

# KERNFORSCHUNGSZENTRUM

## KARLSRUHE

Juni 1975

KFK 2134

Institut für Material- und Festkörperforschung Projekt Schneller Brüter

UO<sub>2</sub> -PuO<sub>2</sub> -Brennstab- Kapselbestrahlungen der Versuchsgruppe FR2-5a. Auswertung von Nachbestrahlungsuntersuchungsergebnissen

W. Dienst, O. Götzmann, B. Schulz



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H.

KARLSRUHE

#### Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H. KARLSRUHE

#### KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

#### KFK 2134

Institut für Material- und Festkörperforschung Projekt Schneller Brüter

UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstab-Kapselbestrahlungen der Versuchsgruppe FR 2-5a. Auswertung von Nachbestrahlungsuntersuchungsergebnissen

von

W.Dienst, O.Götzmann, B.Schulz

unter Mitarbeit von J.Biel und G.Gausmann

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

.

Dieser Bericht beruht auf Bestrahlungsdaten und Untersuchungsergebnissen aus den Heissen Zellen, für deren Zusammenstellung und Aufbereitung bzw. Erarbeitung und Vorauswertung wir allen beteiligten Mitarbeitern von IMF und RBT danken, im besonderen den Herren D.Freund (IMF/III), H.Enderlein, W.Hellriegel, R.Pejsa, F.Weiser und W.D.Zeidler (RBT).

Als Manuskript eingereicht am 7.2.1975

#### Zusammenfassung

In der Kapselbestrahlungs-Versuchsgruppe FR 2-5a wurden kurze  $UO_2$ -Pu $O_2$ -Brennstäbe (Brennstofflänge 80 mm) mit einem Aussendurchmesser von 7 mm bei mittleren Stableistungen von 400 - 450 W/cm und mittleren Hüllaussentemperaturen von 500 - 550°C im thermischen Neutronenfluss bis zu Abbränden von 0,6, 1,8 und 5,0 At.-% (U+Pu) bestrahlt. Die Versuchsgruppe sollte einen unmittelbaren Vergleich des Brennstoffdichte-Einflusses für Brennstoffsäulen-Abschnitte verschiedener Sinterdichte ermöglichen. Die Brennstoffsäulen der  $UO_2$ -Pu $O_2$ -Brennstäbe waren daher in jeweils vier Dichtestufen von etwa 84, 87, 90 und 93% der theoretischen Dichte aufgebaut.

Die Untersuchung der Leervolumen-Umverteilung in den Brennstäben erfolgte an mikroskopischen Abbildungen von Brennstabquerschnitten durch Ermittlung von Rissbreiten und Zentralkanaldurchmessern sowie durch Vermessung der Porosität. Eine früher gefundene allgemeine Abhängigkeit der Zentralkanalquerschnittsfläche von der maximalen Stableistung konnte bestätigt werden.

Die Breite der radialen Risse am äusseren Brennstoffrand wurde zur Messung der bestrahlungsbedingten Nachsinterung des  $UO_2$ -Pu $O_2$ -Brennstoffes herangezogen. Unter Berücksichtigung einer möglichen zusätzlichen Rissverbreiterung durch Ausbrüche ergab sich, dass die bei der Nachsinterung erreichte Enddichte des Brennstoffes im Bereich von 92 – 94% TD lag. Sie war nach  $O_{0,6\%}$  Abbrand bereits erreicht.

Die Porositätsmessungen an Brennstabquerschnitten sollten vor allem eine mögliche Abhängigkeit der radialen Porositätsumverteilung von der ursprünglichen Brennstoffporosität nachweisen. Es zeigte sich, dass ausserhalb der Fehlergrenzen der Einzelmessungen keine solche Abhängigkeit nachweisbar war. Nach 5% Abbrand entsprachen die Ergebnisse weitgehend einem früher vorgeschlagenen, repräsentativen Porositätsprofil für U0<sub>2</sub>-Pu0<sub>2</sub> - Brennstäbe mittleren und hohen Abbrandes.

Die Vermessung der Brennstabdurchmesser nach Bestrahlung ergab, dass nach 5% Abbrand Hüllaufweitungen vorlagen, die durch eine mechanische Wechselwirkung mit dem Brennstoff verursacht sein müssen. Dafür spricht auch die erkennbare Abhängigkeit der Hülldehnung von der ursprünglichen Dichte der Brennstofftabletten. Zur Beurteilung der chemischen Verträglichkeit zwischen dem  $UO_2$ -Pu $O_2$ -Brennstoff mit einem ursprünglichen O/M-Verhältnis von 1,98±0,02 und der Hülle aus dem Cr-Ni-Stahl 1.4988 wurden an mikroskopischen Abbildungen von Brennstabquerschnitten die Hüllangriffstiefen vermessen. Sie lagen zwischen 20 und 100 µm, waren bereits nach 0,6% Abbrand in diesem Bereich beobachtbar und zeigten keine deutliche Zunahme mit dem Abbrand. Die zeitweise recht hoch, oberhalb 700<sup>O</sup>C, liegende Hüllinnentemperatur ergab keinen besonders tiefen Angriff. Ein gewisser Einfluss der ursprünglichen Brennstoffdichte auf den Hüllangriff liess sich nur bei niedrigem Abbrand erkennen.

Die vorgesehene Untersuchung der Pu/U-Entmischung im Brennstoff durch Elektronenstrahl-Mikrosonden-Analyse konnte noch nicht durchgeführt werden und wird in einem speziellen Bericht behandelt.

 $UO_2$ -PuO<sub>2</sub> fuel pin capsule-irradiations of the test series FR 2-5a. Evaluation of post-irradiation examination results.

#### Abstract

In the capsule-irradiation test series FR 2-5a, short  $UO_2-PuO_2$  fuel pins (80 mm fuel length) of 7 mm diameter were irradiated in a thermal neutron flux at mean rod powers of 400 - 450 W/cm and mean cladding surface temperatures of 500 - 550°C to burnups of 0.6, 1.8 and 5.0 at % (U+Pu). The test series was to compare the influence of the fuel density for fuel column sections of different sintered density. Therefore, the fuel columns were subdivided into four density steps each of about 84, 87, 90 and 93% TD.

Void volume redistribution in the fuel pins was examined in micrographs of cross-sections by measuring crack widths, central void diameters, and fuel porosity. A general dependence of the central void cross-section on the maximum rod power, which was given in preceding reports, could be confirmed.

The width of the radial cracks at the outer fuel rim was taken as a basis for measuring the irradiation-induced densification of the  $UO_2$ -PuO<sub>2</sub> fuel. The result, obtained in consideration of crack widening by sample preparation, was that the final fuel density after irradiation-induced densifica-

tion amounted to 92 - 94% TD and had already been reached after 0.6 at % burnup.

The porosity measurement on fuel cross-sections was to show a possible dependence of the radial porosity redistribution on the initial sintered density. It turned out, that such a dependence could not be ascertained considering the limits of inaccuracy. After 5 at % burnup, the results were largely consistent with a recently proposed, representative porosity profile for  $UO_2$ -PuO<sub>2</sub> fuel pins of medium and high burnup.

Examining the fuel pin diameters after irradiation showed permanent cladding strains after 5 at % burnup, which must be due to mechanical interaction with the fuel. That conclusion is supported by the observed dependence of the local pin diameter increase on the sintered density of the fuel pellets.

To judge of the chemical compatibility between the  $UO_2$ -PuO<sub>2</sub> fuel (initial O/M ratio 1.98±0.02) and the cladding of Cr-Ni-stainless steel 1.4988, the depths of chemical attack on the cladding inside was measured by micrographs of fuel pin cross-sections. The penetration depth was between 20 and 100  $\mu$ m, already observable in this range at 0.6 at % burn-up and showing no distinct increase with burnup. Temporary increase of the cladding inside temperature to a rather high level above 700<sup>o</sup>C did not result in a particularly deep attack. A certain influence of the fuel sintered density on the cladding attack could be observed only at low burnup.

Electron microprobe analysis scheduled for the examination of Pu/Uredistribution in the fuel could not yet start because of competing test series and, therefore, will be treated in a special report.

| Inhaltsverzeichnis |  |   |    |       |
|--------------------|--|---|----|-------|
| 1.                 | . Bestrahlungsversuchsdaten                        |   |    | 1     |
|                    | 1.1  | Allgemeines   |    | 1     |
|                    | 1.2  | Probenmaterial, Bestrahlungsbedingungen   |    | 1     |
|                    |  | Literatur, Tabelle, Abbildung   |    | 4 - 7 |
| 2.                 | . Leervolumen-Umverteilung im Brennstab (W.Dienst) |   |    | 9     |
|                    | 2.1  | Zentralkanalvolumen   |    | 11    |
|                    | 2.2  | Rissverbreiterung in der äusseren Brennstoffzone.<br>Bestrahlungsbedingte Nachsinterung |    | 13    |
|                    | 2.3  | Hüllaufweitung  |    | 16    |
|                    |  | Literatur, Abbildungen  | 17 | - 22  |
| 3.                 | . Porenanalyse (B.Schulz)                          |   |    | 23    |
|                    |  | Literatur, Abbildungen  | 26 | - 28  |
| 4.                 | Hü 1 1   | angriff durch den Brennstoff (O.Götzmann)   |    | 29    |
|                    |  | Abbildungen   | 35 | - 40  |

.

1. Bestrahlungsversuchsdaten

#### 1.1 Allgemeines

In den früheren Kapselbestrahlungs-Versuchsgruppen FR 2-4a /1.1, 1.2/ und FR 2-4b /1.3/ des Projektes Schneller Brüter wurden jeweils UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstäbe mit Brennstofftabletten verschiedener Sinterdichte (etwa 84 bzw. 90-92% TD) eingesetzt. Die Brennstäbe mit verschieden hoher Brennstoffdichte wurden jedoch entweder bis zu verschiedenen Abbränden oder unter sehr beträchtlicher Änderung der Bestrahlungsbedingungen (bei hohen Abbränden) bestrahlt. Dadurch konnte der Einfluss der Brennstoffdichte auf das Brennstabverhalten nur schwer und bei niedrigen Abbränden überhaupt nicht beurteilt werden.

Die Kapselbestrahlungs-Versuchsgruppe FR 2-5a sollte daher einen unmittelbaren Vergleich des Brennstoffdichte-Einflusses für Brennstoffsäulen-Abschnitte verschiedener Sinterdichte ermöglichen. Das gilt im besonderen für den Bereich niedrigen Abbrandes, in dem eine ausgeprägte Leervolumenverlagerung im Brennstab unter Änderung der Brennstoffporositätsverteilung stattfindet. Die Brennstoffsäulen der  $UO_2$ -Pu $O_2$ -Brennstäbe sind in jeweils vier Dichtestufen aufgebaut. Jede Stufe enthält drei Tabletten gleicher Sinterdichte Übereinander, so dass auch bei gegenseitiger Beeinflussung der Dichtestufen das spezifische Brennstabverhalten für die jeweils mittlere Tablette ungestört ausgebildet sein müsste.

Die Abbrände für die verschiedenen Bestrahlungskapseln wurden so gewählt, dass neben der Untersuchung relativ früher Bestrahlungsstadien auch der Anschluss an die zahlreich vorliegenden früheren Ergebnisse nach mittlerem Abbrand (4-6% U+Pu) gegeben ist.

#### 1.2 Probenmaterial, Bestrahlungsbedingungen

Abb.1.1 zeigt den Aufbau und die Abmessungen des Brennstabprüflings. Die Brennstoffsäule ist 80 mm lang und besteht aus vier Gruppen von je drei Tabletten, für die die Sinterdichten 84, 87, 90 und 93% TD ± 0,3% TD spezifiziert waren. In einem Prüflingstyp wurden die Tabletten in kontinuierlich ansteigenden Dichtestufen angeordnet, im anderen Typ lagen möglichst hohe Dichtestufen vor. Tabelle 1.1 enthält die bei der Herstellung tatsächlich eingestellten mittleren Sinterdichten für die Dichtestufen in den neun Brennstäben der Versuchsgruppe FR 2-5a. Die Tabelle ist - wie auch die folgenden Angaben - aus einem zusammenfassenden Bericht über alle Oxidbrennstab-Bestrahlungen im FR 2 entnommen /1.4/.

Der UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstoff enthielt 19,5 Gew.-% PuO<sub>2</sub> mit einer Pu-Isotopenzusammensetzung von 90,9% Pu-239, 8,2% Pu-240, 0,85% Pu-241 und 0,04% Pu-242. Das Uran hatte natürliche Zusammensetzung. Das O/M-Verhältnis betrug 1,98±0,02.

Die Brennstabhülle besteht aus dem austenitischen Cr-Ni-Stahl der Werkstoff-Nr. 1.4988, ihr Aussendurchmesser beträgt 7 mm, ihre Wanddicke 0,415±0,005 mm. Die Brennstoffsäule wird oben und unten durch ein Rhodiumplättchen abgeschlossen. An die Brennstoffsäule schliesst sich der Spaltgasraum mit einer Haltefeder an. Der diametrale Kaltspalt zwischen Brennstofftabletten und Hülle betrug 100±15 µm.

Eine gesonderte ausführliche Darstellung der Brennstab- und Bestrahlungskapsel-Auslegung, der Bestrahlungsbedingungen und des Bestrahlungsverlaufes im FR 2 sowie der Nachuntersuchung der bestrahlten Brennstäbe in den Heissen Zellen der GfK ist in Vorbereitung /1.5/. Der vorliegende Bericht behandelt die Auswertung von Nachuntersuchungsergebnissen, für die jeweils die genauen Bestrahlungsdaten der untersuchten Brennstäbe herangezogen wurden. Diese Daten brauchen hier nicht im einzelnen aufgeführt werden. Es erscheint ausreichend, die folgende Zusammenfassung zu geben:

Der Abbrand der Brennstäbe in den drei Kapselversuchseinsätzen der Versuchsgruppe FR 2-5a (KVE Nr.72, 73 und 74) betrug etwa 0,6 At.-%, 1,8 At.-% und 5,0 At.-% des (U+Pu)-Gehaltes. Die über die Bestrahlungsdauer gemittelten Stableistungen lagen etwa bei 400 - 450 W/cm, die mittleren Hüllaussentemperaturen bei 500 - 550°C. Die für einzelne Reaktorzyklen gemittelten Stableistungen und Hüllaussentemperaturen erreichten Werte bis zu 550 W/cm bzw. 650°C. Kurzzeitig ergaben sich noch höhere Werte.

#### Literatur

- /1.1/ Freund D., Dippel Th., Geithoff D., Weimar P. KFK 1523, April 1973
- /1.2/ Dienst W., Götzmann O., Kleykamp H., Ondracek G., Schulz B., Zimmermann H. KFK 1727, Januar 1973

- /1.3/ Weimar P., Dippel Th., Freund D. KFK 1952, März 1974
- /1.4/ Freund D. KFK 1376, Mai 1972
- /1.5/ Kummerer K., Weimar P. KFK 1886, in Vorbereitung

| KVE | Prüfling   | Brennstoff-                      |  |  |
|-----|--|----------------------------------|--|--|
| Nr. | Nr.  | -Dichtestufen                    | -Durchmesser   |  |
|     | and a start of the | % TD                             | mm   |  |
| 72  | 5A/4   | 89,74<br>83,74<br>93,04<br>86,83 | 6,117 ± 0,005<br>6,119 ± 0,006<br>6,125 ± 0,003<br>6,120 ± 0,504 |  |
|     | 5A/5   | 89,90<br>84,03<br>93,08<br>86,84 | 6,120 ± 0,003<br>6,120 ± 0,002<br>6,121 ± 0,007<br>6,118 ± 0,002 |  |
|     | 5A/2   | 83,87<br>86,43<br>89,44<br>92,60 | 6,118 ± 0,003<br>6,118 ± 0,002<br>6,122 ± 0,002<br>6,124 ± 0,001 |  |
| 73  | 5A/6   | 89,97<br>84,20<br>93,15<br>86,91 | 6,121 ± 0,001<br>6,119 ± 0,002<br>6,124 ± 0,002<br>6,120 ± 0,001 |  |
|     | 5A/7   | 90,27<br>84,28<br>93,32<br>87,06 | 6,119 ± 0,002<br>6,116 ± 0,002<br>6,127 ± 0,001<br>6,117 ± 0,002 |  |
|     | 5A/1   | 83,26<br>86,35<br>89,32<br>92,46 | 6,120 ± 0,005<br>6,120 ± 0,001<br>6,122 ± 0,002<br>6,121 ± 0,002 |  |
| 74  | 5A/8   | 90,44<br>84,37<br>93,38<br>87,36 | 6,117 ± 0,003<br>6,118 ± 0,002<br>6,125 ± 0,001<br>6,120 ± 0,002 |  |
|     | 5A/9   | 90,75<br>84,63<br>93,51<br>87,47 | 6,118 ± 0,001<br>6,116 ± 0,003<br>6,123 ± 0,002<br>6,118 ± 0,002 |  |
|     | 5A/3   | 83,64<br>86,62<br>89,64<br>92,91 | 6,119 ± 0,001<br>6,118 ± 0,002<br>6,120 ± 0,003<br>6,127 ± 0,001 |  |

Tab. 1.1 Brennstoffsinterdichte und -durchmesser in den FR 2-5a-Prüflingen

.



Abb. 1.1 Brennstabprüfling für die Bestrahlungsversuchsgruppe FR2-5a

## 2. Leervolumen-Umverteilung im Brennstab

W. Dienst

In früheren Berichten /2.1, 2.2/ wurde bereits auf einige Ergebnisse zur Leervolumen-Verteilung in bestrahlten U0<sub>2</sub>-Pu0<sub>2</sub>-Brennstäben eingegangen, die nicht unmittelbar die Porositätsverteilung betreffen (zur Porositätsverteilung s. Abschnitt 3). Es handelte sich um Messungen des Zentralkanaldurchmessers und der Außenrißbreiten im Brennstoff sowie um deren Abhängigkeit von der spezifischen Stableistung bzw.vom Abbrand.

Die Versuchsgruppe FR2-5a mit ihrer ausgeprägten Abstufung der Brennstoffsinterdichte und des Abbrandes (zu niedrigen Abbrandwerten hin) ist nun geeignet, die früheren Aussagen bezüglich des Porositätseinflusses und der Abbrandabhängigkeit zu überprüfen oder zu erweitern. Die Erweiterung erstreckt sich dabei auch auf die zusätzliche Auswertung von Meßergebnissen zur Aufweitung der Hülle durch Wechselwirkung mit dem Brennstoff.

#### 2.1 Zentralkanalvolumen

Abb. 2.1 zeigt die typische Brennstoffgefügestruktur in Brennstabquerschnitten aus der hier untersuchten Versuchsgruppe FR2-5a. Die Zentralkanalradien aller Brennstabquerschnitte wurden bereits im Zusammenhang mit der mikroskopischen Gefügeuntersuchung in den Heißen Zellen ermittelt. Abb. 2.2 gibt eine Darstellung der Abhängigkeit der Zentralkanalquerschnittsfläche von der maximalen Stableistung, die bei der Auswertung früherer Versuchsgruppen als besonders brauchbar befunden wurde. Die Zentralkanalquerschnittsfläche ist durch ihr Verhältnis zum Querschnitt des gesamten ursprünglichen Leervolumens (Brennstoffporen + Spalt zwischen Brennstoff und Hülle) dargestellt. Die im Verlauf der Bestrahlung maximal erreichte Stableistung für die Position des Brennstabquerschnittes ist bezüglich der Brennstoffporosität durch den Faktor  $1/1-2 P_{Schmierd}$ . normiert, wobei die "Schmierporosität"  $P_{Schmierd}$ . aus der relativen Schmierdichte als  $P_{Schmierd}$ .=(1-Schmierdichte) abgeleitet ist.

Das Diagramm enthält neben den Meßpunkten aus der Versuchsgruppe FR2-5a das Streuband der Meßwerte aus den früher ausgewerteten Versuchsgruppen. Dabei handelte es sich bei hohen normierten maximalen Stableistungen (≥ 750 W/cm) vorwiegend um Bestrahlungsversuche in thermischen Reaktoren, bei niedrigeren (≥ 750 W/cm) vorwiegend um DFR-Bestrahlungsversuche. Die FR2-5a-Meßpunkte zeigten keine systematische Gruppierung bezüglich der vier Brennstoffsinterdichte-Stufen von etwa 84, 87, 90 und 93% TD, so daß der dargestellte Zusammenhang unabhängig von der ursprünglichen Brennstoffporosität gültig erscheint. Damit hat sich auch die in dieser Hinsicht gewählte Normierung der Stableistung als gerechtfertigt erwiesen. Auf eine Kennzeichnung der Brennstoffsinterdichte als Parameter wurde mit Rücksicht auf die Übersichtlichkeit der Darstellung in Abb. 2.2 verzichtet.

Dagegen wurden die drei verwendeten Abbrandstufen gesondert bezeichnet, weil sich eine Abhängigkeit der Meßpunkteverteilung vom Abbrand andeutete. Die Meßpunkte scheinen sich bei den niedrigen Abbränden von 0,6 und 1,8% um den unteren Rand des eingezeichneten Streubandes zu gruppieren und erst bei 5% Abbrand etwa gleichmäßig um die Mittellinie dieses Bandes zu streuen. Daraus läßt sich schließen, daß der in Abb. 2.2 dargestellte Zusammenhang zwischen Stableistung und anteiligem Zentralkanalvolumen erst im Abbrandbereich oberhalb 2% allgemein gültig wird. Bis zu diesem Abbrand kann offenbar noch ein beträchtlicher Leervolumentransport zum Zentralkanal stattfinden, der schließlich besonders Leervolumenanteile aus dem Spalt zwischen Brennstoff und Hülle sowie aus der kühleren Außenzone des Brennstoffes betreffen dürfte.

Andererseits kann die Lage des schraffierten Ergebnisbandes für höhere Abbrände als bestätigt angesehen werden. Das gilt auch für die Breite der Streuung, obwohl sie von den FR2-5a-Meßpunkten nach 5% Abbrand deutlich überschritten wird. Denn die vergrößerte Streuung ist hier wahrscheinlich auf den untypischen Aufbau der Brennstoffsäule(in den FR2-5a-Brennstäben) mit in kurzen Abständen wechselnder Sinterdichte zurückzuführen. Dieser Aufbau gestattet eine gegenseitige Beeinflussung von Abschnitten verschiedener Sinterdichte durch axialen Leervolumentransport.

Die Frage nach der Verwendbarkeit der ermittelten Beziehung zwischen Stableistung, ursprünglichen Leervolumen und Zentralkanalquerschnitt kann folgendermaßen beantwortet werden: Wenn bei Brennstabverhaltens-Modellrechnungen für höhere Abbrände ein empirisch ermitteltes, allgemein gültiges Brennstoffporositätsprofil (anstelle eines sehr aufwendigen Porentransport-Rechenmodells) eingesetzt werden soll /2.3/, muß die Möglichkeit bestehen, den Zentralkanalradius für bestimmte Brennstabauslegungs- und Bestrahlungsbedingungen vorzugeben. Diese Möglichkeit wird durch die in Abb. 2.2 dargestellte Beziehung gegeben.

### 2.2 Rißverbreiterung in der äußeren Brennstoffzone. Bestrahlungsbedingte Nachsinterung

Abb. 2.1 zeigt deutlich stark verbreiterte äußere Abschnitte (am Brennstoffrand) der radialen Brennstoffrisse als besonderen Anteil des Leervolumens im Brennstab. Die Rißverbreiterung wurde in einem früheren Bericht u.a. mit einer bestrahlungsbedingten Nachsinterung in der äußeren Brennstoffzone in Zusammenhang gebracht /2.2/. Es zeigte sich jedoch, daß mit einem quantitativ erfaßbaren Einfluß der Nachsinterung nur bei niedrigem Abbrand (A < 3%) gerechnet werden kann. Bei höherem Abbrand schließen sich die Risse wieder durch Brennstoffschwellung und -verformung oder durch Verdampfungs-Kondensationstransport von Brennstoff und Spaltprodukten. Daher waren die niedrigen Abbrandstufen von etwa 0,6 und 1,8% in der Versuchsgruppe FR2-5a besonders geeignet für die Untersuchung der anfänglichen Rißverbreiterung.

Zur Ermittlung der Rißbreiten wurden Gefügebilder mit 15-facher Vergrösserung verwendet, die gerade den ganzen Brennstabquerschnitt erfassen (s.Abb. 2.1). Mit einer 20-fach vergrößernden Meßlupe wurden die Rißbreiten am Brennstoffumfang (unter Korrektur deutlich erkennbarer Ausbrüche) gemessen. Die Rißbreiten-Summen für jeden vermessenen Brennstabquerschnitt wurden mit dem Faktor  $1/2\pi d_{\text{Spalt}}$  normiert. Diese Normierung bietet sich an, weil zunächst eine Rißverbreiterung durch starke Spaltgasschwellung der inneren, heißeren Brennstoffzone erfolgt, die für die Rißbreiten-Summe maximal  $2\pi d_{\text{Spalt}}$  betragen kann, wenn  $d_{\text{Spalt}}$  die ursprüngliche Spaltbreite zwischen Brennstoff und Hülle ist /2.1/. Die Verhältniswerte Rißbreiten-Summe/ $2\pi d_{\text{Spalt}}$  müßten dann für die echten, nicht durch die Schliffpräparation vergrößerten Rißbreiten < 1,0 bleiben, wenn in der äußeren Brennstoffzone unter Bestrahlung keine Sinterschrumpfung und damit auch keine zusätzliche Rißverbreiterung stattgefunden hat.

Die an Querschnitten bestrahlter UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstäbe wirklich ermittelten Verhältniswerte lagen jedoch stets weit oberhalb 1,0. Abb. 2.3 zeigt eine aus zahlreichen Messungen in verschiedenen Bestrahlungsversuchsgruppen ermittelte obere Grenze für die normierte Rißbreiten-Summe von nicht nachsinterndem Brennstoff /s,a. 2.1, 2.2/. Ihre Lage stimmt im Bereich niedrigen Abbrandes befriedigend mit Porositätskorrekturfaktoren überein ( $\overline{PKF} \simeq 0,5$ ), die zur Berücksichtigung von Ausbrüchen bei der Brennstoffporositätsmessung ermittelt wurden /2.1/. Bei besserer Schliffqualität können die Meßwerte auch beträchtlich unterhalb der Grenzkurve in Abb. 2.3 liegen. Bei Meßwerten oberhalb der Grenzkurve muß in jedem Fall eine bestrahlungsbedingte Nachsinterung in der äußeren Brennstoffzone in Betracht gezogen werden.

Außer der Grenze für den Bereich bestrahlungsbedingter Nachsinterung sind in Abb. 2.3 die Meßpunkte für die normierten Rißbreiten-Summe in den vermessenen Querschnitten der FR2-5a-Proben eingetragen. Die ursprüngliche relative Dichte des gesinterten UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Brennstoffes ist dabei als Parameter angegeben. Grundsätzlich ist eine mit sinkender Dichte steigende Tendenz zur Nachsinterung zu erwarten. Die Lage der Meßpunkte zueinander läßt daher diese Folgerungen zu: Bei 0,6% Abbrand hat die Brennstoffschwellung noch nicht überall zum Schließen des Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle geführt, so daß der zusätzliche Nachsinterungseffekt in der Rißverbreiterung noch nicht allgemein erkennbar ist, wie der Meßpunkt für die niedrigste Brennstoffdichte zeigt. Bei 1,8% Abbrand ist die Rißverbreiterung durch Brennstoffschwellung weitgehend abgelaufen. Bei 5% Abbrand haben Vorgänge, die zum Schließen der Risse führen, die durch Nachsinterung bedingten Unterschiede bereits wieder verwischt.

Dementsprechend wurden für eine quantitative Abschätzung der bestrahlungsbedingten Nachsinterung zunächst die Meßpunkte bei 1,8% Abbrand herangezogen, Abb. 2.4 zeigt sie in einer Auftragung über der ursprünglichen relativen Brennstoffdichte. Der Vergleich mit den ebenfalls eingetragenen Meßpunkten nach 0,6% Abbrand ergibt jedoch, daß diese zur Auswertung gleichermaßen geeignet sind. Bei 84% TD Brennstoffdichte scheint die Rißverbreiterung durch Brennstoffschwellung auch nach 1,8% Abbrand noch nicht vollständig zu sein.

Der durch eine mittelnde Kurve dargestellte Verlauf der normierten Rißbreiten-Summe in Abhängigkeit von der ursprünglichen Brennstoffdichte läßt den Schluß zu, daß aufwärts bis zu einer Brennstoffdichte von 93% TD noch eine Rißverbreiterung durch bestrahlungsbedingte Nachsinterung stattfindet, die sich möglicherweise bis maximal 97% TD fortsetzen würde. Die beträchtliche Unterschreitung der allgemein gültigen Nachsinterungsnachweisgrenze in Abb. 2.3, die zunächst nur eine Nachsinterung für Brennstoffdichten < 90% TD auswies, wurde hier durch eine besonders hohe Qualität der zur Vermessung verwendeten Brennstoffschliffe in der Versuchsgruppe FR2-5a ermöglicht.

Aus Abb. 2.4 läßt sich die Nachsinterungs-Schrumpfung des Brennstoffes quantitativ entnehmen, wenn angenommen wird, daß die normierte Rißbreiten-Summe ohne Nachsinterung (bei ca. 97% TD) hier tatsächlich den sehr niedrigen, fast "theoretischen" Wert 1,05 haben würde. Dann ergeben sich mit  $2d_{\text{Spalt}} \approx 100 \ \mu\text{m}$  die folgenden relativen Schrumpfungen  $\delta U$  am Brennstoffumfang und Porositätsverminderung  $\delta P \approx 3 \ \delta U$  in der äußeren Brennstoffzone:

| Brennstoffdichte        | δU                        | δP           |
|-------------------------|---------------------------|--------------|
| <u>∕</u> ⊼ T <u>D</u> 7 | <u>/</u> <sup>~</sup> %_7 | <u>_</u> %_7 |
| 84                      | 3,4                       | 10           |
| 87                      | 2,2                       | 6,6          |
| 90                      | 1,2                       | 3,6          |
| 93                      | 0,5                       | 1,5          |

Da zwischen 0,6 und 1,8% Abbrand keine Zunahme der normierten Rißbreiten-Summe mehr stattfand (s. Abb. 2.4) können diese Werte als repräsentativ für den Zustand nach vollständigem Ablauf der Nachsinterung angesehen werden. Die Enddichte des Brennstoffes würde damit bei 93,2 bis 94,4% TD liegen, d.h. beträchtlich unterhalb der nach Abb. 2.4 maximal erreichbaren Dichte von etwa 97% TD. Diese Abweichung ist auf die Unsicherheit der normierten Rißbreiten-Summe ohne Nachsinterung zurückzuführen. Wird diese statt zu 1,05 zu 1,25 angenommenen (wie bei 94% TD in Abb. 2.4), so ergibt sich für die verschiedenen ursprünglichen Brennstoffdichten nach der Nachsinterung eine Enddichte von 92,3 bis 93,5% TD, und für 1,35 (wie bei 93% TD in Abb. 2.4) ergibt sich eine Enddichte von 91,7 bis 93% TD.

Demnach dürfte die Enddichte des Brennstoffes nach der Nachsinterung stets im Bereich von 92-94% TD liegen. Sie scheint bereits nach 0,6% Abbrand erreicht zu sein. Es liegt nahe, für die Nachsinterung eine Proportionalität der Schrumpfungsgeschwindigkeit mit der noch verfügbaren Porosität anzunehmen. Dann ergibt sich eine exponentielle Abnahme der Porosität in der Form

$$P = P_{Rest} + (P_0 - P_{Rest})e^{-A/A_{NS}}$$

 $P_0$  ist die ursprüngliche Brennstoffporosität,  $P_{Rest}$  die bei der Enddichte nach der Nachsinterung verbleibende Restporosität, A der Abbrand und  $A_{NS}$  eine Abbrandkonstante, die die Geschwindigkeit des Nachsintervorganges angibt. Nach dem obigen Ergebnis wäre dann  $P_{Rest} \approx 7\%$ und  $A_{NS} < 0,6\%$  einzusetzen.

#### 2.3 Hüllaufweitung

Auch durch Aufweitung der Hülle unter Bestrahlung ergibt sich eine Anderung des Leervolumens im Brennstab. Es handelt sich dabei nicht um eine Umverteilung des vorhandenen Leervolumens, wie sie in den vorangehenden Abschnitten behandelt wurde, sondern um eine Vergrößerung. Diese müßte in eine vollständige Leervolumenanalyse mit einbezogen werden. Wegen der breiten Fehlerintervalle der angewendeten Meßverfahren (bezügl. Porositätsmessung s. Abschnitt 3) erscheint es jedoch noch nicht möglich, den Verbleib des Leervolumenzuwachses im Brennstab (in Spalt, Rissen, Poren, Zentralkanal oder Spaltprodukteinlagerungen) nach einer Hüllaufweitung zu klären. Daher wird hier nur kurz auf den Nachweis von Hüllaufweitungen durch Messung von Brennstabdurchmesservergrößerungen eingegangen, ohne Folgerungen bezüglich einer entsprechenden Anderung der Leervolumenverteilung innerhalb des Brennstabes zu ziehen.

Nach dem niedrigsten Abbrand von etwa 0,6% zeigten die Brennstäbe keine Durchmesseränderung, die über die Fehlergrenzen des Meßverfahrens hinaus ging. An den Brennstäben, die bis etwa 1,8% Abbrand bestrahlt waren, wurden keine Durchmesserbestimmungen nach Bestrahlung durchgeführt. Nach etwa 5% Abbrand wurden an den Brennstäben eindeutig beträchtliche Durchmesservergrößerungen gefunden. Abb. 2.5 zeigt die Profile der Durchmesservergrößerung an den bis zu diesem Abbrand bestrahlten Brennstäben. Im Diagramm ist auch die Lage der Brennstofftabletten verschiedener Sinterdichte in den Brennstäben eingetragen. Die Hüllaufweitung erscheint auf den Bereich der Brennstoffsäule beschränkt und zeigt einen ausgeprägten Randeffekt durch allmähliche Verringerung zu den Brennstoffenden hin. Dadurch ist der Brennstoffdichteeinfluß an den beiden äußeren Brennstofftabletten schwer zu beurteilen. In der Mitte der Brennstoffsäule zeigt sich jeweils ein deutlicher Anstieg der Hülldehnung beim Übergang von niedriger (84 bis 87% TD) zu höherer Brennstoffsinterdichte (90 bis 93% TD). Der viel stärkere Anstieg der Hüllaufweitung beim Brennstab 5A/3, der in der untersten Position der für alle drei Brennstäbe gemeinsamen Bestrahlungskapsel bestrahlt wurde, ist wahrscheinlich auf besonders starke Stableistungsänderungen in dieser Position zwischen aufeinanderfolgenden Reaktorzyklen zurückzuführen /2.4/.

Aus den in Abb. 2.5 dargestellten Meßergebnissen lassen sich folgende Schlüsse ziehen: Nach 5% Abbrand wurden an  $UO_2$ -Pu $O_2$ -Brennstäben Hüllaufweitungen nachgewiesen, die wegen der Bestrahlung im thermischen Neutronenfluß nicht auf eine Hüllschwellung durch Porenbildung im Hüllmaterial zurückgeführt werden können. Bei den gewählten Brennstabauslegungs- und Bestrahlungsbedingungen war der Spaltgasdruck im Brennstab zu niedrig für eine entsprechende Kriechdehnung der Hülle. Die Hüllaufweitungen müssen daher durch eine mechanische Wechselwirkung der Hülle mit dem Brennstoff verursacht sein. Dafür spricht auch die beobachtete Abhängigkeit der Hülldurchmesservergrößerung von der ursprünglichen Sinterdichte der Brennstofftabletten. Bei 84% TD ist eine Hülldurchmesservergrößerung im Hinblick auf die Meßfehlergrenze (ca. 10  $\mu$ m) noch nicht eindeutig nachweisbar. Bei 87% TD ergibt sich eine meßbare Hülldurchmesservergrößerung, die dann mit steigender Brennstoffsinterdichte zunimmt und im vorliegenden Fall maximal 1,6% des Hülldurchmessers erreichte.

#### Literatur

- /2.1/ Dienst W., Götzmann O., Kleykamp H., Ondracek G., Schulz B., Zimmermann H. KFK 1727, Januar 1973
- /2.2/ Dienst W., Ehrlich K., Götzmann O., Hoffmann H., Kleykamp H., Schäfer L, Schulz B., Zimmermann H., KFK 1736, Juni 1973

- /2.3/ Schulz B. in KFK 1960, Juni 1974, Abschnitt 3
- /2.4/ Gerken A. KFK 1913, Februar 1974



Abb. 2.1: Querschnitt eines Brennstabes mit einer ursprünglichen UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Tablettendichte von 86,4% TD nach 0,6% Abbrand







Abb. 2.3

Normierte Rißbreitensummen in der Versuchsgruppe FR2-5a in Abhängigkeit vom Abbrand mit einer allgemeinen oberen Grenze für nicht nachsinternden Brennstoff

- 20 -



Abb. 2.4 Normierte Rißbreitensumme in Abhängigkeit von der Brennstoffdichte

- 21



Abb. 2.5 Profil der Hülldurchmesservergrößerung unter Bestrahlung (ca. 5% Abbrand) längs der Brennstoffsäule mit Tabletten verschiedener Dichte

- 22 -

3. Porenanalyse

B. Schulz

N N

Die Porenanalyse an Brennstabquerschnitten aus der Versuchsgruppe FR 2-5a verfolgte vor allem den Zweck, eine mögliche Abhängigkeit der Porositätsumverteilung von der Ausgangsporosität nachzuweisen. Ausgesucht wurden Prüflinge mit möglichst gleicher und gleichmässig gefahrener Stableistung (420 W/cm). Die Proben waren optimal präpariert und wurden unter optimalen Bedingungen /3.1/ vermessen.

Der Vergleich der Porositätsverteilung für verschiedene Ausgangsporosität des Brennstoffes ist dadurch kompliziert, dass der Durchmesser des Zentralkanals, der sich durch radiale Porenwanderung unter Bestrahlung bildet, mit der Ausgangsporosität steigt (Abb. 3.1). Daher wurde für die vergleichende Betrachtung eine Auftragung der radialen Porositätsprofile über der relativen Dicke des Brennstoffringes bis zur Brennstoffoberfläche gewählt (Abb. 3.2), die sich bereits früher für Brennstäbe mittleren Abbrandes bewährt hat /3.1, 3.2/.

Nach den verschiedenen Abbränden von 0,6, 1,8 und 5,0% wurde für die einzelnen Ausgangsdichten der in Abb. 3.2 wiedergegebene radiale Verlauf der Porosität gemessen. Jeder Punkt stellt eine Einzelmessung dar und ist nach /3.1/ mit einem mittleren Fehler von ± 3,5% Porosität behaftet. Wie aus Abb. 3.2 zu erkennen ist, ist eine Systematik bezüglich der Ausgangsdichte ausserhalb der Unsicherheit der Einzelmessung bei allen drei Abbränden nicht festzustellen. Daraus ist der Schluss zu ziehen, dass eine Abhängigkeit der Porositätsumverteilung unter Bestrahlung von der Ausgangsporosität experimentell nicht nachgewiesen werden konnte.

Die Ergebnisse für die Brennstoffrandzone (r' = 0,1) nach 0,6% Abbrand zeigen, dass die Brennstoffenddichte nach der bestrahlungsbedingten Nachsinterung, die sich aus anderen Messungen zu 92 - 94% TD ergab (s. Abschnitt 2.2), durch dieses Dichteintervall sinnvoll beschrieben erscheint. Im besonderen war für die Ausgangsdichte von 94% TD keine Porositätsverminderung unter Bestrahlung mehr nachweisbar.

Bei steigendem Abbrand zeigt Abb. 3.2 eine allgemeine Wiederzunahme der Porosität, die mindestens in der Brennstoffrandzone durch die partielle Ausheilung von Rissen unter Bildung neuer Poren bedingt sein dürfte. Das benötigte Leervolumen wird durch Verengung des Spaltes zwischen Brennstoff und Hülle oder durch Aufweitung der Brennstabhülle (s.Abschnitt 2.3) gewonnen. Nach 5% Abbrand entsprechen die Ergebnisse in Abb.3.2 weitgehend einem früher vorgeschlagenen, repräsentativen Porositätsprofil für U0<sub>2</sub>-Pu0<sub>2</sub>-Brennstäbe mittleren und hohen Abbrandes /3.1, 3.2/, das von der Ausgangsporosität des Brennstoffes unabhängig ist.

#### Literatur

- /3.1/ Ondracek G., Schulz B. Reaktortagung 1974, Berlin, S. 265
- /3.2/ Schulz B. in KFK 1960, Juni 1974, Abschnitt 3



Abb. 3.1: Querschnitte von Brennstäben mit ursprünglichen UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>-Tablettendichten von 92,6% TD (oben) und von 83,9% TD (unten) nach 0,6% Abbrand



Abb. 3.2: Gemessene Porositäten aufgetragen über dem normierten Radius r'=  $\frac{r_B - r}{r_B - r_Z}$ ;  $r_{B,Z}$  Brennstoff- bzw. Zentralkanalradius

4. Hüllangriff durch den Brennstoff

0. Götzmann

,

,

.

Die für die Begutachtung der Hüllangriffssituation interessierenden Auslegungs- und Bestrahlungsdaten sind in Abschnitt 1 schon genannt worden. Unsicher für die Bewertung sind die einzelnen Temperaturangaben, da einige Thermoelemente ausschieden. Die Hüllinnentemperaturen lagen mit Werten von über 700<sup>°</sup>C recht hoch und würden die Auswertung dieser Versuchsgruppe interessant machen, wenn sie verlässlich wären. Die in den Abbildungen angegebenen maximalen Hüllinnentemperaturen von 740 bzw. 800<sup>°</sup>C für die einzelnen Prüflinge wurden auf Grund einer kritischen Betrachtung der Messergebnisse, wie sie ähnlich auch für die Abbrandbestimmung gemacht wurde, berechnet. Als Parameter dürfte jedoch die Temperatur bei dieser Versuchsgruppe ausfallen, da für den massgeblichen Teil der Bestrahlungszeit die Hüllinnentemperatur in allen Prüflingen etwa gleich hoch war. Als interessante Parametervariation neben der Brennstoffdichte bleibt für diese Versuchsgruppe dann noch der Abbrand übrig.

Ergebnis: Bei allen Prüflingen konnten Hüllangriffe festgestellt werden, auch bei den Stäben, die nur bis zu einem Abbrand von etwa 0,6 At.% bestrahlt wurden. Die maximalen Hüllangriffstiefen lagen im Bereich zwischen 70 und 100 µm. In der Abb. 4.1 sind die in den einzelnen Schnittpositionen beobachteten Angriffstiefen in Abhängigkeit vom Abbrand aufgetragen. Ebenfalls aufgetragen in der Abb. 4.1 sind die Werte der Hüllinnentemperatur und die Bezeichnung der Prüflinge und Kapselversuchseinsätze, zu denen die gemessenen Hüllangriffstiefen gehören. Eine deutliche Zunahme des Hüllangriffs mit dem Abbrand oder mit der Bestrahlungszeit ist nicht zu erkennen. In der Abb. 4.2 wurde der Versuch unternommen, den Hüllangriff in Abhängigkeit von der Tablettendichte aufzutragen, wobei die Schnittpositionen mit "Sprüngen" in der Tablettendichtefolge ebenfalls berücksichtigt sind. Auch diese Darstellung lässt keine eindeutige Tendenz erkennen. Nach einer differenzierten Betrachtung der Schliffbilder bekommt man jedoch folgenden Eindruck: Bei niederem Abbrand wird im allgemeinen wenig Korngrenzenangriff an der Umhüllung der hochdichten (93% T.D.) Pellets gefunden (Abb. 4.3), während für niedrigere Brennstoffdichten (84 und 87% T.D.) ein stärkerer Angriff beobachtet wird (Abb. 4.4). Bei höheren Abbränden (ca.5,0 At.%) kann auch an den Umhüllungen der hochdichten Tabletten ein starker Angriff gesehen werden (Abb. 4.5). Im allgemeinen werden die grössten Eindringtiefen in den Bereichen der extremen Dichteübergänge gefunden.

- 31 -

Ebenfalls wurde beobachtet, dass in den Prüflingen mit niederem Abbrand (ca. 0,6 At.%) dünne Oxidschichten am Brennstoff zu finden sind (Abb.4.4). Zum Teil befinden sich diese Oxidschichten auch innerhalb der Reaktionszone und trennen Bereiche mit metallischen Reaktionsprodukten von der ursprüngliche Korngrenzenangriffszone (Abb. 4.6). Man hat den Eindruck, dass die metallischen Reaktionsprodukte die Oxidschicht durchdrungen haben. Bei den höheren Abbränden ist die oxydische Schicht am Brennstoff bzw. in der Reaktionszone verschwunden, ebenfalls zum grossen Teil die homogene Zone metallischer Reaktionsprodukte. Dafür findet man vermehrt metallische Ausscheidungen im hüllnahen Bereich des Brennstoffs (Abb. 4.5). In den Prüflingen mit Abbränden von ungefähr 1,8 At.% sind Anzeichen einer Übergangssituation zu beobachten. Es befinden sich noch kleinere Ansammlungen metallischer Reaktionsprodukte sind entlang Spalten in den Brennstoff eingedrungen (Abb. 4.8).

<u>Diskussion</u>: Die bisherigen Nachbestrahlungsergebnisse bei uns und auch anderswo haben gezeigt, dass die Höhe der Hüllinnentemperatur entscheidend die Hüllangriffstiefe bestimmt. Unter 500°C wird selten ein nennenswerter Angriff gefunden. Über 600°C können Eindringtiefen von 100 µm und mehr auftreten. Bei den hier ausgewerteten Versuchen war ein Temperatureinfluss auf die Angriffstiefe nicht zu erkennen. Möglicherweise liegt eine Erklärung darin, und das wäre ein positives Ergebnis dieser Untersuchungen, dass bei Temperaturen über 700°C die Kinetik des Hüllangriffs nicht mehr stark von der Höhe der Hüllinnentemperatur abhängt. Wahrscheinlicher ist jedoch, dass die angegebenen Temperaturen nicht repräsentativ sind für die Temperaturgeschichte der einzelnen Prüflinge, sondern dass während der für den Angriffsumfang entscheidenden Bestrahlungszeit die Temperaturen in allen Prüflingen etwa gleich hoch (ca. 700°C) waren.

Der Abbrand wurde in zwei Stufen in einem Bereich von 0,6 bis 5,0 At.% variiert. Eine Abhängigkeit der Angriffstiefe vom Abbrand ist aus den Ergebnissen nicht herauszulesen (vergl. Abb. 4.1). Die Annahme einer linearen Abhängigkeit, wie sie theoretisch schon in Erwägung gezogen wurde, ist für die vorliegenden Ergebnisse nicht haltbar. Die Tiefe des Angriffs war für alle Abbrände ungefähr gleich gross. Interessant bei diesen Untersuchungen war die schon beschriebene Beobachtung, dass die Reaktionsproduktzone sich mit dem Abbrand bzw. der Bestrahlungszeit ändert. Zunächst entsteht eine dünne Oxidschicht an der Hülle. Möglicherweise unter Einwirkung der Spaltprodukte löst sie sich von der Hülle und die Reaktion geht entlang den Korngrenzen des Hüllmaterials weiter. Es entstehen oxydische und metallische Reaktionsprodukte, wobei die metallischen Reaktionsprodukte sehr wahrscheinlich die nichtoxidierten und chromverarmten Reste des Hüllmaterials sind. Diese sammeln sich im heisseren Bereich der Reaktionszone an und dringen durch die ursprüngliche Oxidschicht zum Brennstoff durch (vergl. Abb. 4.5). Im weiteren Verlauf der Bestrahlung wandern die metallischen Reaktionsprodukte in den Brennstoff ein (Oberflächendiffusion). Zunächst geht dieser Vorgang bevorzugt entlang den Rissen und Spalten des Brennstoffs vor sich. Nach längerer Bestrahlungszeit liegen jedoch die metallischen Reaktionsprodukte relativ homogen verteilt als kleine Ausscheidungen in der äusseren Brennstoffzone vor.

Ebenfalls interessant bei diesen Untersuchungen erscheint die Beobachtung, dass relativ starke Hüllangriffe in den Brennstabbereichen gefunden wurden, wo der Brennstoff nicht sehr dicht an der Hülle anlag. Das war der Fall bei den niederen Brennstoffdichten, in den Bereichen der extremen Dichteübergänge und an Stellen, an denen aus irgendeinem Grunde Hohlräume zwischen dem an sich sonst dichten Brennstoff und der Hülle entstanden sind. Der stärkste Angriff dieser Versuchsgruppe wurde im Bereich hochdichten Brennstoffs gegenüber einem Loch im Brennstoff gefunden (Abb. 4.9). Diese Beobachtungen lassen darauf schliessen, dass starke Angriffe in Bereichen auftreten, in denen reaktive Spaltprodukte an der Hülle kondensieren können. Seltsamerweise werden jedoch selten gegenüber der Umgebung vergrösserte Angriffstiefen an Brennstoffrissen oder Spalten, die aus den heissen Brennstoffgebieten kommen, gefunden.

Die Brennstoffdichte selbst scheint nur bei niederen Abbränden als Parameter für den Hüllangriff eine Rolle zu spielen. Bei höheren Abbränden macht sich der Dichteeinfluss nicht bemerkbar. Die starken Angriffe, die in den Prüflingen mit niederem Abbrand im Bereich niederer Brennstoffdichte gefunden wurden, können möglicherweise auch darauf zurückgeführt werden, dass die Brennstoffoberfläche heisser war als in den Bereichen hoher Dichte. In den Bereichen mit niederer Dichte geht die Zone starken Kornwachstums bis an die Brennstoffoberfläche. Bei hoher Brennstoffdichte ist das nicht der Fall. Auf einen Unterschied in der Brennstoffoberflächentemperatur könnte daraus geschlossen werden. Die Hüllinnenfläche braucht deshalb aber nicht auf höherer Temperatur gewesen zu sein, da auch der Spalt zwischen Brennstoff und Hülle im Bereich niederer Dichte grösser ist. Jedoch wird dadurch ein stärkerer Verdampfungs-Kondensations-Prozess möglich.



Abb. 4.1 Hüllangriffstiefe über Abbrand





- 500x HZ-3c-72-5A2-4/8
- Abb.4.3 : Geringer Angriff bei hochdichtem Brennstoff (93 % TD) und geringem Abbrand (~o,6 At %)



- 40 µm 500x HZ-3c-72-5A2-1/8
- Abb.4.4 : Starker Angriff bei niederdichtem Brennstoff (84 % TD) und geringem Abbrand (~ 0,6 At %) Oxidschicht am Brennstoff

5



HZ-3c-74-5A/8-5/11 500 x

\_40 µm\_

Abb.4.5 : Starker Angriff bei hochdichtem Brennstoff (93,4 % TD) und höherem Abbrand (~5 At %)



Abb. 4.6 : Teilung der Reaktionszone durch Oxidschicht Abbrand ~o,6 At %; Brennstoffdichte 86,4 % TD

I.



500x HZ 3c-73-5A/6-3/9

Abb.4.7 : Teilweise aufgelöste Reaktionszone. Abbrand  $\sim$  1,8 At %; Brennstoffdichte 84,2 % TD



HZ 3c-73-5A/6-3/10 200x \_100 µm\_

Abb.4.8 : Teilweise aufgelöste Reaktionszone. Metal-lische Produkte dringen entlang Rissen im Brennstoff ein. Abbrand ~1,8 At %; Brenn-stoffdichte 84,2 % TD

1

1



Abb. 4.9 : Größter gemessener Hüllangriff (100 µm) dieser Versuchsgruppe gegenüber Hohlraum im Brennstoff Abbrand ∿ 5 At %; Brennstoffdichte 93 % TD