

KfK 2955  
Juli 1980

# **Zusammenhänge zwischen Materialeigenschaften und nichtstationärem Verhalten oxidischen Brennstoffes**

**G. Karsten, W. Hellriegel, H. Jenisch  
O. Romer, G. Weih, F. Weiser  
Kerntechnische Betriebe  
Projekt Schneller Brüter**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Kerntechnische Betriebe

Projekt Schneller Brüter

KfK 2955

Zusammenhänge zwischen Materialeigenschaften und nicht-  
stationärem Verhalten oxidischen Brennstoffes

von

G. Karsten, W. Hellriegel,

H. Jenisch, O. Romer, G. Weih, F. Weiser

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Zusammenfassung

Mit Hilfe einer umfassenden Strukturanalyse an etwa 100 Proben bestrahlter Brennstoffe mit etwa 300 Meßreihen wird das Verhalten von oxidischem Brennstoff vorwiegend mit Stahlhülle unter nichtstationären Bedingungen beschrieben. Die Strukturanalyse besteht aus einer kombinierten Leervolumen- und Härtemessung, unterstützt von der Morphologieuntersuchung mit einem Rasterelektronenmikroskop. Die Messungen erstrecken sich über den Dichtebereich von 60 % bis 100 % th.D., welcher alle vorkommenden Erscheinungsformen im nichtstationären Betrieb umfaßt. Die Untersuchungsergebnisse sind sowohl auf Kühlmittel- als auch Reaktivitätsstörungen anwendbar und weitgehend vom Reaktortyp mit Oxidbrennstoff unabhängig.

Der Einfluß des Verhältnisses von Scher-Zug- und Druckfestigkeit bestimmter Brennstofftypen auf das Brennstoffverhalten wird, verbunden mit der thermischen und mechanischen Thematik, beschrieben und in einer Ergebnisbewertung diskutiert. Das wesentliche Ergebnis ist, daß vorwiegend durch die Optimierung elastischer Eigenschaften des Brennstoffes alle verhaltensrelevanten Eigenschaften verbessert werden.

## Correlation between oxide fuel material properties and in-pile non-steady state behaviour

### Abstract

The behaviour of oxide fuel, mainly with steel cladding, under non-steady state conditions has been analyzed and described hereunder by a comprehensive postirradiation structure analysis with about 100 specimen by 300 analytical series. The structure analysis consists of a combined measurement both of void volumes and hardness, supported by scanning microscopy. The measurements comply a density regime of 60 % to 100 % th.d., which represents all the structure phenomena, which were observed. The results are both applicable on coolant and reactivity disturbances and are independent of any special reactor type with oxide fuel.

The report describes the influence of the correlation between torsion, tensile and compressive properties of certain fuel types. Their influence on the fuel behaviour is described under thermal and mechanical aspects and is discussed by an evaluation of the results.

The outstanding result is, that especially the optimization of the fuel elasticity improves those properties, which are relevant for the non-steady state behaviour of the oxide fuel.

## Gliederung

	Seite
1. Einleitung	1
2. Grundlagen der Gefügebildung stationär und nichtstationär betriebener Oxidbrennstoffe	2
3. Thermodynamische, kinetische und Materialbewegungsvorgänge	5
4. Der Einfluß der Brennstoffdichte auf die Festigkeit des Brennstoffes bei nichtstationärem Betrieb	7
5. Brennstoffmechanik	9
6. Das Brennstoffverhalten bei einigen wichtigen Störfallarten	13
7. Analytische Grundlagen	15
8. Härte, Festigkeit, Elastizität, Schwellrate, Wärmeleitfähigkeit und Thermodynamik von Brennstofftypen und -zuständen	18
9. Abschnittsweise Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse	21
10. Abbildungsverzeichnis	25
18 Abbildungen	
11. Appendix: Some examples for the analytical application	46
12. Abgeleitete Materialfunktionen und Materialdaten	47

## 1. Einleitung

Die quantitative Untersuchung der Vorgänge im Brennstoff während Störfallvorgängen ist außerordentlich schwierig, weil der Brennstoff sich in der Nachuntersuchung in einem Endzustand darstellt, der eine Reihe von Prozessen durchlaufen hat. Die Einflüsse des Ausgangszustandes vor dem Reaktorbetrieb, die Umwandlung in eine neue Strukturform bei Normalbetrieb, die erneute Umwandlung der Struktur bei gestörten Verhältnissen verschiedenartigsten Charakters und schließlich die Endprägung bei Beendigung des Betriebes voneinander zu unterscheiden war das Ziel dieser Untersuchung. Dabei wurde auf Arbeiten einer Reihe von Autoren aufgebaut, die sich bereits mit bestimmten Themen aus diesem Bereich befaßt haben /1 bis 10/.

Es war ein günstiger Umstand, daß experimentelles Material in fast allen zu betrachtenden Varianten vorlag, um charakteristische Einzelphänomene zu untersuchen und sie dann zu einem Gesamtbild zusammenzufügen.

Die Untersuchungsergebnisse beruhen auf etwa 300 verschiedenen Meßreihen.

Obwohl das Untersuchungsmaterial überwiegend aus brütterspezifischen Experimenten stammte, sind die Aussagen dieses Berichtes ganz allgemein anwendbar, bis auf den Umstand, daß das Hüllmaterial Stahl war. Aber auch hier ist eine Modifikation der Aussage auf andere Arten möglich. Stichproben wurden nämlich auch mit Stäben mit Zirkaloy-Hülle durchgeführt. Überwiegend das Experiment Mol 7C, aber auch die Brennstäbe DUELL 01 und 04, die LOC-Serie des ECN Petten, die Rapsodie-SNR-Bündel Nr. 1 und 2 und ein Experiment mit elektrischem Niederschmelzen von  $UO_2$  lieferten das Untersuchungsmaterial.

Gearbeitet wurde mit der Lichtmikroskopie, einem Gefügebildanalysator, der Mikrohärteprüfung und einem Rasterelektronenmikroskop.

## 2. Grundlagen der Gefügebildung stationär und nichtstationär betriebener Oxidbrennstoffe

---

Die Gefüge nichtstationär betriebener Oxidbrennstoffe zeigen spezifische Phänomene, die sich deutlich von den Merkmalen stationären Betriebes unterscheiden. Das ist in den Abbildungen 1.1 bis 1.13 dargestellt. Jeder dieser Einzelschritte stellt eine Zunahme des Energieinhaltes von 0,2 kJ/g  $\text{UO}_2$  dar /4/. Ausnahmen bilden die Abb. 1.3 und 1.4, die nur wichtige Zwischenzustände zwischen 0,2 und 0,4 kJ/g  $\text{UO}_2$  verdeutlichen. All diese Phänomene sind durch die Deutung der Charakteristika von Porositätsanalysen und den sie ergänzenden Mikrohärteprüfungen in den Abbildungen 2 und 3 wie folgt beschrieben:

### 2.1 Stationärer Betrieb und allgemeine Grundlagen,

Kurve 1, Abb. 2a

Am äußersten Rand kann die bei der Herstellung verdichtete Reibungszone auftreten. Ab  $1200^\circ\text{C}$  erfolgt mit Beginn größerer Diffusionsgeschwindigkeiten bei niedrigen und mittleren Dichten von 85 bis 94 % th.D. eine Nachsinterung auf 96 % th.D. Diese ist bei  $1500^\circ\text{C}$  abgeschlossen, s.a. Abb. 3, rechter Teil. Die Nachsinterungszone ist in Abb. 1.2 als heller Ring erkennbar. Von  $1600^\circ\text{C}$  bis  $2100^\circ\text{C}$  schließen sich die Säulenkristalle an. Ab  $2100^\circ\text{C}$ , erkennbar an einem erneuten Porositätsanstieg, s.auch Abb. 3, beginnt an den Korngrenzen eine verstärkte Poren- und Gasblasenausscheidung. Dieser Vorgang

hat zunächst noch eine Gefügehärtung zur Folge, Abb. 3. Allerdings ist bereits ab  $2300^{\circ}\text{C}$  ein deutlicher Härteabfall erkennbar, was auf den Beginn einer Plastifizierung hinweist. Die Porosität steigt in diesem Bereich steil an. In diesem Zustand ist die Freisetzung erheblich gesteigert, was sich als Porenring in Abb. 4a darstellt. Diese Art von Porenkette findet sich in Fotografien immer beim Übergang zum Schmelzbereich. Die  $\beta, \gamma$ -Aufnahme in Abb. 4b zeigt ebenfalls an dieser Stelle den Verlust an flüchtigen Spaltprodukten in Form einer dunklen Zone an. Der Vorgang der Gasblasenausscheidung ist in Abb. 5a für den Bereich von  $1500^{\circ}\text{C}$  bis  $2100^{\circ}\text{C}$  und in 5b um  $2300^{\circ}\text{C}$  rastermikroskopisch dargestellt. Die Agglomerations- bzw. Blasenbildungsvorgänge sind deutlich erkennbar.

## 2.2 Nichtstationärer Betrieb, Kurve 2, Abb. 2 a

Die Einleitung des nichtstationären Betriebes verursacht ab  $1200^{\circ}\text{C}$  wegen der durch Kühlungsstörung oder Leistungserhöhung gestiegenen Temperatur zunächst eine Verstärkung der Nachsinterung um einige Prozent bis auf maximal 98 % th.D., s. Abschnitt 2.1. Anschließend wird der Nachsinterbereich mit den ursprünglichen Grenztemperaturen von  $1200^{\circ}\text{C}$  bis  $1500^{\circ}\text{C}$  integriert, was zum Zustand der Abb. 1.3 führt. Seine Randtemperatur ist schließlich  $1500^{\circ}\text{C}$  statt  $1200^{\circ}\text{C}$ . In Abb. 1.4 liegt der helle Ring dann, zunächst noch in seiner ursprünglichen Form, innerhalb der  $1500^{\circ}\text{C}$ -Grenze.

Die Restrukturierungsphänomene wandern also mehr zur Oberfläche hin, was die Verschiebung der Kurve 2 gegen 1 in Abb. 2a zum Ausdruck bringt. Poren und Spaltgase beginnen ab  $1500^{\circ}\text{C}$  zu agglomerieren, Abb. 5a und 6. Dieser Wachstumseffekt wird bei den erhöhten Temperaturen des nichtstationären Betriebes im Säulenkristallbereich von  $1600^{\circ}\text{C}$  bis  $2100^{\circ}\text{C}$  wegen beschleunigter

nigter Durchwanderung von Poren gedämpft und erscheint in Porositätsdiagrammen je nach Geschwindigkeit, Gradient und Höhe zusätzlichen Energieumsatzes als zweites Maximum oder Plateau, Abb. 2a, Mittelteil der Kurve 2. Schon ab etwa  $1800^{\circ}\text{C}$  werden dabei Defekte und Poren mit erhöhter Geschwindigkeit transportiert, was zu einer erneuten Verdichtung führt, die dann, wie unter 2.1 beschrieben, mit Einsetzen der Blasenabscheidung bei  $2100^{\circ}\text{C}$  wieder in eine erhöhte Porosität übergeht, Abb. 2, rechter Teil.

Bei  $1500^{\circ}$ ,  $1800^{\circ}$ ,  $2100^{\circ}$  und  $2300^{\circ}\text{C}$  treten also jeweils neue, auch durch noch so hohe Prozeßgeschwindigkeit nicht übergehbare, Beschleunigungsmechanismen des Porentransportes in Kraft. Unter diesen Impulsen durchlaufen die Spaltgase die Strecke. Dabei ist nicht nur die Temperaturhöhe sondern auch deren örtlicher Gradient von Bedeutung. Bei einem unterkritischen Gradienten erfolgt der Gastransport in Stufen, Abb. 2b.

In der Fotografie hebt sich die erste Zone erhöhter Gasbewegung als deutlich markierter Bereich ab, Abb. 1.5 und 1.6. Der Bereich zwischen  $1500^{\circ}$  und  $2100^{\circ}\text{C}$  ist also der Initialbereich der Gasausscheidung. Diese Markierung ist um so stärker, je schneller die instationären Vorgänge sind, da die Temperaturen wegen der verstärkten Ausprägung einer adiabatischen Situation, z.B. bei schnellen Reaktivitätsrampen, rasch ansteigen.

Die rein fotografische Unterscheidung zwischen festen, plastischen und geschmolzenen Partien ist bei z.T. gemeinsamer Bildung von Großkristalliten im Hochtemperaturbereich sehr schwierig. Die Übergangstemperaturen variieren gemäß Abb. 10 und 11 mit dem Brennstofftyp und der Abkühlgeschwindigkeit. Die Porenkette am Beginn des Plastizitätsbereiches und die Lunker im Schmelzbereich sowie die  $\beta$ - $\gamma$ -Radiografie und Rastermikroskopie sind Entscheidungshilfen, Abb. 4, 5, 15 bis 18.

### 3. Thermodynamische, kinetische und Materialbewegungsvorgänge

---

Als Folge verringerter Wärmeleitfähigkeit durch Porositätsanstieg schließen sich unmittelbar an 1500°C und 2100°C gewissermaßen Isolationszonen an, die bei weiterem adiabatischen Ablauf der Störung zur thermischen Entkopplung dieser Bereiche führen, Abb. 1.7 bis 1.13.

Im weiteren Verlauf werden im einzelnen folgende wesentliche Vorgänge ausgelöst:

#### 3.1 Umstrukturierung ohne Hüllversagen bis 0,8 KJ/g UO<sub>2</sub>

Die Agglomerationszone erweitert sich zur Oberfläche hin, wobei die ursprüngliche Nachsinterungszone von 1200°C bis 1500°C resorbiert wird, Abb. 1.3 bis 1.6. Diese gibt nun spontan wegen ihres relativ hohen Volumenanteils als Randringzone erhebliche zusätzliche Spaltgasmengen frei, was der Struktur ein stark poröses Aussehen gibt, Abb. 6. Die hinzugekommene Spaltgasmenge nimmt den gesamten Innenraum über 1500°C als kommunizierenden Freisetzungsräum ein. Dieser schwillt, je nach Höhe des Energieumsatzes und Abbrandes durch Porositätsanstieg an, Abb. 2, Kurve 2, Mittelteil. Unter dem so entstehenden Druck werden dabei die noch festen Randzonen zerrissen und die Bruchstücke nach außen gedrückt, Abb. 7, oberer Teil.

#### 3.2 Hüllversagen ( Stahl )

Die Hülle birst nun je nach Temperatur, Gas- und Brennstoffdruck und Hüllmaterialschädigung durch Neutroneneinfluß, Abb. 8. Die Zusammenhänge und Abhängigkeiten von verschiedenen Parametern sind in Abb. 9 dargestellt. /7, 8/.

Im wesentlichen wird hier folgendes ausgesagt:

- a) Die Bersttemperatur liegt für Stahlhüllen im Bereich zwischen  $800^{\circ}\text{C}$  und  $1300^{\circ}\text{C}$ . Das Hüllmaterial versagt in jedem Fall vor dem Schmelzen.
- b) Die Bersttemperatur sinkt mit zunehmendem Abbrand wegen der Strahlenschädigung der Hülle und durch dabei zunehmenden Gasdruck durch Spaltgasfreisetzung, Punkte A, A'.
- c) Erhöhter Innen-, z.B. Festkörperdruck erniedrigt bei gleichem Abbrand die Versagenstemperatur erheblich. Die Dehnbarkeit der Hülle ist hier größer, Punkt B.

### 3.3 Stabzerstörungen ab $1 \text{ KJ/g UO}_2$

Nur wenig später - bei schnellen Reaktivitätsstörungen also fast gleichzeitig, s.a. 3.1 und 3.2 - beginnen die thermisch entkoppelten bzw. sich entkoppelnden Bereiche zu schmelzen, s. Abschnitt 2.1 und Beginn des Abschnittes 3.

Diese Teilbereiche hatten die ursprünglichen Grenztemperaturen  $2300^{\circ}\text{C}$ ,  $2100^{\circ}\text{C}$  und  $1500^{\circ}\text{C}$ . Diese u.U. extrem schnelle Abfolge ist durch die Betrachtung der Abbildungen 1.7 bis 1.10 erkennbar, s.a. Abschnitt 2.2. Schließlich schmilzt auch jener ringförmige Bereich, dessen Temperaturen unterhalb  $1500^{\circ}\text{C}$  gelegen haben, Abb. 1.11 bis 1.13. Sofern im Innenbereich schon während des Ablaufs der unter 3.1 beschriebenen Vorgänge Brennstoffschmelzen begonnen hat, wirkt sich die 10 % Volumenzunahme durch Schmelzen auf den Innendruck schon zu jenem Zeitpunkt aus. Die gesamten Kräfte, die in den Abschnitten 3.1 bis 3.3 beschrieben sind, bestimmen auch die Richtung der Massenausbreitung im Verlauf der Zerstörung, Abb. 7, unterer Teil und Abb. 16 und 17.

Der Strukturzerfall erfolgt durch mechanische Wechselwirkung entsprechend dem Spannungsfeld im Brennstoff. Die Materialumverteilung wird durch die Impulsgesetze bestimmt. Je nach Brennstofftyp, fest oder duktil (Typen 1, 2 bzw. 3), ist die Ausbreitungsrichtung vorwiegend radial oder nach innen gerichtet.

#### 4. Der Einfluß der Brennstoffdichte auf die Festigkeit des Brennstoffes bei nichtstationärem Betrieb

---

Da die Festigkeit des Brennstoffes von wesentlicher Bedeutung für die Stabilisierung der Geometrie ist, wurde deren Abhängigkeit von der Dichte untersucht. Diese Abhängigkeit wurde im Gegensatz zur integralen Festigkeit, die üblicherweise an unrestricturtem, also unbestrahlten Brennstoffkörpern ermittelt wird, /2, 3/, im Rahmen dieser Untersuchungen dagegen lokal, d.h. im Bereich von 150  $\mu$  bestimmt. Verschiedene Stellen nichtstationär und stationär betriebener Brennstoffpartien wurden Kleinlasthärteprüfungen mit 400 p unterzogen, die ergänzend zur Porositätsmessung an denselben Ortslinien durchgeführt wurden. Das bietet die Möglichkeit einer sehr wirklichkeitsnahen Analyse, welche die örtlichen Änderungen aller physikalischen Vorgänge berücksichtigt. Aus Abb. 3 geht die komplementäre Wechselbeziehung zwischen Härte und Dichte im Bereich von 77 % bis 98 % th.D. hervor. Diese Komplementarität hat sich bei allen Messungen bestätigt. Damit wird deutlich, daß die Vickershärtemessung eine gute Annäherung an die Festigkeit darstellt. Auf dieser Grundlage wird nun in Abb. 10 unter Nutzung von Literaturwerten eine Beziehung zur Zugfestigkeit hergestellt. /2/. Diskussion s. Abschnitte 7 und 8.

Die Meßergebnisse für Mischoxid und Uranoxid sind mit Brennstoffen sehr unterschiedlicher Herkunft ermittelt worden.

Aus Abb. 10 ist folgendes zu entnehmen: Eine annähernd lineare Festigkeits-Dichteabhängigkeit gibt es nur unterhalb 88 % und oberhalb 95 % th.D. Es zeigt sich ferner, daß der Bereich zwischen 88 % und 95 % th.D. als Übergangsbereich

anzusehen ist, in welchem für eine bestimmte Festigkeitsanforderung nur sehr geringe Dichtetoleranzen zulässig sind. Desweiteren erkennt man eine Abbrandhärtung.

#### 4.1 Dichte und Spannung

Durch die Wahl der Fabrikationsdichte eines bestimmten Brennstofftyps wird der Festigkeitszustand folgendermaßen beeinflusst:

Zunächst erhöhen sich Dichte und Festigkeit gemäß der Fabrikationscharakteristik durch abbrandbedingtes Schwellen. Von einem für jeden Typ verschiedenen Inkubationsabbrand an tritt eine Härtung auf, und damit wird eine neue Charakteristik bestimmend. Bei einer nachfolgenden langsamen Temperaturrampe werden die Spannungen durch Gasdiffusion abgebaut und die ursprüngliche Charakteristik wird wieder bestimmend. Bei sehr schnellen Rampen zerfällt der Brennstoff jedoch infolge Korngrenzenschwächung interkristallin. Im Mittelbereich ergibt sich je nach Typ ein geschwächter Zustand. Für alle Typen bestimmt die Abkühlungsgeschwindigkeit die charakteristische Kontraktionsspannung.

#### 4.2 Das Zustandsdiagramm Abbildung 11

Die Festigkeit nimmt zunächst mit der Temperatur zu, was durch Erhöhung der Leerstellenkonzentration mit steigender Temperatur bedingt ist. In diesem "Tieftemperaturbruchbereich" ist der Bruch transkristallin. Die Kohäsionskraft zwischen den Brennstoffkörnern reicht von einer bestimmten, der äquikohäsiven Temperatur für einen transkristallinen Bruch nicht mehr aus: Im nachfolgenden interkristallinen "Hochtemperaturbruchbereich" erfolgt bei steigender Temperatur ein steiler Festigkeitsabfall. Der Kornverband zerfällt also beim äquikohäsiven Punkt bei einer ganz bestimmten, der äquikohäsiven Spannung. Die Lage dieses Punktes ist außerdem von der Dichte und Abkühlungsgeschwindigkeit abhängig ; er bewegt sich also im Festigkeits-Temperaturfeld auf einer Kurve zwischen A und B. Dabei steigt die Festigkeit mit zunehmender Abkühlungs-, d.h. Kontraktionsgeschwindigkeit gegenüber der Temperatur überproportional an. Indirekt also, infolge zonenbedingter Spannungsumkehr, ist die Ab-

kühlgeschwindigkeit also neben der Dichte der zweite Hauptparameter. Die zu einer bestimmten Festigkeit gehörende Dichte entnimmt man aus Abb. 10, wobei, wie das Beispiel in Abb. 11 zeigt, Festigkeitsminderungen durch hohe Korngrößen zu berücksichtigen sind.

## 5. Brennstoffmechanik

### 5.1 Spannungsrelevante Parameter

Beim nichtstationären Betrieb verändert sich, wie in den Abschnitten 2 bis 4 ausgeführt wurde, die lokale Dichte durch Nachsintern oder Spaltgasschwellen, Abb. 2. Beim darauffolgenden Abkühlungsvorgang erfährt der Brennstoff, sofern er nach der Restrukturierung eine höhere Dichte als 75 % th.D. hat, eine Verfestigung.

Das ist ein experimenteller Befund, der sich aus den in Abschnitt 1 genannten Experimenten ergeben hat. Bei Experimenten mit erhöhten Abkühlgeschwindigkeiten zeigten sich nämlich interkristalline Bruchvorgänge bei Temperaturen, deren zugehöriger Äquikohäsionspunkt einer höheren Festigkeit als der Ausgangsfestigkeit entsprach.

Daher stellt sich die Abkühlungsgeschwindigkeit als Parameter dar, der offenbar über einen Kontraktionsvorgang eine Spannungszunahme im Brennstoffgefüge erzeugt und damit eine entscheidende Rolle in der Brennstoffmechanik nichtstationärer Vorgänge ausübt.

Bei der Kontraktionsverdichtung wird analytisch zwischen der Mikrorißkontraktion, der Wiederauflösung von Gas und dem Heißpressen unterschieden.

Ganz offensichtlich, was sich in der Kurvenform zwischen den Punkten A und B in Abb. 11 anzeigt, spielen in Bezug auf die Kontraktionsfähigkeit die Gasporen in den Brennstoffkörnern und die Bindungskräfte in den Korngrenzen die wesentlichen Rollen. Dabei dominiert der Einfluß der Korngrenzen in den unteren Dichtebereichen und derjenige der Gasporen in den oberen Dichtebereichen. Im Mittelbereich, wo Poren teils geschlossen und teils offen sind und die Korngrenzenfestigkeit indifferent ist, zeigt sich der Brennstoff, was auch aus Abb. 10 hervorgeht, schon gegenüber geringen Dichteunterschieden als sehr spannungsempfindlich. Es ist darauf hinzuweisen, daß die Abkühlungsgeschwindigkeiten im allgemeinen nicht identisch mit der Zeitfunktion der Störungsvorgänge sind sondern exponentiellen Funktionen folgen. Als Abkühlungsbetrag wird immer nur die Temperaturspanne von der maximalen Temperatur bis zu  $700^{\circ}\text{C}$  verstanden, wo gemäß Abb. 11 kein Einfluß der Abkühlungsgeschwindigkeit mehr erkennbar ist.

## 5.2 Definition von Spannungsfeldern

Die Brennstoffmechanik läßt sich im wesentlichen also dadurch beschreiben, daß sich die beim nichtstationären Ereignis aufbauende Schwellspannung, s. Abschnitt 3, und die Kontraktionsspannung beim Abkühlen summieren und an jedem Ort eine resultierende spezifische Spannung ergeben. Jeder dieser örtlichen Spannungen läßt sich eine äquikohäsive Temperatur zuordnen, bei der definitionsgemäß die Kornfestigkeit und die Korngrenzenfestigkeit gleich sind. Damit ist der mechanische Zustand entlang einer Ortslinie in einem Brennstoffbereich mit bereits meßbarem interkristallinen Bruch als äquikohäsive Linie zunächst definiert.

Die Berechnung solcher Linien wäre von der Kenntnis der restrukturierten Dichteverteilung über den Brennstoffdurchmesser zunächst für den Ausgangszustand, dann aber auch für den gestörten Zustand abhängig. Dazu wiederum sind alle temperaturabhängigen mechanischen und kinetischen Daten sowie die Gaskonzentration für den jeweiligen örtlichen Abbrand notwendig.

Wegen der Schwierigkeit, solche Daten zu ermitteln, wurde hier ein anderer Weg gewählt.

### 5.3 Strukturanalyse

Aus der grundlegenden Strukturanalyse der Abschnitte 2 und 3 sowie den Abbildungen 2 und 3 geht hervor, daß einige Temperaturmarken im Porositätsprofil und dem Härtediagramm charakteristisch sind. Mit ihrer Hilfe ist es möglich, für die in den Abbildungen 12, 13 und 14 dargestellten Porositätsdiagramme Temperaturzuordnungen zu treffen. In einigen unklaren Fällen hilft die Härtemessung, solche Temperaturen genauer zu ermitteln, Abb. 3. Unter der Randbedingung, daß der Strukturzerfall bei der Äquikohäsionstemperatur beginnt und bei der Festigkeit Null maximal, d.h. vollständig ist, lassen sich mit den aus den Porositätsdiagrammen der Abbildungen 12, 13 und 14 ermittelten Grenztemperaturen der Zerfallsbereiche dann mittels Abb. 11 minimale Festigkeiten finden.

### 5.4 Minimale Fabrikationsdichten

Diese sind wie folgt zu definieren: Die Beziehung zwischen der Festigkeit des 100 % theoretisch dichten Brennstoffes und der Temperatur ist durch die begrenzenden Linien der Abb. 11 gegeben. Die effektive Festigkeit dagegen hängt außerdem von der Herstellungsdichte, dem Abbrandzustand und der Morphologie des Typs ab.\* Diese effektive Festigkeit

\* gestrichelte Begrenzungslinien

wird durch den für jeden Brennstofftyp und -zustand verschiedenen und charakteristischen Verlauf der Linie AB bestimmt. Bei der Beendigung eines Störfalles erweitert die Kontraktionskraft, die bei der Abkühlung wirksam wird, den Stabilitätsbereich durch eine zusätzliche Verfestigung. Das drückt sich durch eine Verlagerung des äquikohäsiven Punktes zu hohen Temperaturen aus. Die Summe der verfestigenden und akkumulierten zerstörenden Spannungen ist jedoch meistens negativ: Die ursprüngliche Brennstofffestigkeit stellt also einen Minimalwert dar. Die Konsequenz ist, daß durch die Wahl des Brennstofftyps und seiner Dichte der zulässige Endzustand von vorneherein bestimmt wird. In den Abb. 12-14 sind drei wichtige experimentelle Fälle beschrieben. Wie die Abb. 11 und auch Abb. 10 erkennen lassen, leitet sich für Dichten unter 92-94 % th.D. aus diesen Ausführungen eine besondere Notwendigkeit noch höherer Dichten ab. Denn bis zu diesen Dichten ist deren Wirksamkeit für die Festigkeit gering. Aus der Auswertung der Diagramme 12 bis 14 in Abschnitt 6 und der Bewertung der Ergebnisse in Abschnitt 7 ergibt sich jedoch, daß bei der Optimierung von Brennstoffen im Hinblick auf hohe Belastungen während des Betriebes die Elastizität des Brennstoffes einen Vorrang vor der absoluten Dichtesteigerung hat.

### 5.5 Zweiphasige Bruchzustände

Zum Verständnis der Abb. 11 ist noch folgendes zu ergänzen: Der Grundtyp des Diagrammes entstammt der Literatur /2/. Die Parameterabhängigkeit wurde aus den eingangs zitierten Experimenten iterativ ermittelt. Die Bandbreite des Zerfallsbereiches oberhalb der äquikohäsiven Temperatur ist so zu lesen, daß bis zur Festigkeit Null der Anteil interkristallin zerfallener Struktur nach dem Hebelgesetz zunimmt. Dem oberen Teil des Diagrammes entnimmt man, daß geschmolzener und nichtgeschmolzener Brennstoff bei jeweils 100 % th.D. einen Festigkeitsunterschied aufweisen.

## 6. Das Brennstoffverhalten bei einigen wichtigen Störfallarten

---

Eine größere Anzahl von Porositätsanalysen an Brennstabquerschnitten mit verschiedenartigsten Zuständen, Abb. 1.1 bis 1.13, wurde durchgeführt und in Form von Diagrammen dargestellt. Durch Anwendung der Grundphänomene, die in den Abschnitten 2, 4 und 5 beschrieben und in Abb. 2, 10 und 11 dargestellt sind, wurden die für den Kornzerfall charakteristischen Temperaturmarken ermittelt. Mit diesen war es möglich, aus Abb. 11 die Minimalfestigkeiten und mit diesen aus Abb. 10 diejenigen minimalen Dichten zu bestimmen, unterhalb derer mechanische Strukturzerstörungen mit Bestimmtheit zu erwarten sind.

Solche Grenzwerte für die geometrische Stabilität können für die verschiedensten Störfallarten angegeben werden.

In den Abb. 12, 13 und 14 wird nun durch Anwendung der beschriebenen Grundlagen das Brennstoffverhalten bei einigen wichtigen Störfallarten wie folgt beschrieben:

Abb. 12 Sehr kleine Energiefreisetzungen bis 0,4 kJ/g UO<sub>2</sub>. Lastwechsel, kleine Kühlmittel- oder Reaktivitätsstörungen, Abb. 1.2.

$$\dot{\gamma} \sim 5^{\circ} / \text{sec}$$

Der Strukturzerfall ist auf Randbereiche begrenzt; der mechanische Druck auf die Hülle nimmt dabei geringfügig zu. Jedoch wird auch bei dieser geringen Volumenzunahme die Wärmeleitfähigkeit so weit verringert, daß beim erneuten Leistungsanstieg eine erhöhte Spaltgasfreisetzung infolge größerer Oberfläche und Temperatur einsetzt. Alle Brennstoffdichten unter 88 % th.D. bei Typ 1 und 95 % th.D. bei Typ 2 sind betroffen.

(Typ 1: elastischer Brennstoff;

Typ 2: begrenzt elastischer Brennstoff; s. dazu Abschnitt 8 und Abb. 10)

Abb. 13 Kleine bis mittlere Energiefreisetzungen bis  
0,6 kJ/g  $\text{UO}_2$ , mittlere Reaktivitätsstörungen,  
Kühlmittelsieden, Na, Abb. 1.5.

$$\dot{T} \sim 80^\circ / \text{sec}$$

Der Strukturzerfall findet im Brennstoff-  
innern statt. Da in diesem Bereich jedoch die Volumenzu-  
nahme bereits bei Beginn des Störfalls durch Blasenagglom-  
eration und Gasausscheidung erhöht wurde, s. Abschnitte  
2 und 3, verstärkt der Kornzerfall den Volumenbedarf um  
so mehr, hier um 50 %. Eine höhere Druckzunahme und Hüll-  
bersten sind die Folge, Abb. 8 und 9. Beim Typ 1 fin-  
den diese Ereignisse für Brennstoffdichten unter 95 % th.D.  
statt.

Im Falle von Typ 2 sind diese Vorgänge mit unterschiedlichen  
Ausprägungen bei allen Dichten zu erwarten, s. Abschnitt 5.4.

Abb. 14 Mittlere und höhere, schnelle Energiefreisetzungen  
über 1 kJ/g  $\text{UO}_2$ . Länger anhaltender Kühlmittelver-  
lust, Abb. 1.7 bis 1.13, Abkühlgeschwindigkeit an  
der Oberfläche über  $200^\circ / \text{sec}$ .

In diesem Fall ist die ursprüngliche Brennstoffgeometrie  
zum Zeitpunkt der Abkühlung bereits völlig zerstört. Die  
Hülle ist abgeschmolzen, die Spaltgasentwicklung und die  
10 % betragende Volumenzunahme durch Schmelzen haben das  
Brennstoffvolumen vergrößert, s. Abschnitt 3, Abb. 8 und 16.  
Der Brennstoff eines Stabquerschnittes kann sich mit anderen  
verbunden oder auch völlig verlagert haben. Bei der Abküh-  
lung ergeben sich je nach der thermodynamischen Situation  
die verschiedenartigsten Zustände im Brennstoffgefüge,  
Abb. 15. Die Gefüge der aus der Brennstoff- oder Stahl-  
schmelze langsamer abgekühlten Teile zeigen Ähnlichkeiten  
mit der Situation der Abb. 12 und 13. Die durch Wiederein-  
tritt des Kühlmittels abgeschreckten Teile dagegen zerfallen

von der Oberfläche her in einer breiten Zone, Abb.15,16. Diese Zone, die nur noch Dichten eines lockeren Kornverbandes hat, wird durch das Kühlmittel ausgewaschen. Diese sehr schnellen Ereignisse finden bei allen Brennstoffdichten statt. Die Breite der Zerfallszonen verringert sich, wie aus Abb. 11 ersichtlich ist, von innen nach außen mit zunehmendem Energieumsatz wegen der damit verbundenen hohen Temperaturen und Abkühlgeschwindigkeiten. Ab  $1,5 \text{ kJ/g UO}_2$  und  $500^\circ/\text{sec}$  tritt der Zerfall entsprechend Abb. 11 nicht mehr auf\*. Das Auseinanderstreben der Masse läßt aber eine einheitliche Abkühlungssituation nicht zu, Abb. 16. Daher sind Mischungen von Schmelze und feinkörnigem, ungeschmolzenen Brennstoff möglich, Abb.17, 18 c, d. (Festpartikel:Originalgröße  $\sim 20 \mu\text{m}$ , Schmelzpartikel  $\sim 200 \mu\text{m}$ )

## 7. Analytische Grundlagen

Die Verbindung der örtlichen Porenanalyse mit der Härtemessung hat der Brennstoffuntersuchung zwei wichtige Möglichkeiten eröffnet:

- a) Die Gefügebildanalyse, auch Porenanalyse genannt, beschreibt den Strukturzustand stationär und nichtstationär bestrahlten Brennstoffes. Es wurde nämlich festgestellt, daß diese Methode die Summe der Poren, Gasblasen und derjenigen Leervolumina erfaßt, die bei der Ausscheidung bzw. der Auflösung des Kornverbandes durch innere Spannungen entstehen. Es hat sich gezeigt, daß bei diesen Vorgängen der Zusammenhang mit der durch den Herstellungsprozeß geprägten Morphologie wirksam wird. Die Strukturen verändern sich im wesentlichen über die Korngrenzen in der umgekehrten Ablauffolge, in der sie entstanden sind. Der morphologische Aufbau ist also weitgehend reversibel. Die Voraussetzung für die Reversibilität ist die Überschreitung von minimalen Grenzfestigkeiten, die für den jeweiligen Morphologietyp charakteristisch sind. Die Reversibilität reicht bis zur Rekristallisation um  $1800^\circ$ . Rastermikroskopisch zeigt sich jedoch ein Übergangsbereich bis etwa  $2000^\circ\text{C}$ .

---

\*

Die technische Steuerung der Wärmeabfuhrate aus erstarrenden Schmelzen ist mit der Abkühlgeschwindigkeit gemäß Abb.11, s.a. Abb. 18c und d, möglich.

Dadurch erscheinen viele mechanische Veränderungen der Struktur in einer für das Herstellungsverfahren typischen Weise. Die mechanischen Grundprozesse, die in Abb. 2a dargestellt sind, werden also gewissermaßen mit einer verfahrensspezifischen Maske überdeckt.

Da die mechanischen Grundprozesse sämtlich von sehr vielen Materialfunktionen abhängig ablaufen, entstehen durch die zusätzliche verfahrenstypische Maskierung sehr komplexe Betriebsverhaltensweisen, Abb. 3, 12, 13, 14. Diese sind für jeden Betriebszustand durch die Porenanalyse darstellbar und deutbar.

- b) Die Vickershärtemessung erfaßt die Spannungsverhältnisse im Brennstoff nach dem Betrieb. Da die Temperaturabhängigkeit der Festigkeit bis zu hohen Temperaturen relativ gering ist /2/, gibt diese Methode ebenfalls recht gut den Betriebszustand wieder. Gemäß Abb. 11 sind rechnerische Anpassungen möglich.

Die Spannungsverhältnisse werden ebenfalls von der ursprünglichen Morphologie entscheidend geprägt. Je nach Betrag und Richtung der morphologischen Vektoren dominiert bei der Härtemessung vorwiegend die Scher-Zug- oder Druckbeanspruchung, da kein Zustand absolut isotrop ist. Abb. 18 gibt einige Morphologiebeispiele. Die Zusammenhänge zwischen dem Schub-, Elastizitäts- und Kompressionsmodul und der Poisson'schen Zahl sind physikalisch gegeben /9/. Einige ergänzende Berechnungen von Modulen und Festigkeiten sind mit Hilfe von Raummodellen vorgenommen worden, unterstützt von eigenen vorläufigen Messungen mit Hilfe der als Biegemessung zu bezeichnenden Vickershärtemethode.

Es ist wichtig zu betonen, daß bei der Härtemessung die geeignete Wahl der Meßart und der Methode von der morphologischen Art des Stoffes und der Zielsetzung der

Untersuchung abhängt. Eine vorausgehende Bestimmung des Morphologietyps ist daher unerlässlich, z.B. mit der Rasterelektronenmikroskopie. In dem vorliegenden Fall wurde ein räumlicher Meßbereich von  $150^3 \mu\text{m}^3$  und damit eine statistisch hinreichende Zahl von etwa 5000 Kristalliten erfaßt. Diese ist nicht zu verwechseln mit der Größe und Zahl der Granulate beim Herstellungsprozeß. Diese beeinflußt lediglich die Wahl der Härtemeßmethode. Die bei der Porenanalyse gewählte Fläche von  $150^2 \mu\text{m}^2$  ist der Härtemessung angepaßt. Die gegenseitige Ergänzung der Meßmethoden a und b ist aus Abb. 3 deutlich zu erkennen. Porositätsmaxima entsprechen Härteminima.

Es ist ergänzend zu bemerken, daß Strahlenschäden in der Matrix bei der Härtemessung miterfaßt würden. Vergleichende Messungen mit unbestrahltem Material haben bei diesen Methoden jedoch keinen Einfluß erkennen lassen. Stöchiometrieabhängigkeiten wurden nicht gemessen.

- c) Die Interpretation der beschriebenen Messungen im Zusammenhang mit dem morphologischen Aufbau der Brennstoffe ist in entscheidender Weise durch die Anwendung der Rasterelektronenmikroskopie im Bereich kristalliner Dimensionen von etwa  $100 - 1000 \mu\text{m}^3$  möglich gemacht worden, Abb. 5a, 5b und 18. Die quantitative Erfassung der Kristallform und der räumlichen Anordnung bietet zusätzlich die Möglichkeit der erwähnten Berechnung elastischer Kenngrößen der Stoffe. Das wiederum läßt die mathematische Charakterisierung der Stoffe durch eine erweiterte Anwendung der Elastizitätsgesetze zu.

#### Vorbemerkung zu Abschnitt 8

Die physikalische Anwendung der analytischen Methoden ist noch nicht ausgeschöpft. Aus diesem Grunde wurden die Auswertungsergebnisse vorausgeschickt. So stellt z.B. das Zustandsdiagramm der Abb. 11 zunächst nur die Summe bisheriger Erkenntnisse dar.

Der Zusammenhang zwischen der Härte, d.h. der Festigkeit und der Dichte, der in Abb. 10 für Oxidbrennstoff dargestellt ist, gilt allgemein. Dieses aus vielen örtlichen Messungen zusammengestellte Diagramm zeigt zwei vom Herstellungsverfahren geprägte Grundtypen. Die obere Kurve stellt angenähert den linearen, Typ 1, die untere Kurve den bilinearen Typ 2 dar. Aus morphologischen Untersuchungen ergeben sich grundsätzliche Unterschiede, die das festkörperphysikalische Verhalten im gesamten Betriebsbereich entscheidend beeinflussen.\*

#### 8. Härte, Festigkeit, Elastizität, Schwellrate, Wärmeleitfähigkeit und Thermodynamik von Brennstofftypen und -zuständen

---

Im unteren Dichtebereich überwiegt beim Brennstoff die Inelastizität, mit einer verstärkten Ausprägung beim bilinearen Typ, Abb. 10.

Der Mittelbereich beginnt mit einem deutlichen Anstieg der Elastizität zu einem Maximum, welches dann, beim linearen Typ gemäßigt und beim bilinearen Typ, hier von einer geringen Maximumhöhe, steil abnehmend ab 98 % th.D. in den Poisson'schen Zustand übergeht. Der E-Modul und die Poisson'sche Zahl sind nur in diesem Anstiegsbereich der Festigkeit der Kurvensteigung angenähert direkt bzw. umgekehrt proportional. Im mittleren und unteren Dichtebereich besteht diese Proportionalität aus morphologischen Gründen nicht. Als Poisson'scher Bereich wird derjenige mit einem Modul  $\mu < 0,3$  definiert.

Die Festigkeitswerte neben der Härteskala in Abb. 10 entstammen der Literatur /2/. Sie wurden durch Umrechnung der Härtewerte bestätigt. Es besteht Proportionalität zwischen den Härte- und Festigkeitswerten. Die Härtemessung steht physikalisch mit der Messung der Biegefestigkeit im elasti-

---

\* Der Typ 3 entwickelt während des Betriebes wegen seiner elastoplastischen Morphologie sehr hohe Dichteanisotropien; die duktile Korngrenzengleitung herrscht vor.

schen Bereich in direktem Zusammenhang. Im vorwiegend inelastischen unteren Dichtebereich überwiegt aus morphologischen Gründen die Scherbeanspruchung. Man mißt also die Scherfestigkeit. Da in einem Brennstab von rein isostatischen Druckverhältnissen nicht ausgegangen werden kann, genügt in der Praxis der diese beiden Arten umfassende angegebene Meßbereich bis  $17 \text{ kp/mm}^2$ . Die reine Druckfestigkeit liegt eigentlich nur im Poisson'schen Bereich mit seinen typischen geringen Querverformungsmoduln vor. Sie läßt sich durch Extrapolation der Kurven in Abb. 10 angenähert ermitteln. Da die Poisson'sche Zahl jedoch mit der morphologischen Struktur variiert und diese außerdem noch mit zunehmendem Abbrand durch ganz spezifisches, kinetisch gesteuertes Ausscheidungsverhalten der Spaltprodukte in der jeweils vorliegenden Leervolumenform modifiziert wird, kann für die Druckfestigkeit kein spezifischer Wert erwartet werden. Ab 98 % th.D. ist die Druckfestigkeit scheinbar asymptotisch ansteigend. In Wirklichkeit liegen die Festigkeiten bei 100 % th.D. jedoch im Bereich von 20 bis  $100 \text{ kp/mm}^2$ . Der bilineare Typ ist druckfester als der elastische, lineare. Das Elastizitätsverhalten ist ebenfalls morphologisch bestimmt. Während das Maximum der Elastizität beim elastischen, linearen Typ infolge seiner Kugelsymmetrie bei etwa 90 % th.D. liegt, ist dieses beim anisotropen bilinearen Typ bei etwa 94 % th.D. der Fall. Ähnliche Abhängigkeiten liegen auch für das Abbrandverhalten vor. Die Aufnahmefähigkeit für Spaltprodukte steigt gemäß Abb. 10 in einem engen Dichtebereich auf ein Mehrfaches der vorausgehenden Rate an. Auch hier ist die Kapazität des linearen Typs wegen des erweiterten Elastizitätsbereiches höher. Die Verdichtung im oberen Dichtebereich beträgt je Prozent Abbrand im

Mittel nur 0,5 % mit Minimalwerten von 0,3 % th.D.

Die Diagramme in Abb. 10 können als Charakterisierungs- und Eichdiagramme in Forschung und Technologie benutzt werden. Sie können sowohl, wie beschrieben, durch Bestrahlungsnachuntersuchung als auch im unbestrahlten Zustand ermittelt werden.

Aus der Abb. 10 leitet sich die Abb. 11 ab. Sie stellt die Verbindung zwischen der Festigkeit und der Temperatur her. Auch sie wird experimentell gewonnen, s. Abschnitt 5. Die Linie AB in Abb. 11 ist flacher oder steiler, je nachdem, ob es sich um einen überwiegend elastischen, linearen oder inelastischen, bilinearen Brennstofftyp handelt. Die vergleichende Aussage im Beispiel der Abb. 10 ist, daß die Dichte des linearen Typs bei gleicher Festigkeit geringer ist. Bei gleicher Dichte dagegen ist die Festigkeit höher und damit gemäß Abb. 11 auch die Zerfallstemperatur. Der Stabilitätsbereich ist erweitert.

Durch einfache Überlegungen läßt sich ferner der Schluß ziehen, daß zwischen der jeweiligen Typencharakteristik und der freien Energie  $\Delta G$  ein bestimmter funktionaler Zusammenhang besteht, von dem die thermodynamischen Materialfunktionen und damit zusammenhängenden Materialkennwerte abhängen. Der Einfluß, der gemäß Abb. 10 proportional zunehmenden Wärmeleitfähigkeit auf die Enthalpie

$\Delta H$  und die Beeinflussung der Entropie  $\Delta S$  durch die Aktivität  $a$  lassen nach ersten Abschätzungen auf eine, je nach Typ graduelle, Verringerung der freien Energie

$\Delta G$  schließen. Davon dürften die Aktivierungsenergien für verschiedene Mechanismen und z.B. auch die Zeitkonstante bei Reaktivitätsstörfällen oder auch die Löslichkeitsbestimmenden elektrochemischen Potentiale betroffen sein. Quantitative Messungen sind im Zuge der beschriebenen Untersuchungen durchführbar. Abschätzungen sind bereits auf der vorliegenden Basis gemacht worden.

## 9. Abschnittsweise Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse

---

Abschnitt 2 Die charakteristischen Merkmale von Porositätsdiagrammen werden ganz bestimmten Transportmechanismen und Temperaturen zugeordnet; dadurch ist die Restrukturierungsgeschichte eines jeden Brennstabquerschnittes nach dem Betrieb rekonstruierbar.

Abschnitt 3 Der Ablauf der Strukturumwandlung und deren Auflösung bei schnellen nichtstationären Betriebsvorgängen wird beschrieben. Drei voneinander thermisch entkoppelte Bereiche reagieren nach den Impulsgesetzen miteinander, wobei durch Umverteilung der Massen nukleare in mechanische Energie umgesetzt wird. Brennstoffschmelzen tritt ebenfalls zonenweise von innen nach außen auf.

Abschnitte 4 und 5 Die Zusammenhänge zwischen der Festigkeit und der Dichte von Brennstoffen werden beschrieben. Die Festigkeitscharakteristik ist vom Brennstofftyp geprägt. Nach einem für jeden Typ ganz bestimmten Inkubationsabbrand tritt eine Härtung auf. Das Bruchverhalten wird beschrieben. Außer vom Typ und Abbrand ist es von der Abkühlgeschwindigkeit abhängig. Eine Steigerung der Abkühlgeschwindigkeit bedeutet grundsätzlich eine Verfestigung. Ein Zustandsdiagramm, welches die Beziehung der Festigkeit mit den transienten Parametern herstellt, wird zur Analyse von Porositätsdiagrammen benutzt.

Abschnitt 6 Die mechanisch zerstörten Brennstoffbereiche sind in Porositätsdiagrammen erkennbar. Durch Identifikation ihrer Temperaturgrenzen ist mit dem Zustandsdiagramm und der Dichtecharakteristik die für jeden Brennstofftyp notwendige Fabrikationsdichte ermittelbar, die zur Schadenminimierung führt.

Abschnitte 7 und 8 Die angewendete Analytik führt zu den Schlußfolgerungen, daß alle mechanischen und thermischen Daten und Funktionen typen- und abbrandabhängig sind.

Die in diesem Bericht dargestellten Untersuchungen haben das Betriebsverhalten oxidischen Brennstoffs unter fast allen Bedingungen beschrieben. Es hat sich gezeigt, daß eine rein physikalische Interpretation nicht möglich war, weil der morphologische Einfluß wesentlich ist. Die Gestaltung geeigneter Morphologien ist das Ergebnis technologisch-festkörperphysikalischer Entwicklung.

#### Anerkennung

Besonderer Dank wird für die Beiträge folgender Herren ausgesprochen: H. Kwast, ECN-Petten; C. Ronchi, Europäisches Institut für Transurane; H. Steiner, IMF III, KfK.

Herr Ronchi hat die rastermikroskopischen Aufnahmen der Abb. 5a und b von Mol 7C-Proben hergestellt. Herr Kwast hat die Abb. 4a und b, 7a und 15 aus der ECN-LOC-Serie zur Verfügung gestellt. Herr Steiner hat die Temperaturberechnungen der Abb. 3 und Frau Machts, KTB-HZ, die Berichtsgestaltung durchgeführt. Das Experiment Mol 7C ist ein gemeinschaftliches Vorhaben des CEN, Mol und des KfK.

8. Literaturverzeichnis

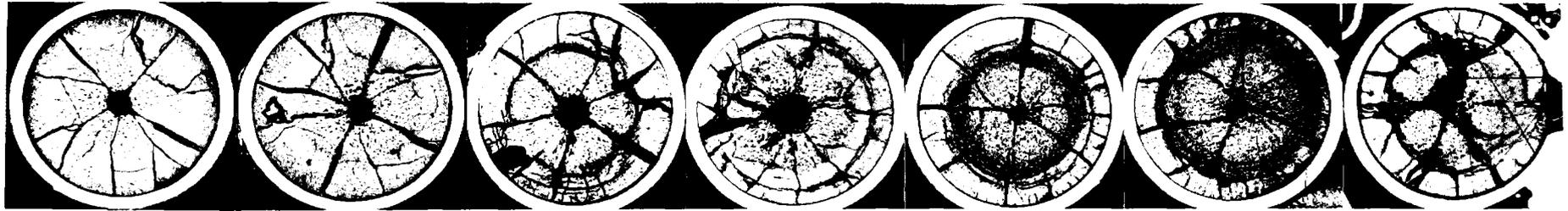
- /1/ W. Kramer, K. Schleisiek et al  
In-pile experiments "Mol 7C" related to pin to pin  
failure propagation. Proceedings of the International  
Meeting in Fast Reactor Safety Technology, Seattle,  
Washington, August 19-23, 1979. Vol I, p.473-482
- /2/ A.W. Cronenberg  
An Assessment of Intergranular Fracture within  
unrestructured UO<sub>2</sub> Fuel due to  
Film Boiling Operation  
NUREG/CR-0595, TREE-1330, p. 18-25
- /3/ J. Delafosse, G. Lestiboudois  
Choix effectué par le CEA pour la fabrication des  
oxydes d'uranium et ses conséquences sur les  
performances de son combustible  
IAEA-SM-233/1, 1978
- /4/ G. Karsten, W. Hellriegel, G. Weih  
A systematic energy analysis on the basis of structural  
phenomena of a coolant blockage experiment  
Proceedings, s. /1/, Vol II, p. 1069-1076
- /5/ H. Kwast  
Phenomena observed during failure of fast reactor  
fuel pins tested under loss of cooling conditions  
Proceedings, s. /1/, Vol IV, p. 1988-1997
- /6/ H. Steiner, A. Elbel  
**Die Berechnung von Temperaturasymmetrien in**  
gekapselten Brennstäben mit dem Rechenprogramm  
TEXDIF-P KfK-Bericht Nr. 2961

- /7/ C.W. Hunter, G.D. Johnson, R.L. Fish  
Mechanical properties during simulated overpower  
transients of fast reactor cladding, irradiated  
from 700-1000<sup>o</sup> F  
HEDL-TME 75-28, UC-79b, p. June 1975
- /8/ H. Kwast, ECN Petten,  
persönliche Mitteilung
- /9/ MATPRO, Handbook of Material Properties  
ANCR-1263, NRC 3, Feb. 1976  
Chapters 5 and 6, p. 32-37, special publications by  
M.O. Marlowe, D. Vollath, R.A. Wolfe
- /10/ G. Bandyopadhyay and J.A. Buzzell  
The role of fission gas and fuel melting in fuel  
response during simulated hypothetical loos-of-flow  
transients, ANL  
Nuclear Technology, Vol 47, Jan. 1980, p. 91-109

## 9. Verzeichnis der Abbildungen

- Abb. 1 Störungsablauf in einem Brennstab bis zum völligen Niederschmelzen
- Abb. 2 Grundlegende Restrukturierungsprozesse
- Abb. 3 Zusammenhang zwischen Temperatur, Dichte und Härte
- Abb. 4 a) Blasenbildung am Übergang zum Schmelzbereich des Brennstoffs bei 2300°C  
b) Verlust von  $\beta$ ,  $\gamma$ -Aktivität durch Spaltproduktverdampfung bei 2300°C
- Abb. 5 a) Agglomerationszone von 1500°C bis 2100°C  
b) Schmelzgrenzbereich bei 2300°C, beides Rastermikroskopie
- Abb. 6 Agglomerationszone, 1500°C bis 2100°C
- Abb. 7 Auswirkung des Innendruckes auf die Randbereiche eines Brennstoffquerschnittes  
a) Ablösen und Abstoßen der Randzone  
b) Gerichtete Massenbewegung
- Abb. 8 Hüllrisse durch Innendruck
- Abb. 9 Zusammenhang zwischen Spannung, Dehnung, Druck, Temperatur und Abbrand bei Stahl, Beispiel
- Abb. 10 Zusammenhang zwischen Festigkeit, Härte und der Brennstoffdichte
- Abb. 11 Äquikohäsionsdiagramm

- Abb. 12, 13    Strukturanalysen für kleine, mittlere und  
und 14        größere Energiefreisetzungen
- Abb. 15        Einfluß der Randkühlung auf den Kornzer-  
fall
- Abb. 16        Massenausbreitung
- Abb. 17        Mischung von Schmelze, dunkel, und Resten  
festen Brennstoffes, hell, Bildmitte.  
1,5 bis 2 kJ/g  $\text{UO}_2$ ;  $\beta$ - $\gamma$ -Radiografie
- Abb. 18        Verschiedene Morphologien von oxidischem  
Brennstoff, etwa 1300 x vergrößert, Raster-  
mikroskopie



Energie-							
inhalt	0,2			0,4	0,6	0,8	1,0 kJ/g UO <sub>2</sub>
Abb. Nr.	1.1	1.2	1.3	1.4	1.5	1.6	1.7



Energie-							
inhalt	1,2	1,4	1,6	1,8	2,0	2,2	kJ/g UO <sub>2</sub>
Abb. Nr.	1.8	1.9	1.10	1.11	1.12	1.13	

Störungsablauf im Brennstab bis zum völligen Niederschmelzen

# FUNDAMENTAL RESTRUCTURING PROCESSES AT HIGH POWER AND TEMPERATURE GRADIENTS

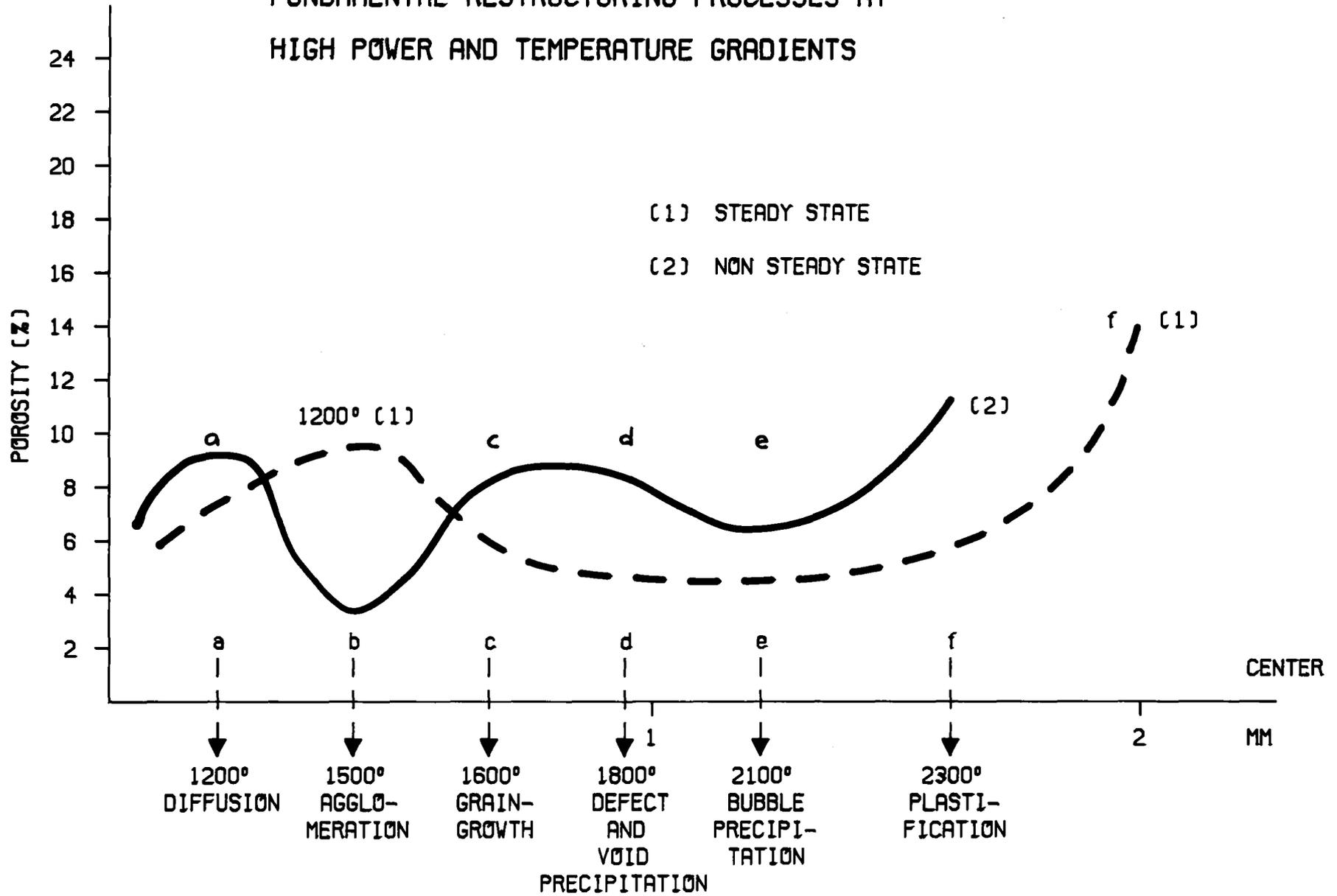


Abb. 2a

CHARACTERISTIC NON-STEADY STATE RESTRUCTURING  
 PROCESSES AT LOW POWER AND TEMPERATURE GRADIENTS

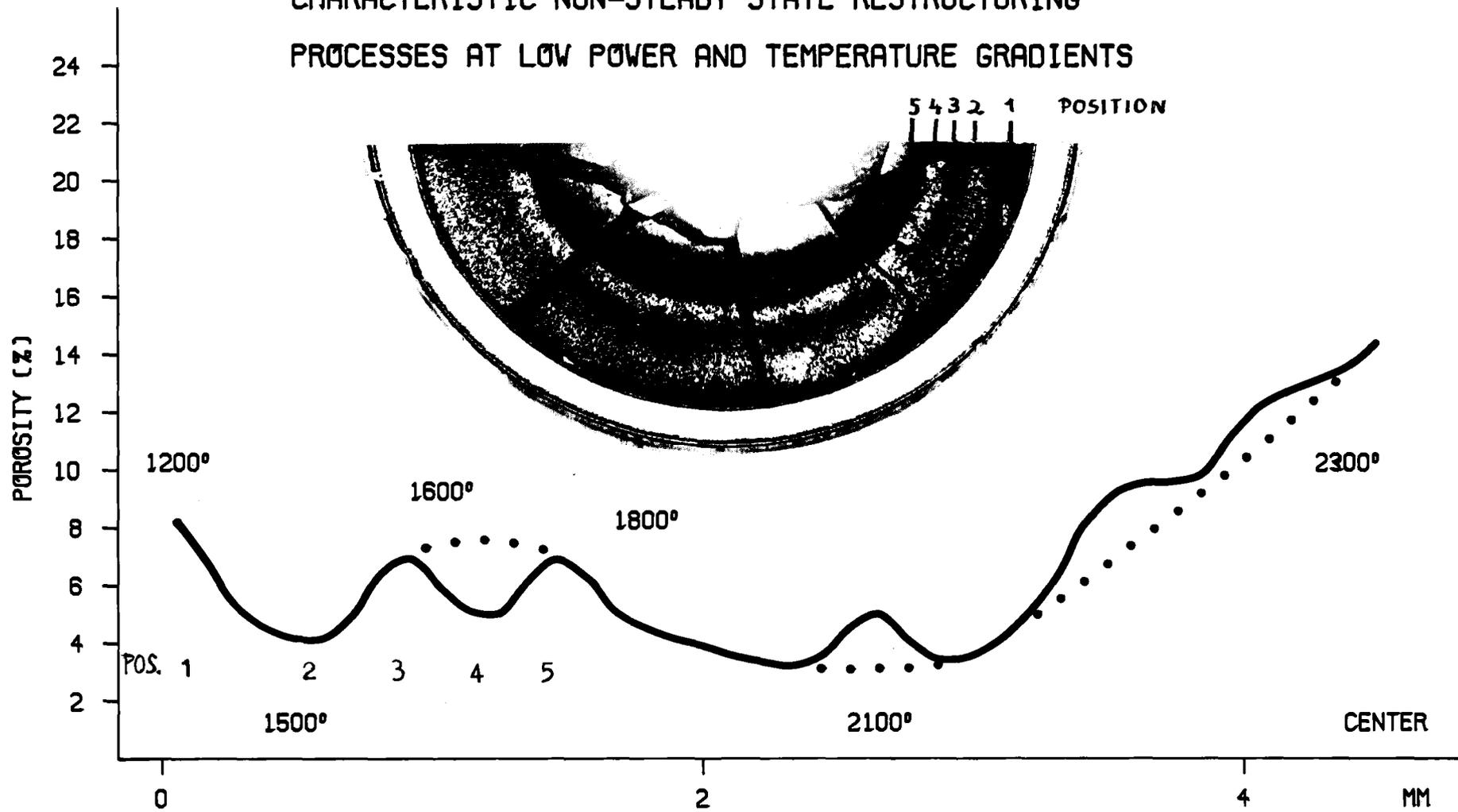
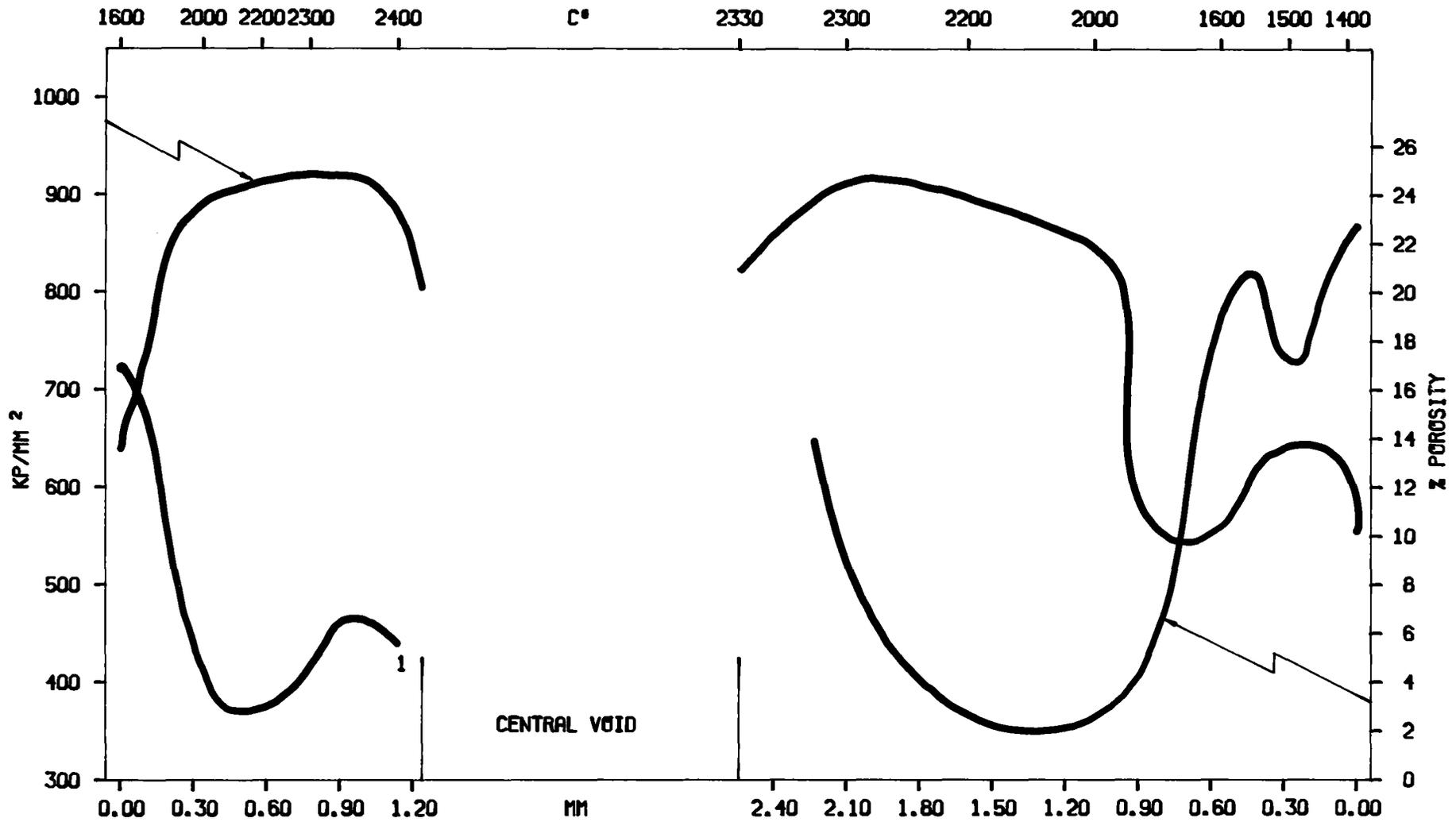


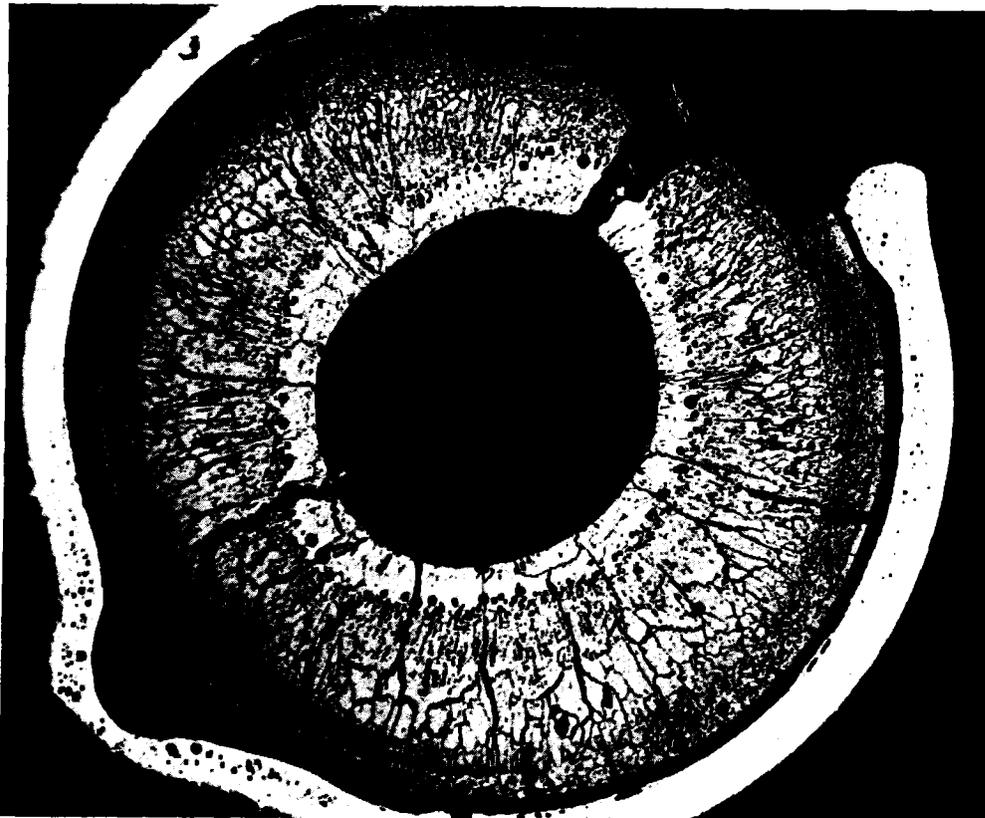
Abb. 2b

47E - DUELL - 4 - 3

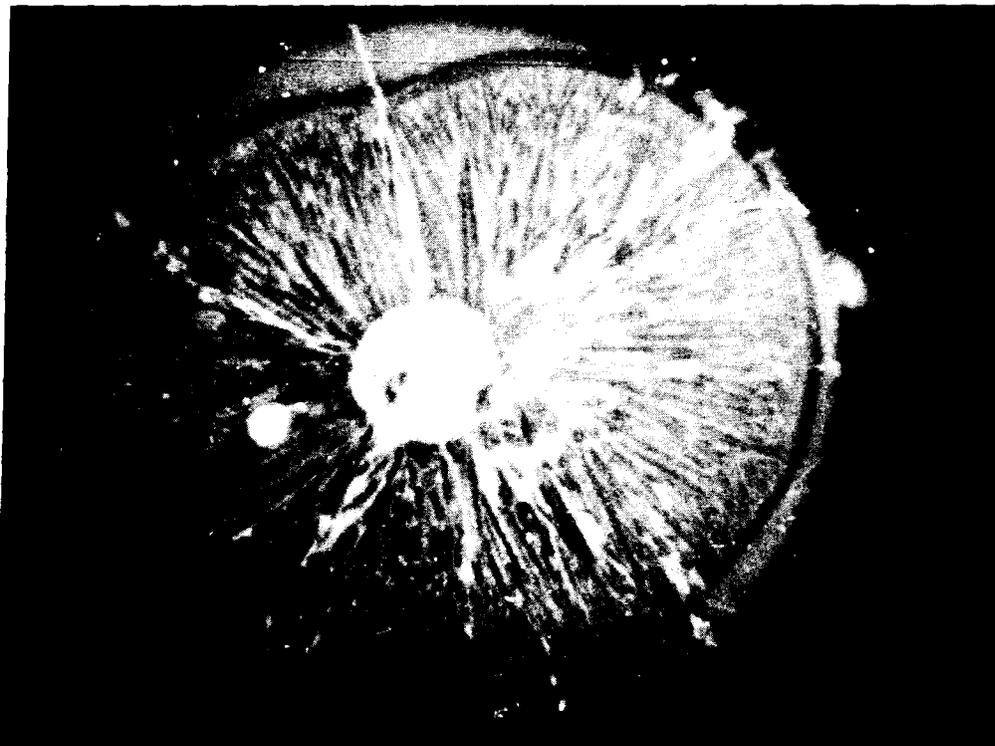


CORRELATION OF HARDNESS AND DENSITY

Abb. 3



L 15

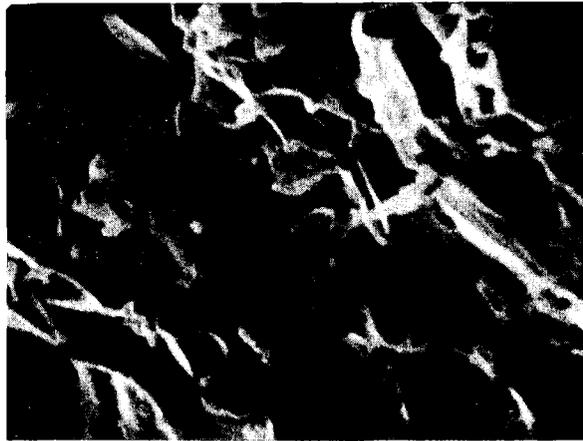


L 18

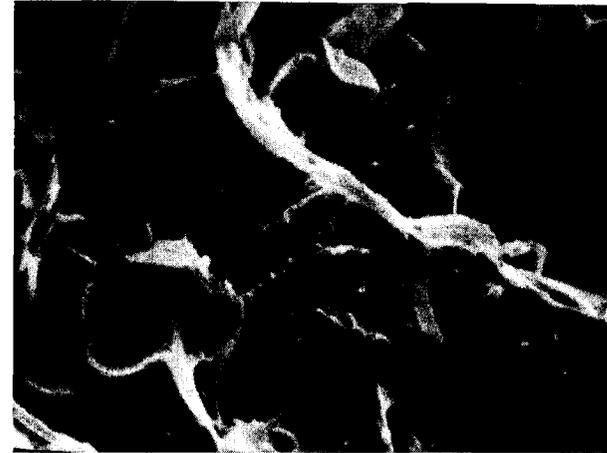
Abb. 4a Blasenbildung am Übergang zum Schmelzbereich,  $\approx 300^{\circ}\text{C}$ .

Abb. 4b Verlust von  $\beta$ ,  $\gamma$ -Aktivität durch Spaltprodukt-thermodiffusion (dunkler Ring)

Bildquelle: ECN-Petten, LOC-Versuche, Stab L15, 6 % Abbrand und L18, 0,5 % Abbrand



2100 x



3500 x

Abb. 5a Agglomerationszone,  $1500^{\circ}$  -  $2100^{\circ}$ C



2100 x



3500 x

Abb. 5b Schmelzgrenzbereich  $\sim 2300^{\circ}$ C, mit Gasblasenverbindungen

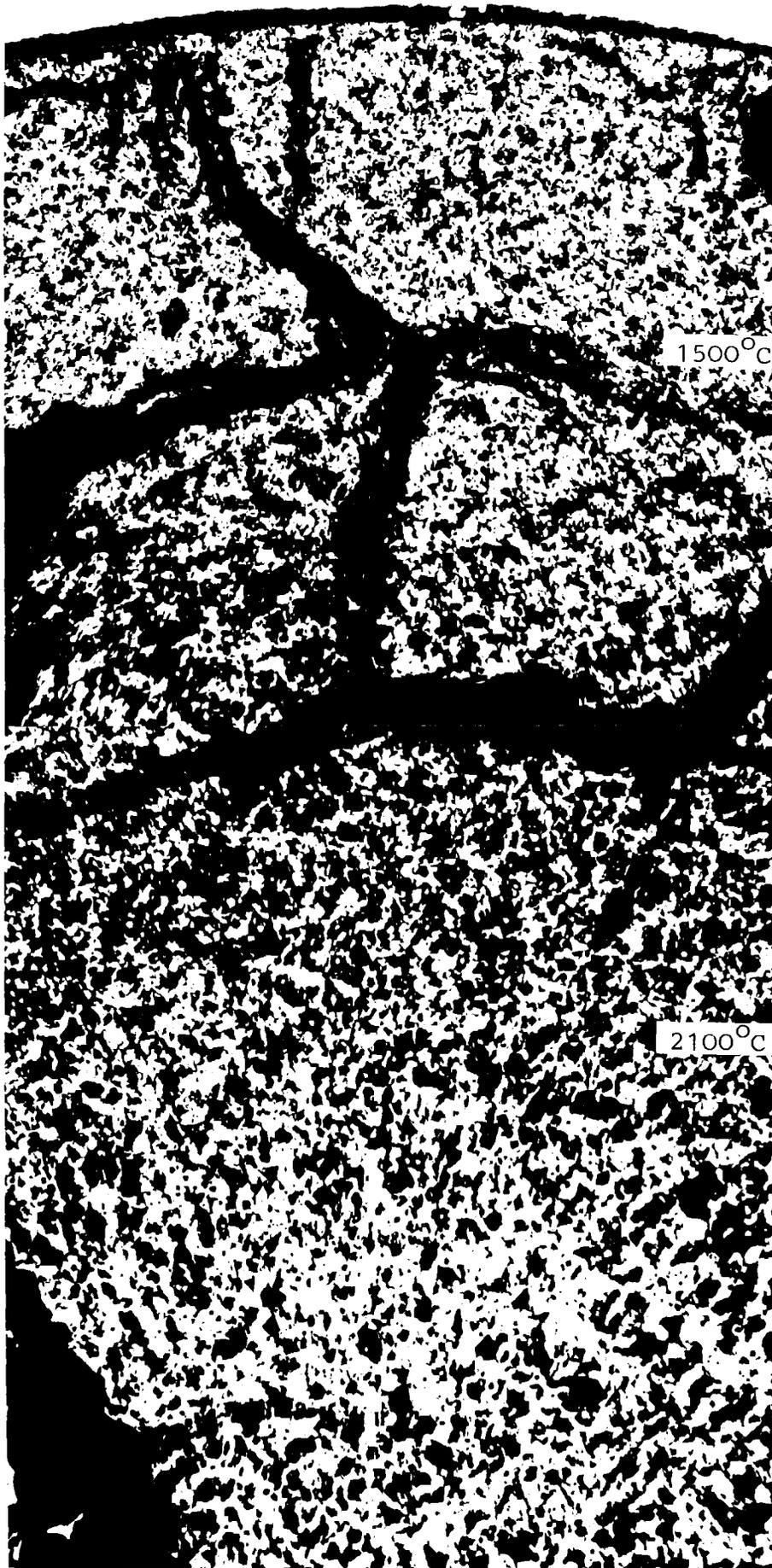
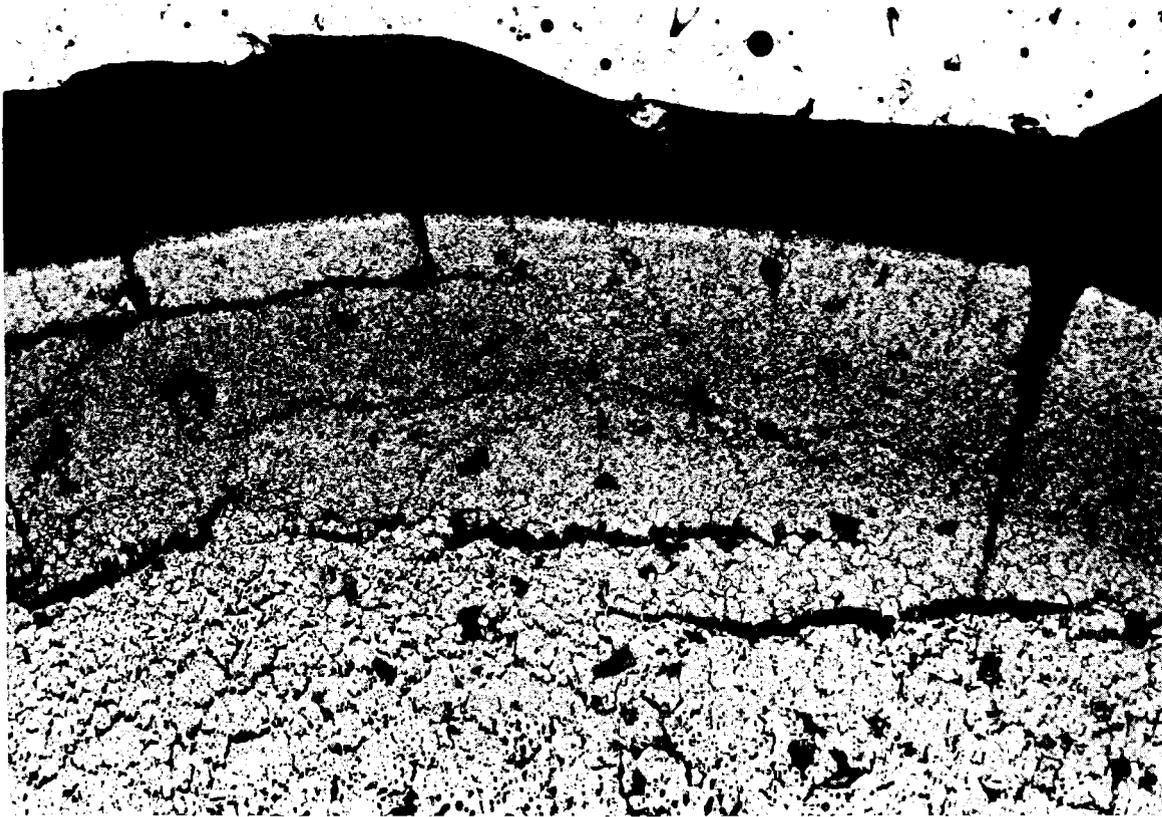


Abb. 6  
Agglomera-  
tionszone  
1500-2100°C  
mit Korngren-  
zenzerfall  
gemäß Abb.10  
und Abb.11

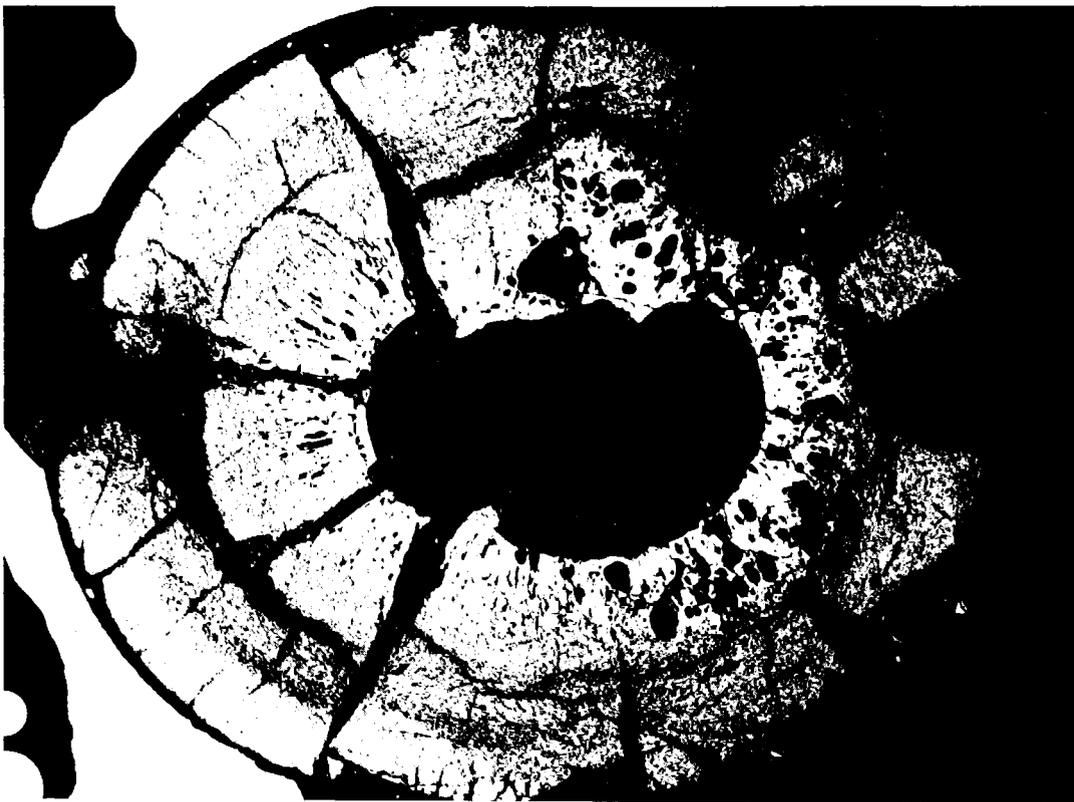
HZ-47B-Mol 7C1-O-13/32 100x

200  $\mu\text{m}$



L 15, 60 Mwd/kg, ECN-Petten

a



HZ-47C-MoI 7C2-156-2/20 20x

1 mm

b

Abb. 7 Auswirkung des Innendruckes auf die Randbereiche  
a) Ablösen und Abstoßen der Randzone  
b) Gerichtete Massenausbreitung



HZ-47C-MoI 7C2-122-2a/7 200x

100  $\mu\text{m}$



HZ-47B-MoI7Cl-O-9/31 100 x 2.E.

200  $\mu\text{m}$

Abb. 8 Hüllrisse durch Innendruck

HOOP STRESS - STRAIN - PRESSURE - BURNUP - TEMPERATURE  
CORRELATION FOR STAINLESS STEEL  
(EXAMPLE)

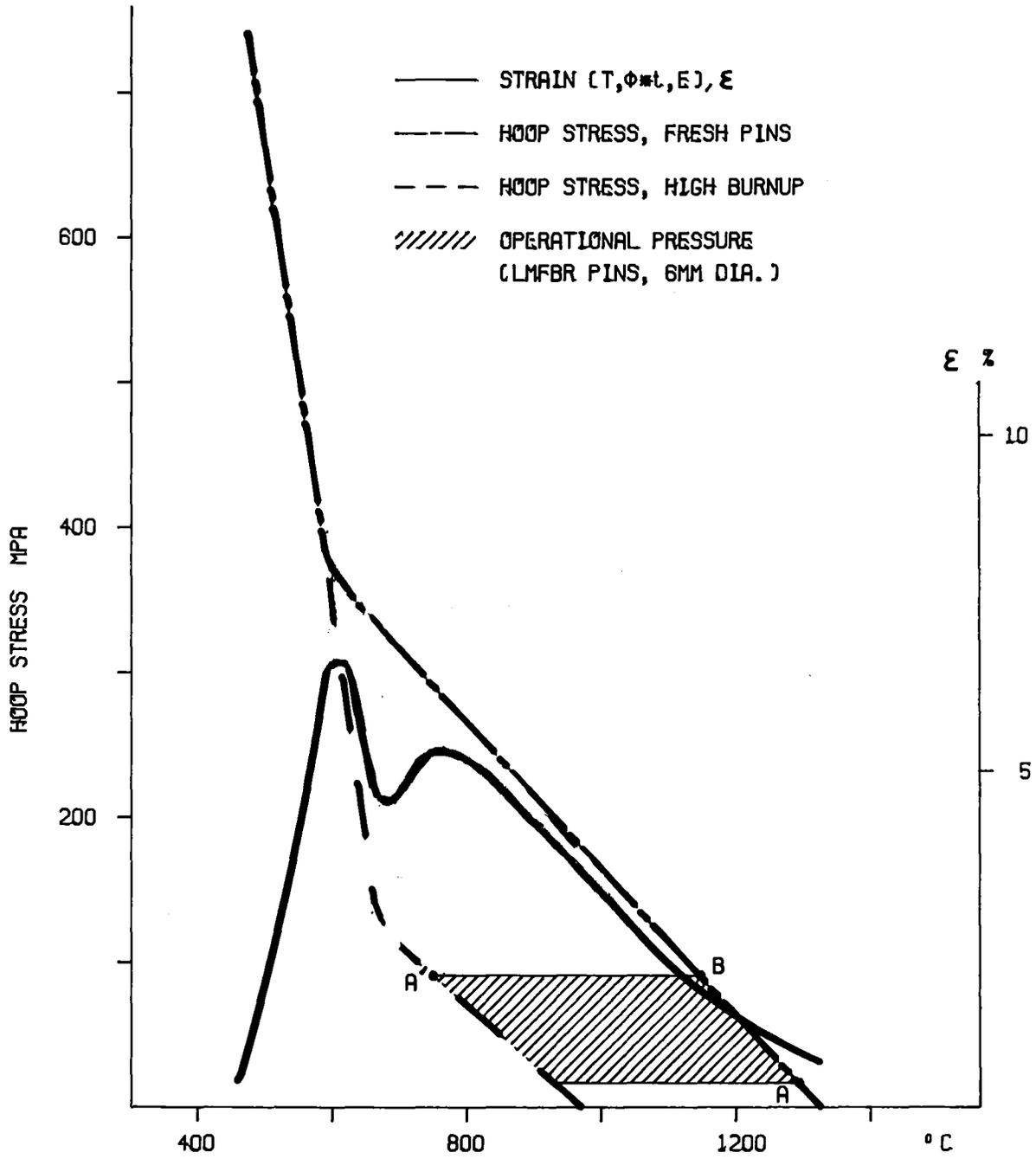


Abb. 9

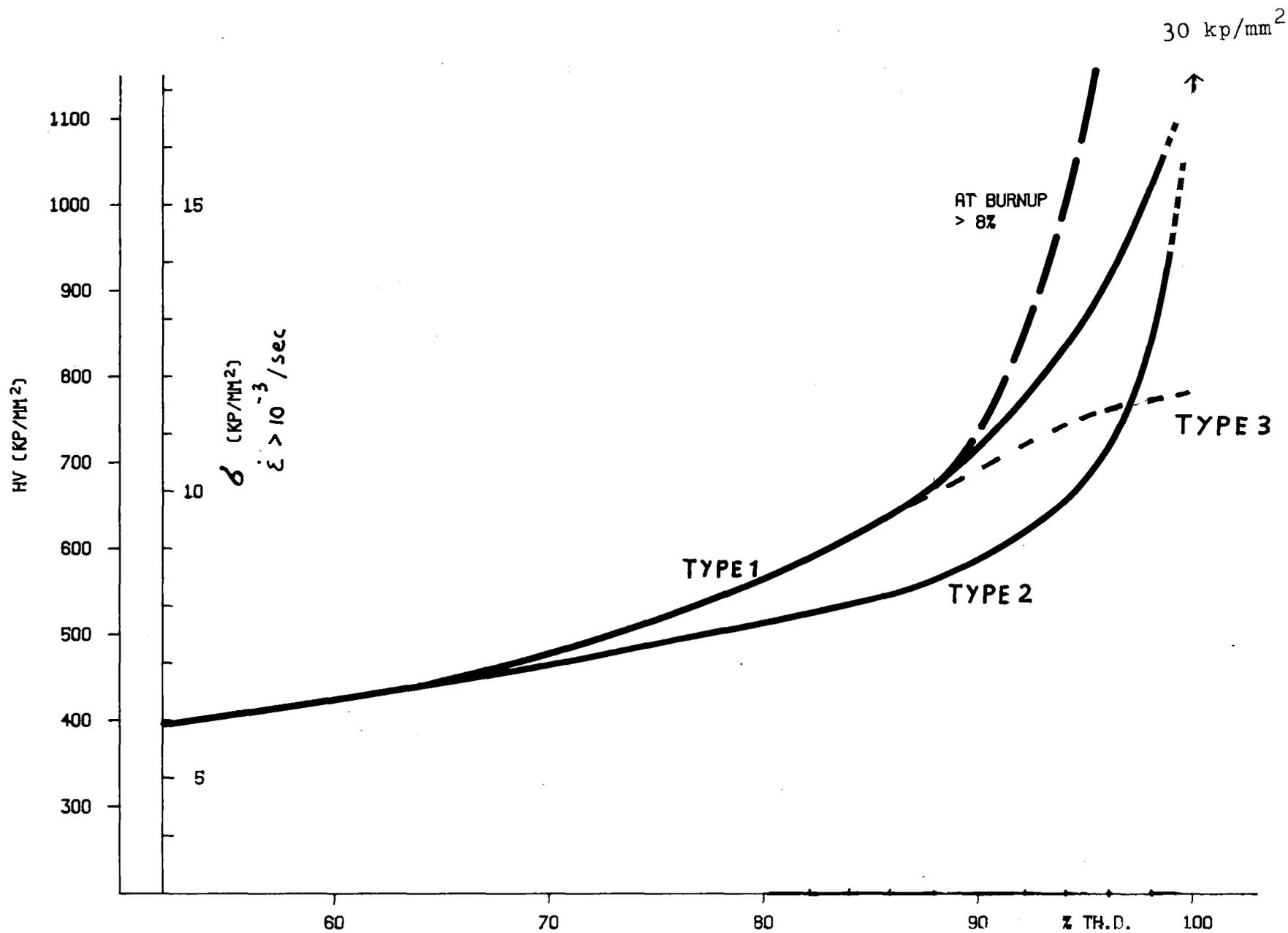


Abb. 10

RELATION BETWEEN RUPTURE STRENGTH  $\delta$ , HARDNESS (VICKERS, HV) AND FUEL DENSITY

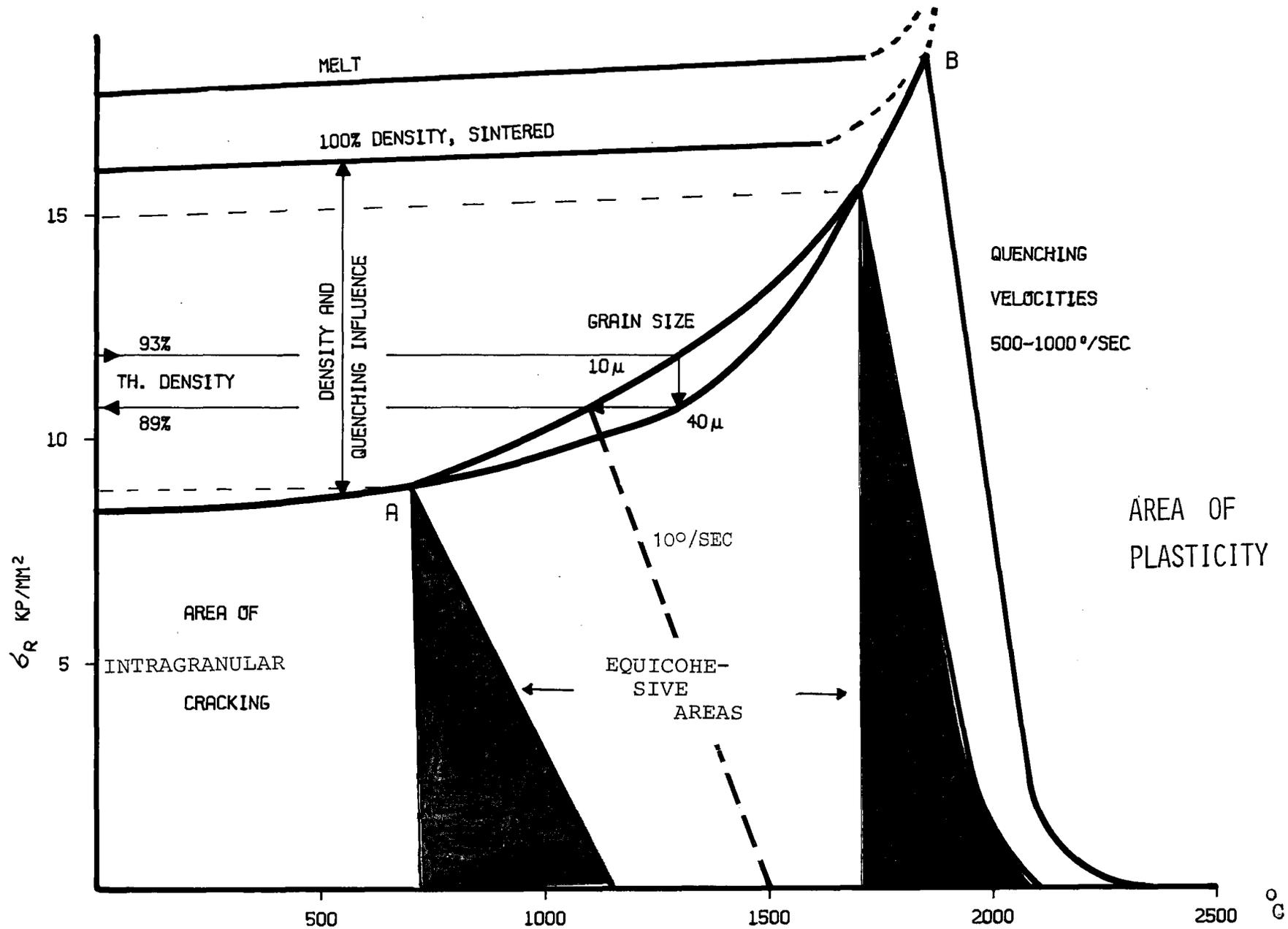


Abb. 11

RELATION BETWEEN FUEL AND TRANSIENT PARAMETERS,  $\sigma_{\text{RUPTURE}}(T, \dot{T}, S)$

VERY SMALL DISTURBANCES OF COOLING  
OR POWER, 0.4 KJ/G  $UO_2$

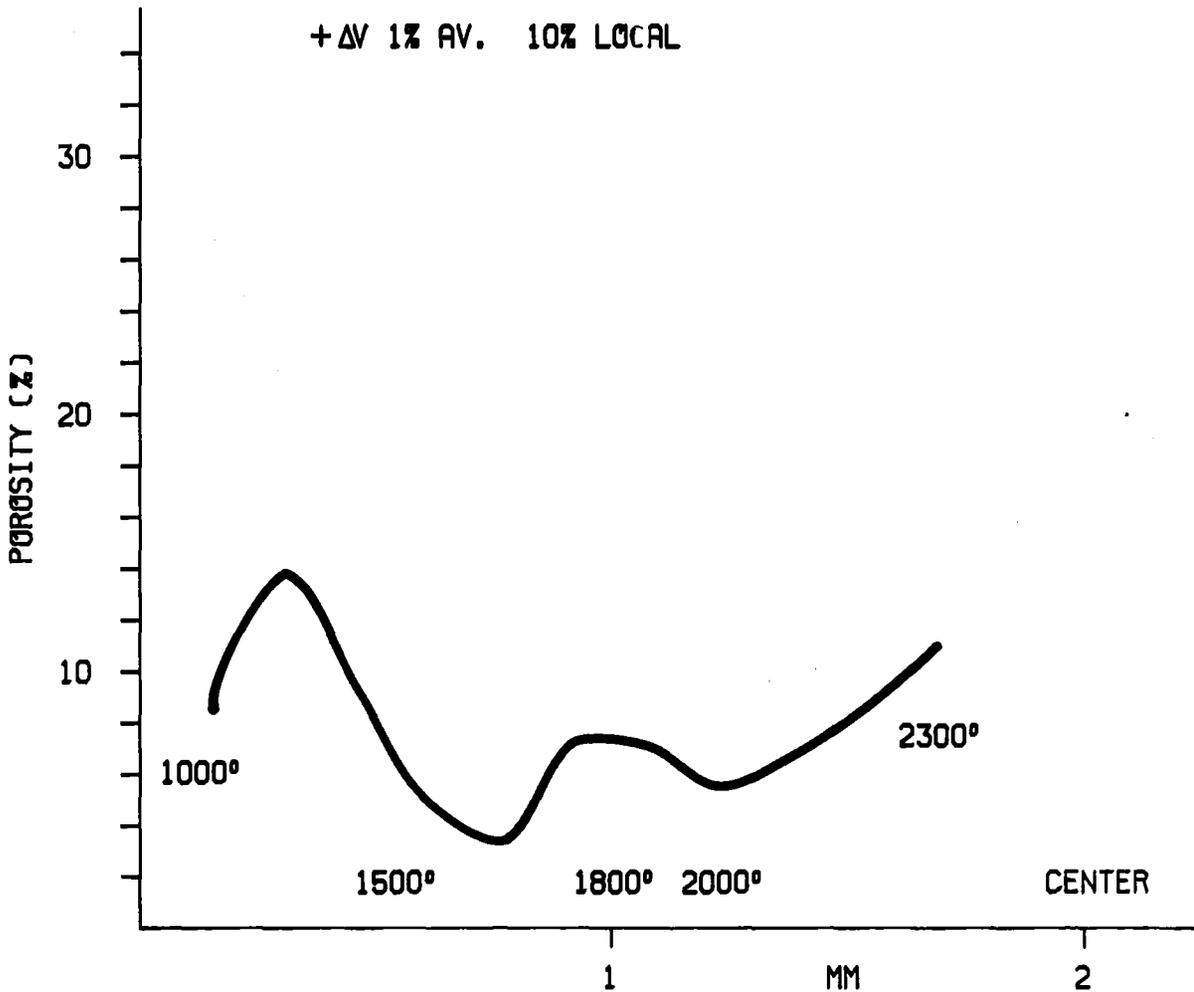
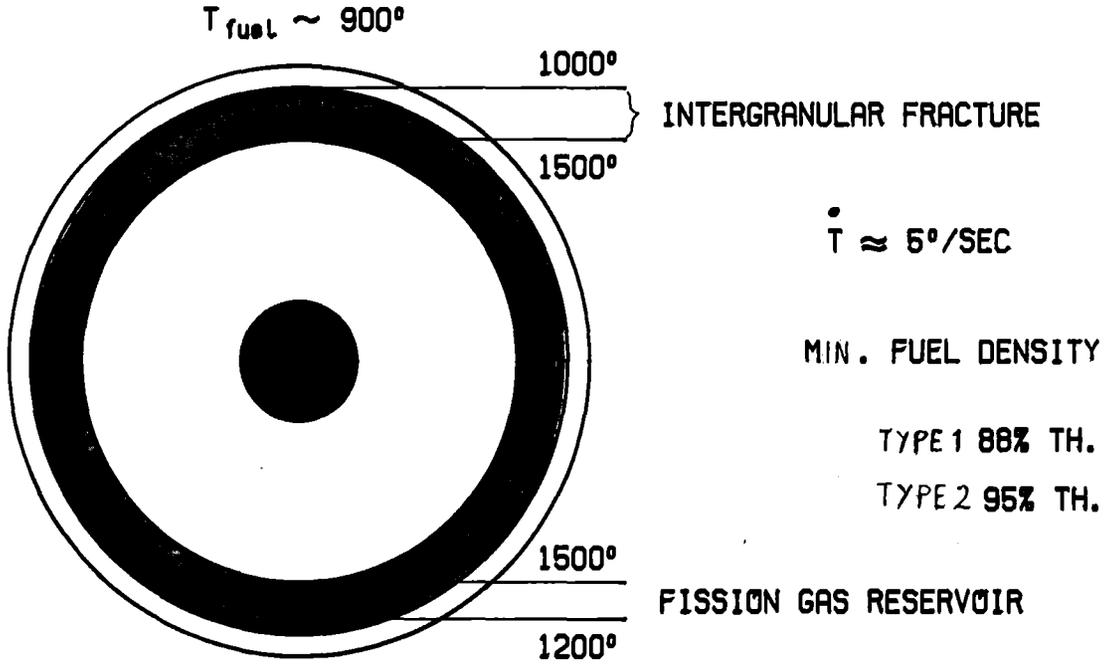


Abb. 12

POST INCIDENTAL STRUCTURE ANALYSIS

SMALL AND MEDIUM ENERGY RELEASES, 0.6 KJ/G  $UO_2$ ,  
BOILING OF COOLANT, Na, MEDIUM REACTIVITY CHANGES

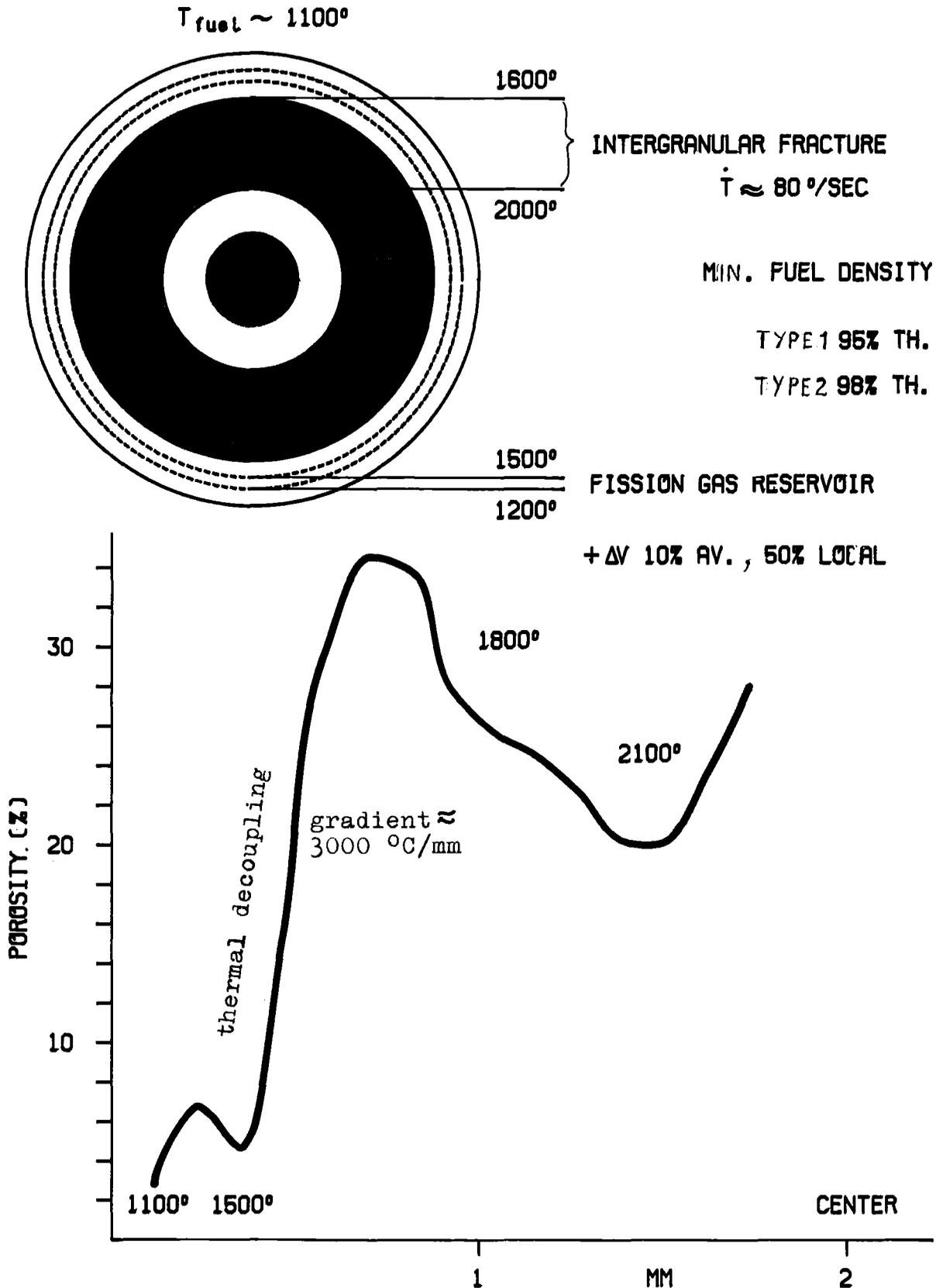


Abb. 13

POST INCIDENTAL STRUCTURE ANALYSIS

MEDIUM TO LARGE ENERGY RELEASES, LOSS OF COOLANT, LARGER REACTIVITY CHANGES, >1 KJ/G UO<sub>2</sub>

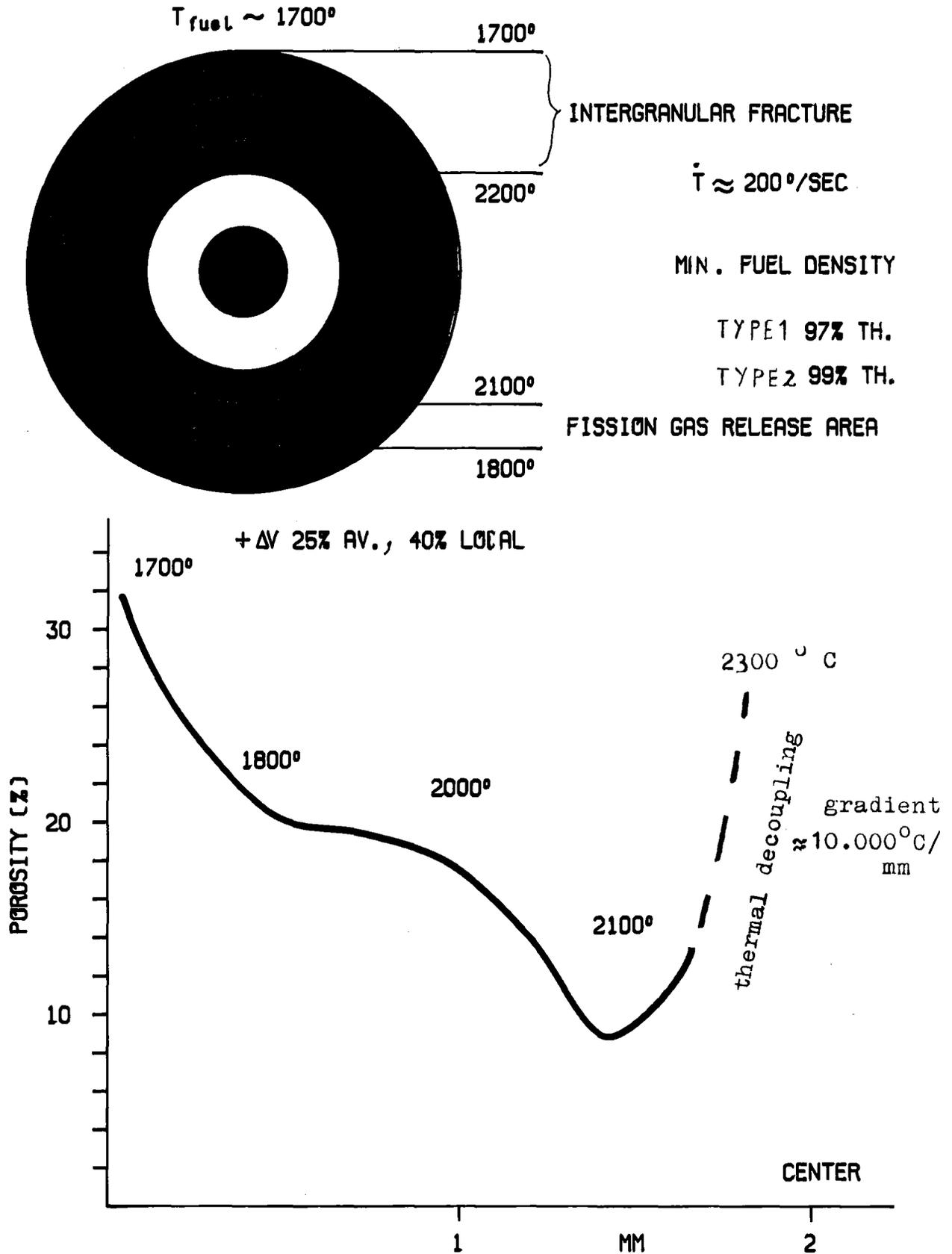


Abb. 14

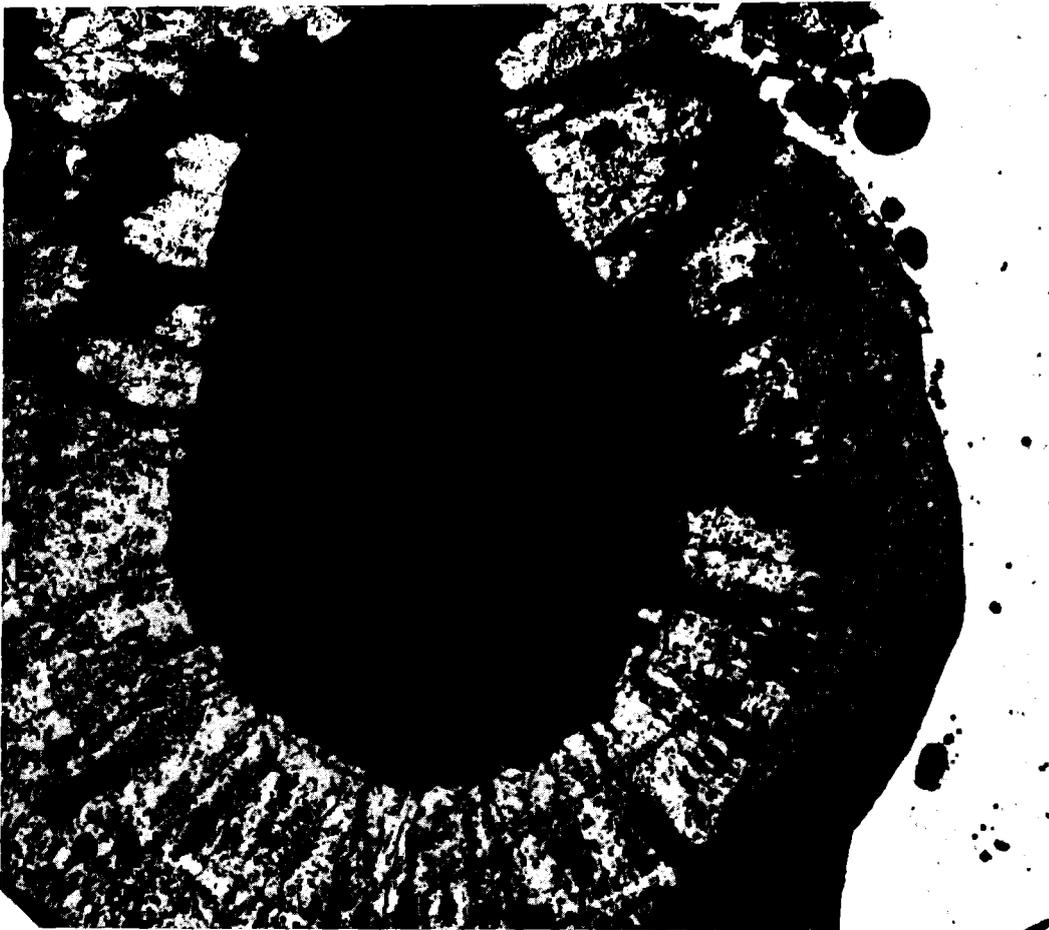
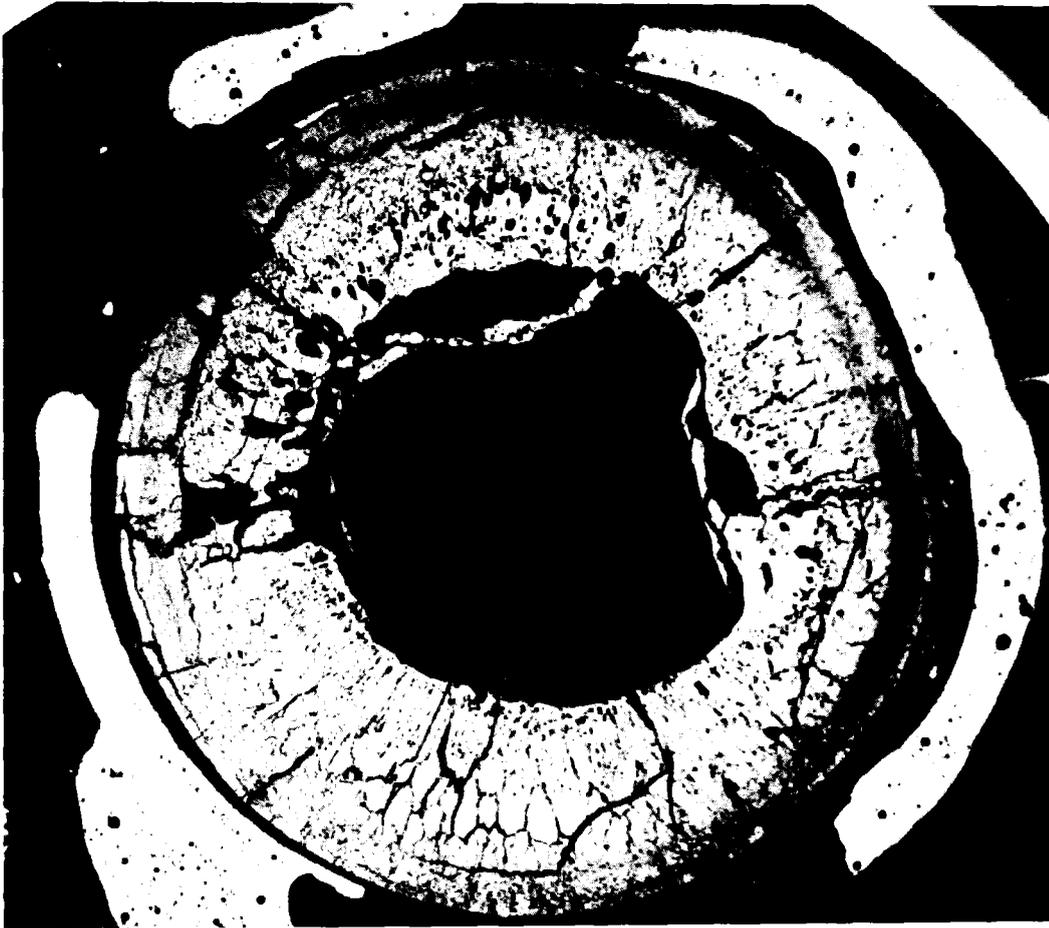


Abb. 15 Einfluß der Randkühlung auf d. Kornzerfall, L 15, ECN  
dunkle Randbereiche



HZ-47C-Mol 7C2-123/155-1a/6 12x



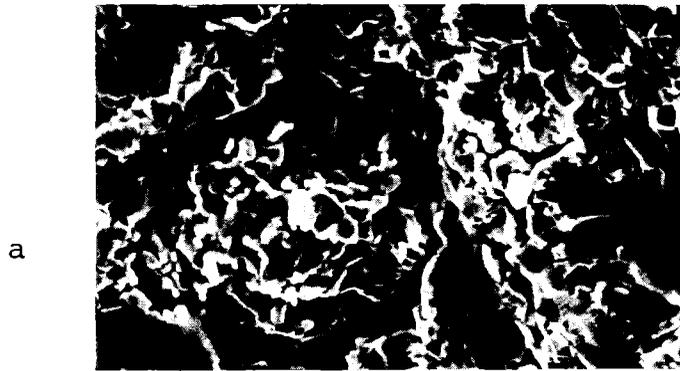
HZ-47C-Mol 7C2-122/141K-2/6 12x

Abb. 16 Massenausbreitung beim Niederschmelzen



Abb. 17 Mischung von Schmelze, dunkel, und Resten festen Brennstoffes, hell, Bildmitte.

1,5 - 2 kJ/g  $\text{UO}_2$ ;  $\beta$ - $\gamma$ -Radiografie



Blättchenform



Angenähert  
kugelsymmetrische  
Form, interkristallin  
und transkristallin  
gebrochen



Geschmolzener  
Brennstoff;  
Großkorn



Übergang von  
inter- zu trans-  
kristallinem  
Bruch

Abb. 18 Verschiedene Morphologien von  
oxidischem Brennstoff,  
a - c 1300 x, d 160 x  
Rastermikroskopie

## 11. Appendix

Some examples for the analytical application (Basis, s. chapter 9)

### 1. Prediction of non-steady state behaviour

For a given fuel type, its density and burnup, the rupture strength in fig 10 leads to the disintegration temperature in fig 11, by a vertical connection of the cross-point with the temperature axis. The strength curve has to be found by interpolation. This leads to the upper temperature boundary of the area, where both, intercrystalline and transcrystalline fracture, will be found. At this temperature, where the strength is zero, plasticity begins. If the ramps are fast, the strength curve is steep, and the transition from transcrystalline fracture to plasticity occurs without any intercrystalline fracture. Internal gas pressure may exceed the fuel strength during the incidental ramp and reduce the stability area.

If the resulting densities will be higher than 75% th.d. during the incident, higher quenching velocities will enlarge the stability area, as given in fig 11.

### 2. Analysis of experiments (s. two shadowed examples in fig.11)

#### a. Non-molten fuel

Selected specimens will be analyzed by Image Analysis and SEM, s. fig 2b, 3 and 12-14. As described under Appendix, chapter 1, the disintegration boundaries will be selected, and the rupture strength will be transferred to fig 10. This will lead to the minimum density, which should be exceeded in fuel elements, in order to minimize or avoid these disintegration effects, s. fig 2b, 3 and 12-14.

#### b. Molten fuel

Example: The as-fabricated density is  $10 \text{ kp/mm}^2$ . This leads to a plasticity temperature of  $1500 \text{ }^\circ\text{C}$ , fig 11. In photographs it appears as a porous ring, or band, depending on the burnup. The plasticity area and the molten zone, both show large grains. The melting boundary is indicated by shrinkage voids. The safest way to find the begin of melting is to apply a SEM-analysis. Depending on the type, density and burnup, the plasticity temperature maybe as low as  $1200 \text{ }^\circ\text{C}$ , which may be misred as melting boundary.

## 12. Anhang

### Abgeleitete Materialfunktionen und Materialdaten

#### 1. Inkubationsabbrand, Ref. S. 8, Abschnitt 4.1, und Abb.10

Der Inkubationsabbrand ist derjenige, bei dessen Überschreitung eine Härtung und eine Steigerung der Festigkeit auftritt.

Der Inkubationsabbrand  $A_I$  ist

$$A_I = \frac{\text{Poisson'sche Dichte}^{a)} - \text{Mittlere Nachsinterdichte}^{b)}}{\text{Mittlere Verdichtungsrate}^{c)}}$$

a) = Typenabhängig, 96 bis 100 % th.D. Querkontraktionszahl  $\approx 0,2$

b) = Mittlere stationäre Dichte nach der 1. Restrukturierung,  $\approx 94$  % th.D.

c) = % Verdichtung je % Abbrand, s.S. 20, oben. Mittelwert: 0,4.

2. Hydrostatischer Druck:  $1-2 \cdot 10^3$  MPA (1 MPA = 10 kp/cm<sup>2</sup>), oberhalb der Plastizitätstemperatur,  $T_{PL}$  typenabhängig: 1200°C bis 2300°C, s. Abb. 11.

#### 3. Temperaturgradienten bei der thermischen Entkopplung

Beginn Abschnitt 3, S. 5 und Abb. 13 und 14:  
3000°C bis 10.000°C/mm.

4. Elastizitätsmodul E, Schermodul G (Schubmodul), Kompressionsmodul M

---

Abschnitt 8, S. 18

Während des Betriebes bewegt sich der E-Modul, durch den lokalen Dichte-, Temperatur- und Abbrandzustand bedingt, innerhalb von etwa 1,5 Größenordnungen. Der Mindestwert liegt bei etwa 2000 kp/mm<sup>2</sup>. Diese Bandbreite verengt sich innerhalb des Reaktorbetriebstemperaturbereiches in der Reihenfolge der Typen 2, 1, 3 bis auf etwa den Faktor 2. Diese Schlußfolgerungen ergeben sich sowohl aus der Temperaturabhängigkeit /9/ als auch aus den ermittelten Verhältnissen der Inkubationsabbrände der verschiedenen Typen untereinander, welche ein direktes Maß für Elastizitäten sind. Die Verhältnisse der Festigkeiten bei 100 % th.D. der verschiedenen Typen weisen bei Streckgrenzenverhältnissen von nahe bei 1 auf eine Bandbreite der Querkontraktionszahl  $\mu$  zwischen 0,1 und 0,3 hin. Der Mittelwert von  $\mu=0,2$  ergibt dann für den Schermodul  $G = \frac{E}{2,4}$  und den Kompressionsmodul  $M = \frac{E}{1,8}$ . Diese Moduln sind auf die Festigkeiten der Abb. 10 anwendbar.

5. Proportionalität zwischen der Kleinlasthärte (Makro-  
härte)  $\delta_{HV}$  und der Festigkeit  $\delta_B$  in Abb. 10

---

$\delta_B = \delta_{HV} \cdot \sin \alpha \cdot \sin \varphi$ , wobei  $\alpha$  der Neigungswinkel der Vickerspyramide und  $\varphi$  der lokale Durchbiegewinkel sind. Beide Winkel sind klein und ihre Sinusverläufe nahezu linear ( $\sin \alpha = \text{const.}$ ).

6. Wärmeleitfähigkeit, Abschnitt 8

---

Die phänomenologischen Beobachtungen weisen auf wesentlich niedrigere Temperaturen bei transientenbedingten niedrigen

Dichten hin als sie mit herkömmlichen Formeln berechenbar sind. Die neue Morphologie ist stark radial ausgerichtet. Der stereologische Exponent ist praktisch gleich 1. Dann ist für Dichten unter 85 % th.D.

$$\lambda = \lambda_{th} (1-P)^n \quad n = 1$$

Bei hohen Dichten über 97 % th.D., sei es fabrikations- oder abbrandbedingt, gibt es stereologisch Fälle, bei denen der Exponent n größer als 1,5 ist oder wird.

In Fällen der Plastifizierung bei Temperaturen oberhalb des äquikohäsiven Punktes (s. Pkt. 2 dieses Anhanges) weist eine Reihe von beobachteten Phänomenen auf eine übersteigerte Wärmeleitfähigkeit hin. Hier sei zur möglichen Erklärung auf das Wiedemann-Franz'sche Gesetz hingewiesen, welches Exponenten  $n \gg 1$  erklären würde:

$$\frac{\lambda}{\chi} = \text{const} \cdot T \quad (T = \text{absolute Temperatur, } \chi = \text{elektrische Leitfähigkeit})$$

Die Ermittlung von anormalen Exponentengrößen n gegenüber herkömmlichen Wärmeleitfähigkeitsfunktionen nach der Bestrahlung ist durch stereologische Untersuchungen möglich. Auch diese Ergebnisse sind typenabhängig und von Fall zu Fall verschieden.

#### 7. Grenzflächenkinetik und Thermodiffusion,

Abb. 4, 5, 7b, 15, 16, 17

Die festkörperphysikalischen Hochtemperaturereignisse sind zu untersuchen. Aus den Punkten 2 und 3 dieses Anhanges ergeben sich bei Anwendung der Arrhenius'schen und Van't Hoff'schen Beziehungen bezüglich der molekularen Stoßzahlen Konsequenzen, die eine Reihe von Vorgängen in Millisekunden ablaufen lassen. Das betrifft die Gaskinetik, Brennstoff/Spaltprodukttrennungen (n-,  $\beta$ -,  $\gamma$ -Strahler), Dissoziationen und die Thermodiffusion.