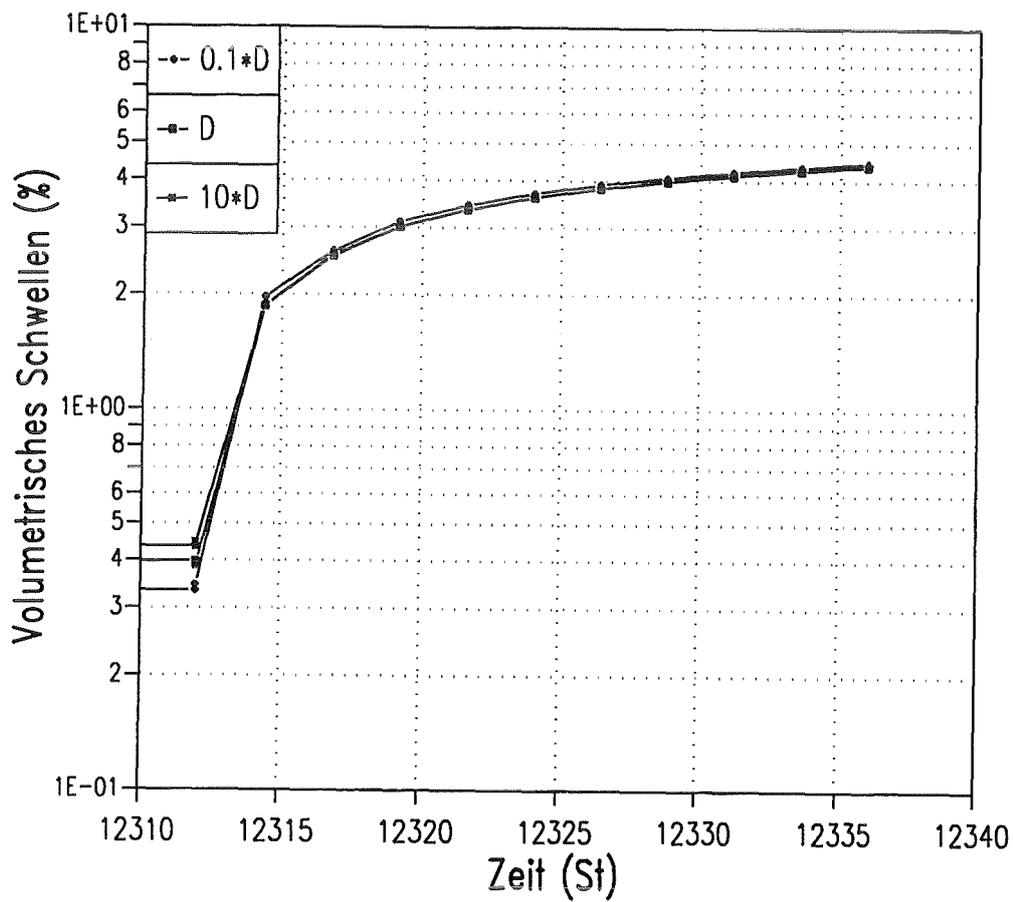


Abbildung 18. Referenzfall: Auswirkung des Helium-Diffusionskoeffizienten auf das Beryllium-Schwellverhalten im Einschwingzustand.

### 6.1.2 Beryllium-Oberflächenspannung

Der zweite Parameter, der verändert wurde, ist die Oberflächenspannung des festen Berylliums. Diese wirkt auf das Berylliumverhalten unter Schnellneutronenbestrahlung hauptsächlich bei niedrigen Bestrahlungstemperaturen. Wie bereits erwähnt, wird das Berylliumschwellen vorwiegend von der gegen die hemmenden Kräfte wirkende Ausbreitung des gebildeten Gases verursacht.

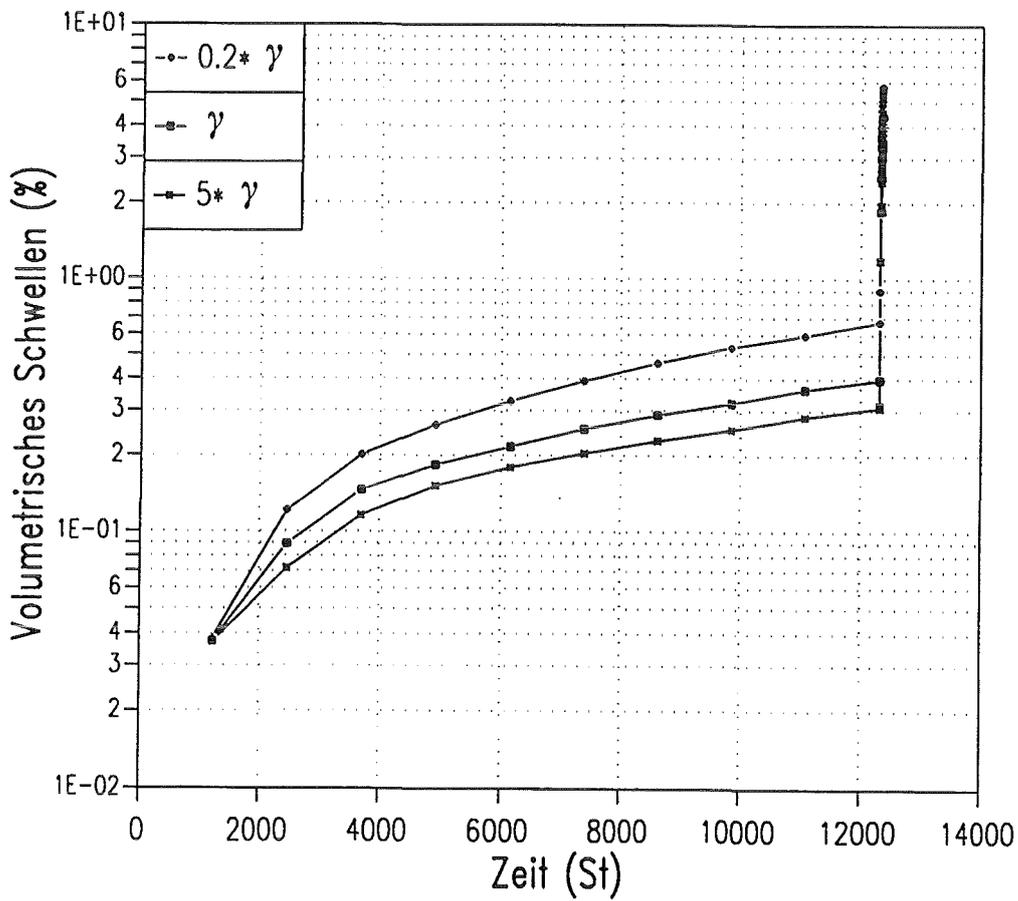


Abbildung 19. Referenzfall: Auswirkung der Oberflächenspannung auf das Beryllium-Schwellverhalten im Beharrungs- und im Einschwingzustand.

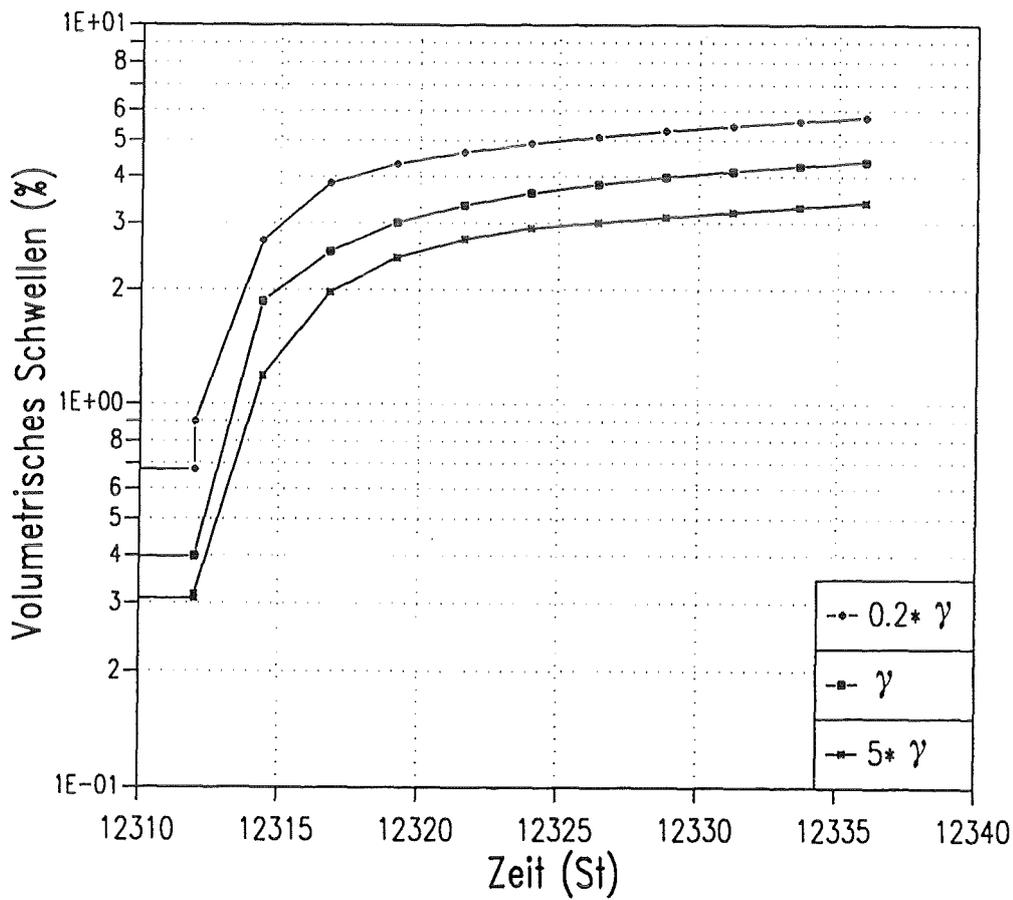


Abbildung 20. Referenzfall: Auswirkung der Oberflächenspannung auf das Beryllium-Schwellverhalten im Einschwingzustand.

Wie aus den Abb. 19 und 20, welche das Berylliumschwellen als Funktion der Temperatur für drei verschiedene Oberflächenspannungswerte zeigen, deutlich ersichtlich ist, beeinflußt diese Materialeigenschaft stark das Materialverhalten sowohl im Beharrungs- als auch im Einschwingzustand. Eine abnehmende Oberflächenspannung (z.B. infolge eines hohen Fremdstoffgehaltes) führt zu einer Abschwächung der mechanischen Widerstandsfähigkeit des Materials, die der Verformung durch die Schubkraft des Gasüberdruckes entgegenwirkt.

### 6.1.3 Beryllium-Kriechgeschwindigkeit

Der Einfluß des thermischen Kriechens auf das Beryllium-Schwellen wurde untersucht, indem drei voneinander um eine Größenordnung abweichende Thermokriechgesetze in Betracht gezogen wurden. Wie aufgrund theoretischer Überlegungen erwartet, spielt das thermische Kriechen für das Schwellverhalten erst bei hohen Temperaturen eine Rolle (Abb. 21 und 22).

Es ist verständlich, daß während einer langen Bestrahlung bei niedrigen Temperaturen die Thermokriechgeschwindigkeit keinen Einfluß auf das Beryllium-Schwellen hat. Dies ist auch ein Hinweis darauf, daß die Blasen unter stationärer Bestrahlung dem durch Gl. (2.2) beschriebenen elastischen Gleichgewicht sehr nahekommen. Im Gegensatz dazu erwartet man einen sehr starken Effekt auf das Schwellverhalten während der kurzzeitigen Hochtemperaturvorgänge. Hier treten Änderungen im Schwellbetrag bis zum Faktor 3.5 auf.

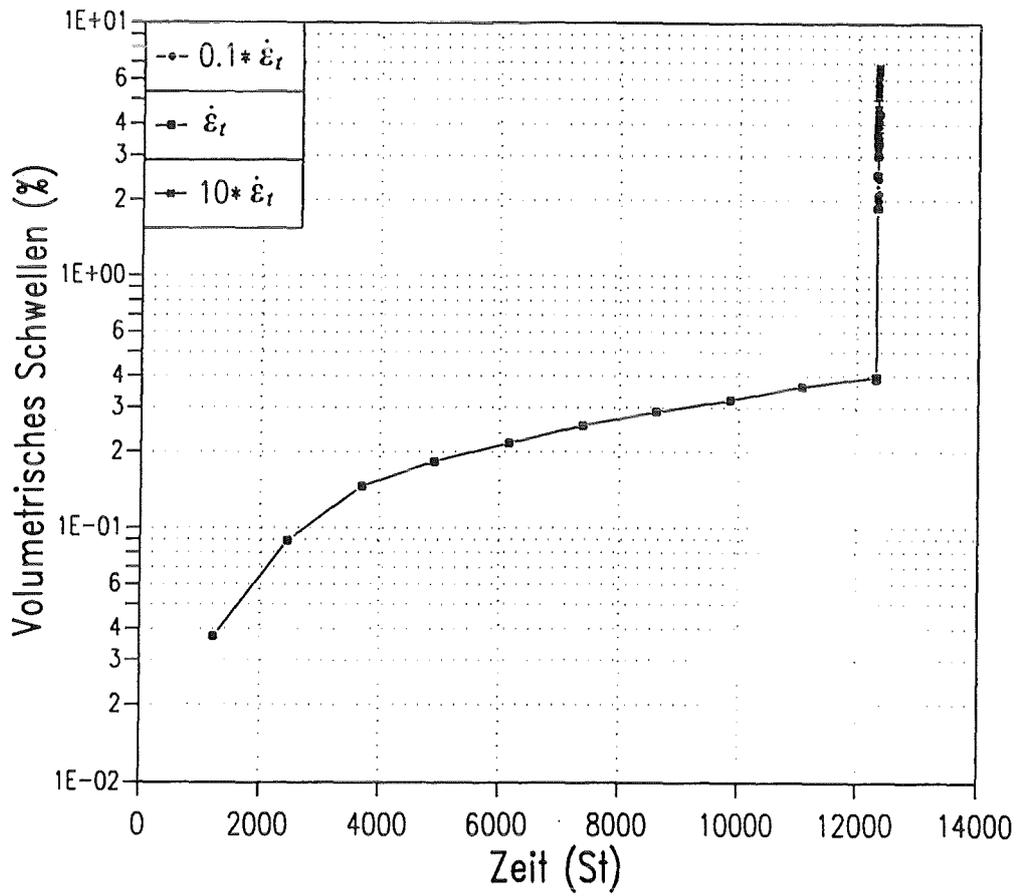


Abbildung 21. Referenzfall: Effekt der Thermokriechgeschwindigkeit auf das Beryllium-Schwellverhalten im Beharrungs- und im Einschwingzustand.

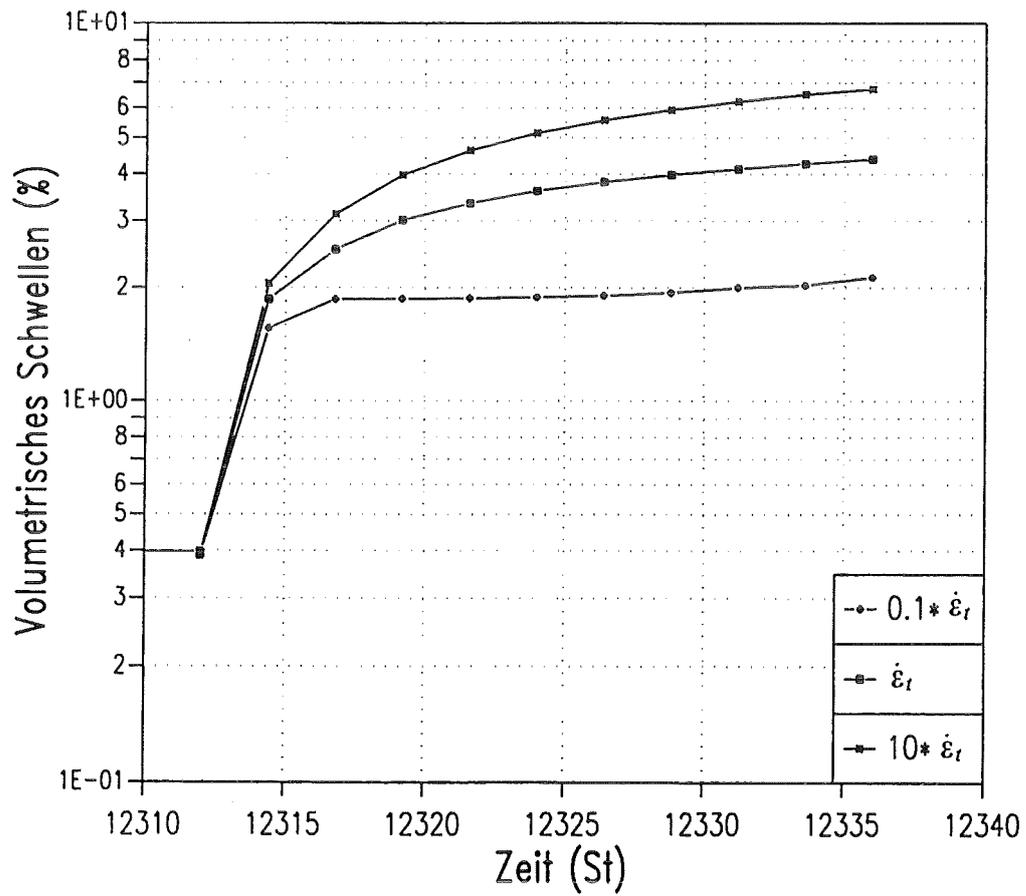


Abbildung 22. Referenzfall: Effekt der Thermokriechgeschwindigkeit auf das Beryllium-Schwellverhalten im Einschwingzustand.

## 7. Validierung des Rechenprogrammes

Um Vertrauen in die von *ANFIBE* gelieferten Ergebnisse zu gewinnen und um seine Fähigkeit, korrekte Vorausberechnungen durchzuführen, zu bestätigen, war es notwendig, die berechneten Ergebnisse mit einer angemessenen Anzahl von zuverlässigen Versuchsdaten zu vergleichen [31] [33] [51 – 61].

Die große Vielfalt der experimentellen Bedingungen sowohl im Reaktor als auch bei den nach der Bestrahlung durchgeführten Versuche stellen einen zuverlässigen Prüfstand dar, da sie für Proben mit unterschiedlichen metallographischen Eigenschaften gute Daten für das Gasverhalten (Helium und Tritium) im Beryllium sowohl im Beharrungs- als auch im Einschwingzustand liefern.

Die vorgeschlagene Vorgehensweise zielt darauf ab, den Vertrauensbereich der Vorausberechnungen unter Vorgabe der Spannweite der eingestellten Parameter und der Betriebsbedingungen, welche den Code beschreiben, zu definieren und den Einfluß der die gesamte Gaskinetik im Beryllium während Schnellneutronenbestrahlungen steuernden Schlüsselveränderlichen festzustellen. Die Besonderheiten der für die Programmüberprüfung ausgewählten Experimente sowie die für die Berechnungen eingesetzten Daten und Materialeigenschaften werden in den nachfolgenden Abschnitten beschrieben.

### 7.1 Schwelldaten

Es wurden westliche und russische Beryllium-Bestrahlungsexperimente, die in verschiedenen Spaltreaktoren [33] [51 – 58] bei Temperaturen von 50 °C bis 970 °C und mit Neutronenfluenzen bis zu  $5.0 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$  ( $E_n > 0.8 - 1 \text{ MeV}$ ) sowie mit Heliumgehalten bis zu 26100 *appm* durchgeführt wurden, für die Modellüberprüfung gewählt. Als Eingabeparameter für die betrachteten Schwellexperimente wurde immer die berechnete bzw. gemessene Heliumerzeugungsrate anstatt des Neutronenflusses benutzt.

Die Benutzung des Heliumgehaltes anstatt der Schnellneutronenfluenz hat, wie bereits im Kapitel 2 erwähnt, folgende Gründe: strahlungsbedingte Maßänderungen von einer Schnellneutronenbestrahlung ausgesetztem Beryllium werden vorwiegend durch Heliumblasenschwellen verursacht.

Der größte Teil der Schwelldaten gilt allerdings für bei niedrigen Temperaturen und bis zu hohen Fluenzen einerseits und bei niedrigen Fluenzen und bis zu hohen Temperaturen andererseits bestrahltes Beryllium, da dieses als Reflektor in Materialprüfreaktoren [33] [51 – 57] eingesetzt wurde. Die einzigen verfügbaren westlichen Schwelldaten für verhältnismäßig hohe Bestrahlungstemperaturen ( $T=427-487\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) und zugleich hohe Schnellneutronenfluenzen (bis zu  $10^{26}\text{ n/m}^2$ ) stammen aus den Versuchen von Beeston [53]. Ein anderer Datensatz für im Westen bei höheren Temperaturen bestrahltes Beryllium bezieht sich auf im Reaktor SILOE in Grenoble (BEGONIA-Experiment) bestrahlte Proben [56]. Die Temperaturen reichten bis  $700\text{ }^{\circ}\text{C}$ , die Schnellneutronenfluenz war jedoch ziemlich niedrig (bis  $2.5 \times 10^{25}\text{ n/m}^2$ ).

In der Literatur wurde eine einzige Versuchsserie mit russischem Beryllium gefunden. Einige dieser Proben wurden bei  $670\text{ }^{\circ}\text{C}$  und mit einer Schnellneutronenfluenz von  $1.0 \times 10^{26}\text{ n/m}^2$  ( $E_n > 0.8\text{ MeV}$ ) bestrahlt [58].

Ein Vergleich zwischen berechneten und experimentellen Schwellwerten für im Reaktor bestrahltes westliches Beryllium ist in Abb. 23 dargestellt. Jeder einzelne Punkt (sie sind entsprechend der Bestrahlungstemperatur eingeordnet) gibt das Schwellverhalten einer bestimmten neutronenbestrahlten Berylliumprobe wieder.

Für den Fehler, womit jeder einzelne Punkt behaftet ist, gilt:

$$e_i = \frac{\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_{\text{Mess.}} - \left(\frac{\Delta V}{V}\right)_{\text{Rechn.}}}{\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_{\text{Mess.}}} \quad (7.1)$$

Der mittlere Fehler einer Reihe von  $n$  unabhängigen und vergleichbaren Schwellmesswerten ist dann:

$$\varepsilon = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n e_i \quad (7.2)$$

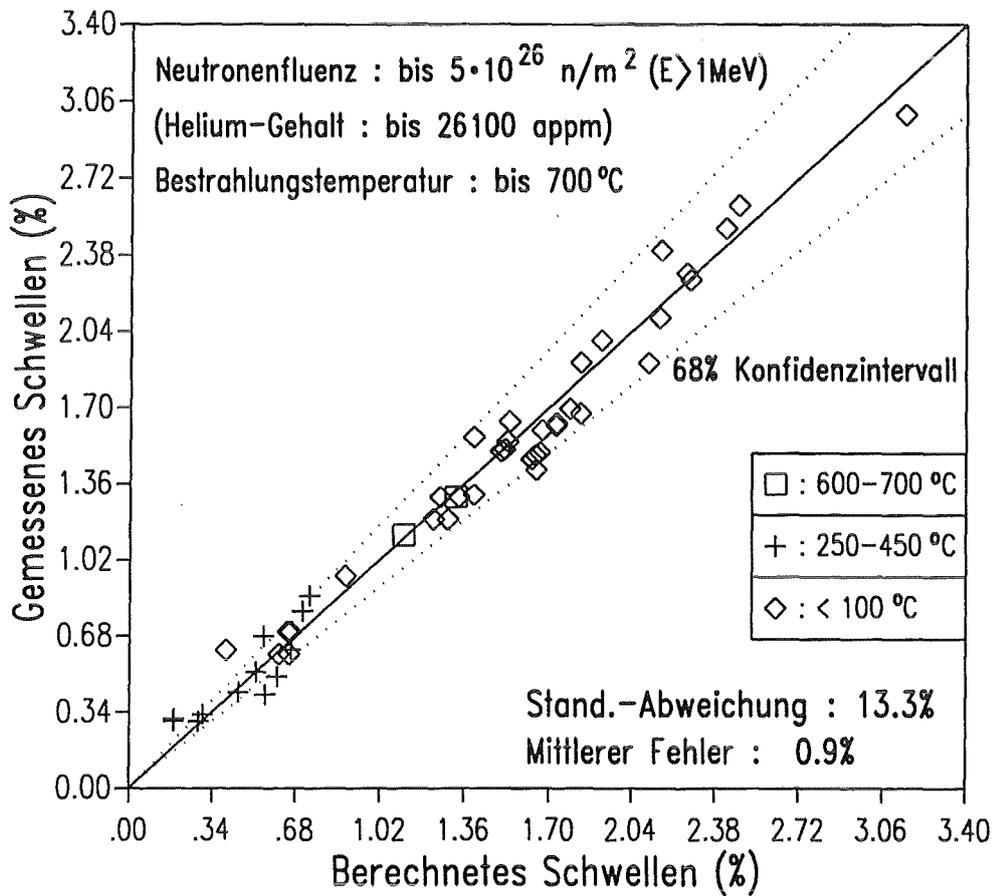


Abbildung 23. Beryllium Schwellen: Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Schwellwerten für im Reaktor bestrahlte westliche Berylliumproben (die Daten sind entsprechend der Bestrahlungstemperatur eingeordnet).

Die entsprechende Standard-Abweichung ist:

$$\sigma = \left[ \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (e_i - \varepsilon)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (7.3)$$

Rein theoretisch, wenn keine Unsicherheit in den experimentellen Ergebnissen und/oder den Materialeigenschaften vorläge und wenn das Rechenmodell alle wesentlichen, das Schwellen von bestrahltem Beryllium verursachende Phänomene berücksichtigte, sollten sämtliche Punkte in Abb. 23 auf einer Geraden mit 45 Grad Neigung liegen. Die Punkte sind jedoch um diese Gerade verteilt. Die Übereinstimmung zwischen berechneten und experimentellen Werten ist ausgezeichnet. Der mittlere Fehler beträgt  $\varepsilon = 0.9\%$  und die Standard-Abweichung  $\sigma = 13.3\%$ .

In Abb. 24 werden ebenfalls die experimentellen und berechneten Schwellwerte verglichen, die Punkte sind jedoch entsprechend der Schnellneutronenfluenz eingeordnet. Aus den Abb. 23 und 24 ist leicht zu ersehen, daß keine Schwellwerte für hohe Neutronenfluenz und zugleich hohe Temperatur für bestrahltes Beryllium (typische Betriebsbedingungen eines Fusionsreaktors der nächsten Generation [1]) vorhanden sind.

Ein Vergleich zwischen berechneten und experimentellen Beryllium-Schwellwerten für die verfügbaren westlichen Versuche, die bei relativ hohen Bestrahlungstemperaturen und zugleich relativ hohen Schnellneutronenfluenzen durchgeführt wurden [53] [56], ist in Abb. 25 gezeigt.

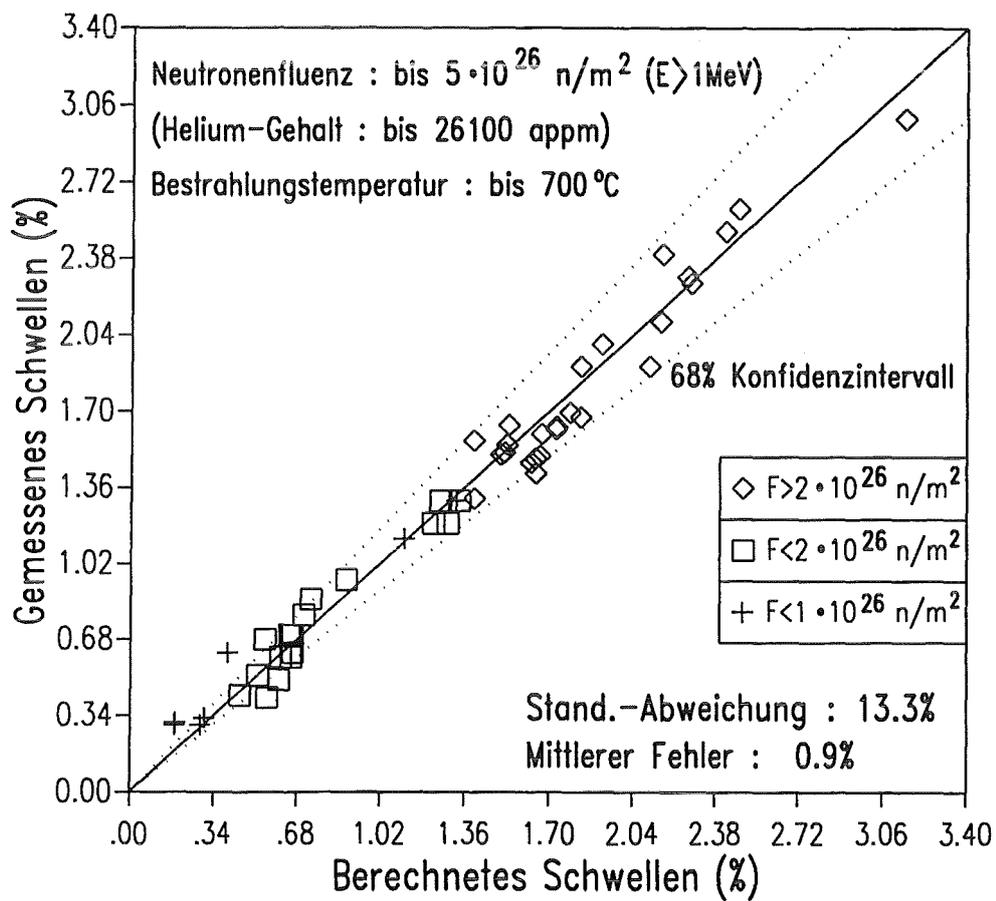


Abbildung 24. Beryllium Schwellen: Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Schwellwerten für im Reaktor bestrahlte westliche Berylliumproben (die Daten sind entsprechend der Neutronenfluenz eingeordnet).

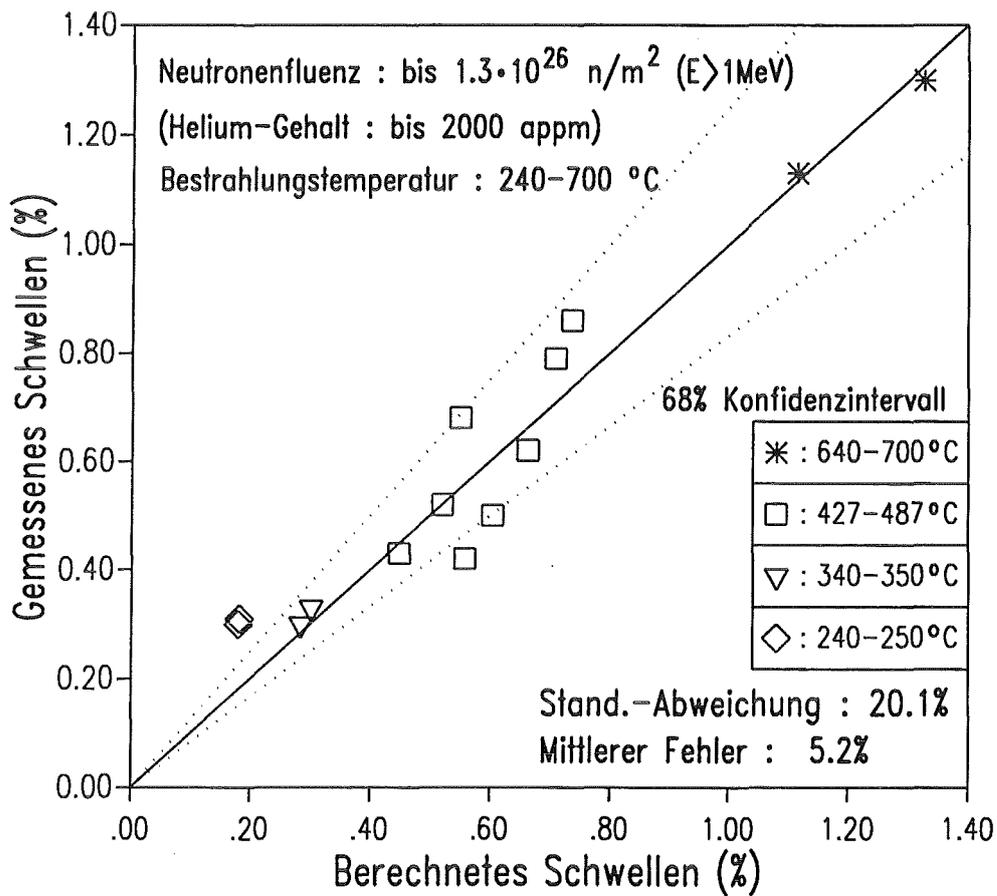


Abbildung 25. **Beryllium Schwellen:** Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Schwellwerten für im Reaktor bei hoher Temperatur bestrahlte westliche Berylliumproben (die Daten sind entsprechend der Bestrahlungstemperatur eingeordnet).

Auch in diesem Fall rechnet *ANFIBE* die experimentellen Ergebnisse richtig nach; die Abweichungen sind wahrscheinlich vorwiegend Unsicherheiten in den experimentellen Bedingungen (Schnellneutronenfluß, Helium-Erzeugungsrate, volumetrische Wärmeerzeugung usw.) und den einschlägigen Berylliumeigenschaften (Kriechgesetz, Heliumdiffusionskoeffizient usw.) zuzuschreiben. Die Berylliumeigenschaften werden bei höheren Bestrahlungstemperaturen stärker durch den Verunreinigungsgehalt und das Fertigungsverfahren beeinflusst.

Wie vorher bereits erwähnt, liegt daneben eine Reihe von russischen Experimenten vor, bei denen Berylliumproben bei hoher Temperatur und mit hoher Schnellneutronenfluenz bestrahlt wurden [57 – 58]. Da hierfür sehr altes Beryllium (Herstellung Anfang der sechziger Jahre) benutzt wurde, dessen physikalische Eigenschaften sehr stark von denen des "moderneren" Berylliums abweichen, war für die Nachrechnung eine zusätzliche Kalibrierungsanalyse erforderlich.

Für einen in der Literatur [57 – 58] zitierten Bezugswert der Heliumerzeugungsrate von 4000 appm He pro  $10^{26} \text{ n/m}^2$  Schnellneutronenfluenz ist der gemessene Schwellbetrag des russischen Berylliums stets höher als der für das modernere, die gleiche Heliummenge beinhaltende und ähnlichen Bestrahlungsbedingungen ausgesetzte, westliche Beryllium. Diesen Sachverhalt erkennt man deutlich in Abb. 26. Dort sind der volumetrische Schwellbetrag von bei Temperaturen unter  $100 \text{ }^\circ\text{C}$  bestrahltem Beryllium als Funktion des Heliumgehaltes und im Vergleich dazu *ANFIBE*-Nachrechnungen dargestellt. Auch wenn man annehmen würde, daß die Heliumerzeugungsrate pro  $10^{26} \text{ n/m}^2$  noch höher als 4000 appm liegt (wie es z.B. beim Tandem-Mirror-Hybridreaktor ist [53]) könnte man die große Diskrepanz zwischen den gemessenen hohen Schwellwerten für das russische Material und denen des moderneren westlichen Berylliums nicht erklären. Die Ursache für das stärkere Schwellen des russischen Berylliums liegt in der ziemlich schlechten Qualität (hoher Verunreinigungsgehalt). Verunreinigungen verursachen eine im Vergleich zum westlichen Beryllium niedrigere Oberflächenspannung. Aus der Fachliteratur [40] [45 – 46] ist bekannt, daß Verunreinigungen in Metallen den theoretischen Wert der Oberflächenspannung stark herabsetzen (siehe Kapitel 5). Dies erklärt das höhere Schwellen von russischem Beryllium verglichen mit westlichem bei niedrigen Bestrahlungstemperaturen. Das Schwellen nimmt bei niedrigen Temperaturen beinahe linear mit dem Gasgehalt zu, wie aufgrund theoretischer Überlegungen zu erwarten war.

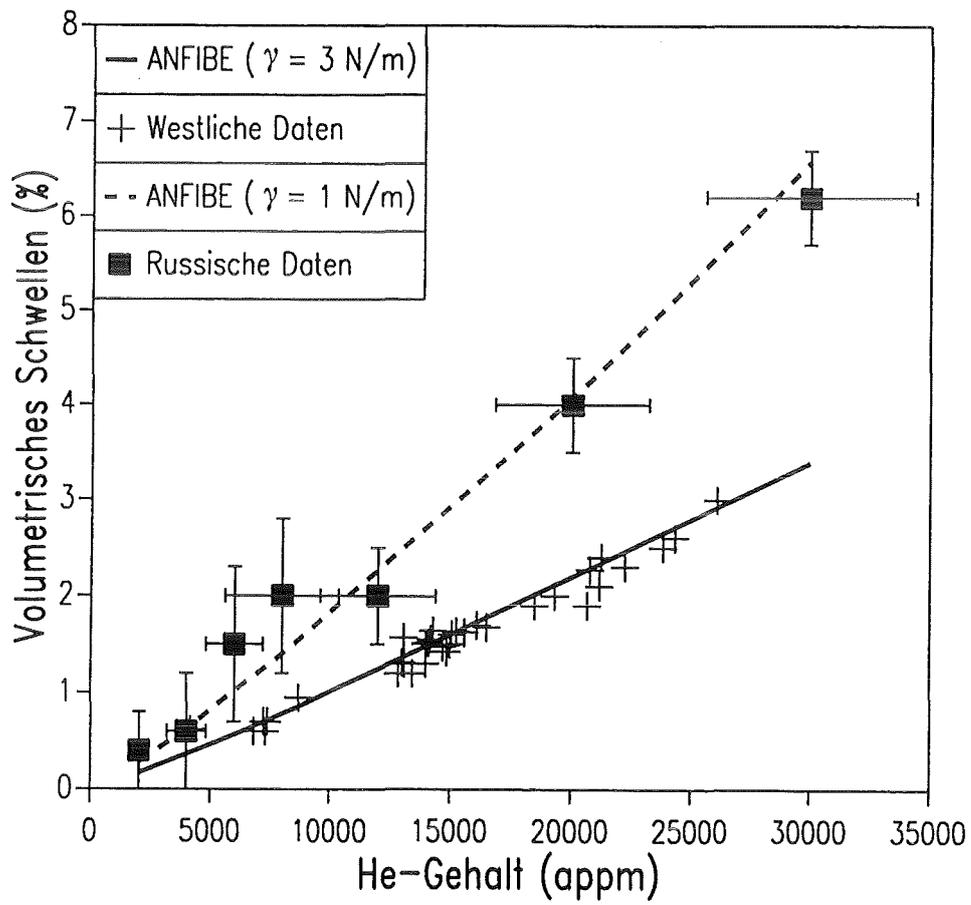


Abbildung 26. **Beryllium Schwellen:** Berylliumschwelen als Funktion des He-Gehaltes für russische und westliche Be-Proben, die bei niedriger Temperatur bestrahlt wurden ( $T < 100 \text{ }^\circ\text{C}$ ).

Bei niedrigen Bestrahlungstemperaturen, wenn die Beweglichkeit von Leerstellen und Zwischengitteratomen sehr gering ist und die Gasatome im Gitter praktisch festsitzen, können nämlich die Heliumatome nicht zu den Korngrenzen hin wandern, wo sie mit erhöhter Wahrscheinlichkeit ineinanderfließen können, um große intergranulare Blasen zu bilden.

Bei hohen Temperaturen (bis zu 970 °C) und Schnellneutronenfluenzen bis zu  $10^{26}n/m^2$  [58] verhalten sich die Proben anders. Man erwartet eine nicht-lineare Zunahme des Schwellens mit dem Gasgehalt wegen der raschen Koaleszenz der Gasblasen und der Abnahme der mechanischen Zähfestigkeit des Materials. Hier muß auch der Einfluß von Fremdstoffen (z.B. *Al, Mg*) im Beryllium auf die Zeitstandfestigkeit berücksichtigt werden.

In Abb. 27 wird das Volumenschwellen für russisches Beryllium [58] als Funktion der Bestrahlungstemperatur und für verschiedene Schnellneutronenfluenzen mit *ANFIBE*-Nachrechnungen verglichen. In diesem Falle wird ein Kriechgesetz verwendet (siehe Kapitel 5), das möglicherweise vorhandene Flüssigkeitsphasen berücksichtigt. Aus den Ergebnissen läßt sich schließen, daß das größere Schwellen des russischen Berylliums

- 1) bei niedrigen Temperaturen auf eine niedrigere Oberflächenspannung, aufgrund von Verunreinigungen und
- 2) bei hohen Temperaturen ebenfalls auf eine niedrigere Oberflächenspannung sowie eine hohe Kriechgeschwindigkeiten, wieder aufgrund von Verunreinigungen

zurückzuführen ist.

Für die Aufheizversuche nach Bestrahlung im Reaktor [19] [51] [55] [59] wurde, ähnlich wie für die Experimente im Reaktor, ebenfalls ein Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Schwellwerten vorgenommen. Aus Abb. 28 ist die gute Übereinstimmung zwischen experimentellen und berechneten Werten ersichtlich.

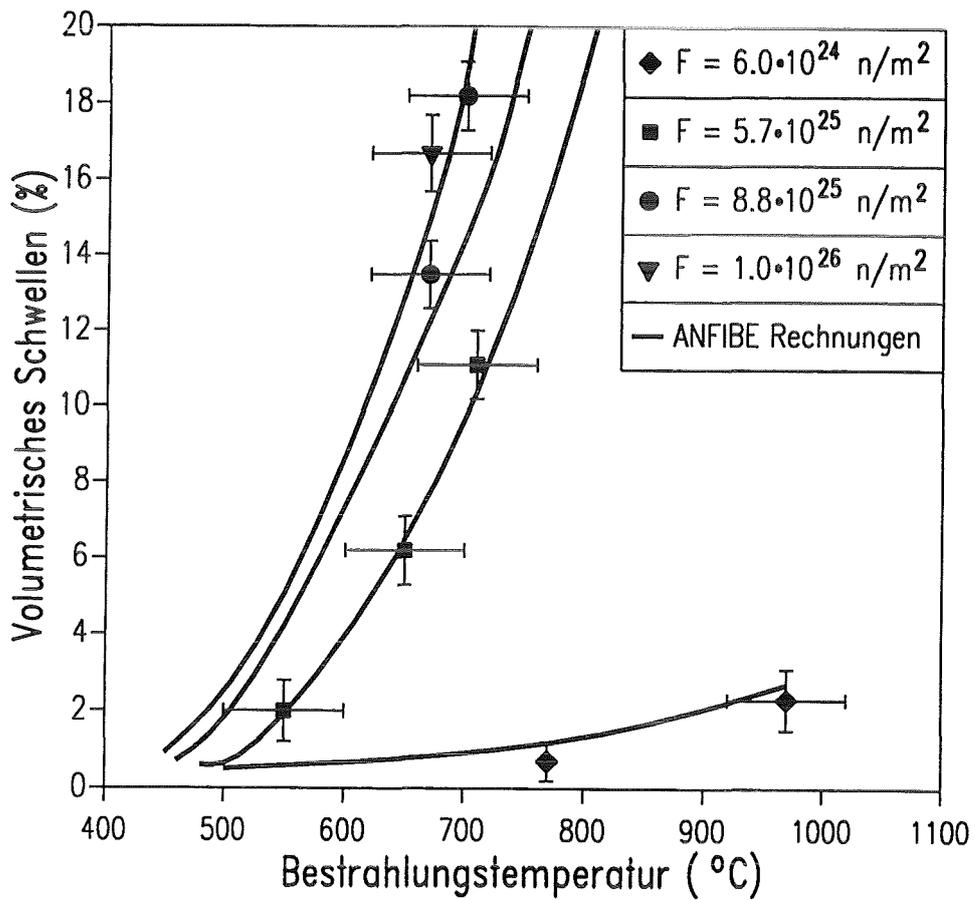


Abbildung 27. **Beryllium Schwellen:** Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Schwellwerten für russische Materialproben, die bei hohen Temperaturen und gleichzeitig mit relativ hohen Neutronenfluenzen bestrahlt wurden.

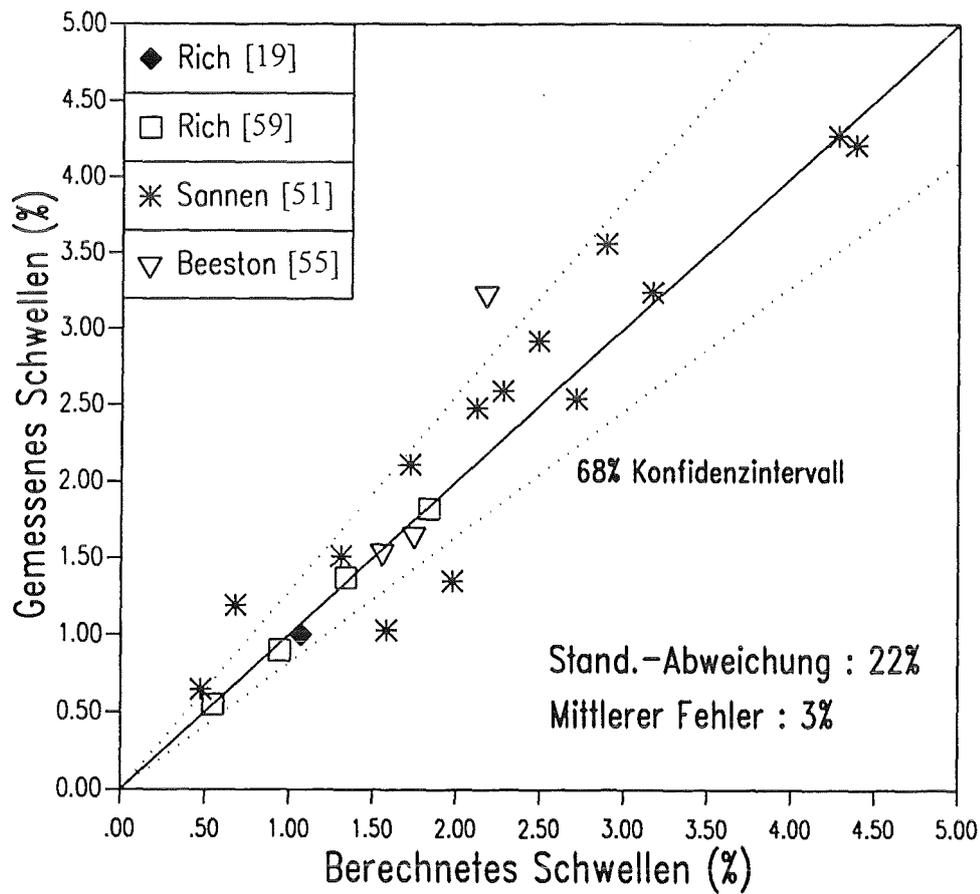


Abbildung 28. Beryllium Schwellen: Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Schwellwerten für Berylliumproben, die bei niedriger Temperatur bestrahlt und auf hohe Temperaturen nach der Bestrahlung aufgeheizt wurden.

## 7.2 Tritium-Freisetzungsdaten

Die Anzahl der experimentellen Daten zur Tritium-Freisetzung aus neutronenbestrahltem Beryllium ist zur Zeit geringer als die zum Schwellen und sie stammen ausschließlich von Aufheizversuchen nach der Bestrahlung. Tritium-Freisetzungsdaten während der Bestrahlung im Reaktor liegen bisher nicht vor.

Daten zur Tritium-Freisetzung stehen einerseits aus den Versuchen von Baldwin (sowohl für mäßig bestrahltes Beryllium mit 99%-Dichte als auch für hochbestrahltes Beryllium mit 100%-Dichte) [31] [33] und andererseits aus dem SIBELIUS-Experiment für schwachbestrahltes Beryllium mit 98%-Dichte [60] zur Verfügung. Beide Versuchsreihen decken einen weiten Bereich bezüglich Temperatur und Sauerstoffgehalt im Beryllium ab. Außerdem wurden kürzlich im Forschungszentrum Karlsruhe weitere Experimente [61] mit Berylliumproben aus der SIBELIUS-Versuchsreihe sowie mit Proben, die bei niedriger Temperatur und bis zu sehr hohen Neutronenfluenzen im BR2-Reaktor in Mol [51] bestrahlt wurden, durchgeführt [62].

Die Übereinstimmung der berechneten mit den experimentellen Werten am Ende jeder Aufheizungsstufe ist gut (Abb. 29). Der ermittelte mittlere Fehler beträgt 4.7% und die Standard-Abweichung 21.5%, wobei die Diskrepanzen zum Teil wahrscheinlich durch Unsicherheiten in den experimentellen Bedingungen und in den Berylliumeigenschaften verursacht sind.

In Baldwins Versuchen [31] [33] enthielten die Berylliumproben eine verhältnismässig hohe Sauerstoffmenge (0.9-1.7 wt% BeO) und der Bestrahlung bei niedriger Temperatur (75 °C) folgten außerhalb des Reaktors stufenartige Aufheizvorgänge auf Temperaturen zwischen 300 °C und 900 °C.

Die Rechenergebnisse von *ANFIBE* sind im Vergleich mit Baldwins experimentellen Werten für Beryllium mit 99%-Dichte [31] [33] für fünf aufeinanderfolgende Aufheizstufen bis zu 700 °C in Abb. 30 dargestellt. Für Temperaturen oberhalb 500 °C ist die Übereinstimmung gut, bei niedrigeren Temperaturen wird die Tritium-Freisetzung von *ANFIBE* geringfügig unterschätzt. Dies könnte auf die Bildung von Mikrorissen im bestrahlten Beryllium infolge der raschen Temperaturänderung während der Aufheizung und insbesondere während der ersten Aufheizstufen zurückzuführen sein. Mikrorisse beschleunigen die Tritium-Freisetzungskinetik. Die Rissbildung im Beryllium ist in *ANFIBE* bisher nicht berücksichtigt worden.

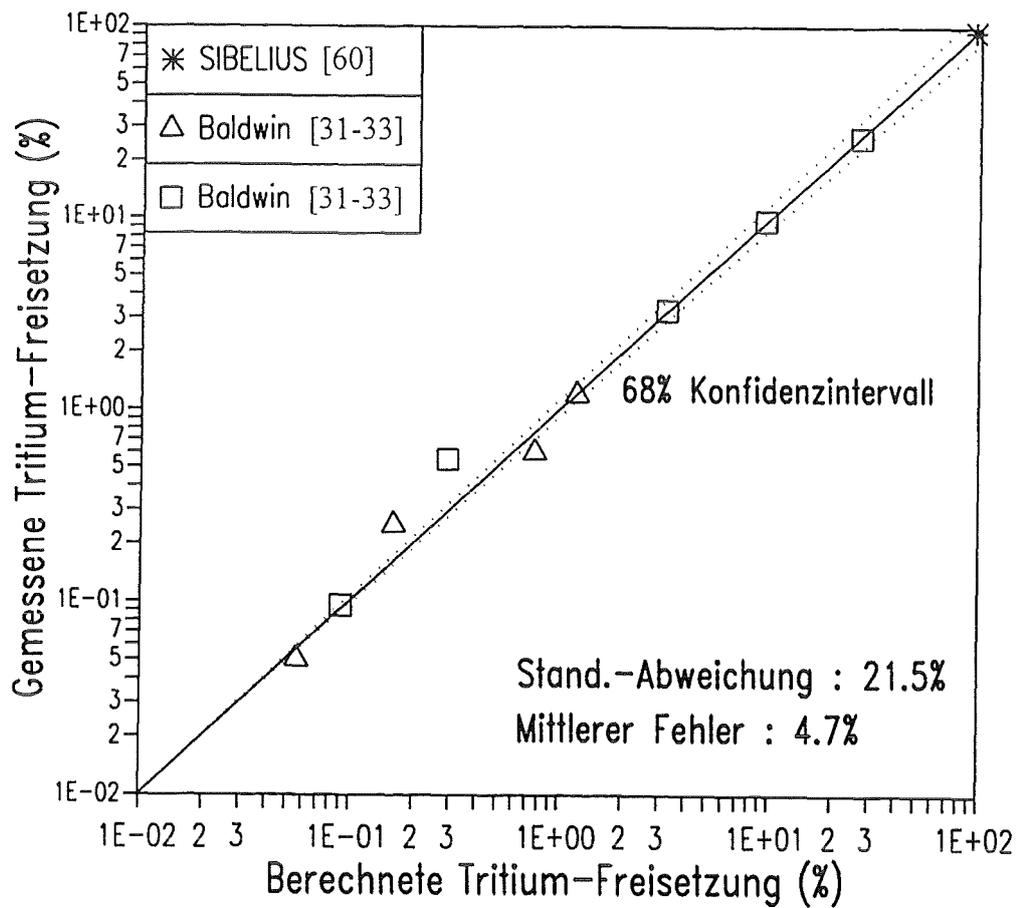


Abbildung 29. Tritium-Freisetzung: Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Tritium-Freisetzungswerten für Berylliumproben, die bei niedriger Temperatur bestrahlt und auf hohe Temperaturen nach der Bestrahlung aufgeheizt wurden.

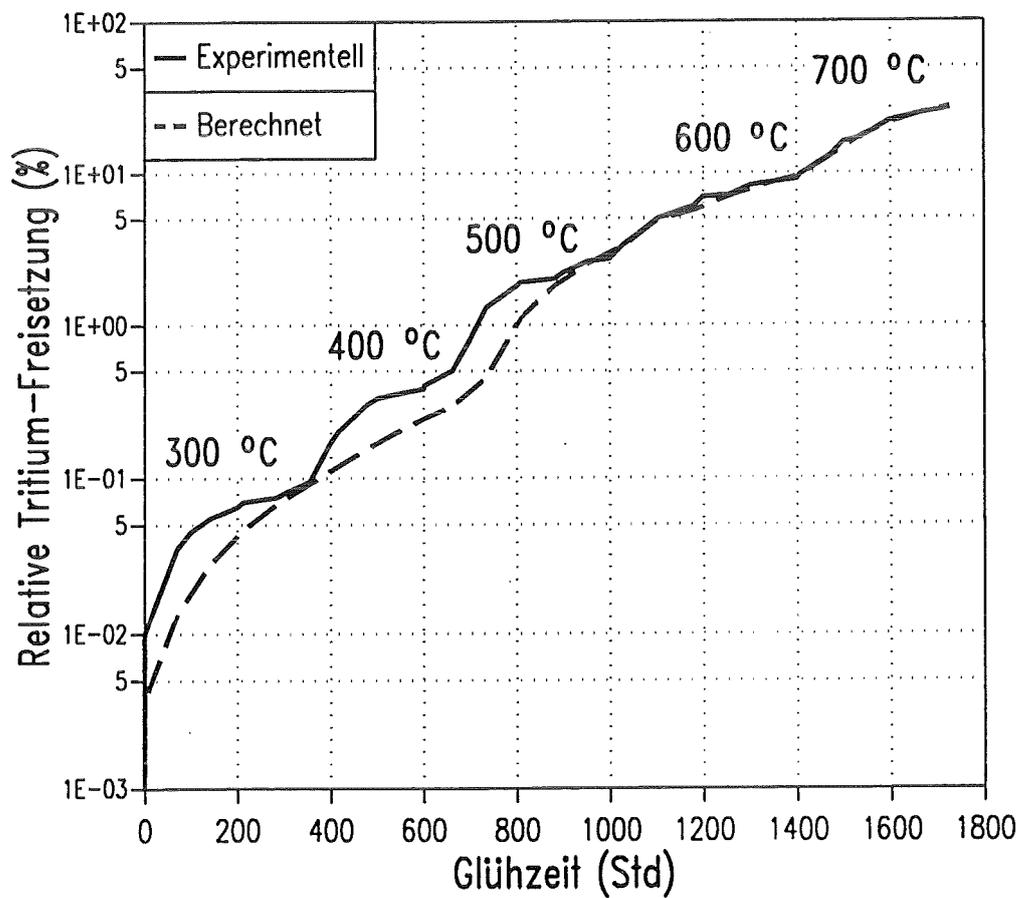


Abbildung 30. Tritium-Freisetzung: Vergleich zwischen berechneter und gemessener prozentualer Tritium-Freisetzung bei dem Versuch von Baldwin für Beryllium mit 99%-Dichte [31] [33].

Der lineare Verlauf der Tritium-Freisetzungskurve in der Arrhenius-Darstellung (Abb. 31) weist darauf hin, daß für Temperaturen bis zu 700 °C die Tritium-Freisetzung hauptsächlich von einem thermisch aktivierten Vorgang mit einheitlicher Energie bestimmt wird. Da die Neigung der Prozent-Freisetzungskurve auf eine Aktivierungsenergie von ungefähr 78 kJ/Mol hinweist (dieser Wert entspricht dem für die Zersetzung von Berylliumhydroxyd), kann man schließen, daß die Tritium-Freisetzung in diesem Fall hauptsächlich durch den von Gl. 3.4 beschriebenen chemischen Einfang gesteuert wird. Der Grund, warum der gerechnete Freisetzungswert bei 400 °C unterhalb der Gerade liegt, ist der, daß wegen der Rissbildung im Beryllium der asymptotische Tritium-Freisetzungswert während des Versuchs erreicht wurde, während in *ANFIBE* die Freisetzung langsamer erfolgt und daher die Asymptote zu diesem Zeitpunkt noch nicht erreicht worden ist. Bei hohen Temperaturen ist die Freisetzung so schnell, daß die Rissbildung keine wichtige Rolle mehr spielt und die Freisetzungskinetik vor allem vom Schwellen der Berylliumprobe bestimmt wird.

Da die Tritium-Freisetzung aus Beryllium, verglichen z.B. mit der aus Brutstoffen [60], ein langsamer Vorgang ist, wurde eine Reihe von Langzeit-Aufheizversuchen mit Beryllium-Proben von der SIBELIUS-Bestrahlung im Forschungszentrum Karlsruhe durchgeführt [61]. Das Hauptziel des SIBELIUS-Experiments [60 – 61] war die Untersuchung der Oxidationskinetik von Beryllium in Kontakt mit Brutkeramik während einer Neutronenbestrahlung. Die Tritium-Freisetzungswerte der im Forschungszentrum Karlsruhe über einen Zeitraum zwischen 3 und 6 Monaten und bei Temperaturen bis zu 650 °C gehaltenen Berylliumproben wurden jedoch benutzt, um das Rechenprogramm zu überprüfen. Die Tritium-Inventarwerte für die Proben in den Kapseln 2 und 5 [61] sind als Funktion der Ausheizzeit in den Abbildungen 32 und 33 zusammen mit den *ANFIBE*-Rechenergebnissen dargestellt. Die Übereinstimmung zwischen berechneten und gemessenen Werten ist zufriedenstellend.

Die abgeschätzte Verweilzeit vom Tritium in schwachbestrahltem Beryllium mit 98%-Dichte beträgt ungefähr 5 Monate bei einer Ausheiztemperatur von 550 °C und 1 Monat bei einer Ausheiztemperatur von 650 °C. Diese Werte stimmen ziemlich gut mit ersten groben Abschätzungen [61] überein.

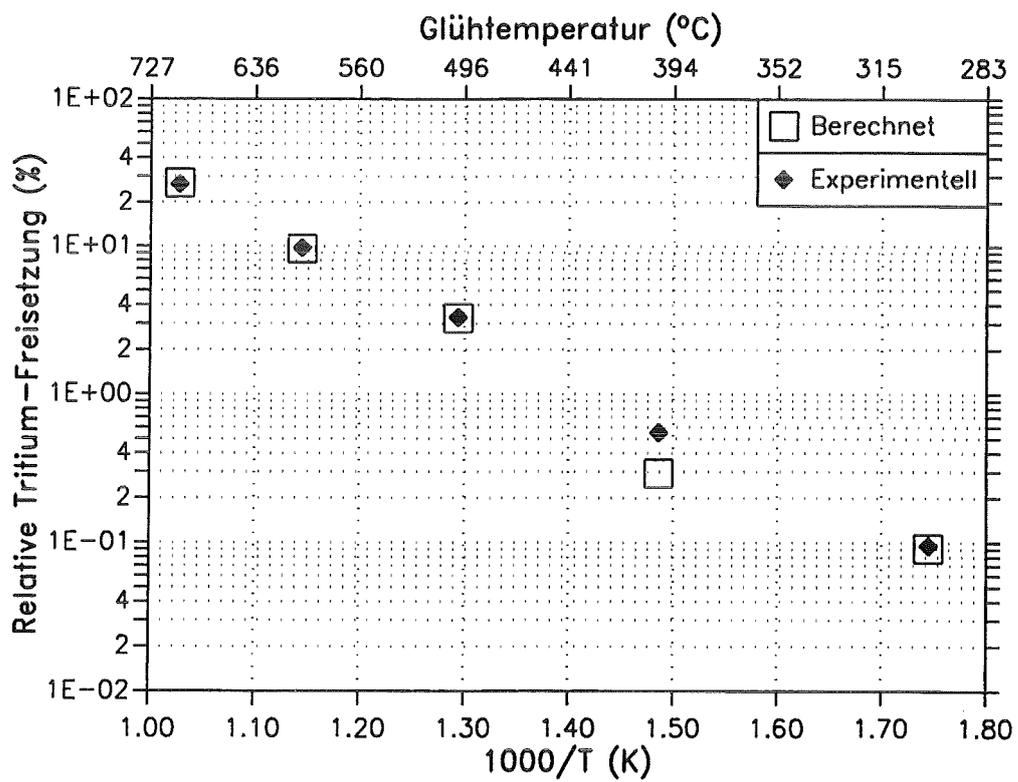
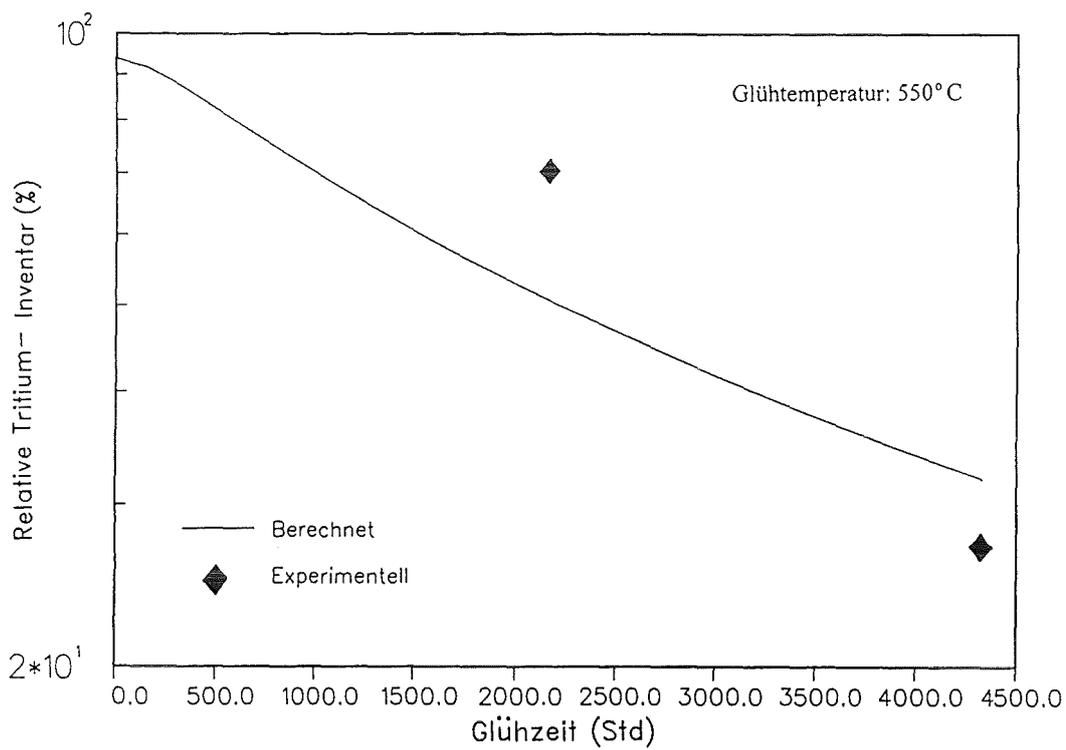
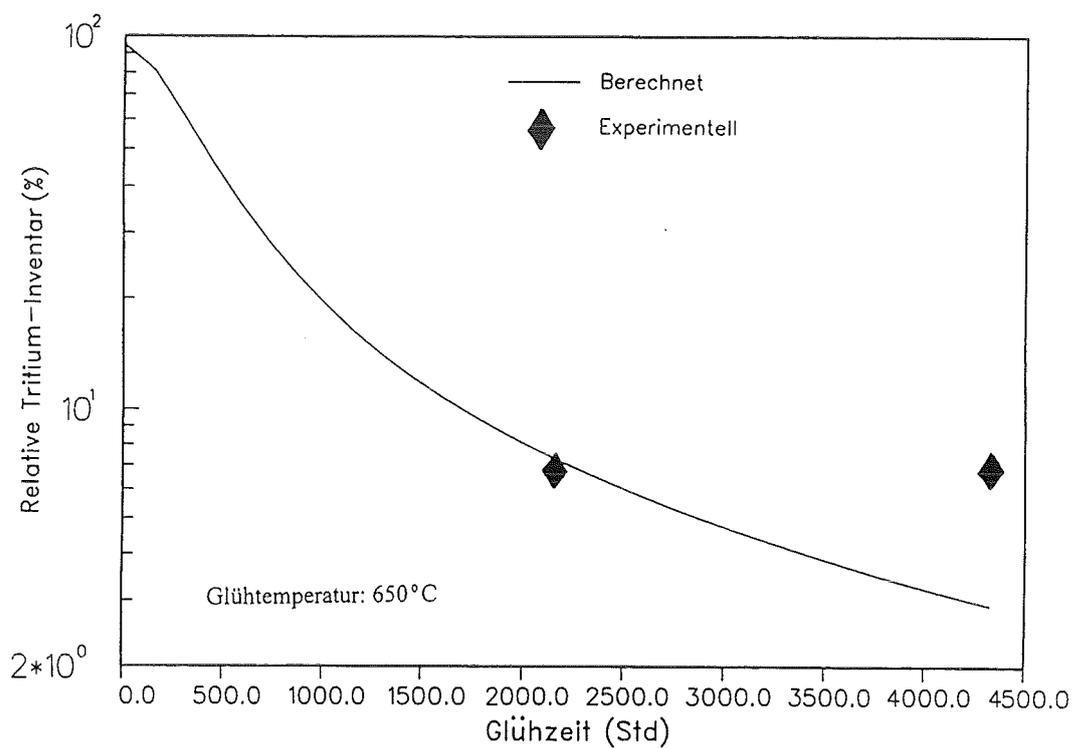


Abbildung 31. Tritium-Freisetzung: Arrhenius-Diagramm der Tritium-Freisetzung im Baldwin-Experiment für Beryllium mit 99%-Dichte [31] [33].



**Abbildung 32. Tritium-Freisetzung:** Tritium-Inventar als Funktion der Ausheizzeit im Vergleich mit den Rechenergebnissen von *ANFIBE* für das SIBELIUS-Experiment (Probe 2) [61].



**Abbildung 33. Tritium-Freisetzung:** Tritium-Inventar als Funktion der Ausheizzeit im Vergleich mit den Rechenergebnissen von *ANFIBE* für das SIBELIUS-Experiment (Probe 5) [61].

Um die mögliche, eine erhöhte Tritium-Freisetzung aus Beryllium fördernde, Rissbildung zu untersuchen, wurde das Verhalten zweier bei niedrigen Temperaturen, aber mit sehr unterschiedlichen Neutronenfluenzen im BR2-Reaktor [51] bestrahlten und anschliessend im Labor im Forschungszentrum Karlsruhe [62] ausgeheizten Proben analysiert. Die erste Probe war einer Neutronenfluenz von ungefähr  $0.8 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$  ausgesetzt und während der Ausheizung wurde die Temperatur mit etwa  $5 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ , ausgehend von der Raumtemperatur, bis auf  $850 \text{ }^\circ\text{C}$  erhöht. Die Tritium-Freisetzungsrates (Abb. 34) steigt rasch während der Temperaturrampe an und nimmt später, bei konstanter Temperatur, langsam ab. Es ist eine gute Übereinstimmung zwischen Rechnung und Messung festzustellen.

Die zweite Probe wurde mit einer viel höheren Neutronenfluenz von etwa  $2.8 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$  bestrahlt und anschliessend genau wie die erste ausgeheizt. Bei dieser Probe wurde eine scharfe Spitze in der experimentellen Tritium-Freisetzungsrates während der Temperaturrampe beobachtet, wahrscheinlich infolge von Mikrorissbildung. Aufgrund der hohen Neutronenfluenz war diese Probe nämlich sehr spröde, was die Mikrorissbildung durch thermische Spannungen erleichtert. Ein Vergleich zwischen berechneter und gemessener Tritium-Freisetzung ist in Abb. 35 gezeigt. Da das *ANFIBE*-Modell die Auswirkung von Mikrorissen nicht berücksichtigt, ist die Übereinstimmung der Rechenergebnisse mit den Versuchswerten nicht so gut wie für die leichter bestrahlte Probe der Abb. 34.

Leider ist die Anzahl der Tritium-Freisetzungsversuche mit neutronenbestrahltem Beryllium bisher relativ klein. Zur Überprüfung der Modelle ist eine umfangreichere experimentelle Datenbasis erforderlich. Es werden insbesondere Experimente mit hohen Neutronenfluenzen und hohen Temperaturen gebraucht. Außerdem wären Tritium-Freisetzungsversuche im Reaktor äußerst wünschenswert.

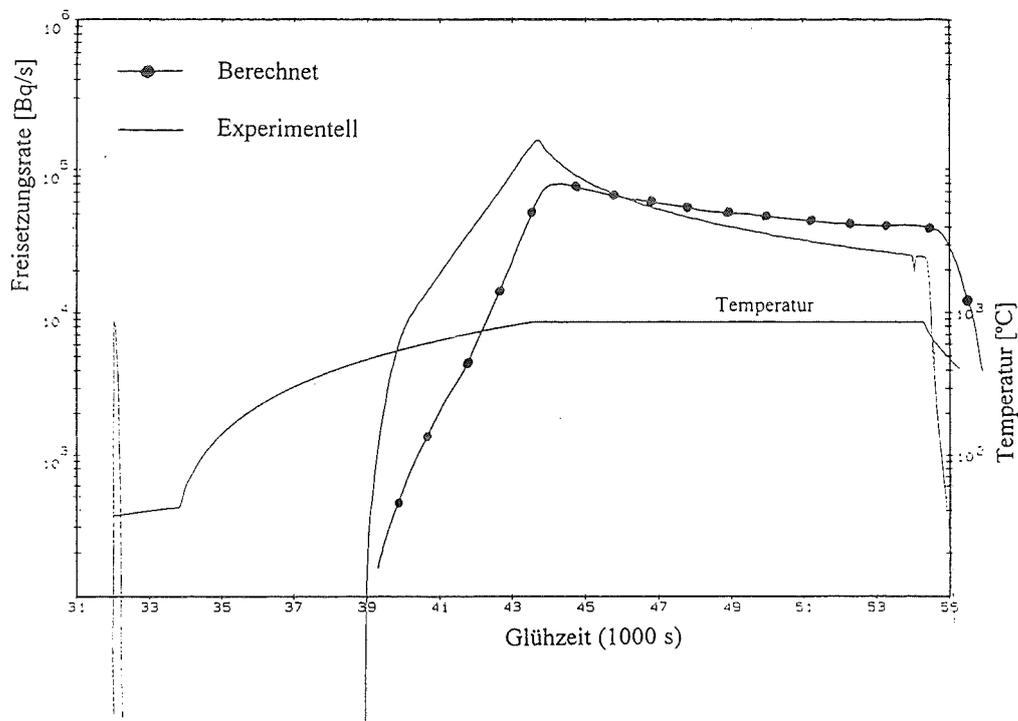
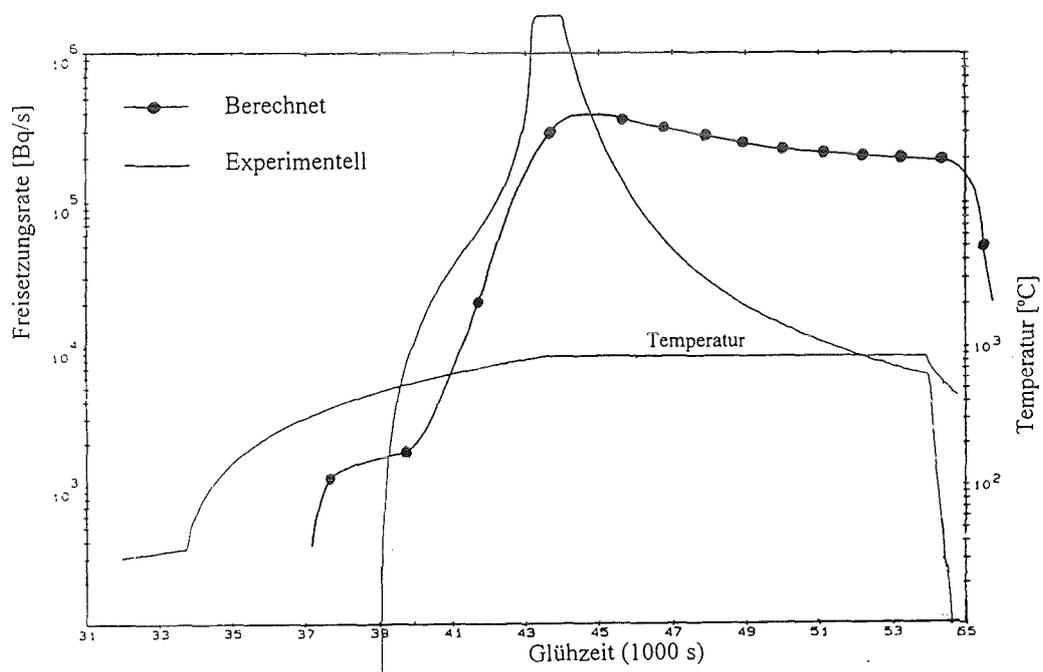


Abbildung 34. Tritium-Freisetzung: Vergleich zwischen berechneter und gemessener Tritium-Freisetzungsrates für eine Berylliumprobe, die im BR2-Reaktor bei niedriger Temperatur und mit niedriger Fluenz ( $0.8 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ ) bestrahlt und bei hoher Temperatur nach der Bestrahlung ausgeheizt worden ist.



**Abbildung 35. Tritium-Freisetzung:** Vergleich zwischen berechneter und gemessener Tritium-Freisetzungsrates für eine Berylliumprobe, die im BR2-Reaktor bei niedriger Temperatur und mit hoher Fluenz ( $2.8 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ ) bestrahlt und bei hoher Temperatur nach der Bestrahlung ausgeheizt worden ist



## 8. Untersuchungen zum Feststoff-Blanketentwurf des FZK

Im Rahmen des Fusionsprogramms der europäischen Gemeinschaft wurden vier Blanketentwürfe für einen *DEMO*-Reaktor vorgeschlagen [1] [63 – 65], von denen zwei ein keramisches Material als Brutstoff verwenden [1] [65].

Ein vom FZK vorgeschlagener Entwurf verwendet ein Feststoffblanket und wird als *BOT*-Konzept (Breeder Out of Tube) bezeichnet. Dabei wird  $Li_4SiO_4$  als Brutmaterial und Beryllium als Neutronenmultiplikator verwendet. Beide Materialien werden in Form von Kugel-Schüttungen verwendet, die sich zwischen Radial-Toroidalkühlplatten befinden [1].

Jeder der 16 Ringspulen des *DEMO*-Torus sind drei Blanketsegmente (zwei neben den Magneten und eins in der Mitte) auf der Außenseite und zwei Blanketsegmente auf der Innenseite zugeordnet [1]. Insgesamt gibt es 48 Außen- und 32 Innensegmente. Um die Brutfähigkeit zu erhöhen, erstreckt sich das Innenblanket bis in den Raum hinter den Divertoren. Das keramische Brutmaterial  $Li_4SiO_4$  und der Beryllium-Neutronenmultiplikator sind in 10 poloidalen Segment-Kästen (Abb. 36) untergebracht.

Die Kästen sind in einem geschlossenen Blanketbehälter angeordnet, dessen Rückseite von einer Platte gebildet wird, die ein Verteilerrohr für das Kühlmittel Helium umfaßt (Abb.37). Außerdem ist am hinteren Teil des Segmentbehälters eine heliumgekühlte Radialblende angebracht. Die Kühlung der Blanketbehälter und der Blanketstruktur wird durch in Hochdruckrohren (8 MPa) fließendes Helium sichergestellt, und zwar mittels zweier unabhängiger Kühlsysteme.

Die Blanketstruktur besteht aus 8 mm-starken Kühlplatten, die in Radial-Toroidal-Ebenen angebracht und an die Vorder- und Seitenwände des Blanketbehälters angeschweisst sind. Zwischen den Platten befinden sich entweder 11 mm breite, mit einer Schüttung von  $Li_4SiO_4$ -Kugeln (Durchmesser 0.3 bis 0.6 mm) gefüllte Schlitze oder 45 mm breite, mit einer Schüttung aus großen und kleinen Beryllium-Kugeln (Durchmesser 1.5-2.3 mm bzw. 0.08-0.18 mm) gefüllte Schlitze (Abb. 38).

Den Hauptvolumenanteil der Schüttung bilden die größeren Beryllium-Kugeln mit einer Packungsdichte von 63.3%. In den Zwischenräumen zwischen ihnen befinden sich die kleineren Kugeln mit einer Packungsdichte von 17.5%. Insgesamt beträgt die Packungsdichte der Berylliumschüttung 80.8%.

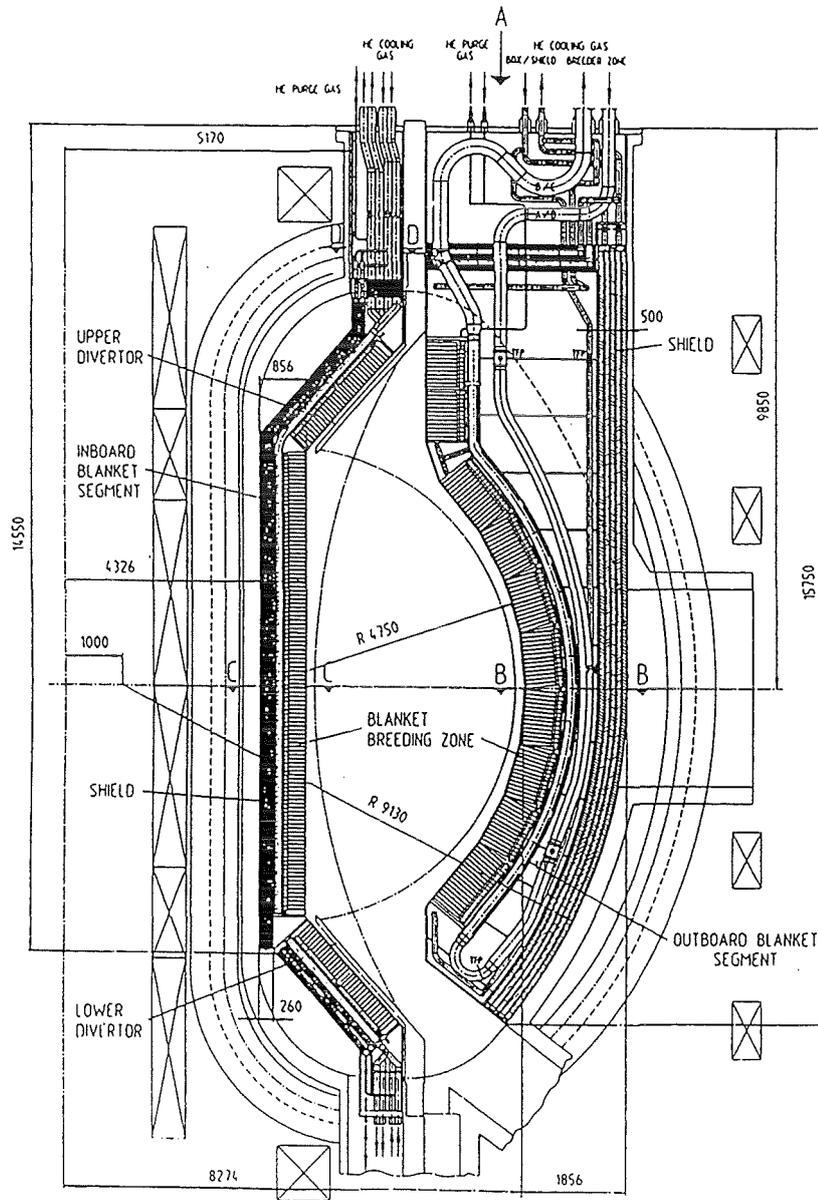


Abbildung 36. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Radial-Poloidal-Schnitt durch den Torus.

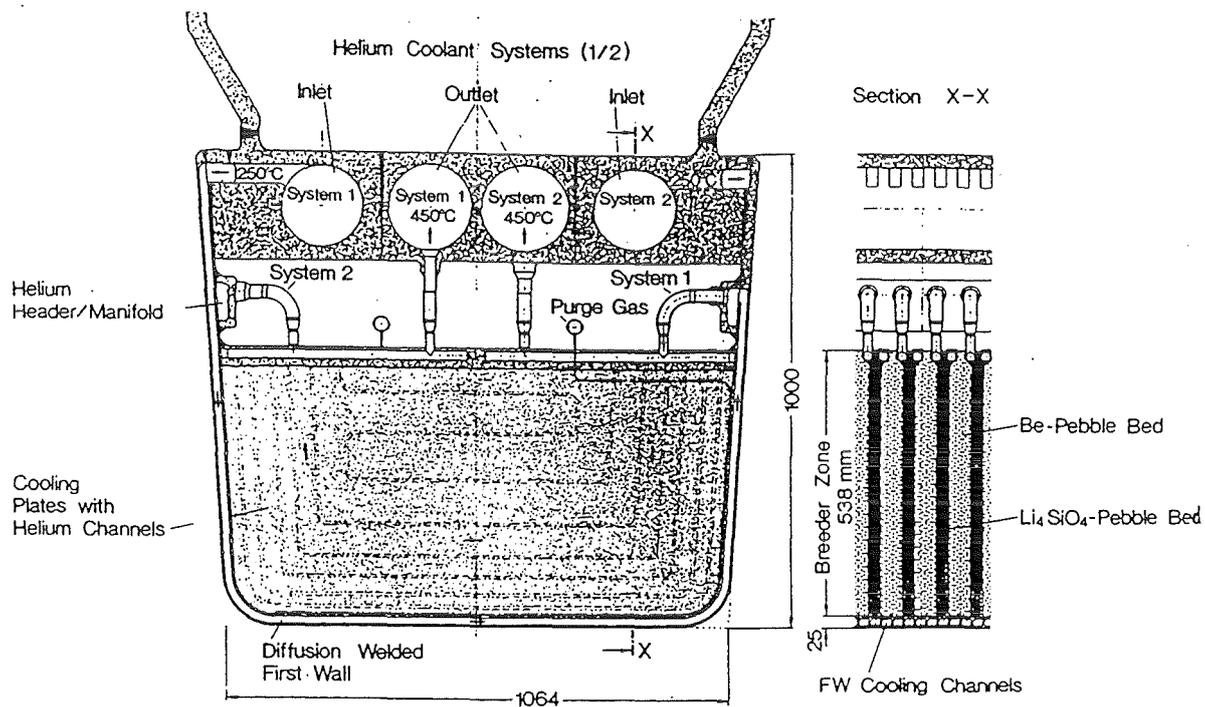


Abbildung 37. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Radial-Toroidal-Querschnitt eines Blanketsegmentes in der Torusmitte.

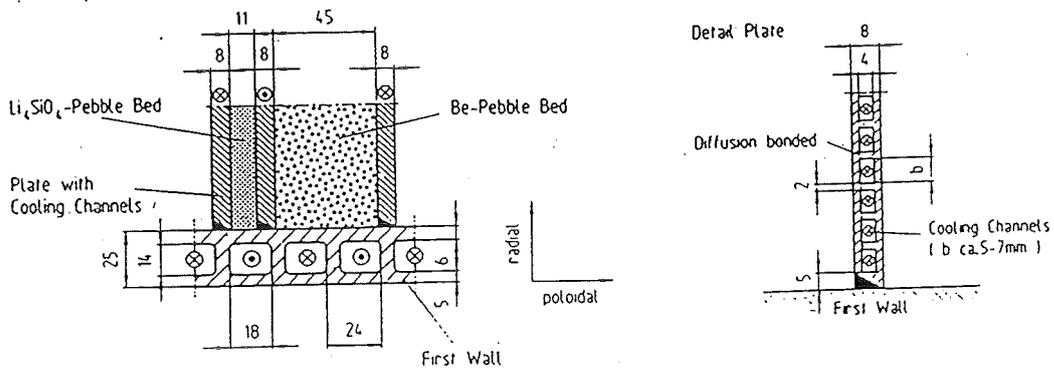
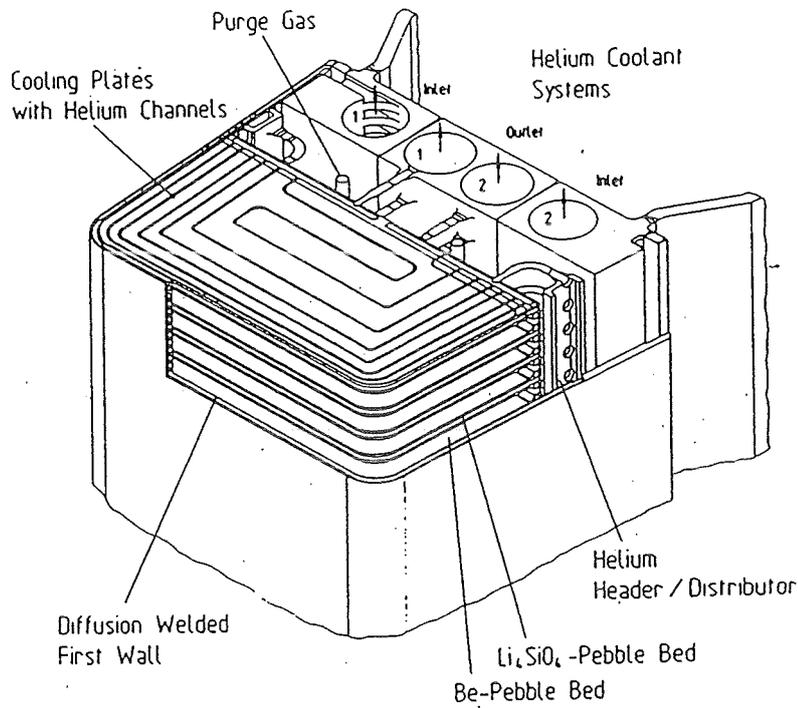


Abbildung 38. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Aufbau eines Außensegments in isometrischer Darstellung aus dem mittleren Torusbereich.

Ein getrennter Spülgaskreislauf (0.1 MPa) entfernt das sowohl im Brutstoff als auch im Beryllium erzeugte Tritium. Kleine, in den Toroidal-Radial-Ebenen liegende Rohre führen das Spülgas zur Vorderseite des Blankets in die Kugelschüttungen hinein. Das Gas strömt aus den Rohren durch kleine Löcher aus und fließt in radialer Richtung zur Rückseite des Blankets, wo es in einem poloidalen Verteilerrohr gesammelt und zum Oberteil des Blanketbehälters geführt wird (Abb. 37 und 38). Die Hauptmerkmale des *BOT-DEMO* Feststoffblankets sind in Tab. 4 zusammengestellt. Eine ausführlichere Beschreibung des Entwurfes findet sich in [1].

Das Beryllium-Verhalten unter Neutronenbestrahlung, insbesondere das Schwellen und die Tritium-Freisetzung, stellt ein Schlüsselproblem des Feststoffblankets dar. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Rechnungen für den FZK-Feststoffblanketentwurf [1] durchgeführt, um sowohl den Schwellbetrag als auch das Tritium-Inventar während des Normalbetriebs des Reaktors sowie unter Störfallbedingungen abschätzen zu können.

Brut- und Neutronenmultiplikator-Material		Getrennte Kugelschüttung von $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ und Beryllium	
$^6\text{Li}$ Anreicherung		25 At%	
Gesamte Blanketleistung		2500 MW (+300 MW in den Divertoren)	
Heliumdruck	Außenbord	8 MPa	
	Innenbord	8 MPa	
He-Druckverluste (FW, Blanket, Zuführungsrohre)	Außenbord	0.3 MPa	
	Innenbord	0.3 MPa	
Helium-Temperatur	Zuflußleitung	250 °C	
	Abflußleitung	450 °C	
Termischer Leistungsgrad des Reaktors		34.6 %	
Max. Stahl-Temperatur		520 °C	
Max. Beryllium-Temperatur		637 °C (BOL) 501 °C (EOL)	
Max. Temperatur des Brutmaterials		900 °C	
Min. Temperatur des Brutmaterials		350 °C	
Effektive 3D Tritium-Brutrate	(ohne Öffnungen)	1.13 (BOL)	1.11 (EOL)
	(mit 10 Öffnungen)	1.07 (BOL)	1.05 (EOL)
Spitzen-Burn-Up des Lithiums		7.5 At%	
Spitzenneutronfluenz in Beryllium		16300 appm He	
Druck des Tritium-Spülsystems		0.1 MPa	
Tritium-Inventar in Brutmaterial		10 g	
Tritium-Inventar in Beryllium		1278 g	
Tritium-Verluste an das Dampf/Wasser System		22 Ci/d	

**Tabelle 4.** Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Hauptmerkmale des *BOT-DEMO* Feststoffblankets.

## 8.1 Beryllium-Schwellen

Es wurden Rechnungen zum Beryllium-Schwellverhalten beim Normalbetrieb des europäischen *BOT-DEMO*-Blankets über einen weiten Bereich von Bestrahlungstemperaturen und Neutronenfluenzen durchgeführt. Für diese Rechnungen wurden Beryllium-Kugeln mit 2 mm Durchmesser, 99% der theoretischen Dichte und einem BeO-Gehalt von 0.3 wt% angenommen. Als Zyklusendbedingungen (End-Of-Life = EOL-Bedingung) wurden eine maximale Helium-Erzeugung in Beryllium von 16300 appm, ein Spitzenwert der Schnellneutronenfluenz von  $\simeq 2.5 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$  ( $E_n > 1 \text{ MeV}$ ) und eine Betriebsdauer von  $\simeq 20000$  Stunden angenommen.

Die Abbildungen 39 und 40 zeigen das volumetrische Beryllium-Schwellen als Funktion der Bestrahlungstemperatur bei verschiedenen Schnellneutronenfluenzen. Das Schwellen nimmt anfangs mit der Bestrahlungstemperatur zu; für höhere Fluenzen ist jedoch wegen der Helium-Freisetzung eine Umkehrung dieser Tendenz festzustellen. Dieser Effekt geht aus Abb. 41 deutlich hervor. Diese zeigt das Beryllium-Schwellen und die Helium-Freisetzung am Zyklusende des Blankets als Funktion der Bestrahlungstemperatur. Bei noch höheren Temperaturen beobachtet man wieder die anfängliche Tendenz des Schwellverhaltens (Zunahme mit Temperatur), und zwar wegen der raschen Koaleszenz der Gasblasen und der Verringerung der mechanischen Festigkeit des Materials, die eine leichtere Verformung des Metalls unter dem Vorstoß des Blasenüberdrucks nach sich zieht.

Die unterschiedlichen, die Gaskinetik- und dynamik im Beryllium widerspiegelnden Tendenzen des Schwellverhaltens sind aus Abb. 42 zu ersehen. Sie zeigt das Beryllium-Schwellen als Funktion des Helium-Gehaltes (oder der Schnellneutronenfluenz) bei verschiedenen Bestrahlungstemperaturen.

Ein linearer Anstieg des Schwellens mit der Neutronenfluenz läßt sich nur bei niedrigen Temperaturen ( $T < 100 \text{ }^\circ\text{C}$ ) feststellen. Bei höheren Temperaturen (oberhalb  $450\text{-}500^\circ\text{C}$ ) ist hingegen eine nicht-lineare Tendenz vorhanden. Wie bereits diskutiert, läßt sich das unterschiedliche Beryllium-Schwellverhalten bei niedrigen und hohen Temperaturen im wesentlichen auf die unterschiedliche Helium-Beweglichkeit im Gitter zurückführen. Wenn die Bestrahlungstemperatur jedoch ca.  $550 \text{ }^\circ\text{C}$  überschreitet, erfolgt eine drastische Abnahme des Schwellanstiegs mit steigender Neutronenfluenz aufgrund der Helium-Freisetzung.

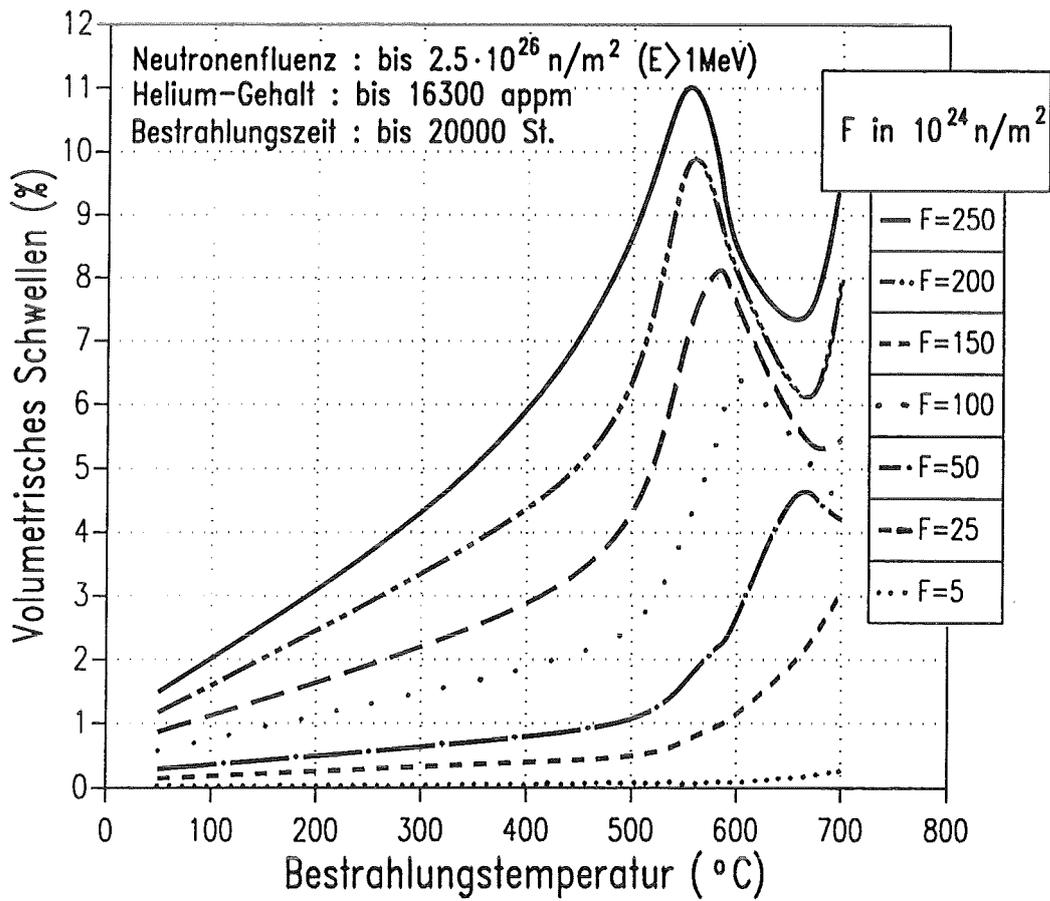


Abbildung 39. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Volumetrisches Beryllium-Schwellen als Funktion der Bestrahlungstemperatur für verschiedene Schnellneutronenfluenzen.

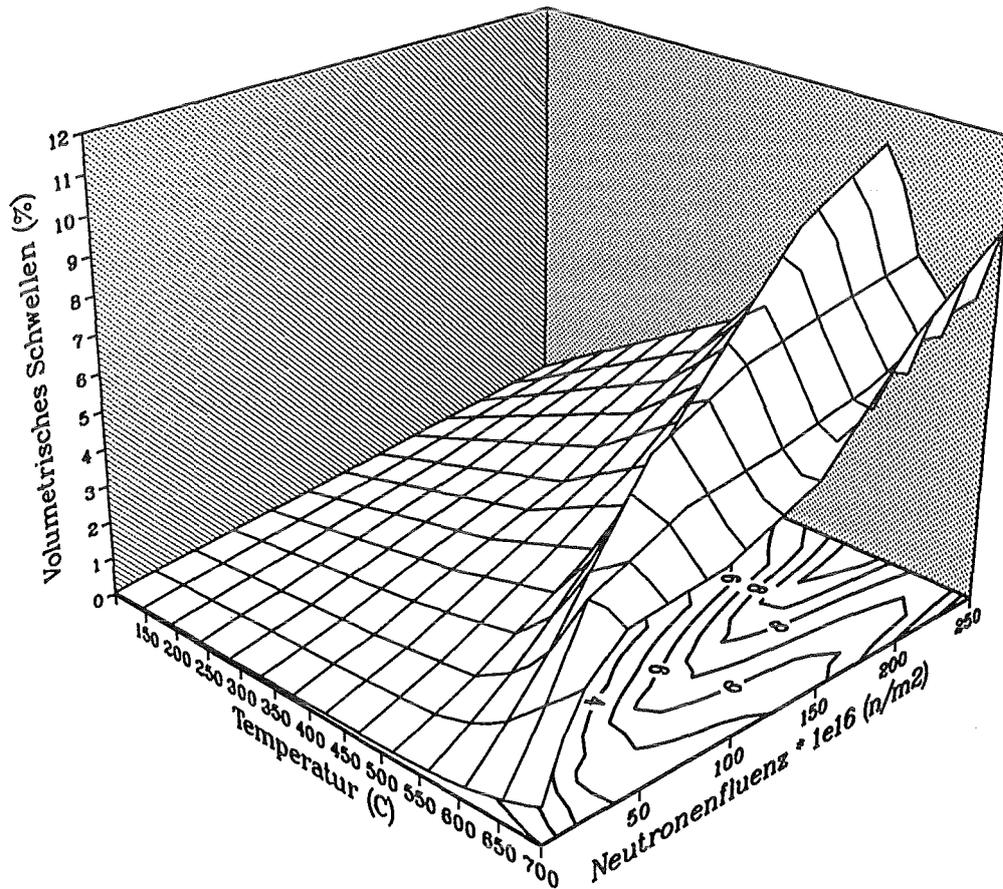


Abbildung 40. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Volumetrisches Beryllium-Schwellen als Funktion der Bestrahlungstemperatur für verschiedene Schnellneutronenfluenzen (3D Darstellung).

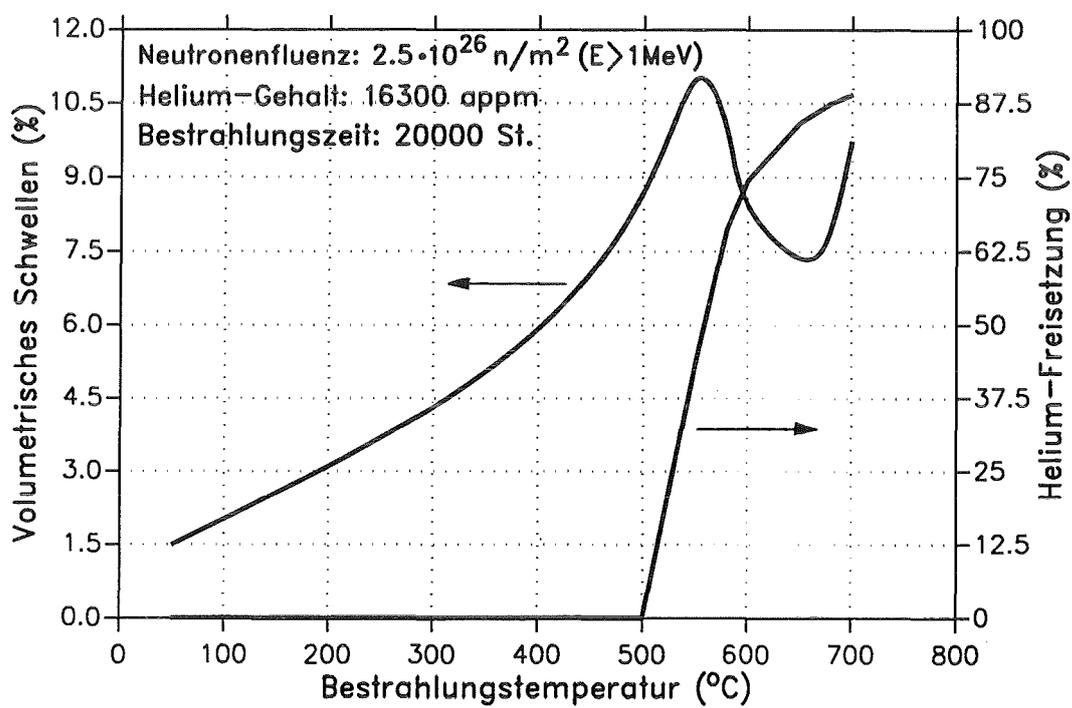


Abbildung 41. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Volumetrisches Beryllium-Schwellen und Helium-Freisetzung als Funktion der Bestrahlungstemperatur am Ende des Normalbetriebs des Reaktors.

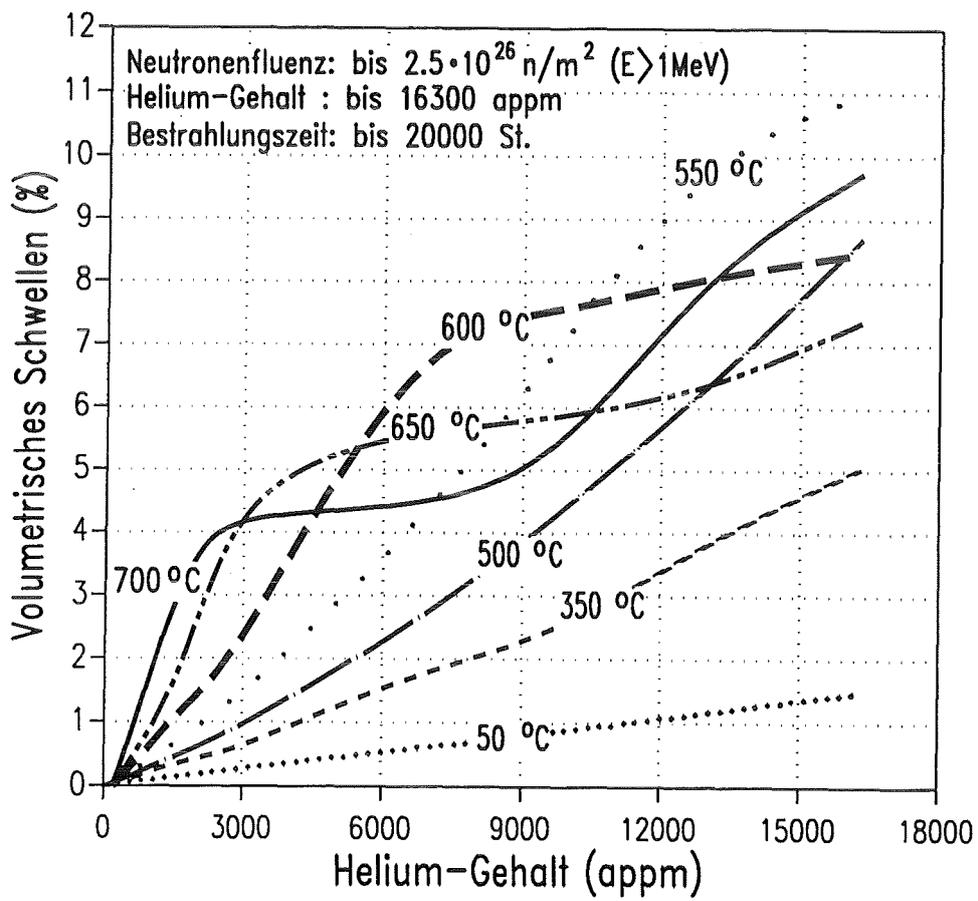


Abbildung 42. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Volumetrisches Beryllium-Schwellen als Funktion des Helium-Gehalts für verschiedene Bestrahlungstemperaturen.

Die bisherigen Berechnungen wurden unter der Annahme durchgeführt, daß die Berylliumtemperatur während des Lebenszyklus des Blankets unverändert bleibt. In Wirklichkeit ändert sich die Temperatur der Beryllium-Kugeln während der Bestrahlung beträchtlich. Experimentelle Untersuchungen [1] haben den Beweis erbracht, daß die effektive Wärmeleitfähigkeit der Schüttung und die Wärmeübergangszahl zwischen Schüttung und Behälterwänden durch die von den Behälterwänden erzwungene Bewegungseinschränkung der Schüttung beeinflußt sind. Wenn die Ausdehnung der Schüttung, beispielweise wegen erhöhter Temperatur und/oder wegen Materialschwellens, merklich wird, aber durch die Behälterwände beschränkt wird, nimmt die Kontaktfläche der gut wärmeleitenden Beryllium-Kugeln zu. Infolge dessen steigt die Wärmeleitfähigkeit der Schüttung sowie die Wärmeübergangszahl zwischen Schüttung und Wand und deshalb sinkt die Temperatur der Schüttung.

Eine ähnliche Auswirkung hat das durch Neutronen hervorgerufene Schwellen: der gesteigerte Druck der während der Bestrahlung gebildeten Heliumblasen verursacht Kriechen. Dabei vergrößert sich die Kontaktfläche der Kugeln und daraus folgt eine Herabsetzung der Schüttungstemperatur.

Anhand der im FZK [1] durchgeführten Experimente konnten diese Effekte quantitativ abgeschätzt werden. Damit wurden realistischere Rechnungen des Beryllium-Schwellens durchgeführt, welche die Temperaturänderungen in den Blanketbereichen wo die höchsten Schwellraten zu erwarten sind (z.B. die Außenbord-Blanketzone um die Äquatorebene), berücksichtigen.

Dafür wurde im Rahmen dieser Arbeit ein gesondertes Rechenprogramm zur Lösung der Wärmeleitungs-Differentialgleichung entwickelt, welches die vom Beryllium-Schwellen und der zugehörigen thermischen Ausdehnung der Kugelschüttung verursachten Temperaturänderungen unter Berücksichtigung des Verhaltens der Behälterwände, beschreibt. Die entsprechenden Rechnungen wurden für verschiedene Zeitpunkte während des Blanketbetriebs bis zum Blanket-EOL für denjenigen Blanketteil, bei dem die höchste Leistungsdichte erwartet wird, durchgeführt. Dieser Teil ist der poloidale Abschnitt des Außenbordblankets auf der Torusäquatorebene. Die Verteilung der Schnellneutronenfluenz im Blanket ist in Abb. 43 [66] dargestellt.

Iterative Rechnungen wurden für jeden Zeitpunkt durchgeführt: ausgehend von den für den vorhergehenden Zeitpunkt berechneten Temperaturen und der bekannten Fluenz, wird die Verteilung des Beryllium-Schwellbetrages durch Interpolation von mit

*ANFIBE*-Rechnungen ermittelten Werten als Funktion der Bestrahlungstemperatur und Fluenz gewonnen. Die Schüttungstemperatur wird dann mit Hilfe der zuletzt berechneten Volumenschwellwerte erneut berechnet. Die Rechnung wiederholt sich, bis zwei aufeinanderfolgende Temperaturverteilungen weniger als  $0.5\text{ }^{\circ}\text{C}$  voneinander abweichen. Abb. 44 zeigt die Temperaturverteilung am Zyklusanfang (Beginning-Of-Life = BOL-Bedingung) in der Beryllium-Kugelschüttung. Die maximale BOL-Beryllium-Temperatur beträgt  $637\text{ }^{\circ}\text{C}$  und tritt nahe der Symmetrieachse der Brutzone auf. Die geringfügig asymmetrische Temperaturverteilung in Beryllium rührt im wesentlichen von einer nicht-symmetrischen Verteilung der Helium-Kühlrohre in den Blanketkühlplatten her [1].

Ohne Berücksichtigung der durch das Beryllium-Schwellen und der damit verbundenen thermischen Ausdehnung der Kugelschüttung und Behälterwand bewirkten Temperaturänderungen würde der EOL-Schwellbetrag die in Abb. 45 gezeigte Verteilung mit einem Höchstwert von 11% in der Nähe der ersten Wand annehmen. Wegen der merklichen Zunahme der Schüttungs-Wärmeleitfähigkeit sind jedoch die Temperaturen im Beryllium am Zyklusende niedriger als am Anfang (Abb 46). Der Höchstwert der EOL-Beryllium-Temperatur sinkt infolge dieses Effekts von  $637\text{ }^{\circ}\text{C}$  auf  $501\text{ }^{\circ}\text{C}$  und die Temperaturverteilung in Beryllium ist gleichförmiger als die am BOL. Bemerkenswert ist die Abnahme der Höchsttemperaturen nahe der ersten Wand, wo die Neutronenfluenz ihren Höchstwert annimmt und entsprechend die maximalen Schwellwerte zu erwarten sind.

Die erniedrigte Beryllium-Schüttungstemperatur am Blanket-EOL hat zur Folge, daß die EOL-Schwellverteilung gleichförmiger ist (vergleiche Abb. 47 und 45). Der Spitzenwert des Beryllium-Schwellens sinkt von 11% auf 8.3%.

Die Analysen zeigen, daß der höchste Volumenschwellbetrag auf jeden Fall viel niedriger als der Voidanteil der Kugelschüttung (ca. 20%) ist. Das heißt, daß genügend Raum bis zum EOL zur Verfügung steht, sodaß der das Tritium wegspülende Helium-Durchfluß nicht behindert wird.

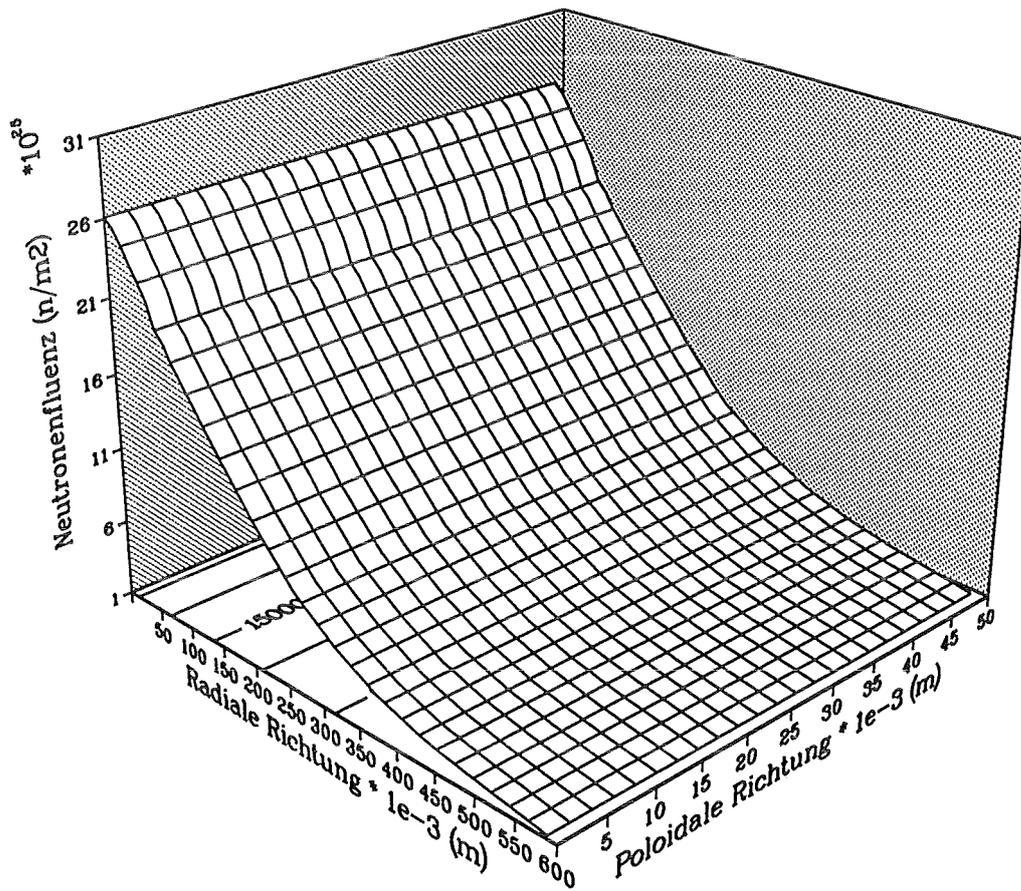


Abbildung 43. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Verteilung der Schnellneutronenfluss in der Beryllium-Kugelschüttung

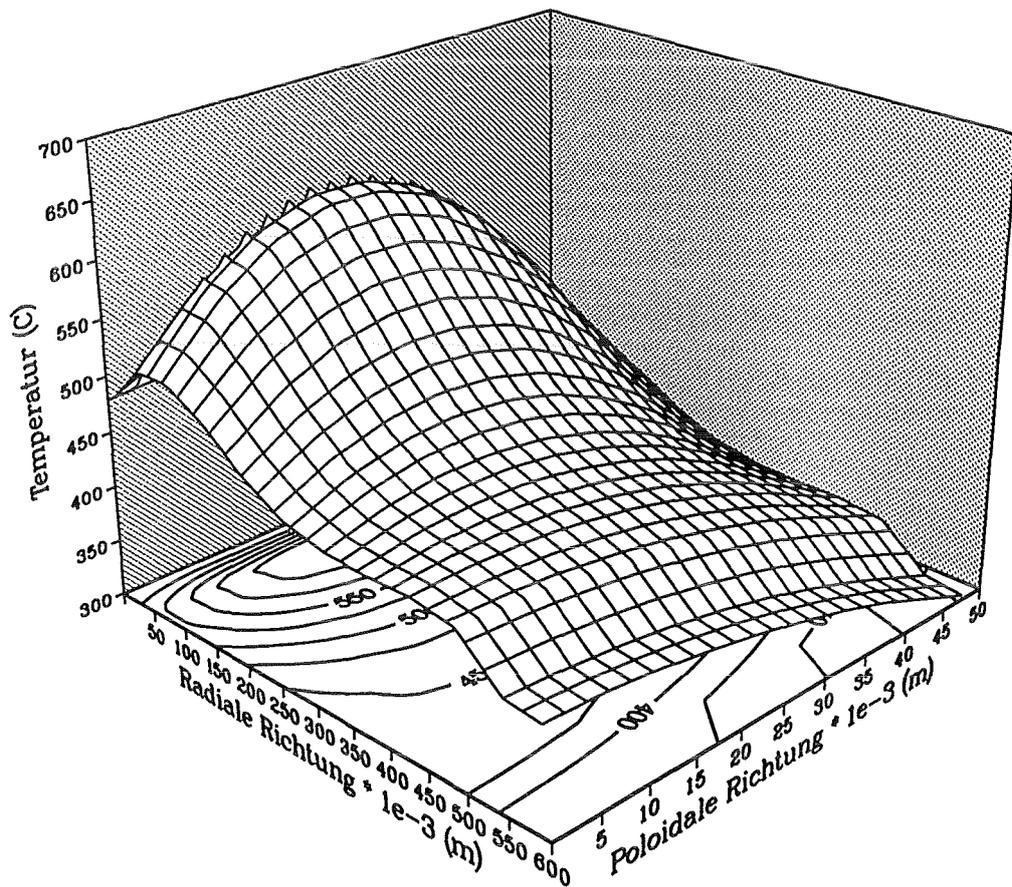


Abbildung 44. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Beryllium-Temperaturverteilung am Anfang des Reaktorbetriebs.

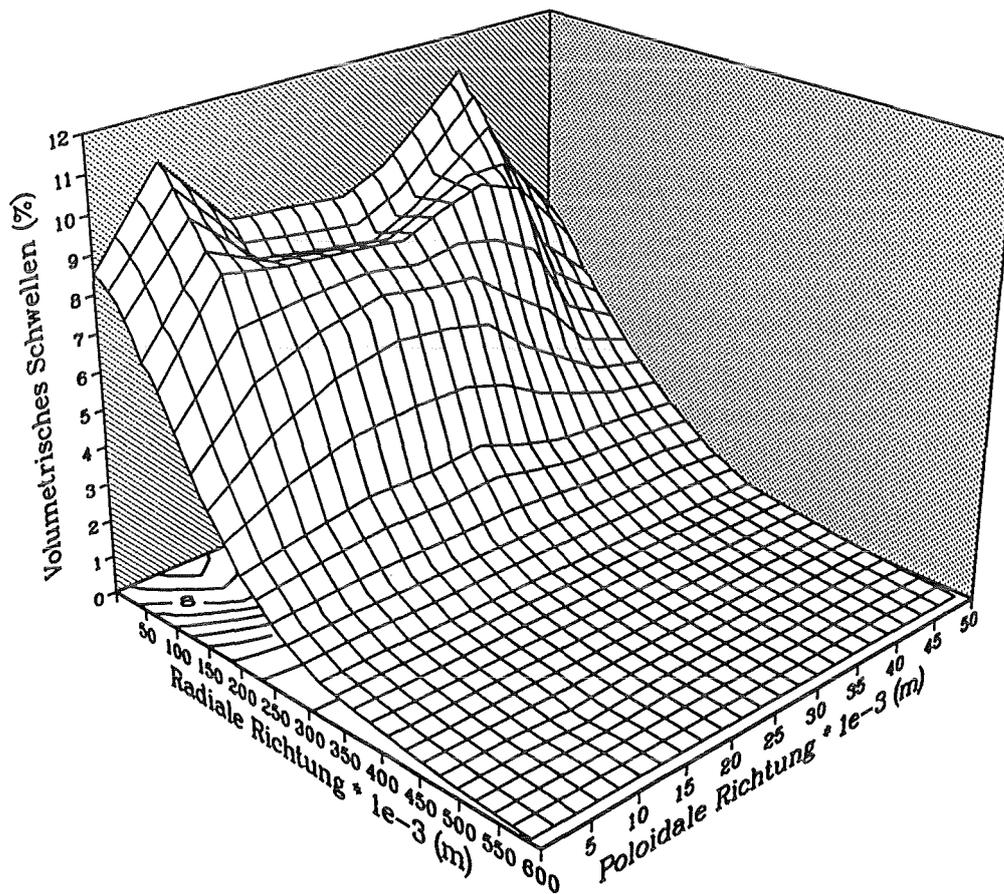


Abbildung 45. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: EOL-Beryllium-Schwellverteilung in der gesamten Schüttung, ohne die Wirkung des Schwellens auf die Wärmeleitfähigkeit zu berücksichtigen.

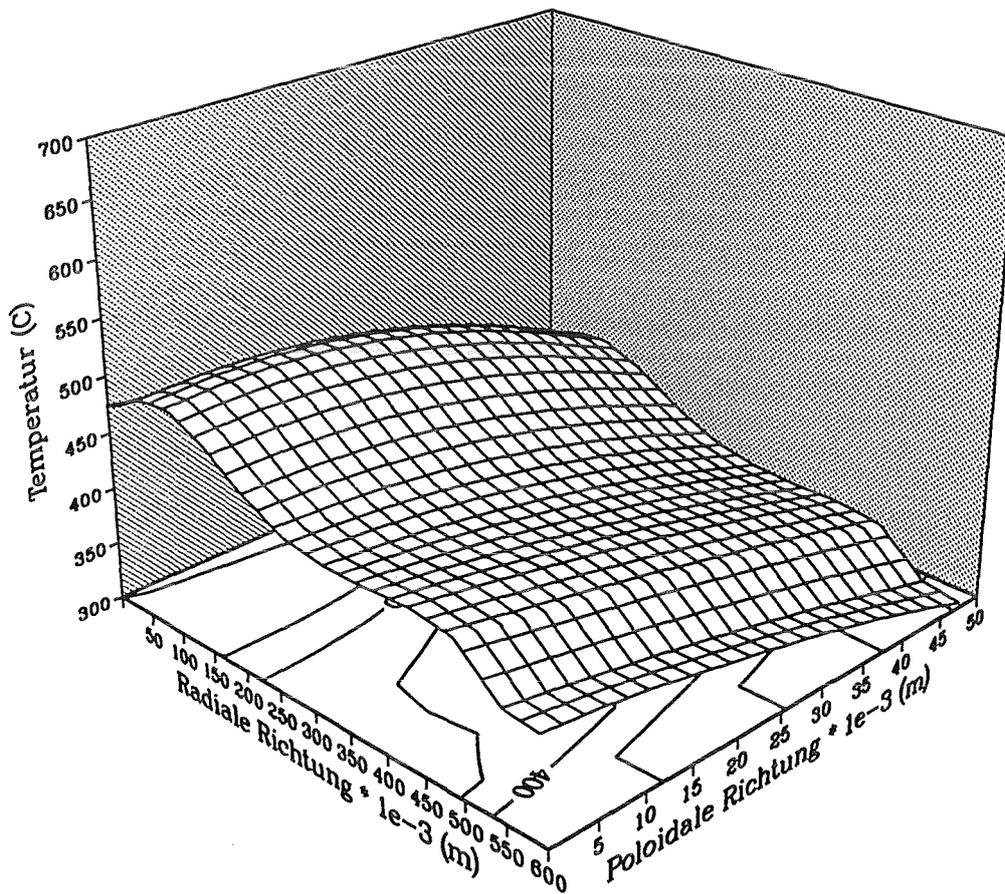


Abbildung 46. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Beryllium-Temperaturverteilung am Ende des Normalbetriebs des Reaktors.

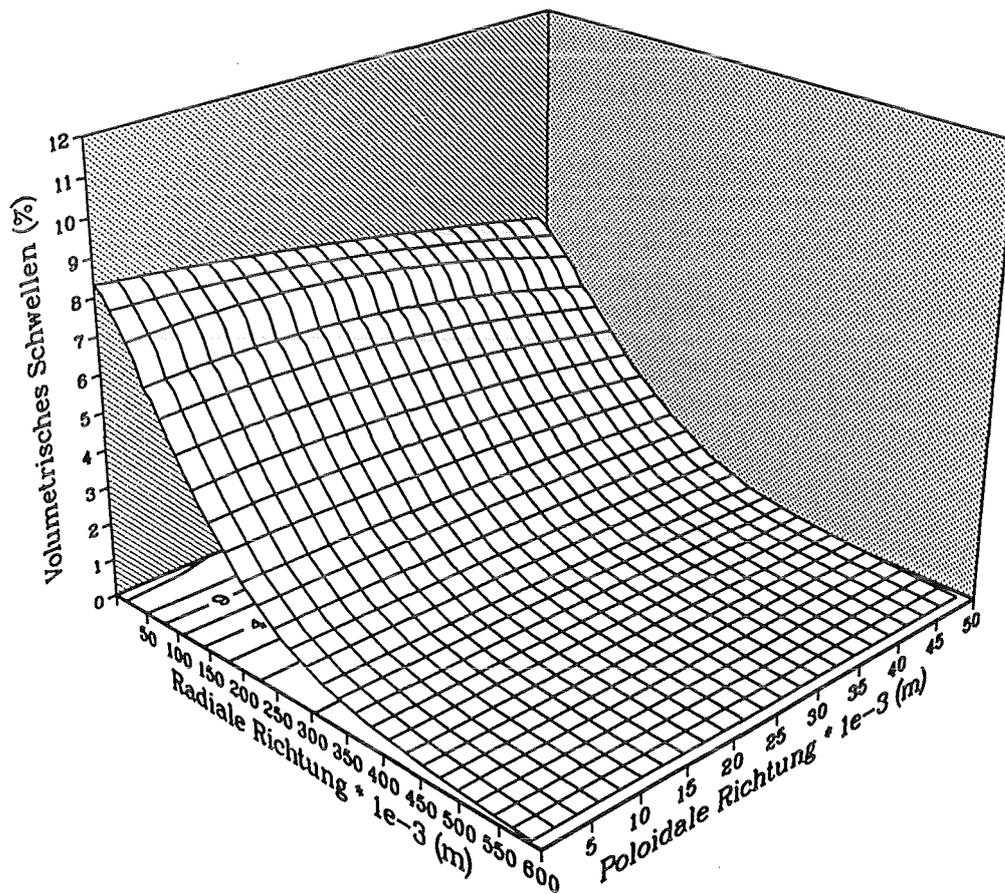


Abbildung 47. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Effektive EOL-Beryllium-Schwellverteilung in der gesamten Schüttung.

## 8.2 Tritium-Freisetzung aus Beryllium

Für das vorgeschlagene *BOT-DEMO*-Blanket wurde die Tritium-Freisetzung im Normalbetrieb und für Störfallbedingungen im Reaktor untersucht.

In Abb. 48 ist die mittels *ANFIBE* berechnete prozentuale Tritium-Freisetzung am Blanket-EOL über der Temperatur aufgetragen. Das näherungsweise lineare Verhalten bis 400-450 °C weist darauf hin, daß ein thermisch aktivierter chemischer Einfang des Tritiums mit einheitlicher Energie überwiegt. Oberhalb 450 °C nimmt die Tritium-Freisetzung deutlich geringer mit der Temperatur zu. Dies läßt sich durch einen massiven Einfang in Heliumblasen erklären. Dieser verhindert die Tritium-Freisetzung, solange das Tritium nicht ein offenes Porennetzwerk erreicht. Da die Tritiumerzeugung in der Beryllium-Schüttung mit dem Schnellneutronenfluß korreliert ist, sollte eine ungleichmäßige Tritium-Verteilung in der Radialrichtung des Blankets vorliegen, und zwar sollte die Tritiumkonzentration in den Blanketgebieten neben der ersten Wand höher sein als in den hinteren Gebieten. Diese ungleiche Tritium-Erzeugungsrate beeinflußt die gesamte Tritium-Freisetzung bei Normalbetrieb des Reaktors, die hauptsächlich von der Beryllium-Temperatur gesteuert wird.

Von der gesamten, während des Blanketlebenszyklus erzeugten Tritiummenge, wird etwa die Hälfte freigesetzt und über den Helium-Spülstrom weggeführt. Genauer gesagt, von 2616 g erzeugtem Tritium werden 1338 g bei Normalbetrieb freigesetzt, sodaß das Tritium-Inventar im Blanket am Zyklusende 1278 g beträgt.

Um die wahrscheinlichen Auswirkungen einer zufälligen Temperaturerhöhung auf die Beryllium-Kugeln vorausszusagen, wurde eine entsprechende Analyse vorgenommen. Zu diesem Zweck wurde angenommen, daß ein hypothetischer, durch eine Temperaturrampe bis 900 °C innerhalb 30 s charakterisierter Überhitzungsvorgang am Blanket-EOL auftritt.

Die integrale Tritium-Freisetzung bei einem solchen Störfall ist in den Abb. 49 und 50 dargestellt. Es fällt dabei auf, daß, nach einem sprunghaften Ausstoß von 40 g Tritium am Anfang die Tritium-Freisetzung relativ langsam ist. Wenn die Spitzentemperatur von 900 °C über 24 Stunden konstant gehalten wird (ein ziemlich unwahrscheinliches Vorkommnis), würde die freigegebene Tritiummenge weniger als 70 g betragen (Abb. 50).

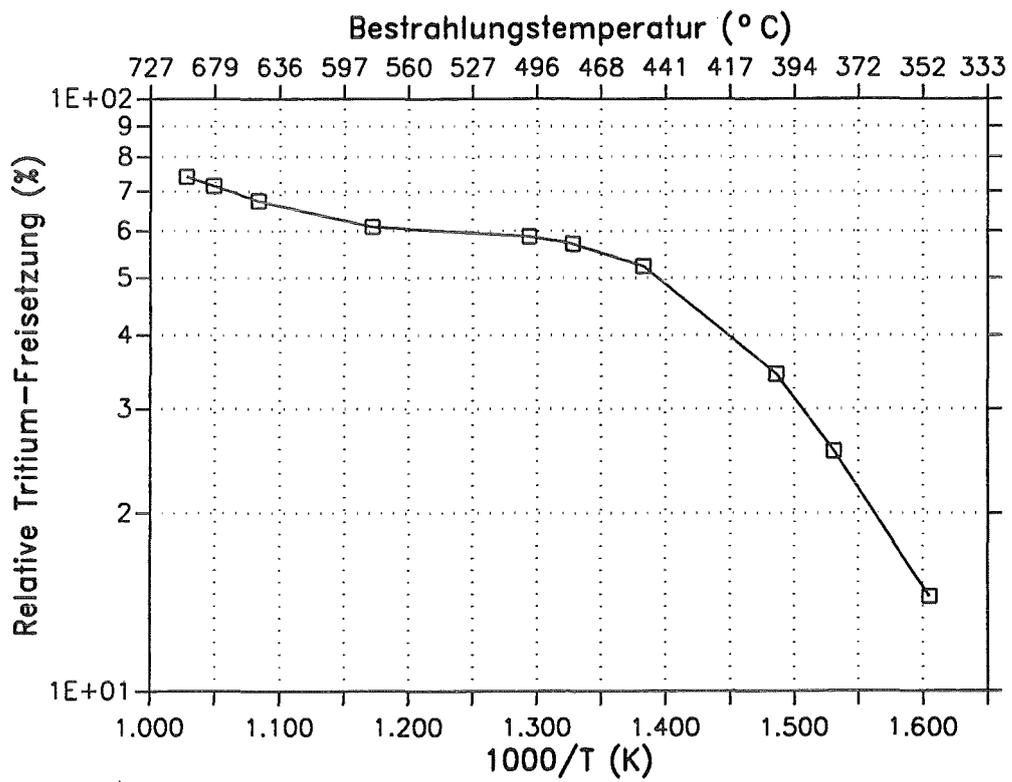


Abbildung 48. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Arrhenius Diagramm der Tritium-Freisetzung für das Beryllium am Ende des Normalbetriebs des Reaktors.

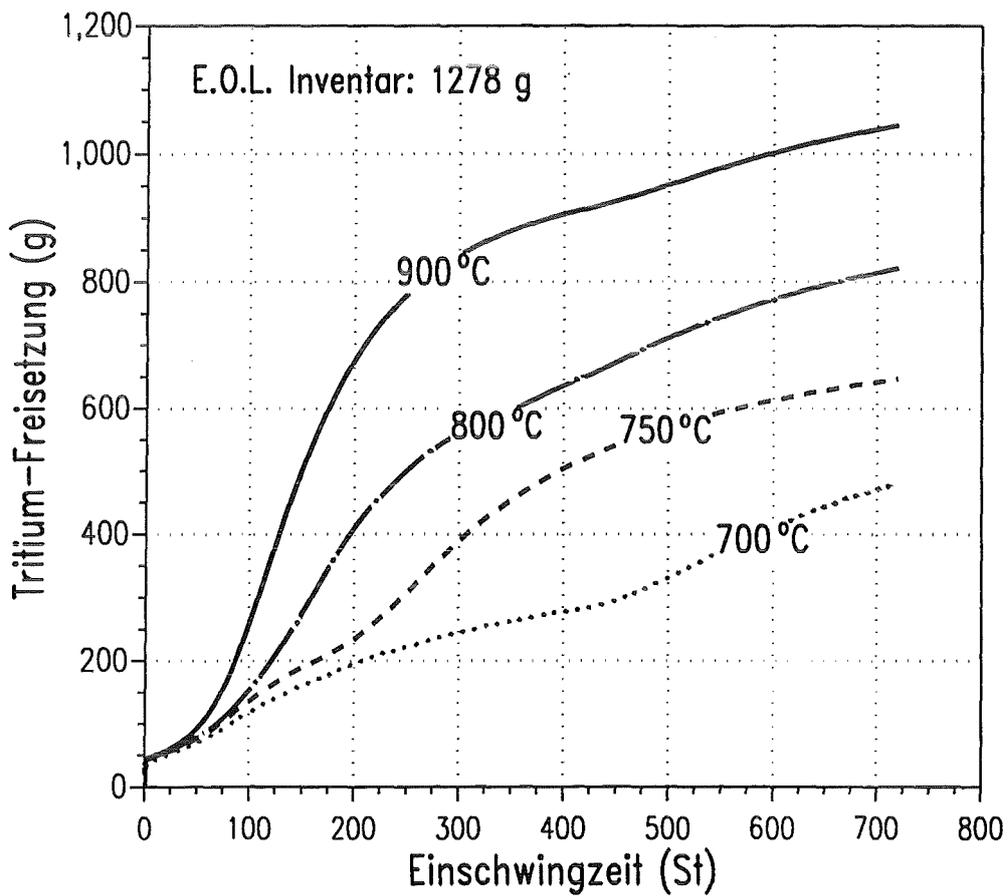


Abbildung 49. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Integrale Tritium-Freisetzung als Funktion der Einschwingzeit für Beryllium, welches am Ende des Normalbetriebs des Reaktors einem Temperaturanstieg bis 900 °C in 30 s unterworfen wurde.

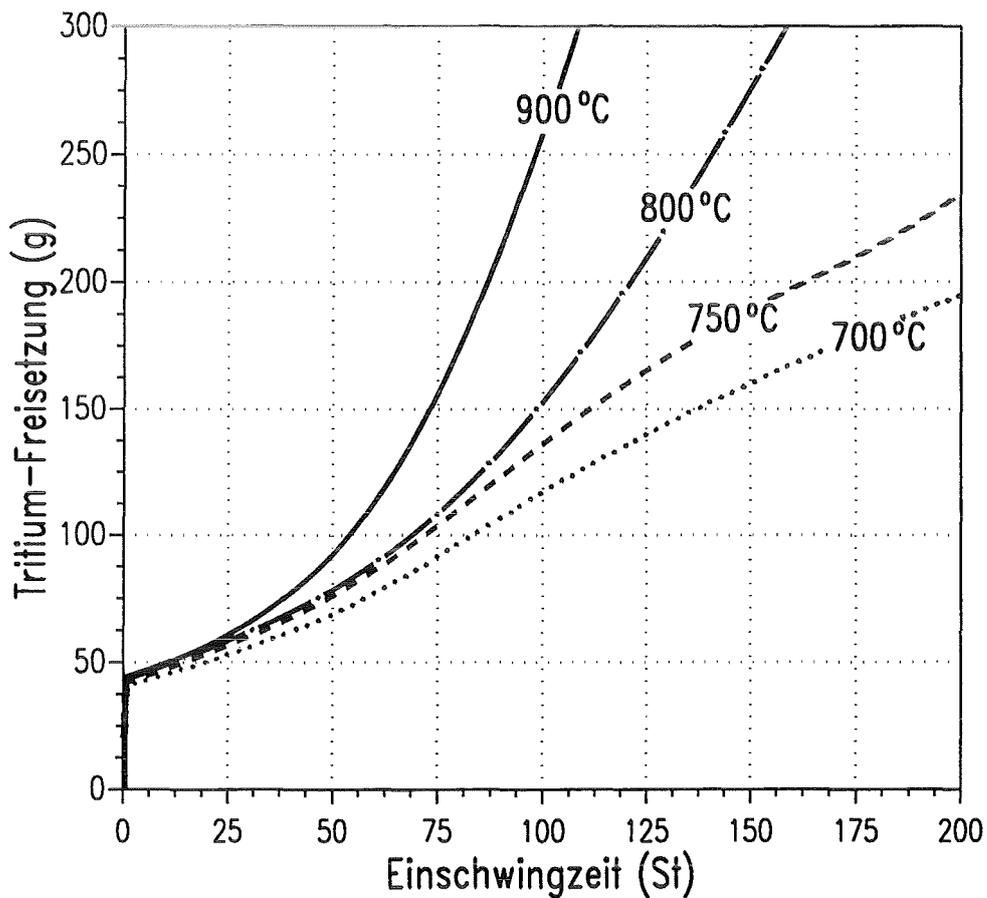


Abbildung 50. Feststoff-Blanketentwurf des FZK: Integrale Tritium-Freisetzung als Funktion der Einschwingzeit für Beryllium, welches am Ende des Normalbetriebs des Reaktors einem Temperaturanstieg bis 900 °C in 30 s unterworfen wurde (Detail).

## 9. Zusammenfassung

Auf dem Weg zur Realisierung des DEMO Fusionsleistungsreaktors spielen sicherheitstechnische Fragen eine entscheidende Rolle. Beryllium ist am besten, als Neutronenmultiplikator im Blanket eines Fusionsreaktors geeignet. Die Verwendung eines Neutronenmultiplikators ist notwendig, um für das Verhältnis von im Blanket erzeugtem zu im Plasma verbranntem Tritium (*Tritium Breeding Ratio*) einen Wert größer als eins zu erreichen.

Aufgrund der wichtigen Rolle des Blankets ist eine detaillierte und zuverlässige Beschreibung des Berylliumverhaltens unter Schnellneutronenbestrahlung notwendig. Die während des Normalbetriebs des Reaktors im Beryllium des Blankets erzeugten Helium- und Tritium-Gasmengen stellen ein großes Problem dar, weil Helium zu Materialschwellen führen kann und Tritium eine biologische Sicherheitsgefährdung darstellt.

Mit der rechnerischen Simulation des gas-induzierten Schwellens und der Tritium-Freisetzung von bestrahltem Beryllium beschäftigt sich die vorliegende Arbeit. Da kein Rechenprogramm bis jetzt verfügbar war, wurde ein Code zur Modellierung der wichtigen Vorgänge, welche das Gasverhalten (Helium und Tritium) und das Schwellen von Beryllium beeinflussen, entwickelt. Ein am Institut für Transurane in Karlsruhe entwickeltes Rechenprogramm (*FUTURE*) zur Analyse des Brennstabverhaltens bei Spaltreaktoren diente als Grundlage für diese Arbeit und wurde weitgehend modifiziert und erweitert. Außerdem wurde ein neues Modell zur Beschreibung der Tritium-Freisetzung entwickelt und in den Code eingebaut. Das so entstandene Rechenprogramm heißt *ANFIBE* (ANalysis of Fusion Irradiated Beryllium).

Die Schwerpunkte dieser Arbeit lassen sich folgendermaßen zusammenfassen:

- 1) Die in *FUTURE* verwendeten konstitutiven Gleichungen wurden neu formuliert.
- 2) Es wurden geeignete analytische Beziehungen für die Beryllium-Eigenschaften ausgewählt und in die konstitutiven Gleichungen eingeführt.
- 3) Es wurde ein neues Modell zur Beschreibung des Tritiumverhaltens entwickelt.

- 4) Die Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen für Tritium wurden erstellt und in den Code integriert.

Zur Validierung des Rechenprogramms ANFIBE wurden Vergleiche zwischen berechneten Schwell- und Tritium-Freisetzungsergebnissen und experimentellen Werten von Bestrahlungen im Reaktor sowie von Aufheizungsexperimenten nach Bestrahlungen und zwar über einen weiten Bereich von Bestrahlungsparametern (Bestrahlungstemperaturen von 50 °C bis 970 °C, Neutronenfluenzen von  $2.1 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$  ( $E_n > 1 \text{ MeV}$ ) bis  $5.0 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$  ( $E_n > 1 \text{ MeV}$ ), Helium-Gehalte von 1155 *appm* bis 26100 *appm*) durchgeführt.

Die Übereinstimmung zwischen berechneten und gemessenen Werten ist gut. Die Mehrheit der Schwelldaten bezieht sich jedoch entweder auf bei niedrigen Temperaturen bis zu sehr hohen Neutronenfluenzen oder auf bei hohen Temperaturen und mit niedrigen Neutronenfluenzen bestrahltes Beryllium.

Die Analyse und die Vergleiche zwischen berechneten und experimentellen Werten lieferten folgende wichtige Ergebnisse:

- 1) Das Schwellen des bei niedrigen Temperaturen ( $T < 100 \text{ °C}$ ) bestrahlten russischen Berylliums ist höher als das des modernen westlichen Berylliums. Der Grund dafür ist, daß wegen des hohen Verunreinigungsgehalts des russischen Berylliums die Oberflächenspannung niedriger ist als die des reinen westlichen Materials. Das Schwellverhalten von bei niedrigen Temperaturen bestrahltem Beryllium wird von dem Verunreinigungsgehalt stark beeinflusst.
- 2) Das Schwellen des bei hohen Temperaturen und gleichzeitig mit ziemlich hohen Fluenzen bestrahlten russischen Berylliums ist viel höher als das des westlichen Berylliums. Das ist dem Umstande zuzuschreiben, daß wegen der hohen Bestrahlungstemperatur einige Verunreinigungen mit niedrigem Schmelzpunkt (z.B. *Al*, *Mg*), die an den Berylliumkorn Grenzen konzentriert sind, schmelzen. Dies verursacht eine Erhöhung des Beryllium-Kriechens. Die Erhöhung der Kriechgeschwindigkeit und die gleichzeitige Verringerung der Oberflächenspannung durch die Verunreinigungen bewirken eine deutliche Erhöhung des Beryllium-Schwellens bei hohen Bestrahlungstemperaturen.

- 3) Die Tritium-Freisetzung wird sowohl von Helium-gefüllten Blasen als auch von Berylliumoxyd-Einschlüssen behindert. Um die Sicherheitsprobleme, die das Tritium-Inventar im Beryllium darstellt, zu bewältigen, sind zwei verschiedene Lösungen möglich. Die erste Möglichkeit besteht in der Verwendung von Beryllium mit sehr niedrigem Sauerstoffgehalt ( $\text{BeO} < 300 \text{ ppm}$ ), um das als Berylliumhydroxyd an Oxyd-Einschlüssen chemisch gebundene Tritium zu verringern. Die zweite Möglichkeit besteht in der Verwendung von Beryllium mit ziemlich hohem Sauerstoffgehalt ( $\text{BeO} > 1.5\text{-}2.0 \text{ wt\%}$ ). Solch ein Material setzt das Tritium sehr langsam und nur bei sehr hohen Temperaturen frei.

Zusätzlich wurden Berechnungen zur Untersuchung des Beryllium-Verhaltens unter Schnellneutronenbestrahlung für den *BOT-DEMO*-Blanketentwurf des FZK durchgeführt.

Die wichtigsten Ergebnisse sind:

- 1) Das Schwellen des *BOT-DEMO*-Berylliums als Funktion der Bestrahlungstemperatur nimmt anfangs mit steigender Bestrahlungstemperatur zu; für höhere Fluenzen erhält man jedoch wegen der Helium-Freisetzung eine Umkehrung dieser Tendenz. Bei noch höheren Bestrahlungstemperaturen ist die anfängliche Tendenz des Schwellenverhaltens aufgrund der raschen Koaleszenz von Gasblasen und der Verringerung der mechanischen Festigkeit des Materials erneut festzustellen. Das maximale Beryllium-Schwellen beträgt 11%.
- 2) Wegen der Steigerung der Kugelschüttungswärmeleitfähigkeit, welche durch das Schwellen der Beryllium-Kugeln verursacht wird, ergibt sich am Ende der Blanketlebensdauer (20000 Stunden) eine starke Reduzierung der Beryllium-Kugelschüttungstemperatur (Spitzenwert erniedrigt sich von  $637 \text{ }^\circ\text{C}$  auf  $501 \text{ }^\circ\text{C}$ ).
- 3) Die Abnahme der Schüttungstemperatur verursacht eine Verringerung des Beryllium-Schwellens und die Verteilung in der gesamten Schüttung wird gleichförmiger. Am Ende der Blanketlebensdauer wird das maximale Beryllium-Schwellen durch diesem Effekt von 11% auf 8.3% reduziert.

- 4) Da anfangs der verfügbare Raum für die Heliumströmung, welche das aus dem Beryllium freigesetzte Tritium entfernt, 20% des Schüttungsvolumens beträgt, verbleibt bis zum Lebenszyklusende des Blankets genügend Raum für das Spülgas.
- 5) Die Tritium-Freisetzung aus dem *BOT-DEMO*-Beryllium wird unterhalb 450 °C von Berylliumoxyd-Einschlüssen bestimmt (*chemischer Einfang*). Bei höheren Temperaturen wird jedoch die Freisetzungskinetik auch von eingebauten Senken (*physikalischer Einfang*) bestimmt.
- 6) Von 2616 g erzeugtem Tritium werden bis zum Ende des Normalbetriebs des Reaktors 1338 g freigesetzt.
- 7) Um die Auswirkungen eines Temperaturanstiegs auf die Tritium-Freisetzung abzuschätzen, wurde am Ende des Normalbetriebs des Reaktors ein Temperaturanstieg bis 900 °C in 30 s angenommen. Wenn die Temperatur von 900 °C über 24 Stunden gehalten wird (eine Situation, die als höchst unwahrscheinlich gilt), beträgt die freigesetzte Tritiummenge weniger als 70 g.

Um die Zuverlässigkeit der Code-Vorausrechnungen weiter zu erhöhen sind:

- 1) Weitere Schwellversuche bei hohen Temperaturen während der Bestrahlung und hohen Fluenzen und
- 2) Tritium-Freisetzungsexperimente im Reaktor

notwendig. Eine Weiterentwicklung der in der vorliegenden Arbeit vorgestellten Version des Rechenprogramms *ANFIBE* ist erst auf der Basis solcher gezielten experimentellen Untersuchungen möglich.

## Literatur

- [1] M. Dalle Donne, et al.. European DEMO BOT Solid Breeder Blanket. KfK-Bericht 5429, Kernforschungszentrum Karlsruhe, November 1994.
- [2] M. Dalle Donne, et al.. Material Problems and Requirements Related to the Development of Fusion Blankets: the Design Point of View. *Journal of Nuclear Materials* 212-215 (1994) 69-79.
- [3] D.S. Gelles, et al.. Radiation Effects in Beryllium Used for Plasma Protection. *Journal of Nuclear Materials* 212-215 (1994) 29-38.
- [4] C. Ronchi and J. Van de Laar. The Fuel Performance Code FUTURE, EUR Report 11387 EN, Bruxelles, 1988.
- [5] W.G. Wolfer and T.J. McCarville. An Assessment of Radiation Effects in Beryllium. Proc. 6th Topical Meeting on the Technology of Fusion Energy, San Francisco, USA, 1985, p. 1157.
- [6] G.J.C. Carpenter and R.G. Fleck. Electron Irradiation Damage in Beryllium in a High Voltage Electron Microscope. Proc. 4th Conference on Beryllium, London, UK, 1977, p. 26/1.
- [7] C. Ronchi, et al.. Boundary Loss Term in the Diffusion of Radioactive Volatile Fission Products. *Nuclear Science and Engineering* 95 (1987) 282-295.
- [8] C. Ronchi. On Diffusion and Precipitation of Gas-in-Solid. *Journal of Nuclear Materials* 148 (1987) 316-323.
- [9] C. Ronchi and P.T. Elton. Radiation Re-Resolution of Fission Gas in Uranium Dioxide and Carbide. *Journal of Nuclear Materials* 140 (1986) 228-244.

- [10] C. Ronchi. Physical Processes and Mechanisms Related to Fission Gas Swelling in MX-Type Nuclear Fuels. *Journal of Nuclear Materials* 84 (1979) 55-84.
- [11] W. Prager and P.G. Hodge. *Theorie Ideal Plastischer Körper*. Springer, Berlin, 1954.
- [12] C. Domb and M.S. Green. *Phase Transitions and Critical Phenomena, Vol.2*. Academic Press, London, 1972.
- [13] A.D. Brailsford and R. Bullough. The Rate Theory of Swelling due to Void Growth in Irradiated Metals. *Journal of Nuclear Materials* 44 (1972) 121.
- [14] G.R. Longhurst. Tritium Behaviour in ITER Beryllium. EG&G Idaho Report, EGG-FSP-9304 (1990).
- [15] D.L. Baldwin et al.. Tritium Release from Irradiated Beryllium at Elevated Temperatures. PNL-SA-16998, Report, Pacific Northwest Laboratory, 1989.
- [16] M.W. Chase et al.. JANAF Thermochemical Tables, 3rd ed.. *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 14 (1985) Suppl. no. 1.
- [17] J.M. Dupoy et al.. Self Diffusion and Diffusion of Foreign Atoms in Beryllium. *Mém. Scientif. Rev. Metallurg.* 63 (1966) 481.
- [18] V.V. Vlasov et al.. Migration of He in Irradiated Beryllium. Kurtshatov'se Institute of Atomic Energy, 1992.
- [19] J.B. Rich and G.P. Walters. The Mechanical Properties of Beryllium Irradiated at 350 and 600 °C. *Proc. of the International Conference on the Metallurgy of Beryllium*, London, 16-18 October, 1961, p. 362-371.

- [20] A.G. Bespalov et al.. Diffusivity of He in Irradiated Beryllium. Transactions of Physical-Energetic Institut of Moscow (1974) 443.
- [21] J.M. Beeston. Gas Release and Compression Properties in Beryllium Irradiated at 600 and 750 °C. USAEC Report IN-1057, Idaho Nuclear Corporation, Idaho Falls, 1967.
- [22] B.S. Hickman. Nucleation and Growth of Gas Bubbles in Irradiated Metals. Journal of the Austral. Inst. Met. Vol. 5 N.2 (1960) 173.
- [23] V.V. Vlasov and J.G. Degaltsev. Migration of He in Beryllium Irradiated by Alpha Particles. Kurtshatov'se Institut of Atomic Energy, 1981.
- [24] C. Ronchi. Persönliche Mitteilung (1992).
- [25] J. Koutsky and J. Kocík. Radiation Damage of Structural Materials. Elsevier, Amsterdam, 1994.
- [26] P.M.S. Jones and R. Gibson. Hydrogen in Beryllium. AWRE Report No. 0-2/67, Atomic Weapons Research Establishment, United Kingdom, 1967.
- [27] D. Kéroack et al.. Laser Desorption and Depth Profiling Study of Hydrogen and Deuterium Implanted in Beryllium. Proc. of IEA Workshop on Beryllium for Fusion Applications, Karlsruhe, October 4-5, 1993. KfK-Bericht 5271, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Dezember 1993, p. 319-330.
- [28] I.L. Tazhibaeva et al.. Deuterium Permeation through Beryllium with Surface Element Composition Control. 18th Symposium on Fusion Technology, Karlsruhe, 22-26 August, 1994, p. 427-430.
- [29] J.P. Pemsler and E.J. Rapperport. Hydrogen in Proton-Bombarded Beryllium: Agglomeration and Diffusion. Trans. Metall. Soc. AIME 230 (1964) 90-94.

- [30] S. Cho et al.. Modeling of Tritium Release from Beryllium in Fusion Blanket Applications. *Journal of Nuclear Materials* 212-215 (1994) 961-965.
- [31] D.L. Baldwin and M.C. Billone. Diffusion/Desorption of Tritium from Irradiated Beryllium. *Journal of Nuclear Materials* 212-215 (1994) 948-953.
- [32] H. Kawamura. Persönliche Mitteilung (1992).
- [33] M.C. Billone et al.. Tritium and Helium Behaviour in Irradiated Beryllium. *Fusion Technology* 19 (1991) 1707-1714.
- [34] E. Abramov et al.. Deuterium Permeation and Diffusion in High-Purity Beryllium. *Journal of Nuclear Materials* 175 (1990) 90-95.
- [35] G. Caglioti et al.. Surface Energy for Brittle Fracture in Metals from Phonon Frequencies. *Journal of Applied Physics*, Vol. 42 No. 11 (1971) 4271-4276.
- [36] J. Barnes and G.B. Reddings. The Behaviour of Helium Atoms Injected into Beryllium. *Journal of Nuclear Energy* 10 (1959) 32-35.
- [37] V.K. Kumirov. The measurement of the Surface Tension of Some Pure Metals in the Solid State. *Materials Science and Engineering* 60 (1983) L23-L24.
- [38] R. Swalin. *Thermodynamics of Solids*. John Wiley and Sons, Inc., NY, 1962, p.181.
- [39] D.A. Porter and K.E. Easterling. *Phase Transformations in Metals and Alloy*. Van Nostrand Reinhold (UK) Co. Ltd., 1981, p.113.
- [40] Brush-Wellman. Persönliche Mitteilung (1993).
- [41] *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry*, Vol. A4, Weinheim, 1985, p.12.

- [42] L. Murr. Interfacial Phenomena in Metals and Alloys. Addison-Wesley Reading, 1975, p.130.
- [43] M.C. Billone and W.T. Grayhack. Summary of Mechanical Properties Data and Correlations for  $Li_2O$ ,  $Li_4SiO_4$ ,  $LiAlO_2$  and Be. ANL/FPP/TM-218 Report, Argonne National Laboratory, 1988.
- [44] M.C. Billone. Persönliche Mitteilung (1992).
- [45] D. Webster and D.D. Crooks. Factors Influencing the Creep Strength of Hot Pressed Beryllium. Metallurgical Transaction 6A (1975) 2049-2054.
- [46] D. Webster and D.D. Crooks. Creep Mechanisms in Beryllium. Metallurgical Transaction 7A (1976) 1307-1315.
- [47] R.V. Hesketh. Proc. of the International Conference on Solid State Physics and Research with Accelerators, BNL-500883(C-52) (Physics-TID-4500), Brookhaven National Lab., September 1967, p. 389.
- [48] R. Shuman and A.B. Garret. Journal of the American Chemical Society 66 (1945) 442.
- [49] R.B. Holder et al.. Journal of the American Chemical Society 70 (1948) 3897.
- [50] D.R. Floyd and J.N. Lowe. Beryllium Science and Technology. Plenum Press, New York, 1979.
- [51] L. Sannen et al.. Helium Content and Swelling of Low Temperature Irradiated/Post-Irradiated Annealed Beryllium. CEN/SCK Report FT/Mol/93-07.

- [52] J.M. Beeston. Properties of Irradiated Beryllium: Statistical Evaluation. EG&G Idhao Report, TREE-1063 (1976).
- [53] J.M. Beeston et al.. Comparison of Compression Properties and Swelling of Beryllium Irradiated at Various Temperatures. Journal of Nuclear Materials 122-123 (1984) 802-809.
- [54] E. Koonen. Study on Irradiation Effects and Swelling of Irradiated Beryllium. CEN/SCK Report, Reactor Safety Analysis BR2 Department (1989).
- [55] J.M. Beeston et al.. Gas Retention in Irradiated Beryllium. EG&G Idhao Report, EGG-FSP-9125 (1990).
- [56] V. Levy. Rapport Final du Contrat SBB-BS1. CEA Report, Centre d'Etudes de Saclay, N.T. SRMA 92-1955 F.A 3591-532 (1992).
- [57] G.A. Sernyaev. Beryllium Swelling and Spontaneous Cracking under Low Temperature Irradiation. SF Nikiet Internal Report.
- [58] G.A. Sernyaev. Beryllium Swelling in High-Temperature Neutron Irradiation. Main Structure Factors Role. SF Nikiet Internal Report.
- [59] J.B. Rich et al.. The Effects of Heating Neutron Irradiated Beryllium. Journal of Nuclear Materials 1 (1959) 96-105.
- [60] W. Dienst et al.. Tritium Release of  $Li_4SiO_4$ ,  $Li_2O$  and Beryllium and Chemical Compatibility of Beryllium with  $Li_4SiO_4$ ,  $Li_2O$  and Steel (SIBELIUS Irradiation). KfK-Bericht 5109, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Dezember 1992.
- [61] L. Dörr et al.. Long-Time Tritium Release from Irradiated Beryllium (SIBELIUS Irradiation). Proc. of IEA Workshop on Beryllium for Fusion Applications, Karlsruhe, October 4-5, 1993. KfK-Bericht 5271, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Dezember 1993, p. 138-148.

- [62] H. Werle. Persönliche Mitteilung (1994).
  
- [63] S. Malang, et al.. Dual Coolant Blanket Concept. KfK-Bericht 5424, Kernforschungszentrum Karlsruhe, November 1994.
  
- [64] L. Giancarli, et al.. Water-Cooled Pb-17Li DEMO Blanket Line. CEA Report DMT 94/538 SERMA/LCA/1678, Saclay, October 1994.
  
- [65] M. Eid, et al.. Helium-Cooled Ceramic-Breeder-In-Tube Blanket Line. CEA Report DMT 94/576 SERMA/1682, Saclay, November 1994.
  
- [66] U. Fischer. Persönliche Mitteilung (1994).



## Anhang A. Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen für Helium

In diesem Anhang wird die Formulierung der Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen beschrieben, die auf derjenigen basiert, die im Rechenprogramm *FUTURE* [4] verwendet wird und in *ANFIBE* den physikalischen Gegebenheiten von Beryllium angepaßt wurde.

Jedes Glied in den Gleichungen, die die einzelnen Elementarvorgänge beschreiben, stellt eine Quelle bzw. einen Verlust der jeweiligen Konzentrationen dar. Die meisten Bezeichnungen sind selbsterklärend oder entsprechen klassischen Formulierungen, andere basieren auf den in Kapitel 2 gegebenen Erklärungen.

## A.1 Helium-Konzentration in dynamischer Lösung

Bezeichnung	Beschreibung
$\frac{\partial c}{\partial t} =$	Helium-Nettokonzentrationsrate in dynamischer Lösung.
$+ \beta$	Helium-Erzeugungsrate aus der ${}^9\text{Be}(n,2n)2\text{}^4\text{He}$ -Reaktion.
$- \chi k_i^2 D(c - c^0)$	Gasausscheidungsrate in intragranularen Blasen.
$- k_g^2 Dc$	Gasmigrationsrate in Richtung der Korngrenzen.
$- \frac{\chi \pi r_i^2 N_i D c Q \Delta T}{RT^2}$	Gasausscheidungsrate in intragranularen Blasen wegen atomarer Wärmediffusion. Die Beweglichkeit in einem Temperaturfeld wird durch Einsteins Gesetz: Beweglichkeit = $D/(RT)$ beschrieben. Daher wird der Fluß abgeleitet als: Fluß = Beweglichkeit $\cdot c Q \Delta T / T$
$- \frac{\alpha D c Q \Delta T}{a RT^2}$	Gasausscheidungsrate auf die Korngrenzen hinein wegen atomarer Wärmediffusion.
$- \frac{6 \pi r_i c N_i D_i}{\lambda}$	Verdrängungsrate durch zufällige Blasenbewegung. Die von der Blase nach einer gegebenen Zeit $t$ zurückgelegte mittlere quadratische Entfernung beträgt $\sqrt{6Dt}$ , wobei $D$ der Blasendiffusionskoeffizient ist. Die Blasengeschwindigkeit heißt $D_i/\lambda$ , wobei $\lambda$ der Abstand zwischen Be-Atomen ist.
$- \pi r_i^2 c N_i v_i$	Verdrängungsrate durch Blasen-Driftbewegung.
$+ \eta b$	Zerfallsrate der intragranularen Blasen, die $b$ -Mol Gas enthalten.
$- \psi c$	Verlustrate durch Kornwachstum.

## A.2 Helium-Konzentration in intragranularen Blasen

Bezeichnung	Beschreibung
$\frac{\partial b}{\partial t} =$	Helium-Nettokonzentrationsrate in intragranularen Blasen.
$+ \chi k_i^2 D (c - c^0)$	Gasausscheidungsrate in intragranularen Blasen.
$+ \frac{\chi \pi r_i^2 N_i D c Q \Delta T}{RT^2}$	Gasausscheidungsrate in intragranularen Blasen wegen atomarer Wärmediffusion.
$+ \frac{6 \pi r_i c N_i D_i}{\lambda}$	Verdrängungsrate durch zufällige Blasenbewegung.
$- \eta b$	Zerfallsrate der intragranularen Blasen, die b-Mol Gas enthalten.
$- \frac{3 v_i b}{a}$	Verlustrate durch Blasenbeweglichkeit in Richtung der Korngrenzen. Der äquivalente Radius $a/3$ ergibt sich aus einer Integration aller Beiträge der Blasen, die in der Zeiteinheit die Korngrenzen erreichen. Integriert wird entlang der Richtung, in der die treibende Kraft wirkt.
$- k_{gb}^2 D_i b$	Verlustrate durch zufällige Blasenbeweglichkeit in Richtung der Korngrenzen.
$- \psi b$	Verlustrate durch Korngrenzen-Verdrängung, die dem Kornwachstum folgt.

### A.3 Dichte der intragranularen Blasen

Bezeichnung	Beschreibung
$\frac{\partial N_i}{\partial t}$	Netto-Dichtevariationsrate der intragranularen Blasen.
$+ \chi 16\pi\lambda DN_n c A^2$	Blasenkernbildungsrate.
$- \eta^* N_i$	Blasen-Zerfallsrate durch Rückstoßatome.
$- \alpha' v_i^2 N_i$	Verlustrate durch Driftbewegung, Kollisionen und Koaleszenz. Das Glied $\alpha'$ in der Driftbewegung ist ein Faktor, der die Größe und Geschwindigkeit der Blasen berücksichtigt. Wenn $\alpha'$ gleich Null ist, besitzen alle Geschwindigkeiten denselben Betrag. Deshalb erfolgt kein Einfang der kleineren und schnelleren Blasen.
$- 16\pi v_i D_i N_i$	Verlustrate durch Zufallsbewegung, Kollisionen und Koaleszenz.
$- \frac{\alpha 3v_i N_i}{a}$	Verlustrate durch Driftbewegung in Richtung der Korngrenzen. Das Glied $\alpha$ wird für zwei verschiedene Beiträge in den Differentialgleichungen verwendet: die Migrationsrate der Blasen zu den Korngrenzen sowie die Änderungsrate ihres Gasgehaltes.
$- k_{g0}^2 D_i N_i$	Verlustrate durch Zufallsbewegung in Richtung der Korngrenzen.

## A.4 Helium-Konzentration in Kornoberflächenblasen

Bezeichnung	Beschreibung
$\frac{\partial g}{\partial t} =$	Helium-Nettokonzentrationsrate in Kornoberflächenblasen.
+ $Fk_g^2 Dc$	Migrationsrate der Atome in Richtung der Korngrenzen.
+ $Fk_g^2 D_i b$	Quellbeitrag durch Zufallsbewegung der Blasen in Richtung der Korngrenzen.
+ $\frac{F3v_i b}{a}$	Quellbeitrag durch Driftbewegung der Blasen in Richtung der Korngrenzen.
+ $\frac{F\alpha Dc Q\Delta T}{aRT^2}$	Quellbeitrag durch Driftbewegung der Atome in Richtung der Korngrenzen.
+ $F\psi(c+b)$	Quellbeitrag durch Korngrenzen-Verdrängung der Atome und Blasen.

## A.5 Dichte der Kornoberflächenblasen

Bezeichnung	Beschreibung
$\frac{\partial N_f}{\partial t} =$	Netto-Dichtevariationsrate der Kornoberflächenblasen.
$+ \frac{F3v_i N_i}{a}$	Quellbeitrag durch Driftbewegung der intragranularen Blasen.
$+ Fk_{gb}^2 D_i N_i$	Quellbeitrag durch Zufallsbewegung der intragranularen Blasen.
$- \frac{\alpha v_f N_f}{a_f}$	Verlust durch Migration zu den Kornecken. Da diese Migration eine Oberflächenwanderung darstellt, gibt es keinen Faktor 3 wie bei anderen ähnlichen Verlustgliedern.
$- \alpha' v_f^2 v_f N_f$	Verlust durch Oberflächenblasen-Kollision.
$- 16\pi v_f D_f N_f$	Verlust durch Oberflächenblasen-Koaleszenz. Grundsätzlich sollte der Faktor 16 durch dem Term $32/3$ ersetzt werden, weil in zwei Dimensionen die mittlere quadratische Entfernung einer Blase $\sqrt{4Dt}$ und nicht $\sqrt{6Dt}$ beträgt, wobei $D$ der Blasendiffusionskoeffizient ist. Der Koeffizient 6 (und deshalb auch der Koeffizient 16) wurde jedoch erhalten, weil die Unregelmäßigkeiten der Korngrenzen die Blasen zwingen, auf einer unebenen Fläche zu diffundieren.

## A.6 Helium-Konzentration in Korneckenblasen

Bezeichnung	Beschreibung
$\frac{\partial w}{\partial t} =$	Helium-Nettokonzentrationsrate in Korneckenblasen.
$+ (1 - F)k_g^2 D c$	Migrationsrate der Atome in Richtung der Korngrenzen.
$+ (1 - F)k_{gb}^2 D_i b$	Quellbeitrag durch Zufallsbewegung der Blasen in Richtung der Korngrenzen.
$+ (1 - F) \frac{3v_i b}{a}$	Quellbeitrag durch Driftbewegung der Blasen in Richtung der Korngrenzen.
$+ (1 - F) \frac{\alpha D c Q \Delta T}{a R T^2}$	Quellbeitrag durch Driftbewegung der Atome in Richtung der Korngrenzen.
$+ (1 - F)\psi(c + b)$	Quellbeitrag durch Korngrenzen-Verdrängung der Atome und Blasen.

## A.7 Dichte der Korneckenblasen

Bezeichnung	Beschreibung
$\frac{\partial N_e}{\partial t} =$	Netto-Dichtevariationsrate der Korneckenblasen.
$+ (1 - F) \frac{3v_i N_i}{a}$	Quellbeitrag durch Driftbewegung der intragranularen Blasen.
$+ (1 - F) k_{gb}^2 D_i N_i$	Quellbeitrag durch Zufallsbewegung der intragranularen Blasen.
$+ \frac{\alpha v_f N_f}{a_f}$	Quellbeitrag durch Oberflächenblasen-Migration zu den Kornecken.
$- \alpha' v_e^2 N_e^2$	Verlust durch Korneckenblasen-Kollision.
$- 16\pi r_e D_e N_e^2$	Verlust durch Korneckenblasen-Koaleszenz.

## Anhang B. Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen für Tritium

In diesem Anhang werden die Reaktionsgeschwindigkeitsgleichungen für Tritium, die in *ANFIBE* [4] verwendet werden, beschrieben.

Wie für Helium auch stellt jedes Glied in den Gleichungen, die die einzelnen Elementarvorgänge beschreiben, eine Quelle bzw. einen Verlust der jeweiligen Konzentrationen dar. Die meisten Glieder sind selbsterklärend oder entsprechen klassischen Formulierungen. Andere Gliedern basieren auf den in Kapitel 2 gegebenen Erklärungen.

## B.1 Tritium-Konzentration in dynamischer Lösung

Bezeichnung	Beschreibung
$\frac{\partial c_t}{\partial t} =$	Tritium-Nettokonzentrationsrate in dynamischer Lösung
$+ \beta_t$	Tritium-Erzeugungsrate durch folgende Reaktionskette: ${}^9\text{Be} + n \rightarrow {}^6\text{He} + \alpha$ ${}^6\text{He} \rightarrow {}^6\text{Li} + \beta^-$ ${}^6\text{Li} + n \rightarrow {}^3\text{H} + \alpha$
$- \chi k_1^? D_t (c_t - \xi)$	Gasausscheidungsrate in intragranularen Blasen.
$- k_2^? D_t c_t$	Migrationsrate in Richtung der Korngrenzen.
$+ \eta b_t$	Zerfallsrate der intragranularen Blasen, die b-Mol Gas enthalten.
$- \psi c_t$	Verlustrate durch Kornwachstum.
$- 4\pi R_T N_T D_t (c_t - \xi)$	Verlustrate durch chemischen Einfang. Die Gleichgewichtskonzentration von gelöstem Tritium ( <i>chemische Aktivität</i> ) aus der Reaktion $2\text{BeO}(\text{cr}, \beta) + 2\text{H}(\text{g}) \rightarrow \text{Be}(\text{OH})_2(\text{cr}, \beta) + \text{Be}(\text{cr})$ läßt sich durch eine Arrhenius-ähnliche Beziehung beschreiben (van't Hoff- Gleichung).

## B.2 Tritium-Konzentration in intragranularen Blasen

Bezeichnung	Beschreibung
$\frac{\partial b_i}{\partial t} =$	Tritium-Nettokonzentrationsrate in intragranularen Blasen.
$+ \chi k_i^? D_i (c_i - \xi)$	Gasausscheidungsrate der intragranularen Blasen.
$- \eta b_i$	Zerfallrate aus intragranularen Blasen, die b-Mol Gas enthalten.
$- \psi b_i$	Verlustrate durch Korngrenzen-Verdrängung, die dem Kornwachstum folgt.

### B.3 Tritium-Konzentration in Kornoberflächenblasen

Bezeichnung	Beschreibung
$\frac{\partial g_i}{\partial t} =$	Tritium Netto-Konzentrationsrate in Kornoberflächenblasen.
$+ k_g^2 D_i c_i$	Migrationsrate in Richtung der Korngrenzen.
$+ \psi(c_i + b_i)$	Quellbeitrag durch Korngrenzen-Verdrängung der Atome und Blasen.

## *B.4 Tritium-Konzentration in chemischen Einfangsstellen*

<b>Bezeichnung</b>	<b>Beschreibung</b>
$\frac{\partial m}{\partial t} =$	Tritium-Nettokonzentrationsrate in chemischen Einfangsstellen.
$+ 4\pi R_T N_T D_t (c_t - \xi)$	Einfangrate durch chemischen Einfang. Es wurde als mittlerer Radius der Einfangsstellen der Abstand zwischen Beryllium-Atomen angenommen.



## Dankesworte

Die vorliegende Arbeit wurde am Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik (INR) des Forschungszentrums Karlsruhe durchgeführt.

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Ein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. M. Dalle Donne, der diese Arbeit angeregt hat, und mir stets mit gutem Rat beigestanden hat. Herrn Prof. Dr. D. Munz danke ich für die Übernahme des Korreferats. Herrn Prof. Dr. G. Keßler danke ich dafür, daß ich die Arbeit am oben genannten Institut durchführen durfte. Der Kommission der Europäischen Gemeinschaften bin ich dankbar, die mir ein EURATOM-Stipendium zum Zweck der Durchführung dieser Doktorarbeit gewährte.

Außerdem möchte ich besonders danken:

Herrn Dr. C. Ferrero für seine stetige Diskussionsbereitschaft und die freundliche Hilfe bei der Übersetzung dieser Arbeit;

Herrn Dr. C. Ronchi, der die ursprünglichen Version des Programms *FUTURE* entwickelt hat und mich bei der Einarbeitung in das Programm sehr unterstützte;

Herrn Dr. H. Werle für die freundliche Durchsicht dieser Arbeit.

Allen Mitarbeitern vom INR möchte ich für die große Hilfsbereitschaft, Geduld und die vielen fachlichen Anregungen danken.