

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

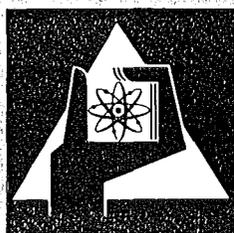
Mai 1974

KFK 1993

Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Schneller Brüter

**Die Änderung der mechanischen Eigenschaften von
Hüllmaterialien für Brennstäbe von Kernreaktoren
nach Reaktion mit karbidischen Brennstoffen**

Y. Sarikaya, O. Götzmann



**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

B e r i c h t i g u n g

Unterschrift zur Abb. 29 auf Seite 44 muß heißen:

Abb. 29: Härteprofil von 1.4988-Stahl-Proben nach
Glühung mit stöchiometrischem UC

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1993

Institut für Material- und Festkörperforschung
Projekt Schneller Brüter

Die Änderung der mechanischen Eigenschaften von
Hüllmaterialien für Brennstäbe von Kernreaktoren
nach Reaktion mit karbidischen Brennstoffen

von

Y. Sarikaya

O. Götzmann

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

Zusammenfassung

Anders als beim Hüllangriff durch oxidischen Brennstoff bewirkt der Angriff durch karbidischen Brennstoff keine Abnahme der Hüllstärke, sondern eine Änderung der mechanischen Eigenschaften des Hüllmaterials. Es war das Ziel dieser Arbeit, die Änderung der mechanischen Eigenschaften von verschiedenen Hüllmaterialien (austenitische Stähle und Vanadinlegierungen) zu messen, die aufgrund der Aufkohlung durch karbidischen Brennstoff verursacht wird. Bei den Versuchen wurde sowohl Gasbindung (Argon) wie auch Flüssigmetallbindung (Natrium) angewendet. Als karbidischer Brennstoff diente Urkarbid.

Die Ergebnisse werden durch viele Diagramme von den mechanischen Kurzeigenschaftenswerten der Materialien (Streckgrenze, Bruchfestigkeit und Bruchdehnung) dargestellt. Bei Temperaturen um 600°C wird die stärkste Wirkung auf die Eigenschaften der Hüllmaterialien infolge der Aufkohlung gemessen. Die Bruchdehnung bei Raumtemperaturen für den 1.4988 Stahl z.B., verringert sich durch die Aufkohlung von 42 % auf 6,3 % (bei Natrium-Bindung). Die Warmbruchdehnung bei 600°C betrug jedoch noch 12,2 % gegenüber 30 % der nicht korrodierten Proben. Die Vanadinlegierung VTi3Si1 erfuhr eine Erniedrigung der Bruchdehnung von 15 % auf 0,4 % bei Raumtemperatur. Bei 600°C wurde jedoch noch eine Warmbruchdehnung von 15,5 % gemessen, praktisch der gleiche Wert wie für die unkorrodierten Proben.

Bei tieferen Temperaturen ist die Kohlenstoffaufnahme der Hülle noch gering. Bei höheren Temperaturen findet eine Wiederauflösung bzw. Vergrößerung der Ausscheidungen im Hüllmaterial statt. Die beschleunigende Wirkung des Natriums auf den Kohlenstofftransport vom Brennstoff zur Hülle wird besonders merklich bei höheren Temperaturen ($> 600^{\circ}\text{C}$) und hohen Kohlenstoffgehalten des Brennstoffs (~ 5 äquiv. Gew.-% Kohlenstoff).

Die untersuchten austenitischen Stähle und die Vanadinlegierung VTi3Si scheinen nach diesen Untersuchungen brauchbare Hüllmaterialien für Karbidstäbe zu sein.

21.5.1974

The Change in Mechanical Properties of Cladding Materials for
Fuel Pins of Nuclear Reactors after Reactions with Carbide Fuels

Abstract

Unlike the attack in an oxide fuel pin, the chemical reactions between carbide fuel and its cladding do not cause a reduction in the thickness of the cladding wall. However, a change in the mechanical properties of the cladding materials is to be expected. It was the goal of this work to investigate the changes in mechanical properties of various cladding materials (austenitic stainless steels and vanadium alloys) caused by carburization of the cladding by carbide fuels. Gas bonding (argon) as well as liquid metal bonding (sodium) was used in the tests. Uranium carbide served as carbide fuel.

The results are given by many diagrams on the mechanical short time properties of the materials, i.e., the yield strength, the rupture strength, and the rupture elongation. At temperatures around 600°C , the greatest effect on the mechanical properties of the cladding materials due to the uptake of carbon is measured. The rupture elongation at room temperature for the steel of type 1.4988, e.g., is lowered by carburization from 42 % to 6.3 % (with sodium bonding). The high temperature rupture elongation at 600°C , however, still reached 12.2 % compared to 30 % of the uncorroded specimens. The vanadium alloy VTi₃Si₁ experienced a reduction of the rupture elongation from 15 % to 0.4 % at room temperature. At 600°C , however, a high temperature elongation of 15.5 %, practically the same value as for uncorroded specimens, could be measured.

At lower temperatures, the uptake of carbon by the cladding is still low. At higher temperatures, a resolution and enlargement of the precipitates take place. The effect of sodium bonding on the accelerated transport of carbon from the fuel to the cladding was especially noticeable at higher temperatures ($> 600^{\circ}\text{C}$) and at higher carbon contents of the fuel (~ 5 equiv. wt.% carbon).

According to these investigations the austenitic stainless steels and the vanadium alloy VTi₃Si₁ seem to be useful cladding materials for carbide pins.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Versuchsmaterialien	3
2.1 Hüllmaterialien	
2.2 Kernbrennstoffe	
3. Versuchsdurchführung	5
4. Ergebnisse	9
4.1 Allgemeines	
4.2 Stahl vom Typ 1.4988	
4.3 Stahl vom Typ 1.4919 (AISI 316)	18
4.4 Stahl vom Typ 1.4948 (AISI 304)	25
4.5 Vanadinlegierungen	32
4.6 Einfluß des Kohlenstoffgehaltes des Brennstoffes auf die Aufkohlung der Hüllmaterialien	39
4.7 Vergleich des Verhaltens der verschiedenen Hüllmaterialien nach Auslagerung mit karbidischem Brennstoff	50
5. Schlußbemerkungen	54
Literaturverzeichnis	58

Verzeichnis der Abbildungen

	Seite
Abb. 1 : Versuchsanordnung	6
Abb. 2 : Zunahme des Kohlenstoffgehaltes und des Gewichtes von 1.4988-Stahl-Proben nach Glühung mit UC [bei 500, 600 und 700°C mit Argon- bzw. Natriumbindung]	10
Abb. 3 : Raumtemperatur-Eigenschaften von 1.4988-Stahlproben nach Glühung mit und ohne UC	12
Abb. 4 : Hochtemperatur-Eigenschaften von 1.4988-Stahlproben nach Glühung mit und ohne UC	13
Abb. 5 : Härteprofile von 1.4988-Stahlproben nach Glühung mit UC bei Argonbindung	14
Abb. 6 : Härteprofil von 1.4988-Stahlproben nach Glühung mit UC bei Natriumbindung	15
Abb. 7 : Unterschiedliche Aufkohlung von 1.4988-Stahl bei 500 und 600°C nach 1000 h durch UC(2) (obere Reihe) und durch UC(1) bei 600°C nach 1000 h (links) jeweils mit Argon-Bindung geätzt (5 % NH ₃ -Lösung)	16
Abb. 8 : Aufkohlung bei 700°C nach 1000 h durch UC(2) mit Argon-Bindung (links) und Natrium-Bindung (rechts) geätzt (5 % NH ₃ -Lösung)	17
Abb. 9 : Zunahme des Kohlenstoffgehalts und des Gewichts von 316-Stahlproben nach Glühung mit UC	19
Abb.10 : Raumtemperatur-Eigenschaften von 316-Stahlproben nach Glühung mit und ohne UC	20
Abb.11 : Hochtemperatur-Eigenschaften von 316-Stahlproben nach Glühung mit und ohne UC	21
Abb.12 : Härteprofile von 316-Stahlproben nach Glühung mit UC bei Argonbindung	22
Abb.13 : Härteprofile von 316-Stahlproben nach Glühung mit UC bei Natriumbindung	23
Abb.14 : Aufkohlung von 316-Stahl bei 600°C und 1000 h durch UC(2) (obere Reihe) mit Argon-Bindung und Natrium-Bindung sowie durch UC(1) (links) mit Na-Bindung geätzt (5 % NH ₃ -Lösung)	24
Abb.15 : Zunahme des Kohlenstoffgehalts und des Gewichts von 304-Stahlproben nach Glühung mit UC	26
Abb.16 : Raumtemperatur-Eigenschaften von 304-Stahlproben nach Glühung mit und ohne UC	27

	Seite
Abb. 17 : Hochtemperatur-Eigenschaften von 304-Stahlproben nach Glühung mit und ohne UC	28
Abb. 18 : Härteprofile von 304-Stahlproben nach Glühung mit UC bei Argonbindung	29
Abb. 19 : Härteprofile von 304-Stahlproben nach Glühung mit UC bei Natriumbindung	30
Abb. 20 : Ausscheidungsstruktur am Rand von 304-Stahlproben nach Glühung mit UC(2) bei 600°C (obere Reihe) und 500°C (links) bei Argon- bzw. Natriumbindung, geätzt (5 % NH ₃ -Lösung)	31
Abb. 21 : Zunahme des Kohlenstoffgehalts und des Gewichts von Vanadinlegierungs-Proben nach Glühung mit UC	34
Abb. 22 : Raumtemperatur-Eigenschaften von Vanadinlegierungen nach Glühung mit und ohne UC	35
Abb. 23 : Hochtemperatureigenschaften von Vanadinlegierungen nach Glühung mit und ohne UC	36
Abb. 24 : Härteprofile von VTi ₃ Si ₁ -Proben nach Glühung mit und ohne UC bei 600°C	37
Abb. 25 : Härteprofile von Vanadinlegierungsproben nach Glühung mit und ohne UC bei 800°C	38
Abb. 26 : Zunahme des Kohlenstoffgehalts von 1.4988-Stahl-Proben nach Glühung mit UC verschiedener Zusammensetzung bei 600°C über 1000 Stunden	40
Abb. 27 : Raumtemperatureigenschaften von 1.4988-Stahl-Proben nach Glühung mit UC verschiedener Zusammensetzung	42
Abb. 28 : Hochtemperatureigenschaften (600°C) von 1.4988-Stahl-Proben nach Glühung bei 600°C mit UC verschiedener Zusammensetzung	43
Abb. 29 : Härteprofil von 1.4988-Stahl-Proben nach Glühung mit stöchiometrischem UC	44
Abb. 30 : Härteprofil von 1.4988-Stahl-Proben nach Glühung mit überstöchiometrischem UC	45
Abb. 31 : Zunahme des Kohlenstoffgehalts und des Gewichts von VTi ₃ Si ₁ -Proben nach Glühung bei 600°C mit UC verschiedener Zusammensetzung	46
Abb. 32 : Raumtemperatur-Eigenschaften von VTi ₃ Si ₁ -Proben nach Glühung mit UC verschiedener Zusammensetzung bei 800°C	47

	Seite
Abb. 33 : Hochtemperatureigenschaften (700°C) von VTi3Si1-Proben nach Glühung bei 800°C mit UC verschiedener Zusammensetzung	48
Abb. 34 : Härteprofil von VTi3Si1-Proben nach Glühung bei 800°C mit und ohne überstöchiometrischem UC	49
Abb. 35 : Kohlenstoffgehalt verschiedener Hüllmaterialien vor und nach der Glühung mit UC bei 600°C	51
Abb. 36 : Raumtemperatureigenschaften verschiedener Hüllmaterialien nach Glühung mit und ohne UC bei 600°C	53
Abb. 37 : Bruchdehnungswerte von Hüllmaterialproben nach Glühung mit UC	55
Abb. 38 : Fließgrenzen von Hüllmaterialproben nach Glühung mit UC	56
Abb. 39 : Bruchfestigkeiten von Hüllmaterialien nach Glühung mit UC	57

1. Einleitung

Die chemische Verträglichkeit von Brennstoff und Hülle stellt einen entscheidenden Faktor für die Standzeit eines Brennelementes dar. Die Reaktionen, die zwischen dem Brennstoff und der Hülle bei Betriebsbedingungen stattfinden, können die mechanischen Eigenschaften des Hüllmaterials so verändern, daß die Belastbarkeit der Hülle unter eine zulässige Grenze fällt. Uran-Plutonium-Monokarbid wird wegen verschiedener günstiger Eigenschaften, wie hohe Metaldichte und hohe thermische Leitfähigkeit, als aussichtsreicher Brennstoff für zukünftige Reaktoren betrachtet. Neben dem ungünstigen Schwellverhalten unter Bestrahlung, ist es auch die Verträglichkeit mit möglichen Hüllmaterialien, die seine Verwendbarkeit als Reaktorbrandstoff fraglich erscheinen läßt. Obwohl nach den thermodynamischen Daten auch einphasiger karbidischer Brennstoff mit Stahl oder Vanadinumhüllungen nicht stabil ist, glaubt man, daß das wesentliche Problem in der nichtstöchiometrischen Zusammensetzung des Brennstoffes liegt. UC und auch (U,Pu)C hat unter 1000°C ein enges Homogenitätsgebiet. Da zudem noch Sauerstoff und Stickstoff als Kohlenstoffäquivalente in das Karbidgitter eingebaut werden, hat man es bei industrieller Herstellung und üblicher, d.h. ohne allzu großen Aufwand vorgenommener Handhabung, fast durchweg mit einem zweiphasigen Produkt zu tun. Bei unterstöchiometrischer Zusammensetzung liegt freies Metall als zweite Phase vor. Bei überstöchiometrischer Zusammensetzung ist es M_2C_3 oder MC_2 . Die zweite Phase erhöht das Reaktionspotential erheblich gegenüber dem einphasigen Produkt. Unterstöchiometrischer Brennstoff wird von vornherein ausgeschlossen, da man in Verbindung mit Stählen eutektische Reaktionen befürchtet. Beim überstöchiometrischen Brennstoff ist eine raschere Aufkohlung der Hülle möglich. Man hat deshalb schon früh versucht, durch geeignete Zusätze das Kohlenstoffpotential im Brennstoff auf ein für die Hülle erträgliches Niveau zu stabilisieren. Untersuchungen

bei uns [1] - allerdings bei höheren Temperaturen (900°C) - haben gezeigt, daß eine Stabilisierung nicht immer von Vorteil zu sein braucht.

Obwohl in den Reaktoren ein Uran-Plutonium-Mischkarbid eingesetzt werden wird, wurde aus Gründen der einfacheren Durchführung ein Urankarbid als Brennstoff gewählt. Der Unterschied zwischen Urankarbid und einem Uran-Plutonium-Mischkarbid liegt im wesentlichen darin, daß bei einem überstöchiometrischen Kohlenstoffgehalt im Urankarbid das Dikarbid als zweite Phase vorliegt, während im Uran-Plutonium-Mischkarbid mit größerer Wahrscheinlichkeit ein Sesquikarbid zu finden sein wird. Das Kohlenstoffpotential der Sesquikarbidphase ist geringer als das der Dikarbidphase. Das hat zur Folge, daß Reaktionen zwischen der Hülle und einem Brennstoff, in dem sich ein Dikarbid als zweite Phase befindet, wahrscheinlicher sind als mit einem Brennstoff, in dem sich nur das Sesquikarbid als zweite Phase befindet. Da jedoch während des Reaktorbetriebs infolge des Temperaturgradienten über den Brennstoffquerschnitt an der kälteren Hülle ein höheres Kohlenstoffpotential aufgebaut wird als es der Brennstoffzusammensetzung entspricht, werden durch die Verwendung eines Brennstoffes mit UC_2 als zweiter Phase die Kohlenstoffpotentialverhältnisse wie sie sich unter Bestrahlung an der Hülle einstellen, besser simuliert.

Da es sich in anderen Untersuchungen erwiesen hat, daß die Spaltprodukte bei den Reaktionen zwischen karbidischem Brennstoff und seiner metallischen Umhüllung keine Rolle spielen [2, 3], wurden bei diesen Versuchen dem Brennstoff keine Spaltproduktelemente zugesetzt.

2. Versuchsmaterialien

2.1 Hüllmaterialien

Die Auswahl der Hüllmaterialtypen wurde unter verschiedenen Gesichtspunkten vorgenommen:

1. Die Ergebnisse sollten relevant sein für Hüllmaterialtypen, die für die Verwendung ernsthaft in Betracht gezogen werden.
2. Ein möglicher Einfluß der Hüllmaterialzusammensetzung sollte erkennbar sein.
3. Neue Materialentwicklungen sollten berücksichtigt werden.

Unter diesen Voraussetzungen wurden die drei austenitischen Stähle 1.4988, 1.4919 und 1.4948 sowie die Vanadinlegierungen VTi3Si1 und VTi2Cr15 ausgewählt. Der Stahl vom Typ 1.4988 wird in Deutschland als Hüllwerkstoff für den Schnellen Brüter zusammen mit dem 1.4981 favorisiert. Der 1.4919 entspricht dem amerikanischen Stahl 316, der in den Vereinigten Staaten als Hüllmaterial für den Schnellen Brüter in Betracht gezogen wird. Der 1.4948-Stahl entspricht dem amerikanischen Typ 304. Er ist nicht stabilisiert und hat im Gegensatz zum 316 keinen Molybdänzusatz. Er wird in Amerika neben dem 316 untersucht. An der Vanadinlegierung VTi3Si1 sind in Deutschland umfangreiche Untersuchungen durchgeführt worden im Hinblick auf ihre Verwendung beim Gasbrüter. Die Zusammensetzung der Stähle ist in der Tabelle 1, die der Vanadinlegierungen in der Tabelle 2 dargestellt.

2.2 Kernbrennstoffe

Als Brennstoff wurde Urankarbid mit drei unterschiedlichen Kohlenstoffgehalten verwendet, um auch die Abhängigkeit der Aufkohlung vom Kohlenstoffgehalt des Brennstoffs zu

Tabelle 1 Zusammensetzung der verwendeten Stähle [Gew.-%]

Stahl	C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Co	Mo	V	Ti	Al	Fe	Ta + Nb	N
1.4988	0,08	0,27	1,1	0,019	0,009	16,1	13,6	0,055	1,28	0,7	-	-	Rest	0,87	0,06
1.4919 (316)	0,045	0,45	1,7	0,23	0,017	17,0	13,25	0,14	8,2	-	0,05	0,01	Rest	0,05	0,03
1.4948 (304)	0,048	0,55	1,54	0,035	0,02	17,7	4,5	6,17	0,2	-	0,05	0,03	Rest		

Tabelle 2 Zusammensetzung der verwendeten Vanadinlegierungen [Gew.-%]

Legierung	Cr	Ti	Si	C	V
VTi3Si1	-	2,75	0,81	0,023	Rest
VTi2Cr15	15	2	-		Rest

Tabelle 3 Zusammensetzung der verwendeten Kernbrennstoffe [Gew.-%]

Kernbrennstoff	O	N	C (gesamt)	C (frei)	C (äquiv.)
UC(1)	0,037	0,038	4,76		4,82
UC(2)	0,170	0,050	4,76	0,034	4,96
UC(3)	0,120	0,023	4,99	0,053	5,15

ermitteln. Die Zusammensetzung der Brennstoffe sind in der Tabelle 3 dargestellt. In der Darstellung der Ergebnisse wurden für die einzelnen Zusammensetzungen die folgenden Abkürzungen verwendet:

UC(1) steht für das stöchiometrische Urankarbid, das den niedersten Gesamtäquivalentkohlenstoffgehalt hat.

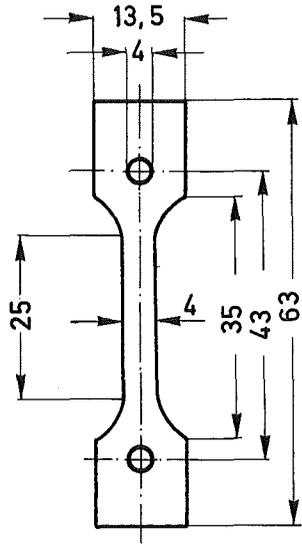
UC(2) bezeichnet das Karbid mit dem mittleren Kohlenstoffgehalt und

UC(3) das Karbid mit dem größten Gesamtäquivalentkohlenstoffgehalt.

3. Versuchsdurchführung

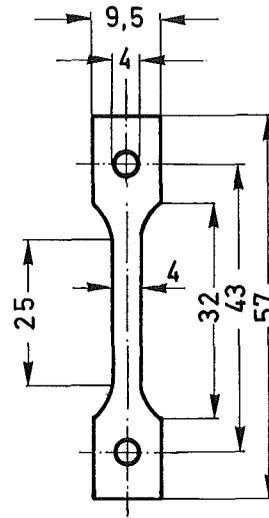
Aus den Hüllmaterialien, die in Blechform vorlagen, wurden Flachzerreißproben angefertigt. Die Dicke der Proben betrug 1 mm. Da der Angriff beidseitig erfolgt, wurde damit eine Hüllstärke von 0,5 mm simuliert. Die Stahlproben wurden ausgestanzt und anschließend bei 1050°C über 30 min lösungsgelüht. Die Vanadinproben wurden aus dem vorher weichgelühten Blech gefräst. Nach der Bearbeitung und vor den Verträglichkeitglühungen erfuhren sie keine Wärmebehandlung mehr.

Die Zerreißproben wurden zusammen mit dem Brennstoffpulver (Korngröße 10 - 1000 µm) in dicht verschraubbare Stahlkapseln eingelegt (s. Abb. 1). Durch Einvibrieren und Einstampfen erhielt der Brennstoff eine Dichte von ungefähr 50 - 60 % TD. Bei den Proben, die mit Natriumbindung getestet wurden, wurde Natrium in die Stahlkapsel eingefüllt, nachdem die Zerreißproben im Brennstoff eingebettet waren. Auf besondere Reinheit (Sauerstoffgehalt) wurde beim Natrium kein Wert gelegt, da die möglichen Sauerstoffverunreinigungen in keinem Vergleich zum Sauerstoffgehalt des Brennstoffs

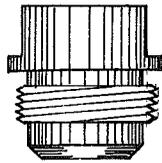


Versuchsprobe

a) aus Stahl



b) aus Vanadinlegierung



c) Glühkapsel

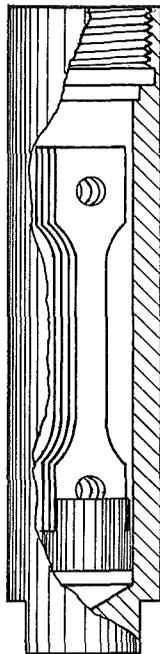


Abb.1 Versuchsanordnung

standen. Die ganze Prozedur der Probenherstellung fand in Handschuhboxen unter sehr reiner Argonatmosphäre statt. Der Sauerstoffgehalt im Natrium dürfte nicht viel über 100 ppm gelegen haben. Die geschlossenen Stahlkapseln wurden danach noch in Quarzampullen eingeschweißt, um sie in Muffelöfen glühen zu können. Die Glühungen fanden bei Temperaturen zwischen 500 und 800°C bei Glühzeiten von 144 und 1000 h statt. Bei vorhergehenden Untersuchungen [4] ist festgestellt worden, daß schon nach kurzer Zeit (200 h) der größere Teil des maximalen Effekts auf die mechanischen Eigenschaften des Hüllmaterials erreicht worden ist. Längere Glühzeiten brachten nur noch geringe Änderungen. In diesen Versuchen ist deshalb 1000 h als genügend angesehen worden, um die durch die Aufkarburierung entstehenden Effekte zu ermitteln. Im einzelnen ist das Versuchsprogramm in der Tabelle 4 dargestellt. Um allein die durch die Korrosion mit dem Brennstoff entstandenen Veränderungen des Hüllmaterials festzustellen, wurden auch Zerreißproben nur in Argon geblüht.

Jeweils vier Proben der gleichen Materialsorte wurden den gleichen Bedingungen ausgesetzt. Sie ergaben jeweils eine Kapselfüllung. Vor und nach der Glühung wurden die Proben gewogen, um auf diese Art einen Hinweis über die Menge des aufgenommenen Kohlenstoffs zu erhalten. Zusätzlich wurden aber noch chemische Analysen durchgeführt. Mit den geblühten Proben wurden Zerreißversuche bei Raumtemperatur und der Auslagerungstemperatur durchgeführt und die Dehngrenze, die Bruchbelastung und die Bruchdehnung gemessen. Bei Proben, deren Auslagerungstemperatur über 700°C betrug, war die maximale Prüftemperatur 700°C. Für jeden Meßpunkt standen zwei Proben zur Verfügung. Metallographische Untersuchungen der Proben (Schliffbilder und Härtemessungen) vervollständigten die Nachglühuntersuchungen.

Tabelle 4

Versuchsprogramm

Untersuchte Systeme	Glühbedingung
1.4988 + UC(1) + Ar	600°C/1000 h
1.4988 + UC(1) + Na	"
1.4988 + UC(2) + Ar	500°C/1000 h
1.4988 + UC(2) + Na	"
1.4988 + UC(2) + Ar	600°C/1000 h
1.4988 + UC(2) + Na	"
1.4988 + UC(2) + Na	600°C/144 h
1.4988 + UC(2) + Ar	700°C/1000 h
1.4988 + UC(2) + Na	"
1.4988 + UC(3) + Ar	600°C/1000 h
1.4988 + UC(3) + Na	"
1.4919 + UC(1) + Ar	600°C/1000 h
1.4919 + UC(1) + Na	"
1.4919 + UC(2) + Ar	500°C/1000 h
1.4919 + UC(2) + Na	"
1.4919 + UC(2) + Ar	600°C/1000 h
1.4919 + UC(2) + Na	"
1.4919 + UC(2) + Na	600°C/144 h
1.4919 + UC(2) + Ar	700°C/1000 h
1.4919 + UC(2) + Na	"
1.4948 + UC(2) + Ar	500°C/1000 h
1.4948 + UC(2) + Na	"
1.4948 + UC(2) + Ar	600°C/1000 h
1.4948 + UC(2) + Na	"
1.4948 + UC(2) + Ar	700°C/1000 h
1.4948 + UC(2) + Na	"
VT13S11 + UC(1) + Ar	800°C/1000 h
VT13S11 + UC(1) + Na	"
VT13S11 + UC(2) + Ar	600°C/1000 h
VT13S11 + UC(2) + Na	"
VT13S11 + UC(2) + Ar	800°C/1000 h
VT13S11 + UC(2) + Na	"
VT13S11 + UC(3) + Ar	800°C/1000 h
VT13S11 + UC(3) + Na	"
VT12Cr15 + UC(2) + Ar	800°C/1000 h
VT12Cr15 + UC(2) + Na	"

4. Ergebnisse

4.1 Allgemeines

Die Hauptuntersuchungen wurden mit dem Stahl vom Typ 1.4988 und mit dem Brennstoff mit der Bezeichnung UC(2) (s. Tab. 3) durchgeführt, um die Vielzahl von Parameterkombinationen einzuschränken. Die Ergebnisse der Aufkohlung, sofern sie in Abhängigkeit von der Glüh­temperatur dargestellt sind, beziehen sich immer auf die Auslagerung mit UC(2). Die Ergebnisse werden zunächst für die einzelnen Hüllmaterialtypen gesondert aufgeführt: Die Kohlenstoffaufnahme, die mechanischen Eigenschaften gemessen bei Raumtemperatur, das gleiche bei der Glüh­temperatur und Mikro­härtemessungen über den (nicht verformten) Querschnitt der Zugprobe. Für den Stahl vom Typ 1.4988 und für die Vanadinlegierungen VTi3Si1 sind zusätzlich noch die gemessenen Eigenschaften in Abhängigkeit vom Kohlenstoffgehalt des Brennstoffs, mit dem die Proben in Kontakt waren, aufgeführt. Am Schluß wird ein Vergleich der verschiedenen Hüllmaterialtypen durchgeführt.

Bei allen Stählen war zu erkennen, daß der größte Effekt durch die Aufkohlung bei 600°C erzielt wird. Bei tieferen Temperaturen ist die Kohlenstoffaufnahme oder die Bildung von Karbiden offensichtlich zu langsam, um größere Effekte zu erzielen. Bei höheren Temperaturen findet eine Wiederauflösung und Agglomeration der Ausscheidungen im Hüllmaterial statt.

4.2 Stahl vom Typ 1.4988

In der Abb. 2 ist zunächst die Kohlenstoffaufnahme des Stahls aus dem Brennstoff gezeigt. Die Ausgangskonzentration ist mit 0,08 auf der Ordinate angegeben. Die Kohlenstoffaufnahme nimmt mit der Temperatur zu, ist aber auch bei 500°C

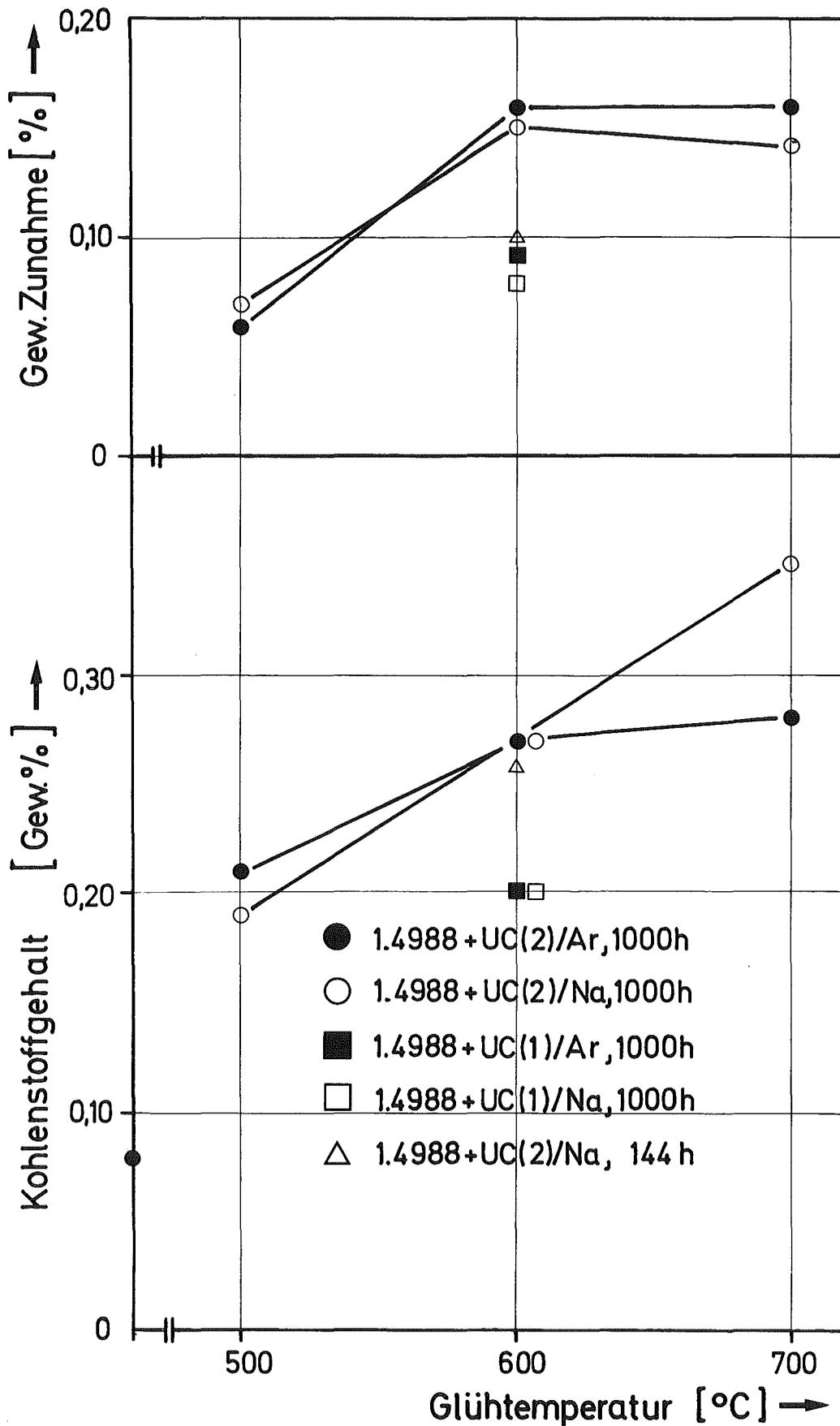


Abb. 2: Zunahme des Kohlenstoffgehaltes und des Gewichts von 1.4988-Stahlproben nach Glühung mit UC [bei 500, 600 und 700°C mit Argon-bzw. Natrium-Bindung]

schon relativ hoch. Die Natriumbindung macht sich erst bei 700°C bemerkbar. Längere Glühzeiten scheinen nicht viel zu bewirken, wie der Versuch mit 144 h zeigt. Die Kohlenstoffaufnahme aus Brennstoff mit weniger Kohlenstoffgehalt ist deutlich kleiner. Die Gewichtszunahme ist nicht immer der Zunahme des Kohlenstoffgehaltes gleichzusetzen. Bei 700°C hat sich möglicherweise etwas vom Hüllmaterial im Natrium gelöst.

Von den mechanischen Eigenschaften wird am stärksten die Duktilität nach der Glühung bei 600°C in Mitleidenschaft gezogen, wie aus der Abb. 3 zu ersehen ist. Bei 500°C ist die Duktilität nur wenig erniedrigt. Wahrscheinlich ist der Kohlenstoff nur in die Randzonen des Materials eingedrungen. Eine deutliche Erhöhung erfährt die Fließgrenze durch die Wechselwirkungen mit dem Brennstoff.

In der Abb. 4 sind die bei den Auslagerungstemperaturen gemessenen Werte dargestellt. Hierbei ist die Duktilitätserniedrigung gegenüber den Proben, die ohne Brennstoff gegläht wurden, weniger stark. Eine Erhöhung der Fließgrenze sowie für 600°C auch eine Bruchfestigkeitserhöhung ist deutlich erkennbar.

Die Härtemessungen (Abb. 5 und 6) veranschaulichen ebenfalls den stärksten Effekt durch die Aufkohlung bei 600°C . Bei 500°C ist die Aufhärtung auf eine Zone $< 100\ \mu\text{m}$ beschränkt.

In den Abb. 7 und 8 sind einige Schlifffbilder wiedergegeben, die die Struktur des 1.4988-Stahls nach der Reaktion mit karbidischem Brennstoff zeigen.

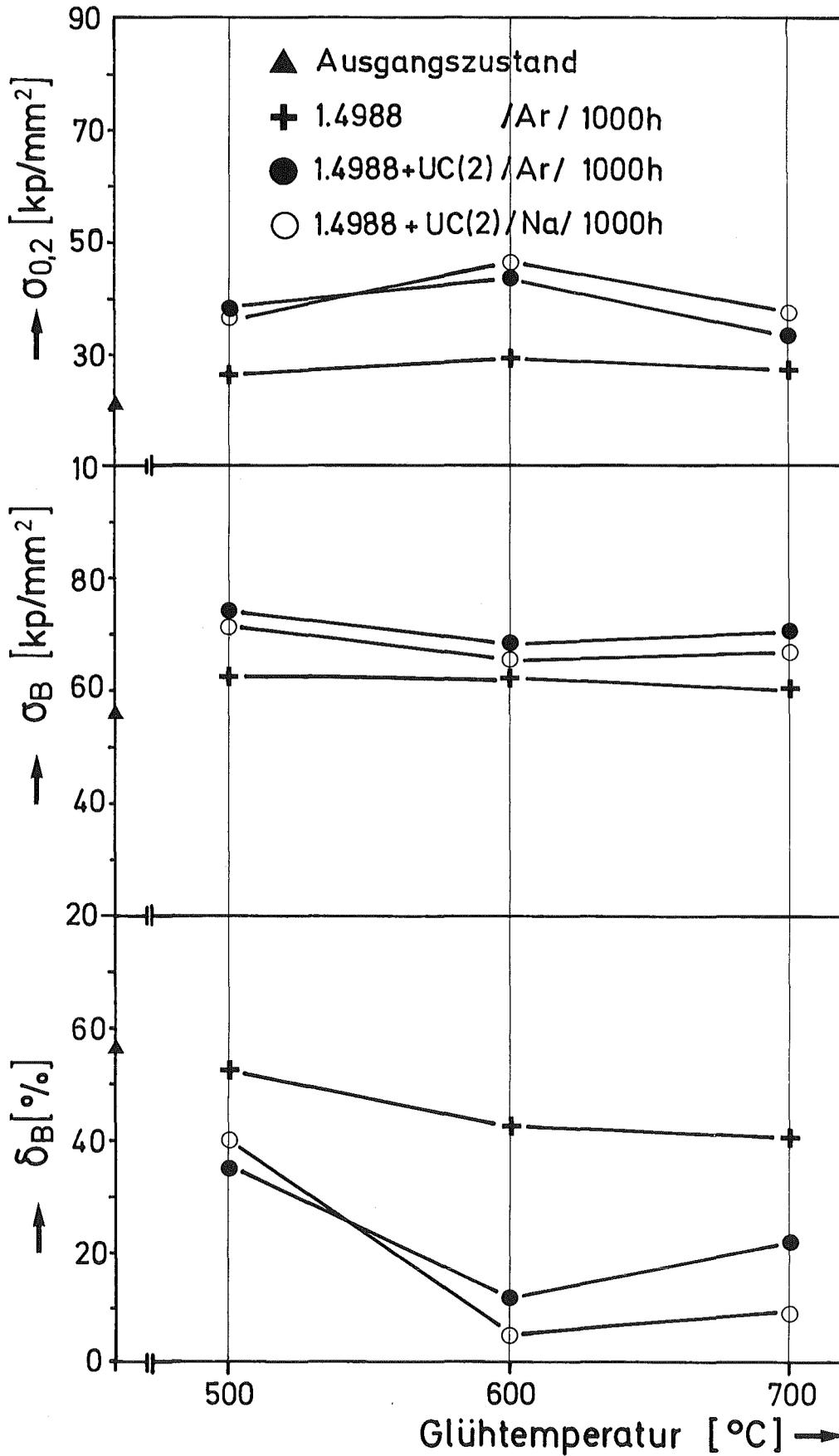


Abb. 3: Raumtemperatur-Eigenschaften von 1.4988-Stahl-Proben nach Glühung mit und ohne UC

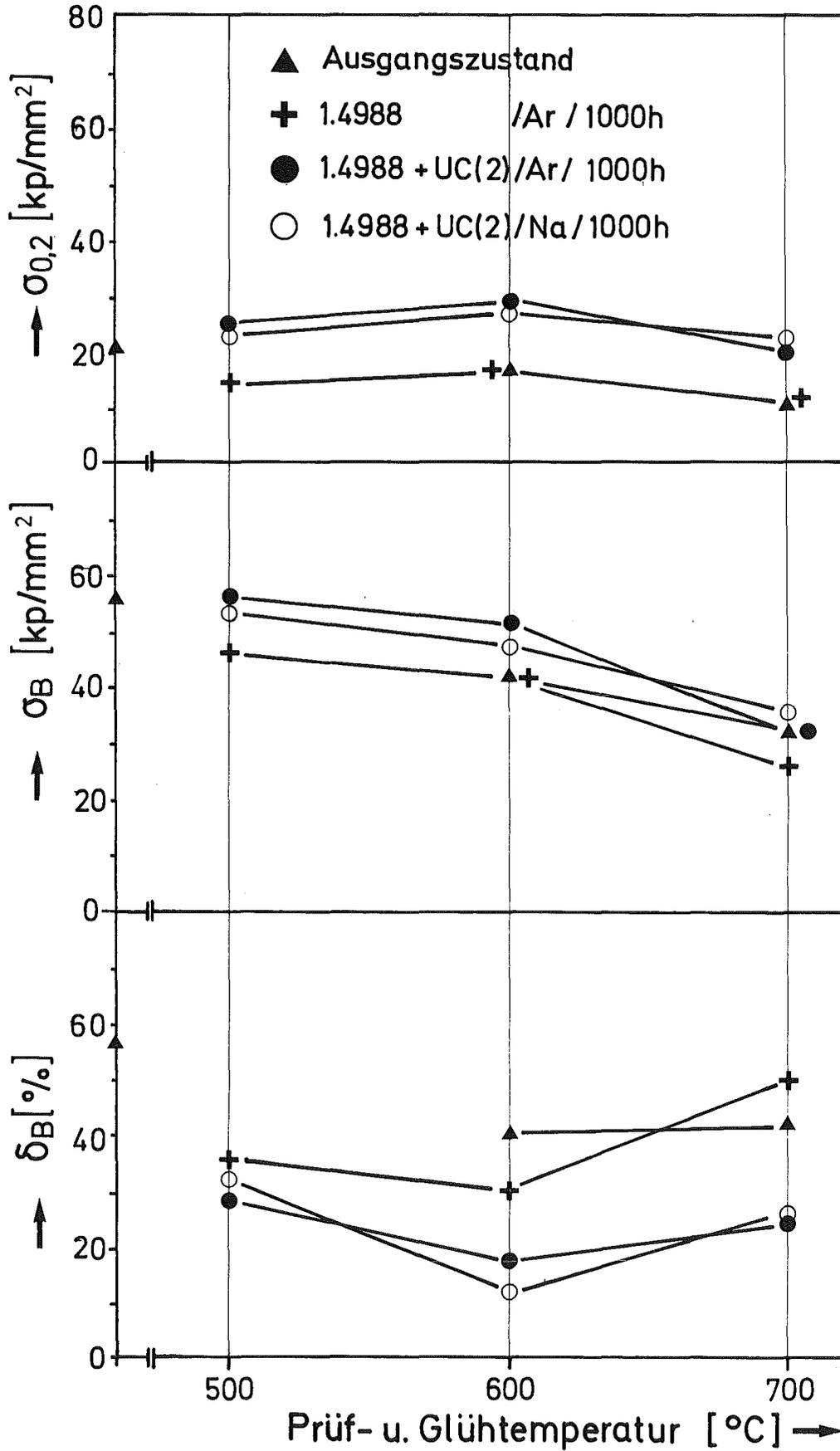


Abb. 4: Hochtemperatur-Eigenschaften von 1.4988-Stahl-Proben nach Glühung mit und ohne UC

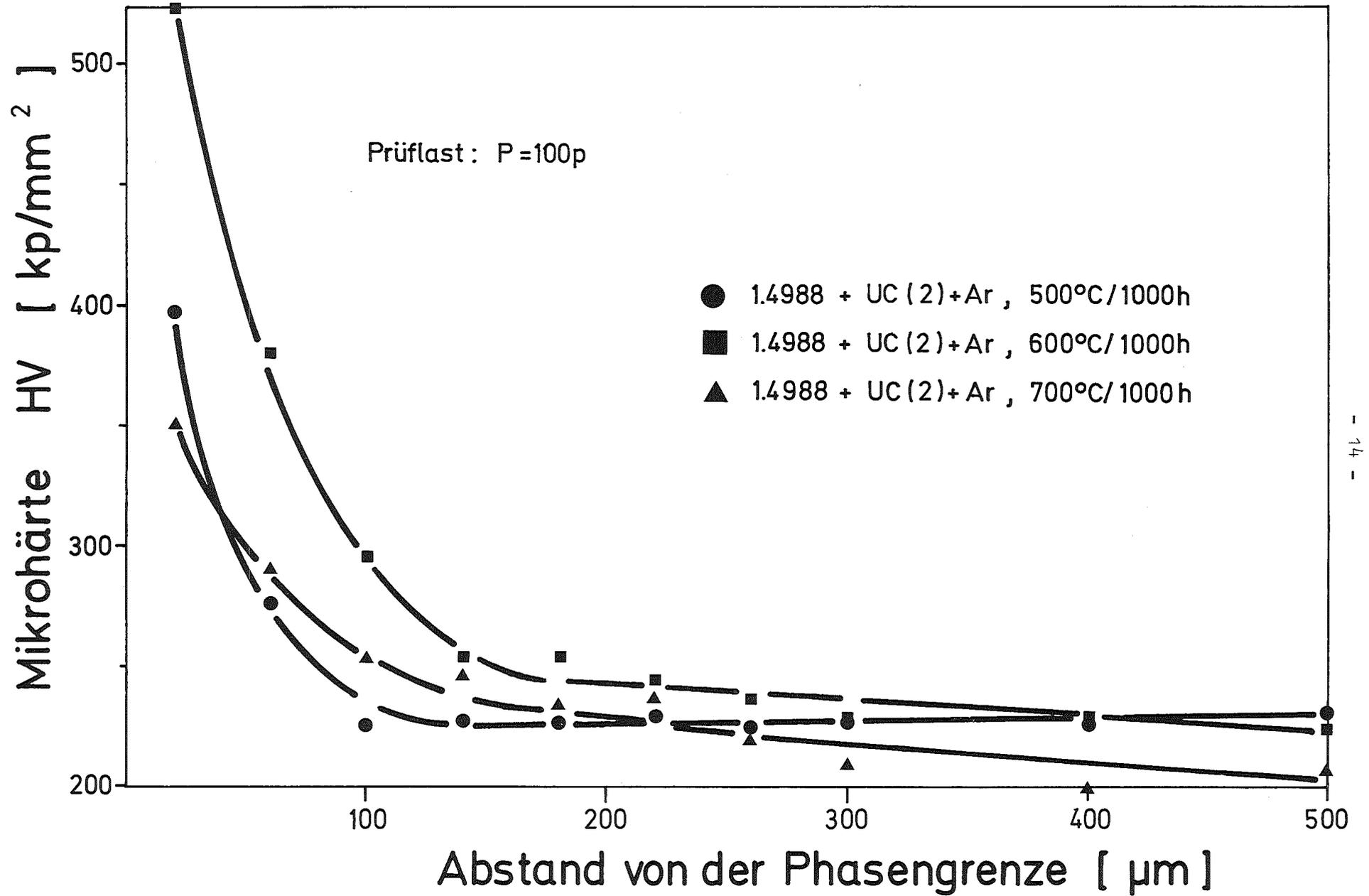


Abb. 5: Härteprofile von 1.4988-Stahlproben nach Glühung mit UC bei Argonbindung

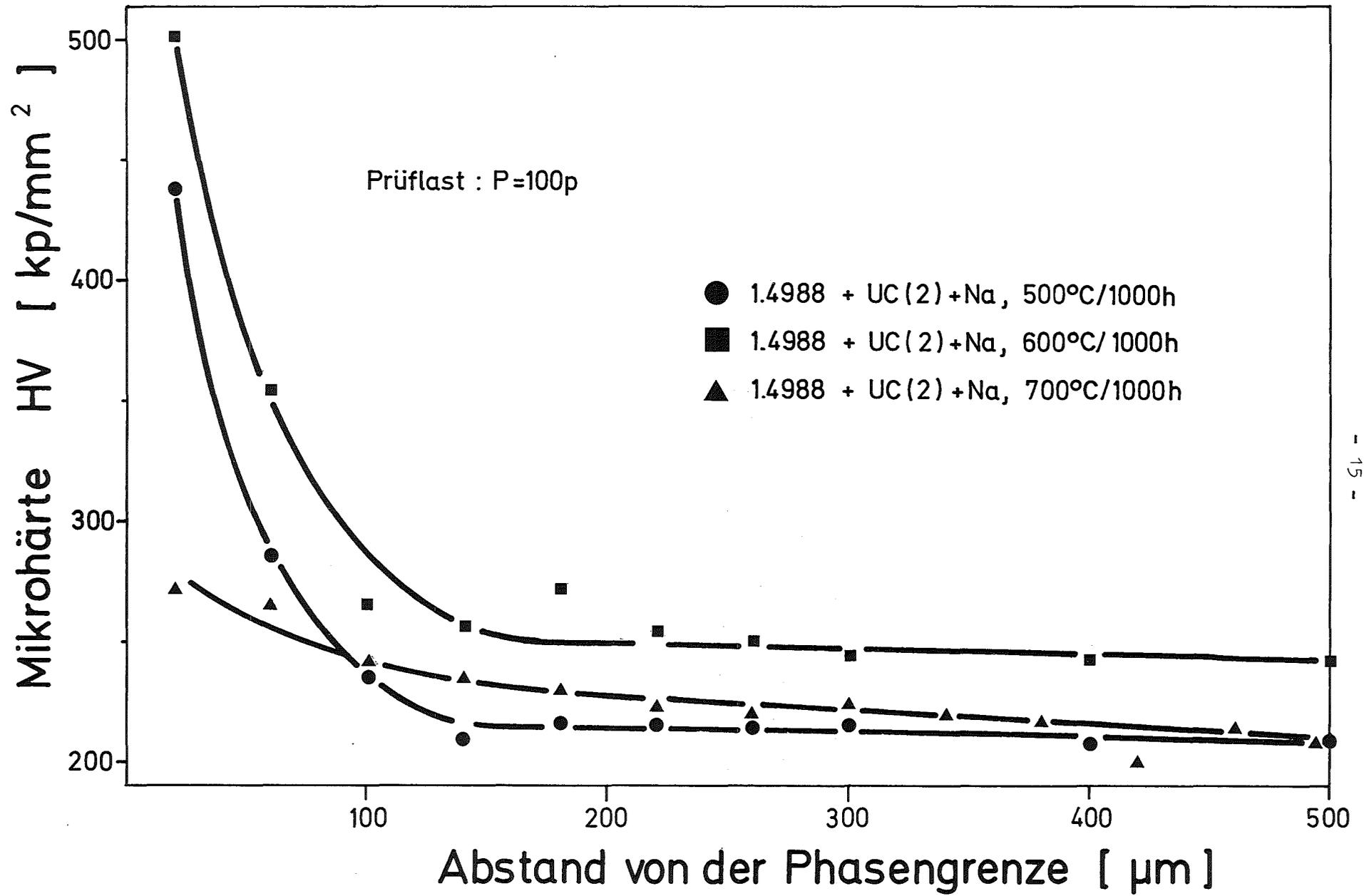
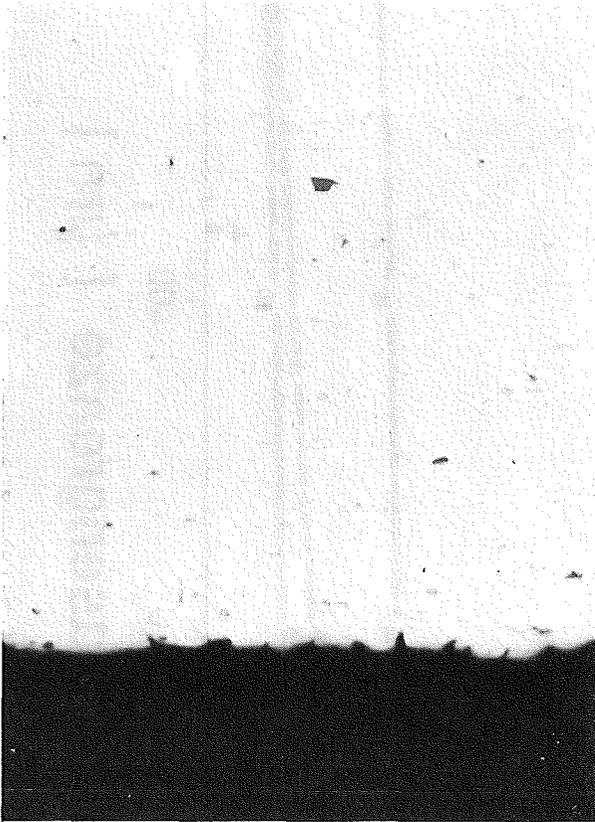
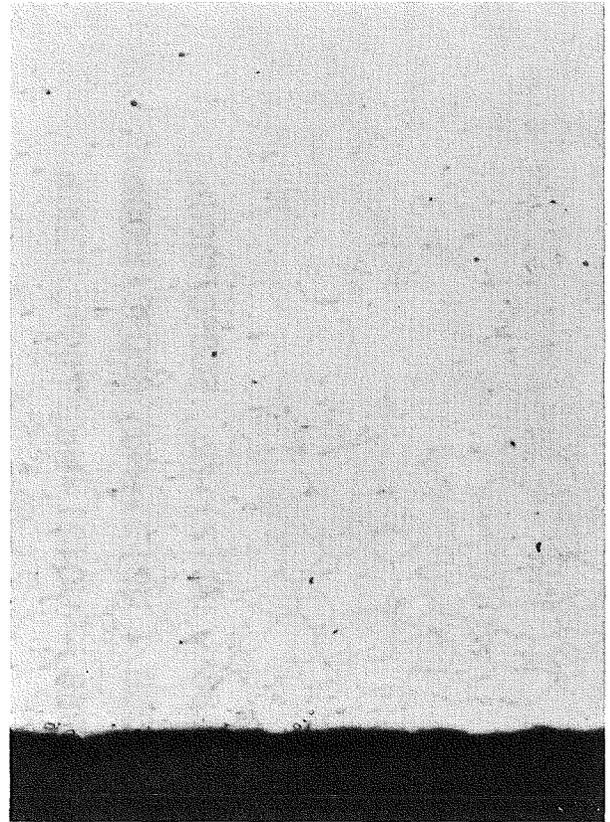


Abb. 6: Härteprofil von 1.4988-Stahlproben nach Glühung mit UC bei Natriumbindung



UC(2) 500°C 500 x

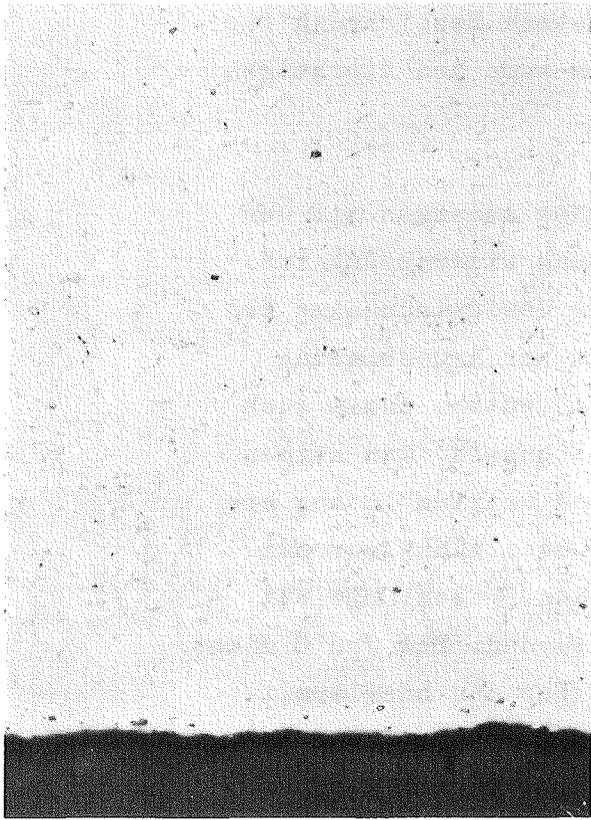


UC(2) 600°C 250 x

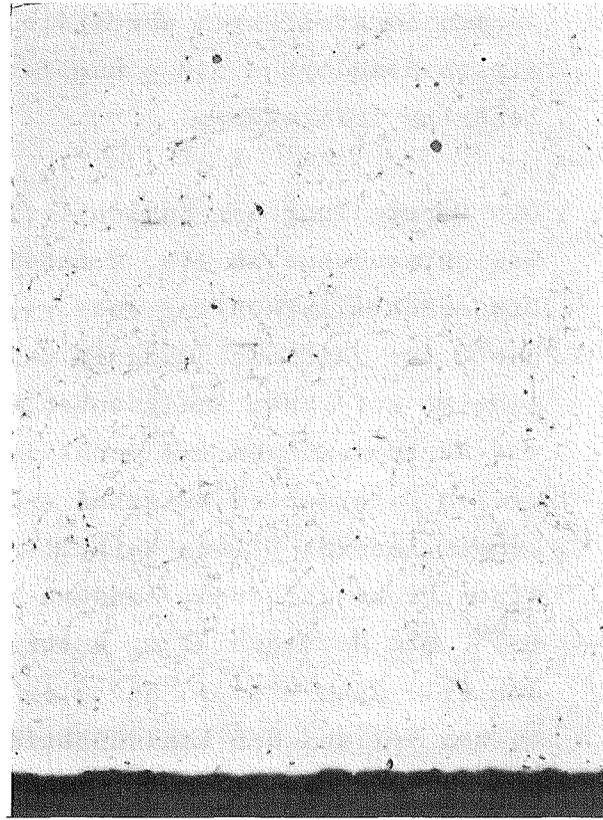


UC(1) 600°C 500 x

Abb. 7: Unterschiedliche Aufkohlung von 1.4988-Stahl bei 500 und 600°C nach 1000 h durch UC(2) (obere Reihe) und durch UC(1) bei 600°C nach 1000 h (links) jeweils mit Argon-Bindung geätzt (5 % NH₃-Lösung)



UC(2) Ar-Bind. 250 x



UC(2) Na-Bind. 250 x

Abb. 8: Aufkohlung bei 700°C nach 1000 h durch UC(2) mit Argon-Bindung (links) und Natrium-Bindung (rechts) geätzt (5 % NH_3 -Lösung)

4.3 Stahl vom Typ 1.4919 (AISI 316)

In den Darstellungen wurde die bekanntere Bezeichnung für diesen Stahltyp - 316 - angegeben, um auch den flüchtigen Leser zu informieren.

Die Darstellung der Kohlenstoffaufnahme zusammen mit der Gewichtszunahme in Abb. 9 scheint etwas widersprüchlich. Die erhöhte Aufkohlung aber geringere Gewichtszunahme bei 600°C für Natriumbindung im Gegensatz zur Argonbindung scheint auf einen Analysenfehler hinzudeuten, zumal auch die Härtemessungen und mechanischen Eigenschaften keinen großen Unterschied zwischen Argon- und Natriumbindung erkennen lassen. Dieses Verhalten wird aber nicht nur bei einer Probe gefunden, sondern bei allen Proben, die bei 600°C mit Natriumbindung untersucht wurden. Bei 700°C sieht das Bild dann wieder "normaler" aus. Für den hier ermittelten Verlauf der Kohlenstoffaufnahme- und Gewichtszunahmekurven ist bis jetzt noch keine stichhaltige Erklärung gefunden worden.

Bei den mechanischen Eigenschaften (Abb. 10) fällt die starke Abnahme der Raumtemperatur-Duktilität auf. Die Abnahme ist bei Argonbindung etwas stärker als bei Natriumbindung. Bei den Hochtemperaturwerten (Abb. 11) scheint es ähnlich zu sein, wenn auch nicht so ausgeprägt. Die Festigkeitswerte wurden durch die Reaktion mit dem Brennstoff etwas erhöht. Die Kohlenstoffanalyse der Proben konnte nicht mit ihrem mechanischen Verhalten in Einklang gebracht werden. Eine Kohlenstoffaufnahme, die den Gewichtszunahmen entspricht, würde besser zu den mechanischen Werten passen.

Die Härtekurven (Abb. 12 und 13) spiegeln das schon beim 1.4988-Stahl gewonnene Bild wieder. Starke Aufhärtung bei 600°C (hier noch mehr als beim 1.4988 Stahl), geringere

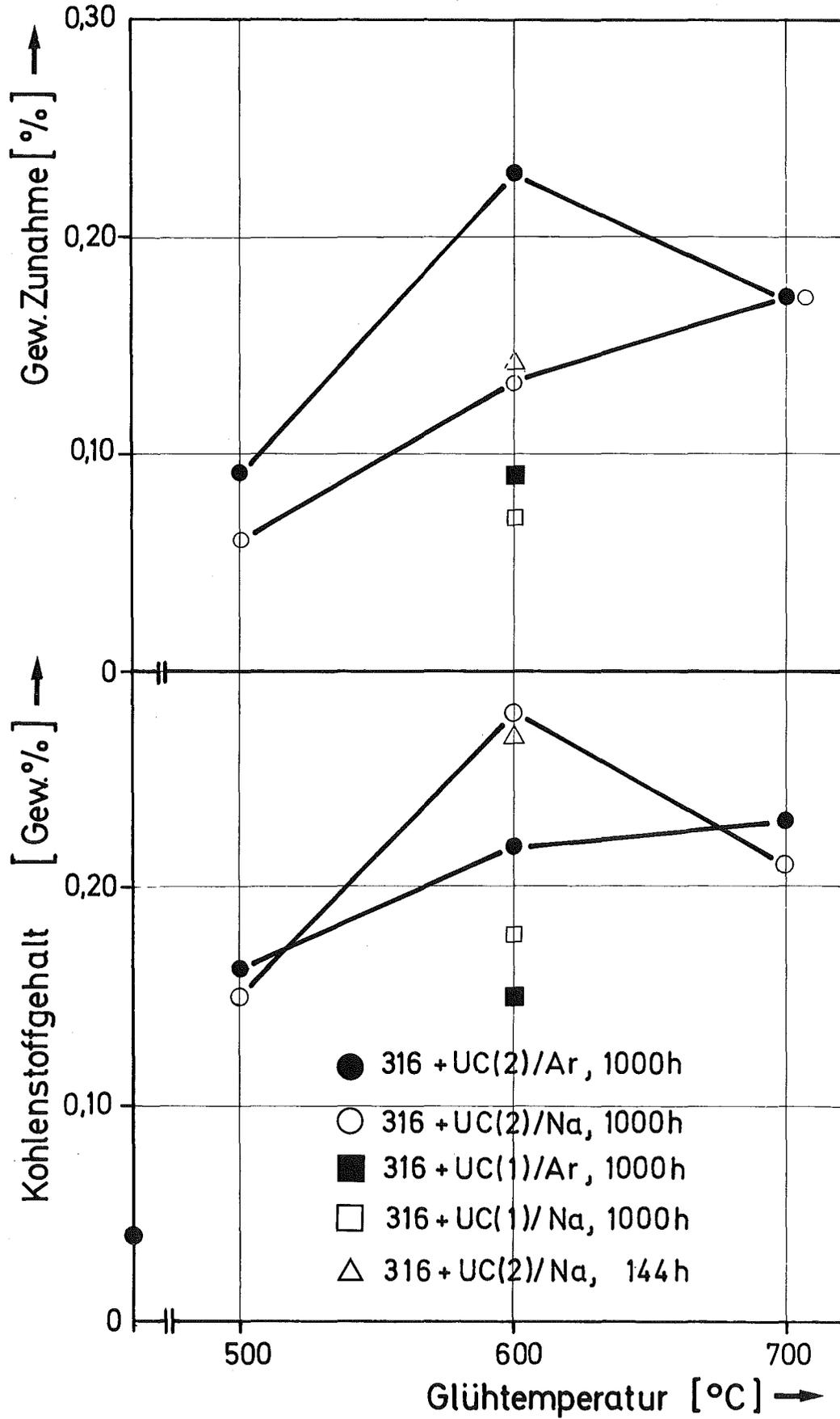


Abb. 9: Zunahme des Kohlenstoffgehalts und des Gewichts von 316-Stahlproben nach Glühung mit UC

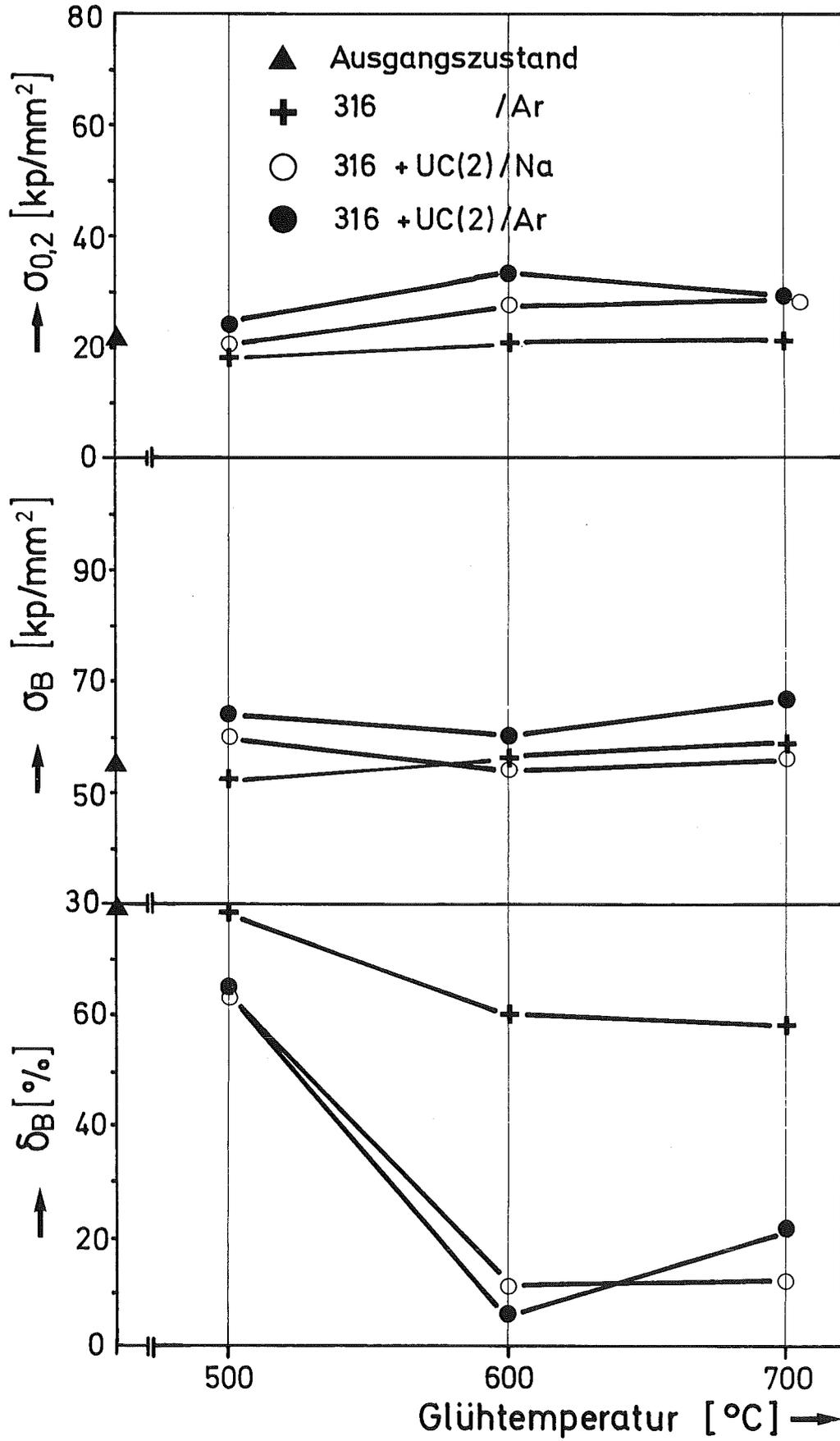


Abb. 10: Raumtemperatur-Eigenschaften von 316-Stahl-Proben nach Glühung mit und ohne UC

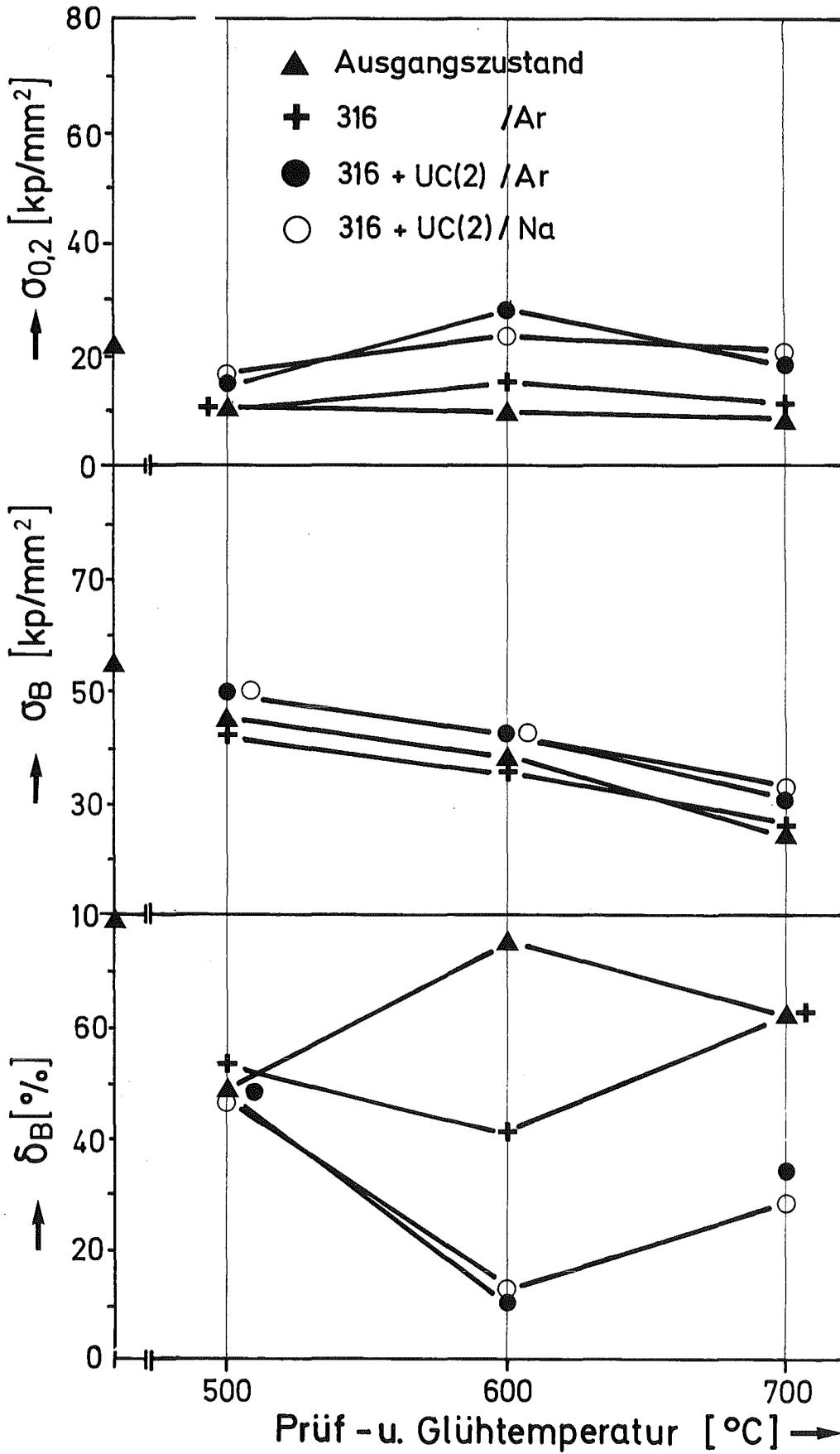


Abb. 11: Hochtemperatur-Eigenschaften von 316-Stahl-Proben nach Glühung mit und ohne UC

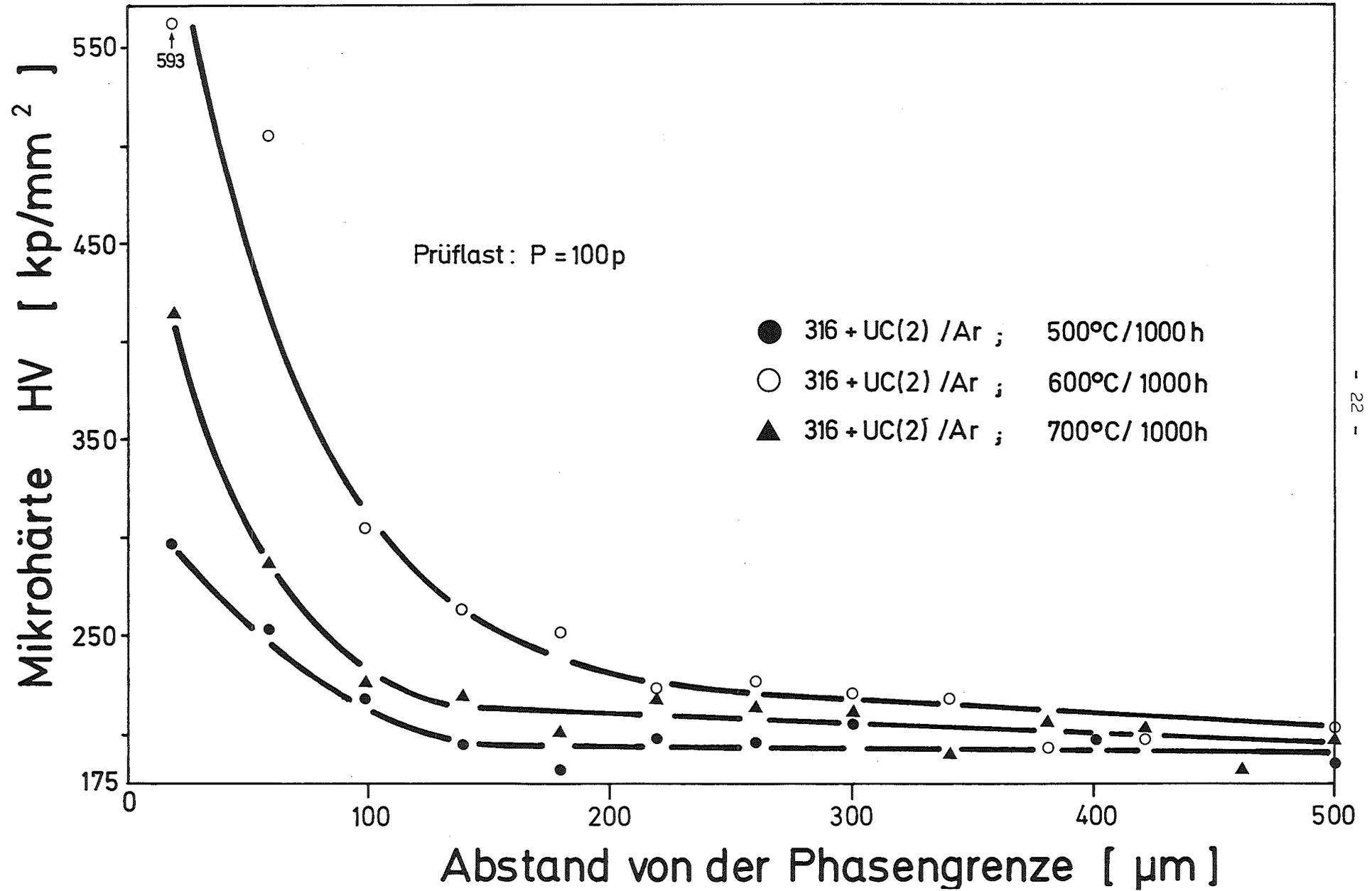


Abb. 12: Härteprofile von 316-Stahlproben nach Glühung mit UC bei Argonbindung

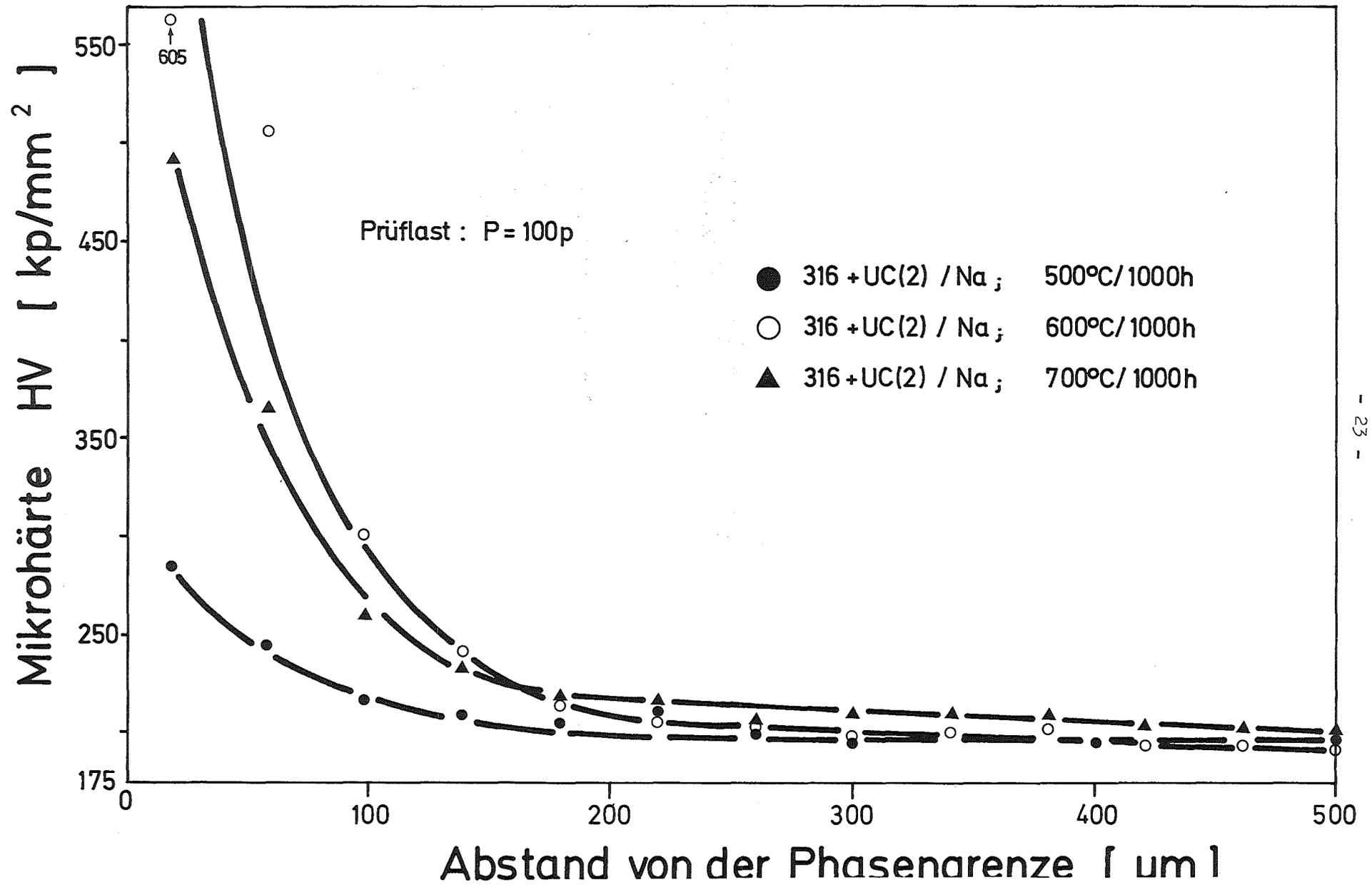
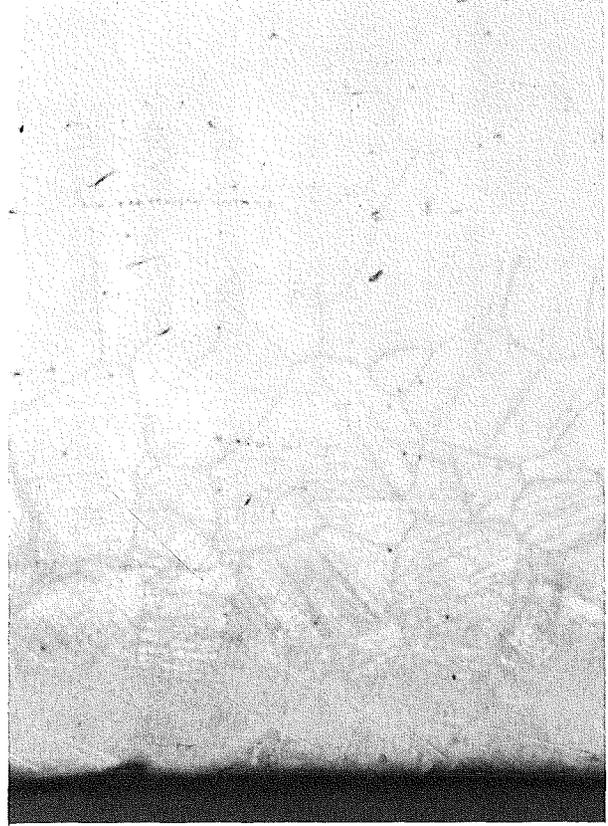


Abb. 13: Härteprofile von 316-Stahlproben nach Glühung mit UC bei Natriumbindung



UC(2) Ar-Bind. 500 x



UC(2) Na-Bind. 500 x



UC(1) Na-Bind. 500 x

Abb. 14: Aufkohlung von 316-Stahl bei 600°C und 1000 h durch UC(2) (obere Reihe) mit Argon-Bindung und Natrium-Bindung sowie durch UC(1) (links) mit Na-Bindung geätzt (5 % NH_3 -Lösung)

Aufhärtung durch die Glühung bei 700°C und kaum Aufhärtung bei 500°C . Ein Effekt der Natriumbindung ist auch nur bei 700°C zu erkennen.

Die Abb. 14 zeigt einige Schlifffbilder mit Strukturen am Rand der 316-Stahlproben nach der Auslagerung mit dem Brennstoff bei 600°C .

4.4 Stahl vom Typ 1.4948 (AISI 304)

In den Darstellungen der Ergebnisse wurde wie bei dem vorhergehenden Abschnitt der für diesen Stahltyp gebräuchlichere Name - 304 - gewählt.

Für diesen Stahltyp verlaufen die Zunahme des Gewichts und des Kohlenstoffgehalts parallel (Abb. 15). Die Ausgangskonzentration an Kohlenstoff betrug $0,045\%$, wie in Abb. 15 angegeben. Das Maximum der Aufkohlung liegt bei 600°C . Ein Einfluß des Natriums ist sowohl bei 500 wie auch bei 700°C erkennbar, aber nicht bei 600°C . Der Duktilitätsabfall nach der Glühung bei 500°C mit Natriumbindung ist deutlich größer als mit Argonbindung (Abb. 16). Nach der Glühung bei 600°C ist der Duktilitätsabfall auch wieder am stärksten. Bei 700°C ist der Einfluß des Natriums sichtbar. Durch die Reaktion mit dem Brennstoff hat die Bruchbelastbarkeit bei Raumtemperatur dieses Stahles gelitten. Die Hochtemperatureigenschaften verhalten sich etwas anders (Abb. 17). Für die Glühung und Prüfung bei 500°C ist durch die Reaktion mit dem Brennstoff kein Effekt bei der Duktilität zu erkennen. Nur die Festigkeitswerte liegen etwas höher als die der unkorrodierten Vergleichsproben. Für 600°C dagegen ist ein deutlicher Abfall der Dehnung zu beobachten; für 700°C ist er etwas geringer. In beiden Fällen hat sich der Einfluß des Natriums bemerkbar gemacht. Die Warmstreckgrenze wurde durch die Reaktion mit dem Brennstoff

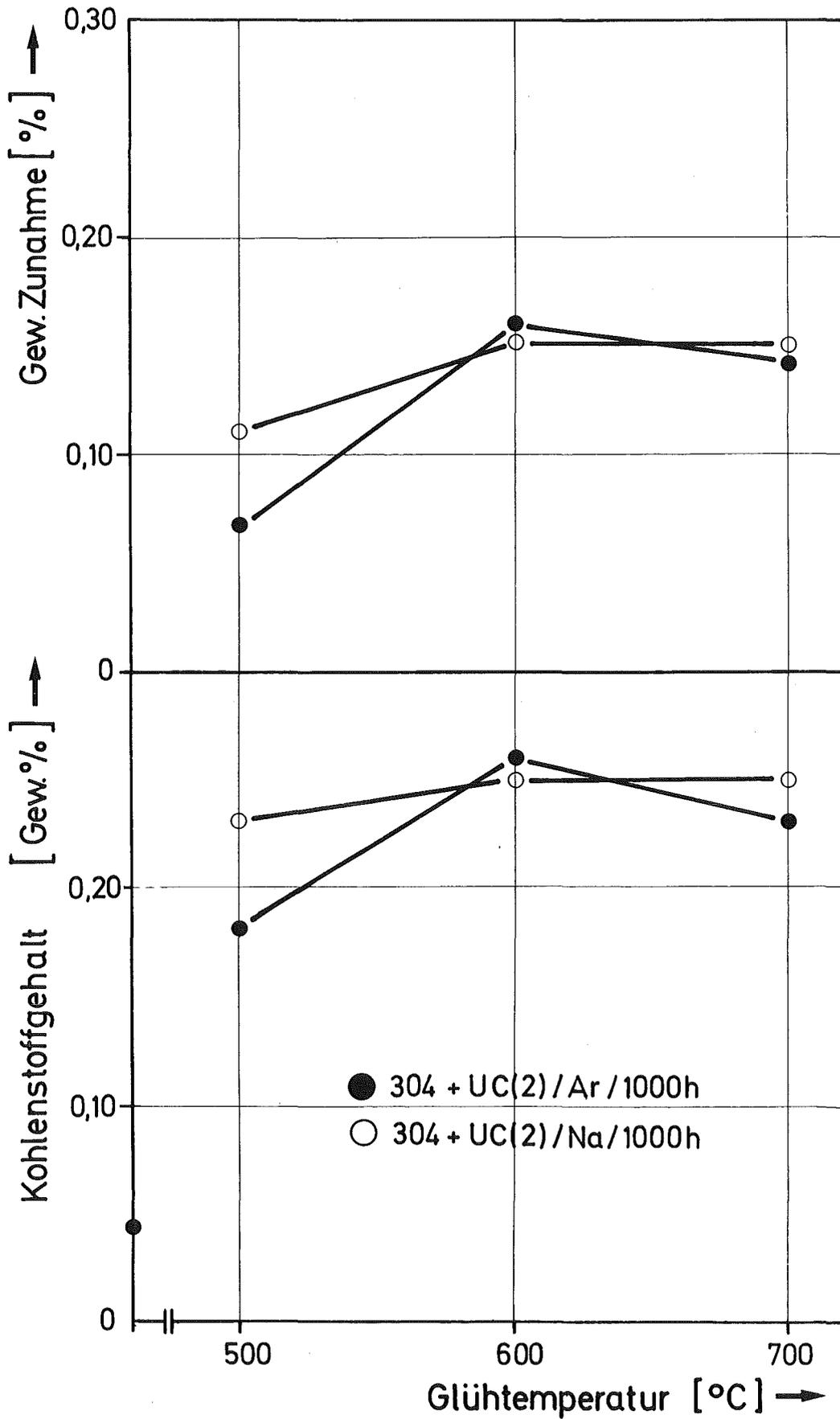


Abb. 15: Zunahme des Kohlenstoffgehalts und des Gewichts von 304-Stahl-Proben nach Glühung mit UC

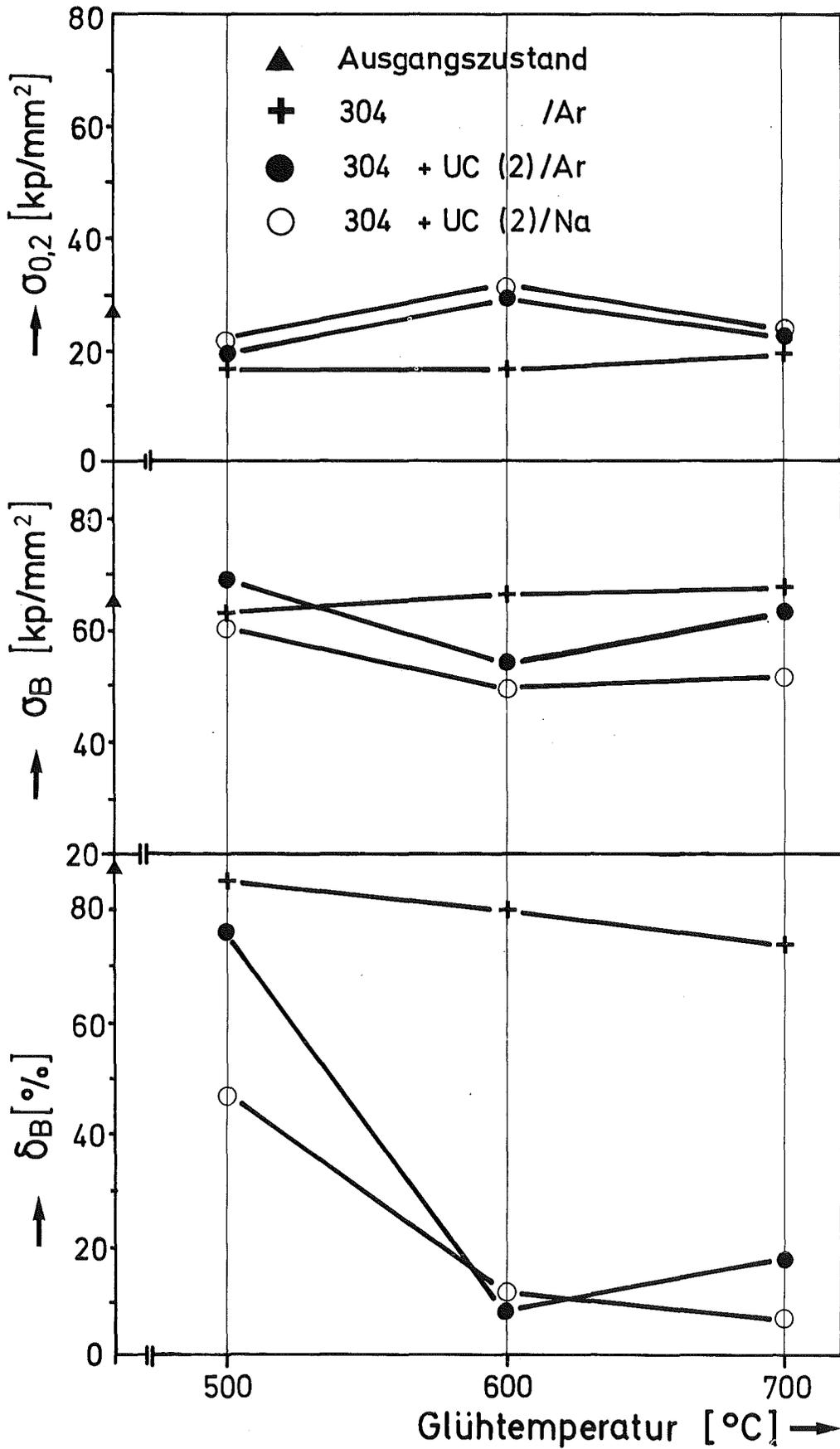


Abb. 16: Raumtemperatur-Eigenschaften von 304-Stahl-Proben nach Glühung mit und ohne UC

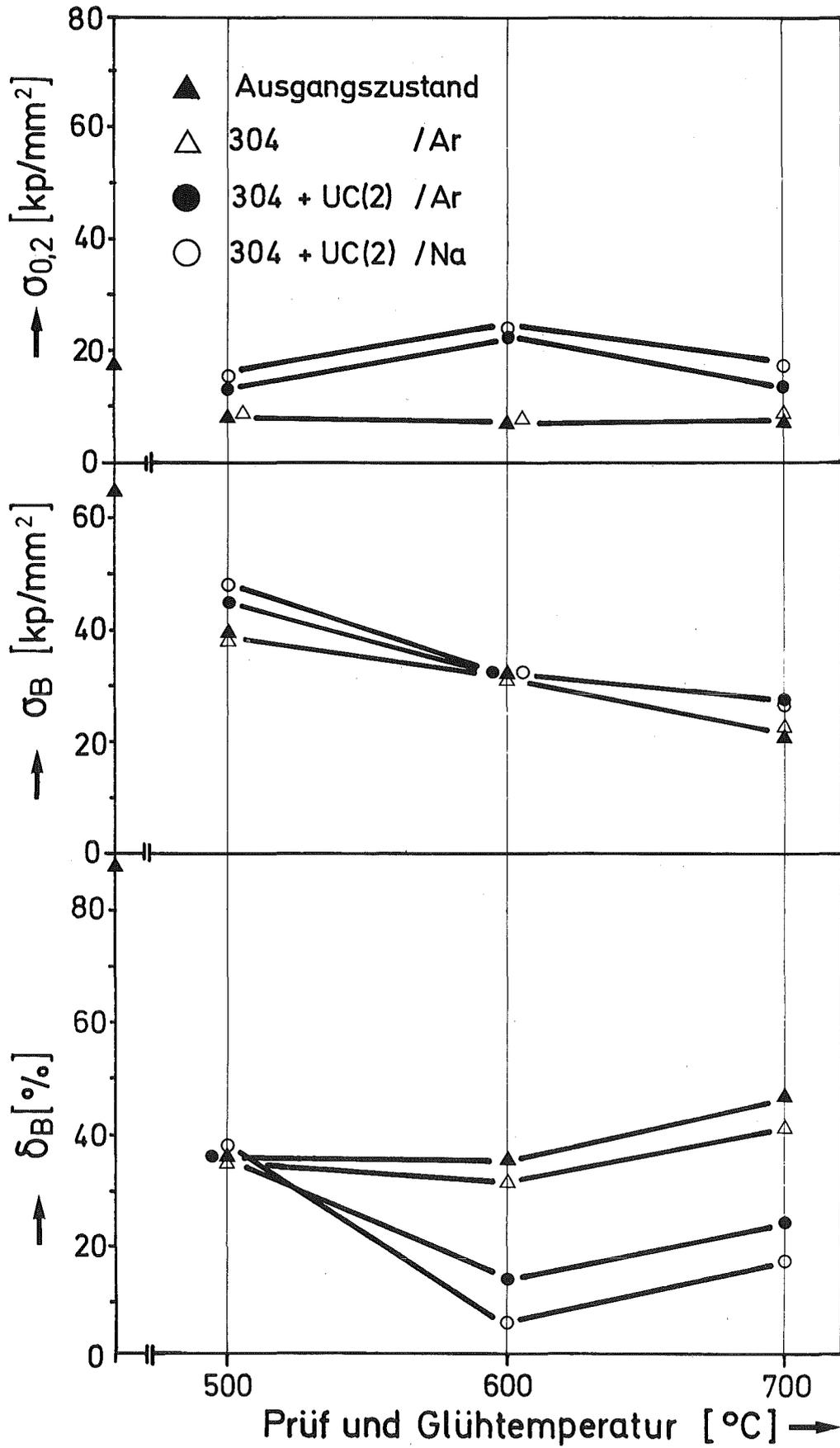


Abb. 17: Hochtemperatur-Eigenschaften von 304-Stahl-Proben nach Glühung mit und ohne UC

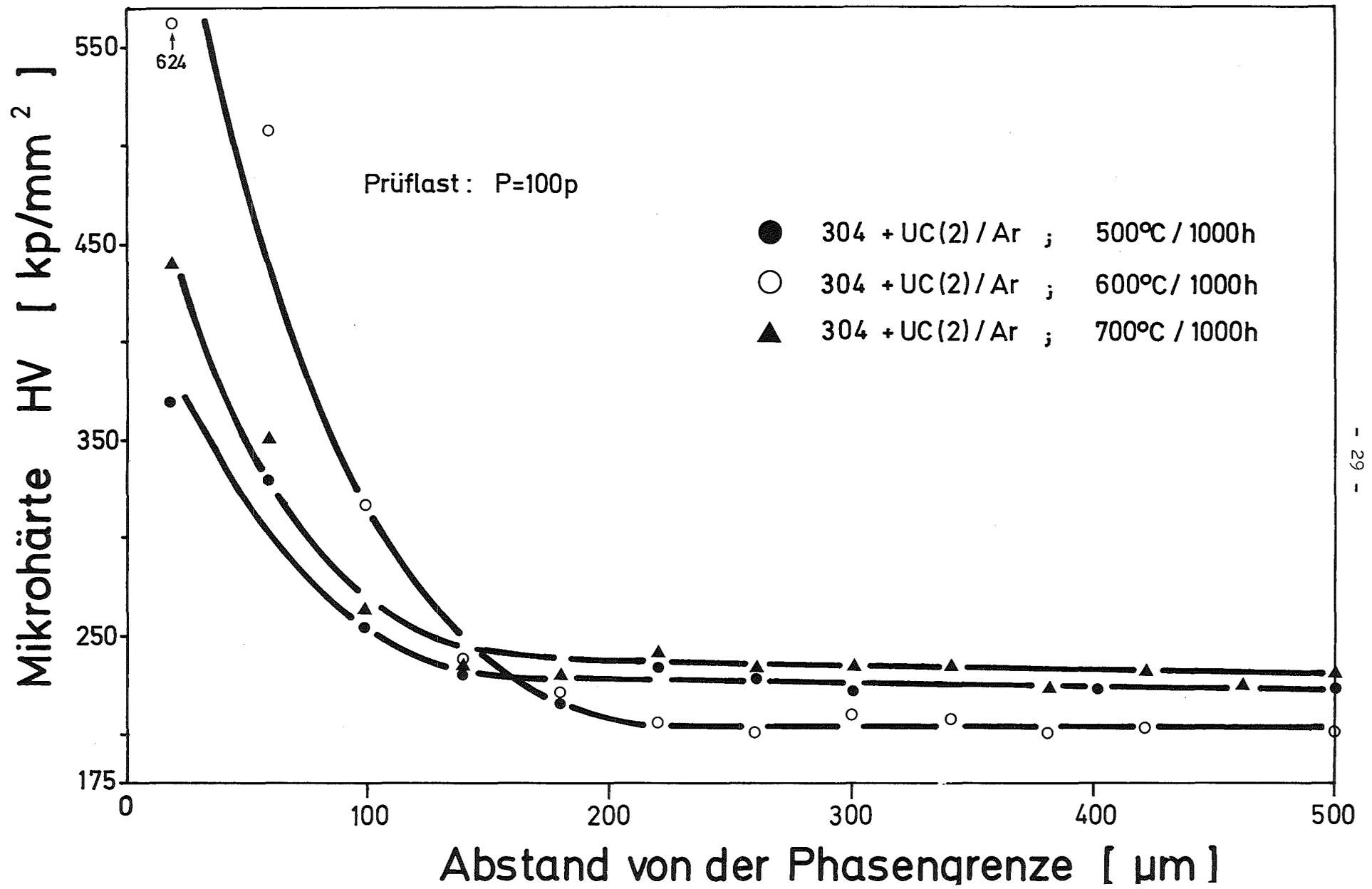


Abb. 18: Härteprofile von 304-Stahlproben nach Glühung mit UC bei Argonbindung

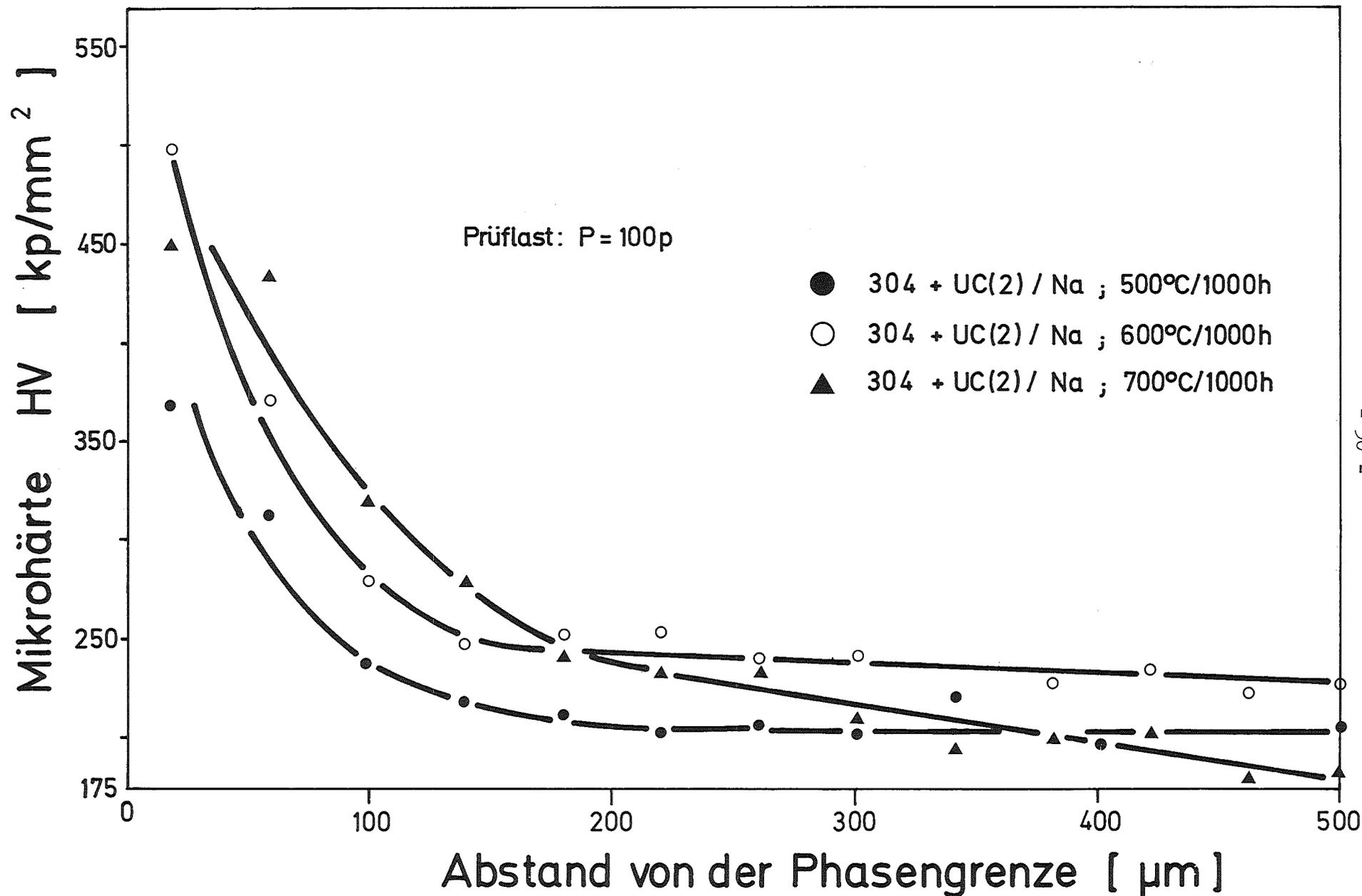
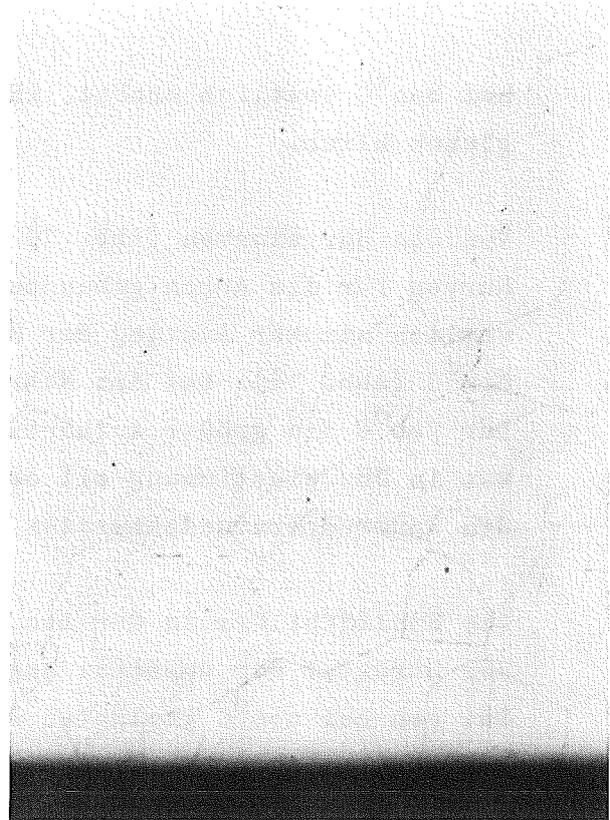


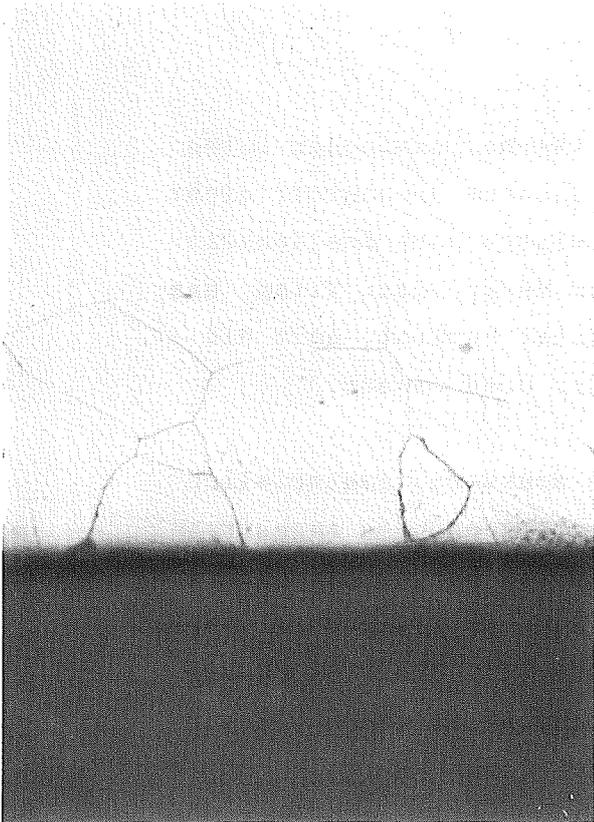
Abb. 19: Härteprofile von 304-Stahlproben nach Glühung mit UC bei Natriumbindung



600°C, Ar-Bind. 500 x



600°C, Na-Bind. 500 x



500°C, Na-Bind. 500 x

Abb. 20: Ausscheidungsstruktur am Rand von 304-Stahl-Proben nach Glühung mit UC(2) bei 600°C (obere Reihe) und 500°C (links) bei Argon- bzw. Natrium-Bindung, geätzt (5 % NH₃-Lösung)

bei 600°C deutlich erhöht, während die Bruchbelastbarkeit gleich blieb.

Von den Härtekurven (Abb. 18 und 19) vermitteln nur die Kurven für die Argon gebundenen Proben das gewohnte Bild, nämlich starker Anstieg der Härte nach der Glühung bei 600°C (Abb. 18). Bei den Natrium gebundenen Proben wurde für 700°C die größte Aufhärtungszone gemessen (Abb. 19), was in Übereinstimmung mit der Kohlenstoffanalyse und mit den Raumtemperaturdehnwerten steht.

Die Schlifffbilder in der Abb. 20 geben einen Eindruck von der Struktur der Ausscheidungen am Rand der Proben wieder. Bei den bei 600°C geglühten Proben sind etwas schwach neben den Korngrenzenauscheidungen noch Anhäufungen von Ausscheidungen auf den Gleitebenen der Kristallite zu erkennen. Die Menge der Ausscheidungen nimmt deutlich mit der Entfernung vom Rand ab.

4.5 Vanadinlegierungen

Vanadinlegierungen sind nach den thermodynamischen Daten auch mit stöchiometrischem karbidischem Brennstoff nicht stabil. Vanadin selbst hat eine relativ hohe Löslichkeit für Kohlenstoff und wird durch ihn versprödet. Titan, das noch eine höhere Kohlenstoffaffinität besitzt, hält die Vanadinmatrix bis zu einem gewissen Grad sauber.

Die Vanadinlegierungen werden als Reaktorhüllmaterialien diskutiert, wenn höhere Kühlmitteltemperaturen angestrebt werden. Als Umhüllungen für oxidischen Brennstoff sind sie nicht geeignet, da sie durch die Sauerstoffaufnahme während der Bestrahlung zu stark verspröden [5]. Die Versprödung durch die Kohlenstoffaufnahme ist nicht so stark [6] und geht vermutlich auch langsamer vor sich.

Für die Untersuchungen mit Vanadinlegierungen stand nur eine begrenzte Probenmenge zur Verfügung, so daß kein größeres Parameterfeld untersucht werden konnte. Die Versuche beschränkten sich daher auf 600 und 800°C.

Die Kohlenstoffaufnahme durch die Vanadinlegierungen nimmt mit der Temperatur zu (Abb. 21). Bei den Argon gebundenen Proben ist sowohl die Gewichtszunahme wie auch die Kohlenstoffkonzentrationserhöhung bei 600 und 800°C größer als bei den Natrium gebundenen Proben. Dies widerspricht den gängigen Vorstellungen. Bei den mechanischen Eigenschaften (Abb. 22) ist dieser Unterschied auch für die bei 600°C geglühten Proben zu sehen. Während für die mit Argon gebundenen VTi₃Si₁-Proben bei Raumtemperatur nur noch eine plastische Dehnung von 0,4 % gemessen wurde, hatten die Natrium gebundenen Proben noch eine Bruchdehnung von fast 4 %. Die hochchromhaltige Legierung VTi₂Cr₁₅ versprödete stärker als die Legierung VTi₃Si₁. Der eher positive Effekt der Aufkohlung zeigt sich bei den Hochtemperatureigenschaften (Abb. 23). Die Bruchdehnung wird nicht (600°C) oder nur in geringem Maße (700°C) erniedrigt, die Bruchfestigkeit und bei 700°C auch die Dehngrenze wird erhöht. Die Dehngrenzenerhöhung dürfte sich für die Kriecheigenschaften bei hohen Betriebstemperaturen positiv bemerkbar machen.

Die geringere Aufkohlung bei der Natriumbindung gegenüber der Argonbindung wird auch durch die Mikrohärtmessungen veranschaulicht (Abb. 24). Die Aufhärtung der Argon gebundenen Proben ist deutlich höher als die der Natrium gebundenen Proben. Das auch gegenüber den nur in statischer Argon-Atmosphäre geglühten Proben erniedrigte Härteniveau in der Mitte des Querschnitts der Natrium gebundenen Proben ist möglicherweise auf die Sauerstoffabgabe an das Natrium (und von da an den Brennstoff) zu erklären, die bei Argonbindung

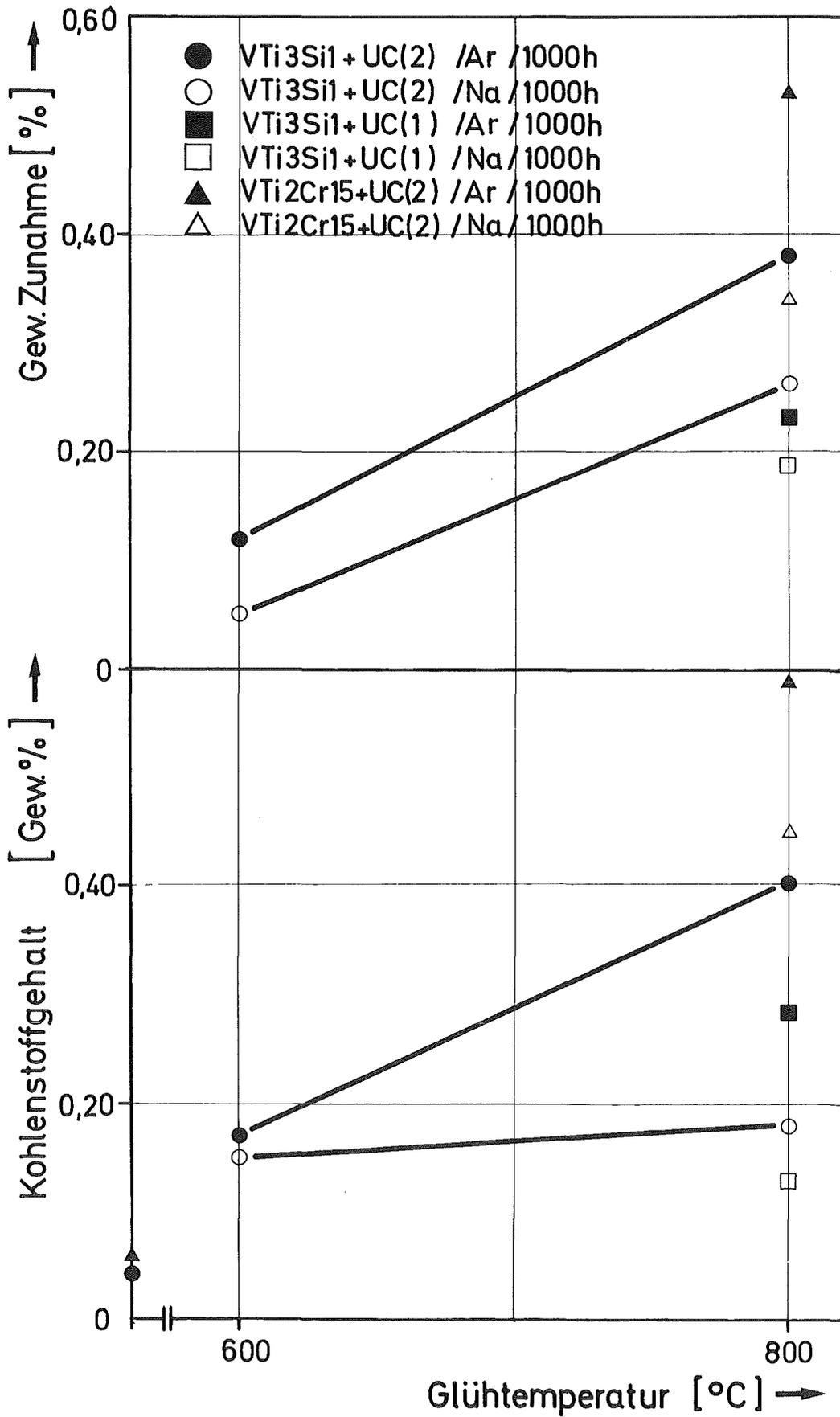


Abb. 21: Zunahme des Kohlenstoffgehalts und des Gewichts von Vanadinlegierungs-Proben nach Glühung mit UC

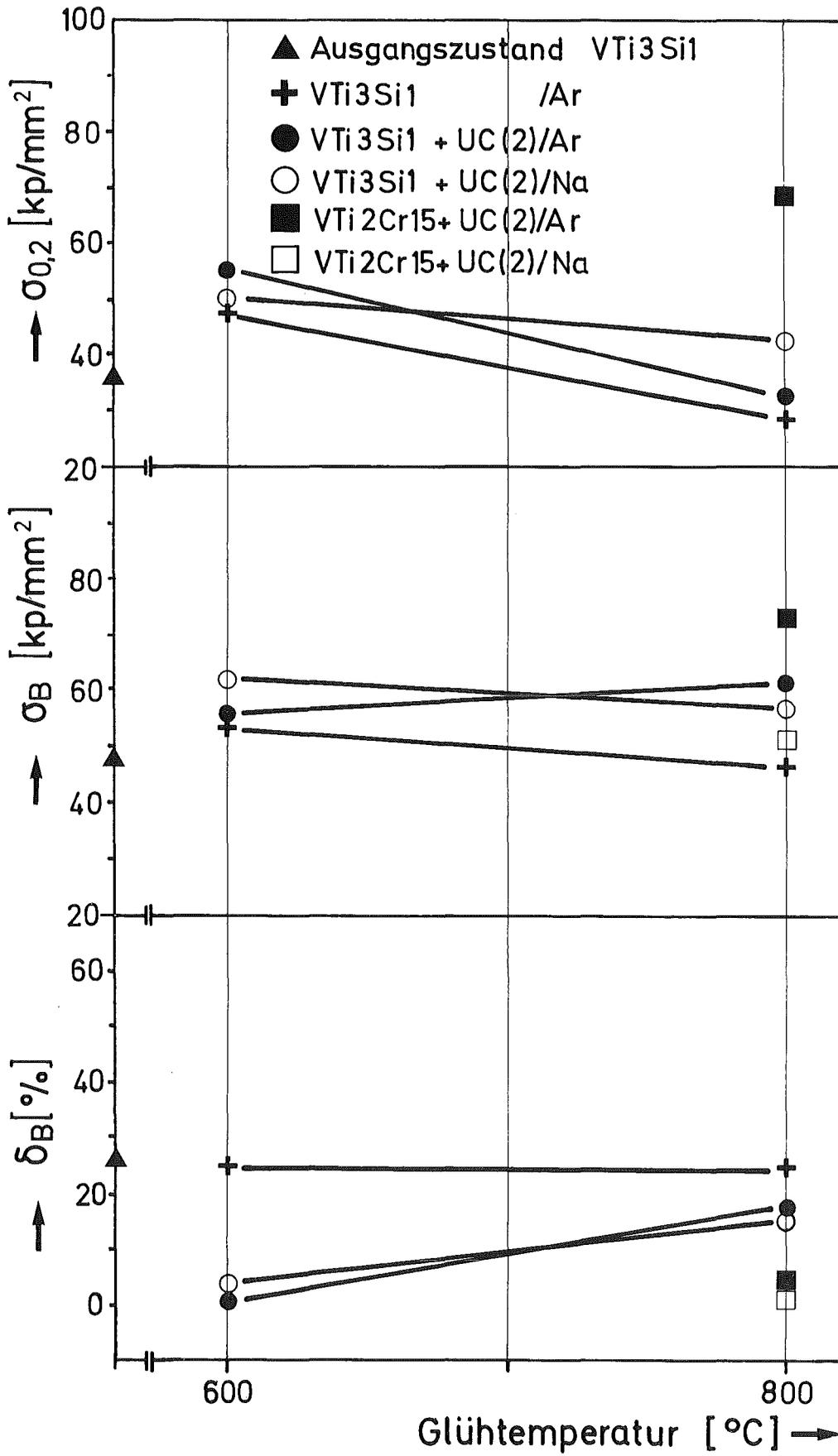


Abb. 22: Raumtemperatur-Eigenschaften von Vanadinlegierungen nach Glühung mit und ohne UC

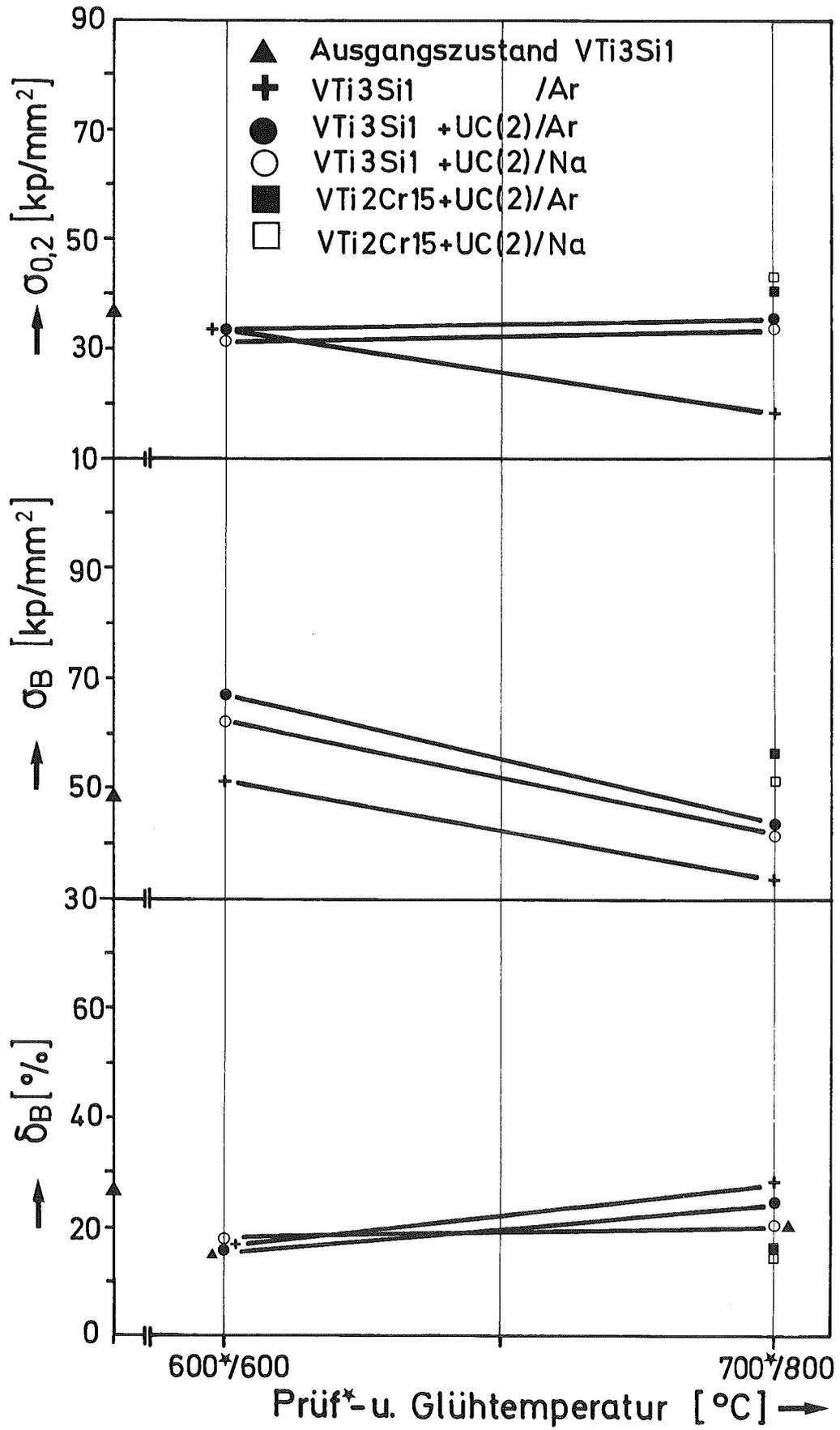


Abb. 23: Hochtemperatur-Eigenschaften von Vanadinlegierungen nach Glühung mit und ohne UC

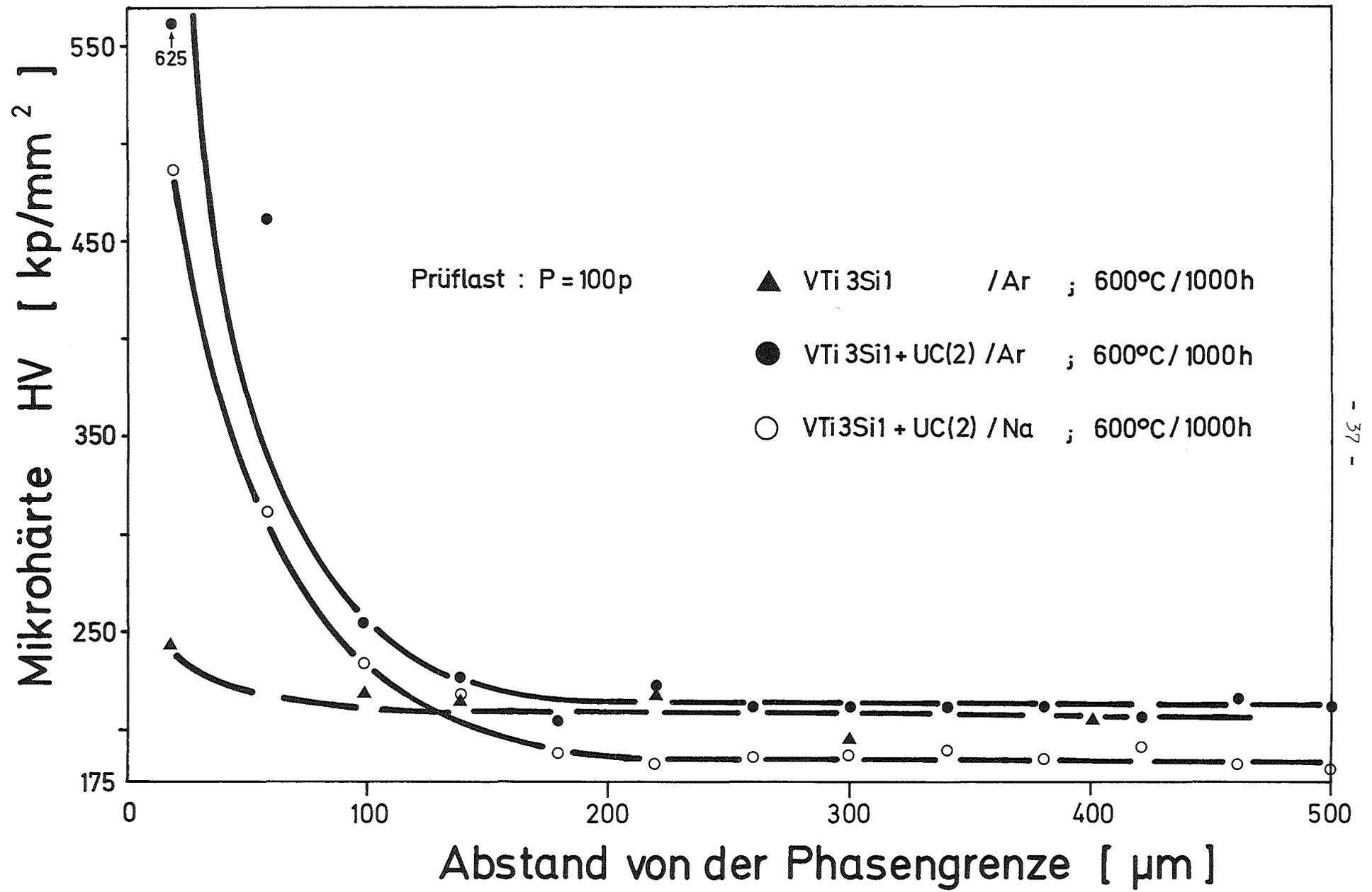


Abb. 24: Härteprofile von VTi₃Si₁-Proben nach Glühung mit und ohne UC bei 600°C

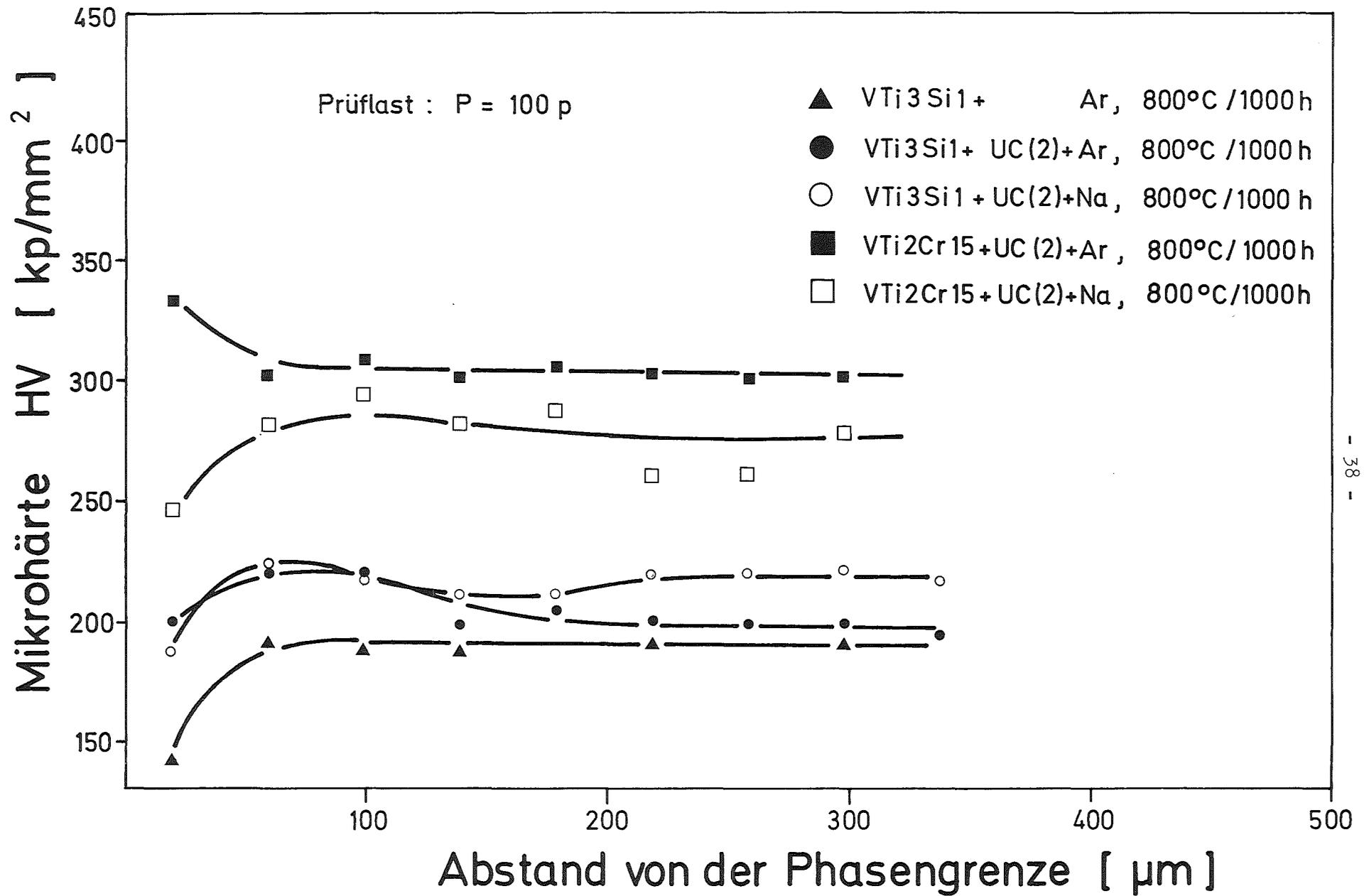


Abb. 25: Härteprofile von Vanadinlegierungsproben nach Glühung mit und ohne UC bei 800°C

bei 600°C noch nicht zustande kommt. Bei den Härtekurven auf der Abb. 25, die nach der Glühung bei 800°C von beiden Vanadinlegierungen gemessen wurde, deutet auch der Verlauf am Rand der Proben daraufhin, daß ein Sauerstofftransport von der Hülle zum Brennstoff stattgefunden hat. Bei der chromhaltigen Legierung ist dieser Effekt nur bei Natriumbindung zu sehen. Bei der nur in Argon ausgelagerten VTi₃Si₁-Vergleichsprobe ist der Härteabfall am Rand wahrscheinlich darauf zurückzuführen, daß die Bearbeitungsverformung (Fräsen) zur Rekristallisation in der Randzone geführt hat. Bei 600°C hat dies noch zur Aufhärtung dieser Zone geführt (s. Abb. 24).

4.6 Einfluß des Kohlenstoffgehaltes des Brennstoffs auf die Aufkohlung der Hüllmaterialien

Die Untersuchungen über diesen Einfluß wurden am Stahl vom Typ 1.4988 und an der Vanadinlegierung VTi₃Si₁ durchgeführt. Verwendet wurde UC mit drei unterschiedlichen Äquivalentkohlenstoffgehalten, wie in der Tab. 3 angegeben. Die Brennstoffsorten mit der Bezeichnung UC(1) und UC(2) hatten Korngrößen bis maximal 100 µm, bei der Sorte mit der Bezeichnung UC(3), die auch den größten Kohlenstoffanteil hatte (5,15 äquiv. Gewicht.% Kohlenstoff), betrug die maximale Korngröße 1000 µm. Dieser Umstand sollte bei der Interpretation der Meßergebnisse berücksichtigt werden.

Beim Stahl vom Typ 1.4988 ist eine Zunahme der Kohlenstoffkonzentration mit zunehmendem Kohlenstoffgehalt des Brennstoffs zu erkennen (Abb. 26). Vor allem im Zusammenhang mit einer Natriumbindung dürfte bei hochkohlenstoffhaltigem Brennstoff ein erhöhter Kohlenstofftransport zur Hülle stattfinden. Möglicherweise ist der große Unterschied in der Aufkohlung zwischen Argon- und Natriumbindung auf den

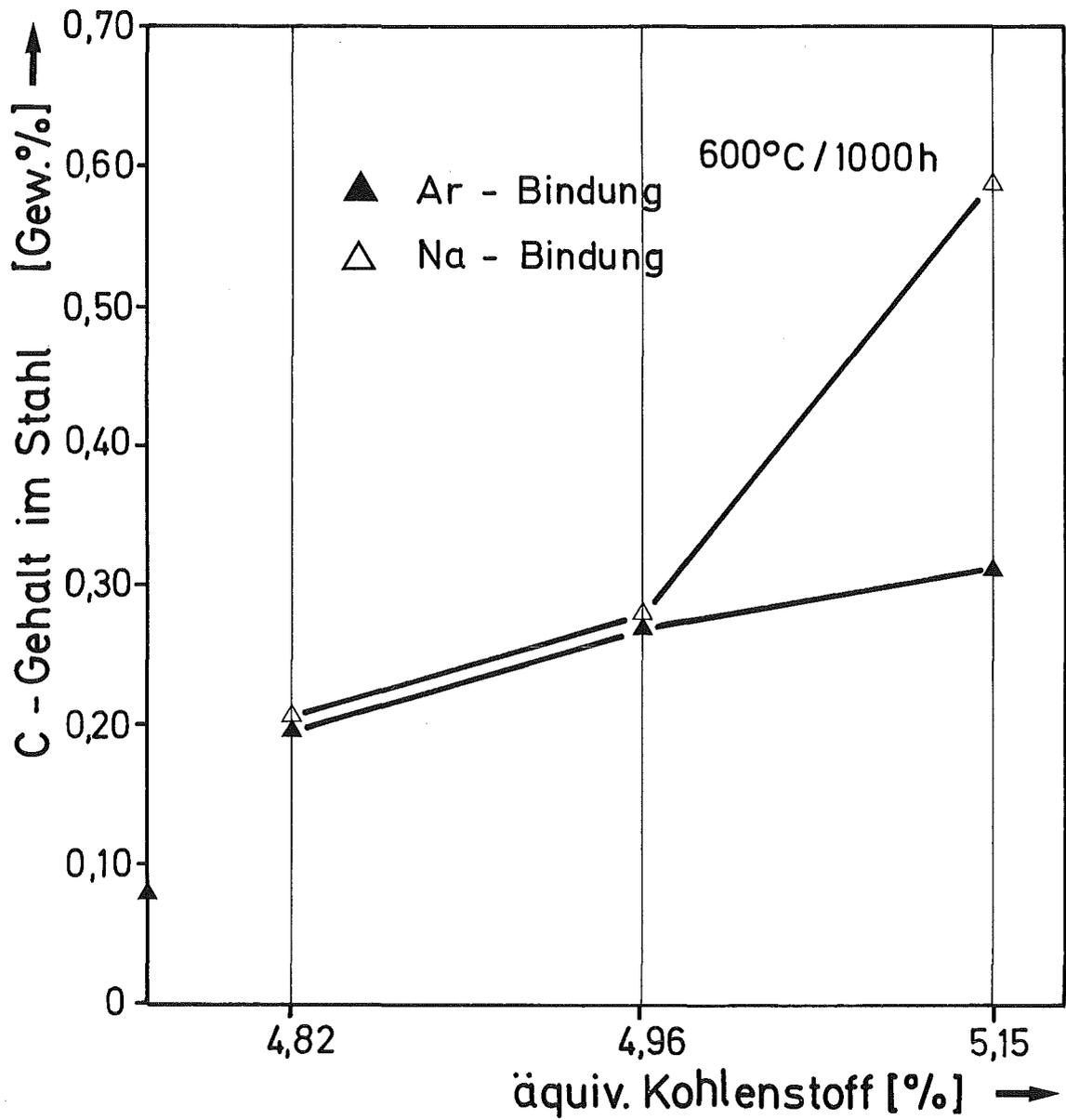


Abb. 26: Zunahme des Kohlenstoffgehalts von 1.4988-Stahl-Proben nach Glühung mit UC verschiedener Zusammensetzung bei 600°C über 1000 Stunden

schlechten Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle durch die groben Körner im UC(3) zurückzuführen. Schlechte Kontaktverhältnisse sollten für den Kohlenstofftransport bei Natriumbindung keine Rolle spielen, möglicherweise aber bei Gasbindung. Auch bei den mechanischen Eigenschaften (Abb. 27 und 28) zeigt es sich, daß ein höherer Kohlenstoffgehalt im Brennstoff sich vor allem mit Natriumbindung bemerkbar macht. Bemerkenswert ist, daß auch die bei 600°C gemessene Bruchdehnung nach der Auslagerung mit dem stark überstöchiometrischen Brennstoff mit 2,3 % nicht viel höher ist als die bei Raumtemperatur gemessene von 1,9 %. Die Bruchspannung - und damit auch die elastische Dehnbarkeit - ist jedoch noch hoch geblieben.

Die Mikrohärtmessungen (Abb. 29 und 30) haben im Gegensatz zu den mechanischen Eigenschaften ergeben, daß die Aufkohlung des Stahls sowohl in Kontakt mit nahezu stöchiometrischem wie auch mit stark überstöchiometrischem Karbid bei Natriumbindung größer ist als bei Gasbindung. Betrachtet man die mechanischen Eigenschaften (Abb. 27), erhält man jedoch den Eindruck, daß in Kontakt mit dem nahezu stöchiometrischen Karbid die Aufhärtung bei Gasbindung höher sein sollte.

Bei der Vanadinlegierung VTi_3Si_1 sieht es so aus, als ob auch bei 800°C sich erst bei hohem Kohlenstoffgehalt im Brennstoff die Natriumbindung besonders beschleunigend auf den Kohlenstofftransport zur Hülle auswirkt (Abb. 31). Der große Unterschied in der Aufkohlung des Hüllmaterials durch den Brennstoff mit 5,15 äquiv. Gewicht.-% Kohlenstoff zwischen Natrium- und Argonbindung ist wahrscheinlich auch hier auf die schlechten Kontaktverhältnisse bei Gasbindung zurückzuführen.

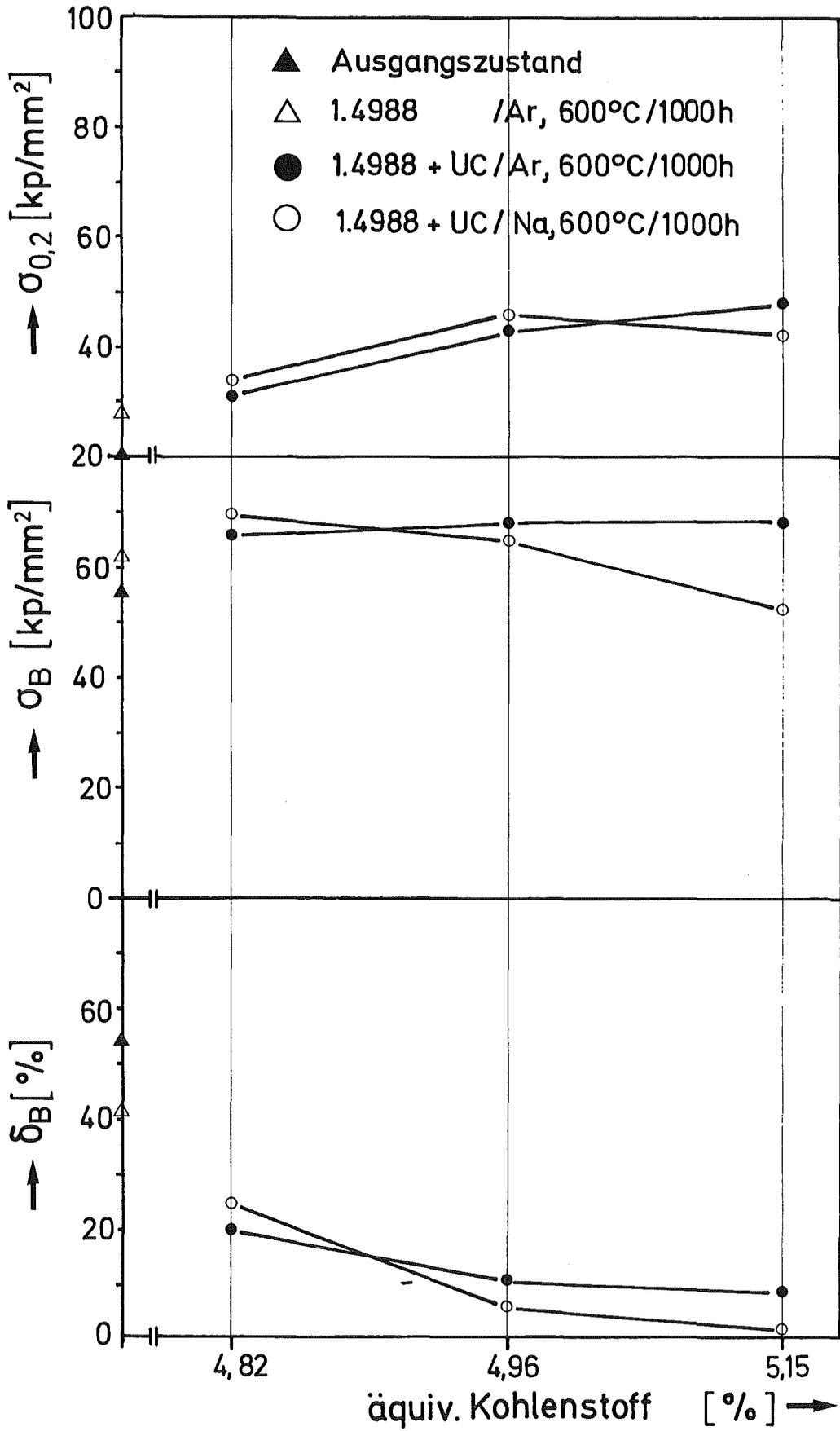


Abb. 27: Raumtemperatur-Eigenschaften von 1.4988-Stahl-Proben nach Glühung mit UC verschiedener Zusammensetzung

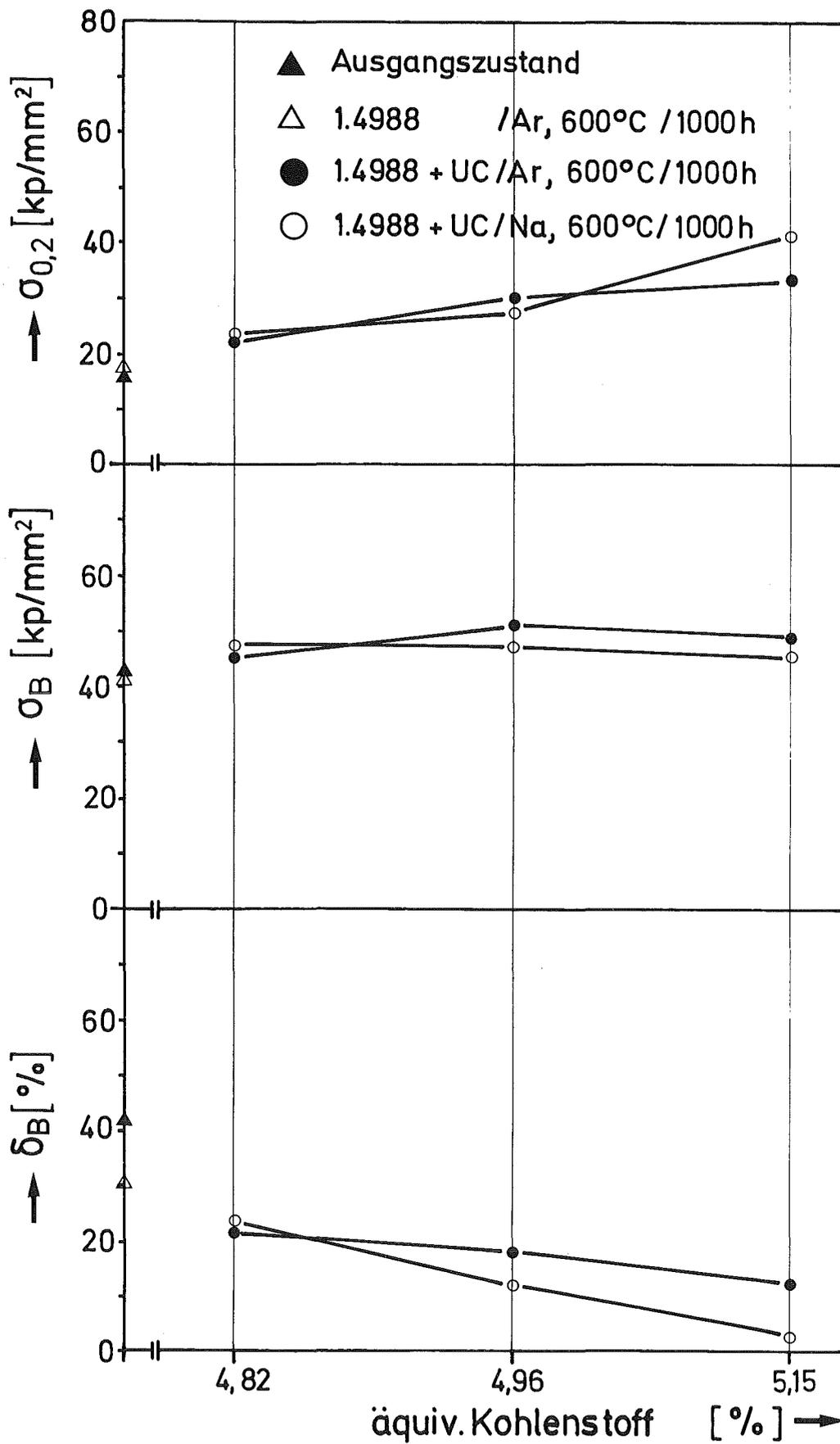


Abb. 28: Hochtemperatur-Eigenschaften (600°C) von 1.4988-Stahl-Proben nach Glühung bei 600°C mit UC verschiedener Zusammensetzung

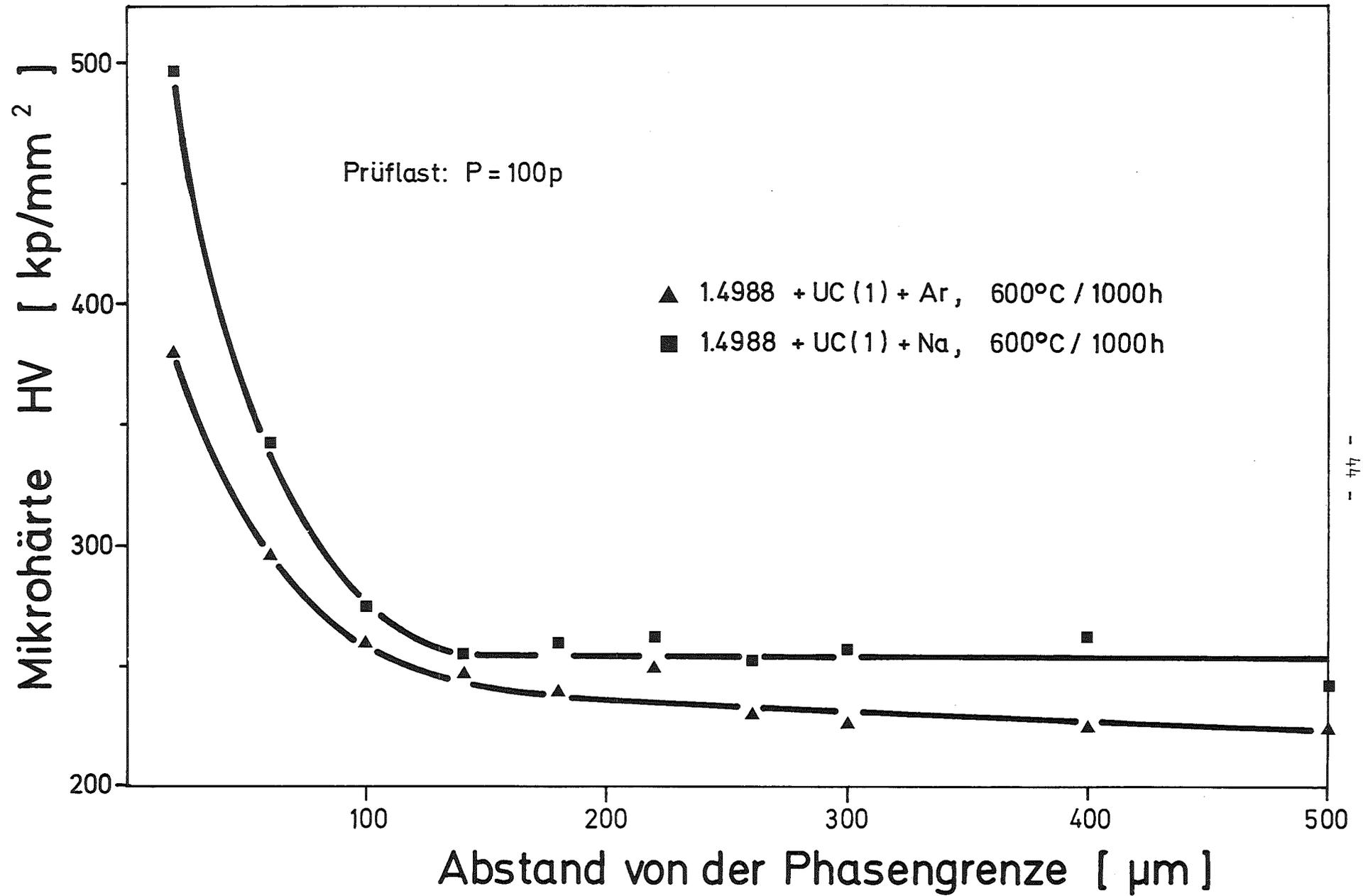


Abb. 29: Härteprofile von Vanadinlegierungsproben nach Glühung mit und ohne UC bei 800°C

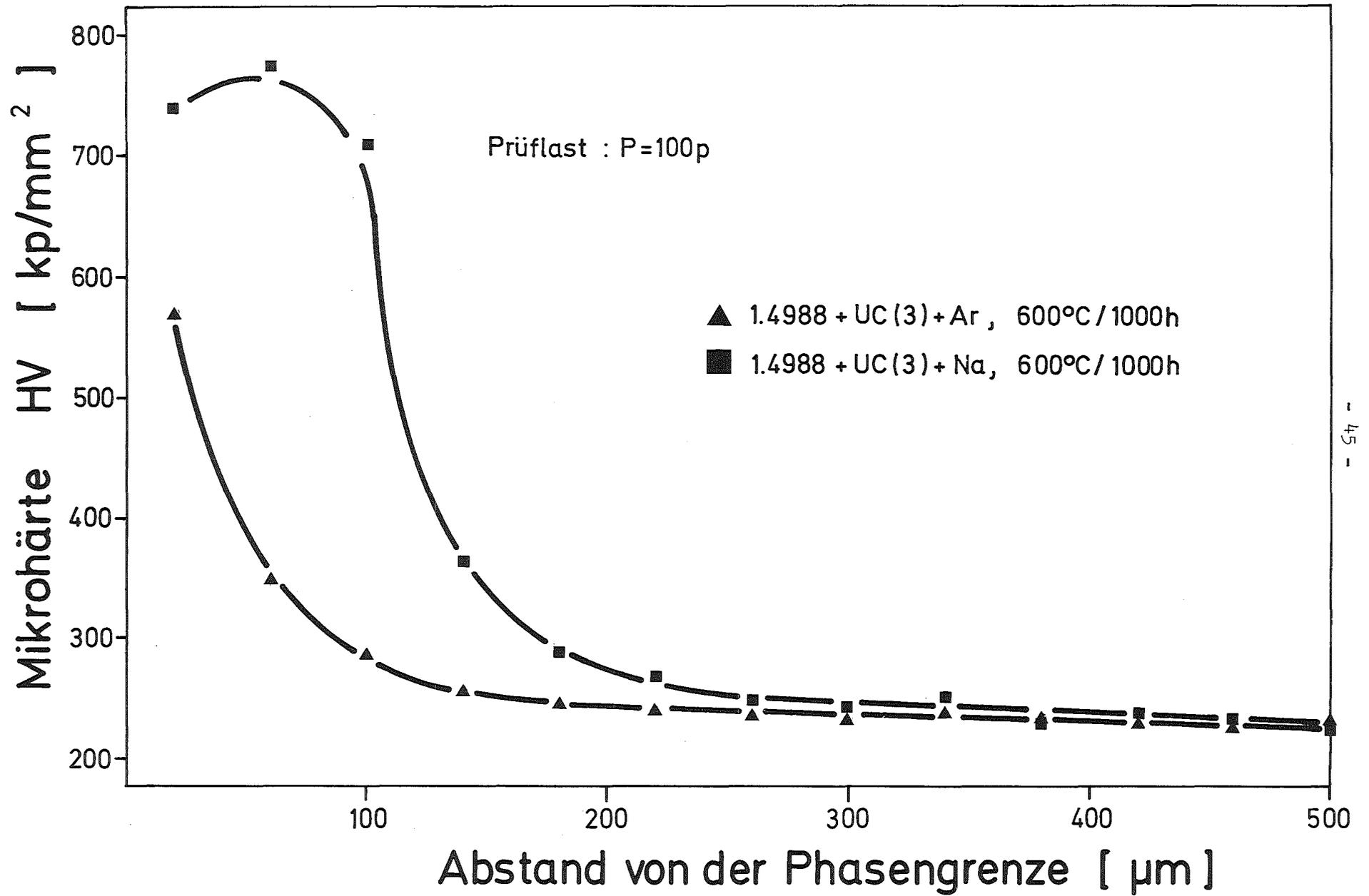


Abb. 30: Härteprofil von 1.4988-Stahl-Proben nach Glühung mit überstöchiometrischem UC

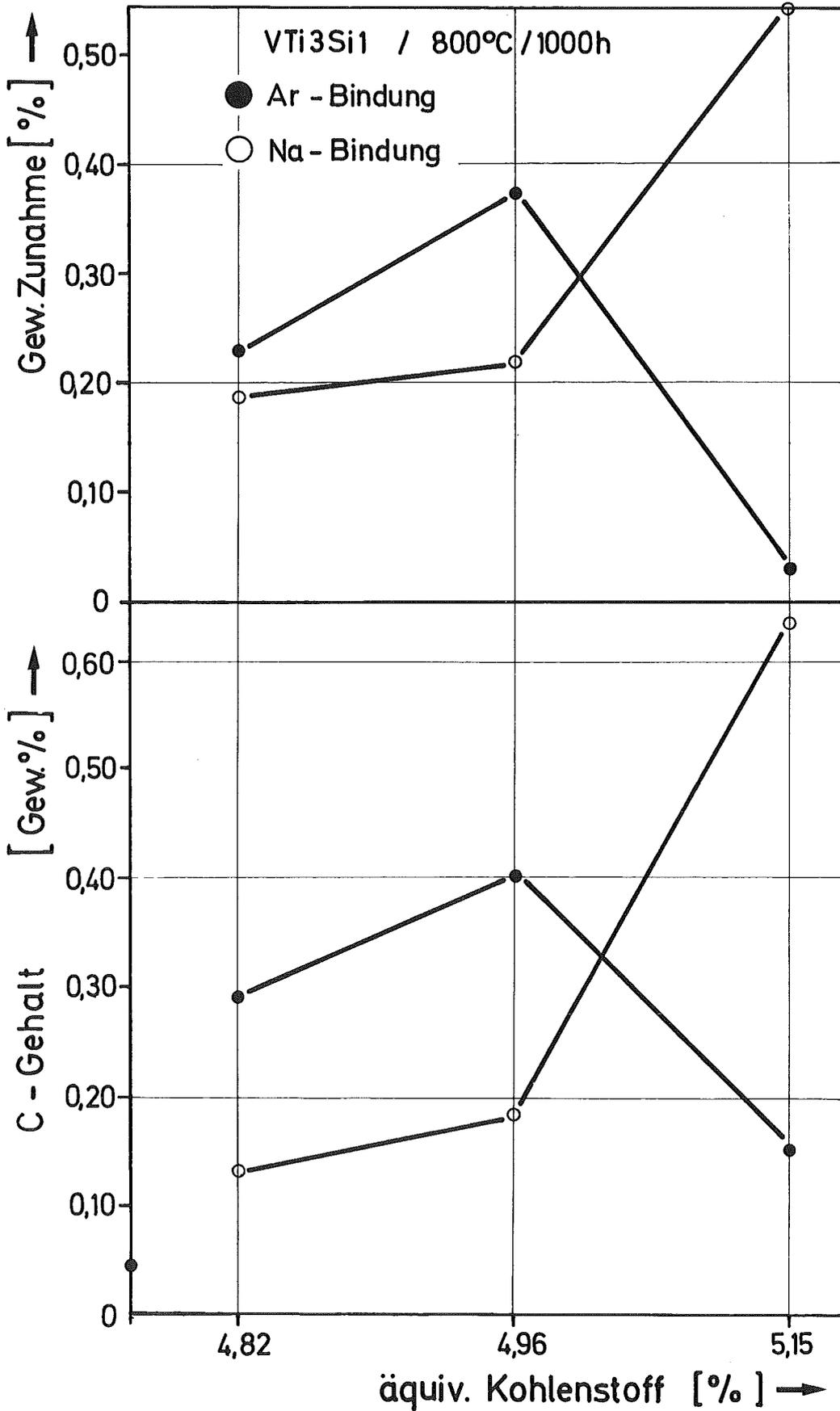


Abb. 31: Zunahme des Kohlenstoffgehalts und des Gewichts von VTi₃Si₁-Proben nach Glühung bei 600°C mit UC verschiedener Zusammensetzung

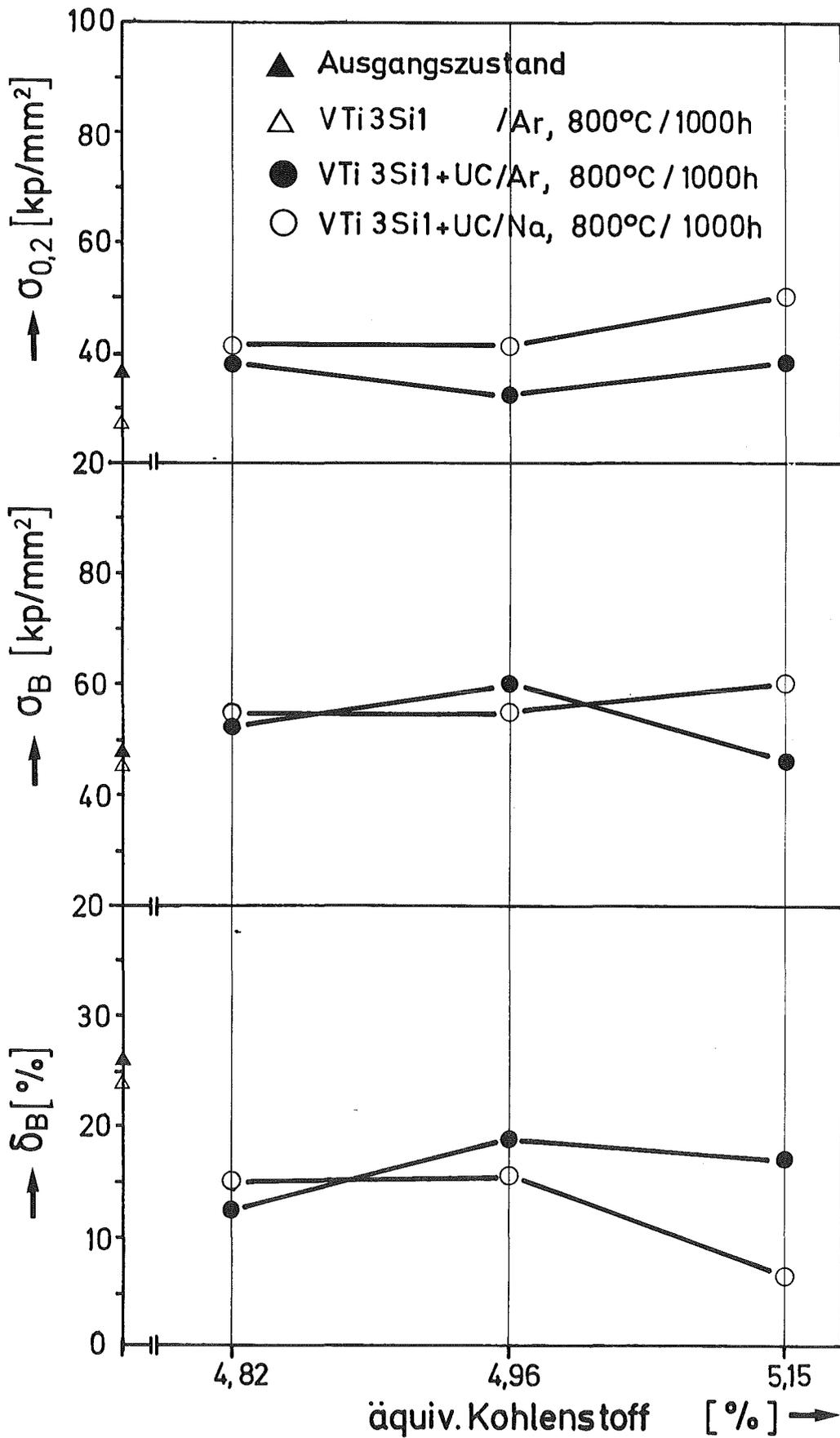


Abb. 32: Raumtemperatur-Eigenschaften von VTi3Si1-Proben nach Glühung mit UC verschiedener Zusammensetzung bei 800°C

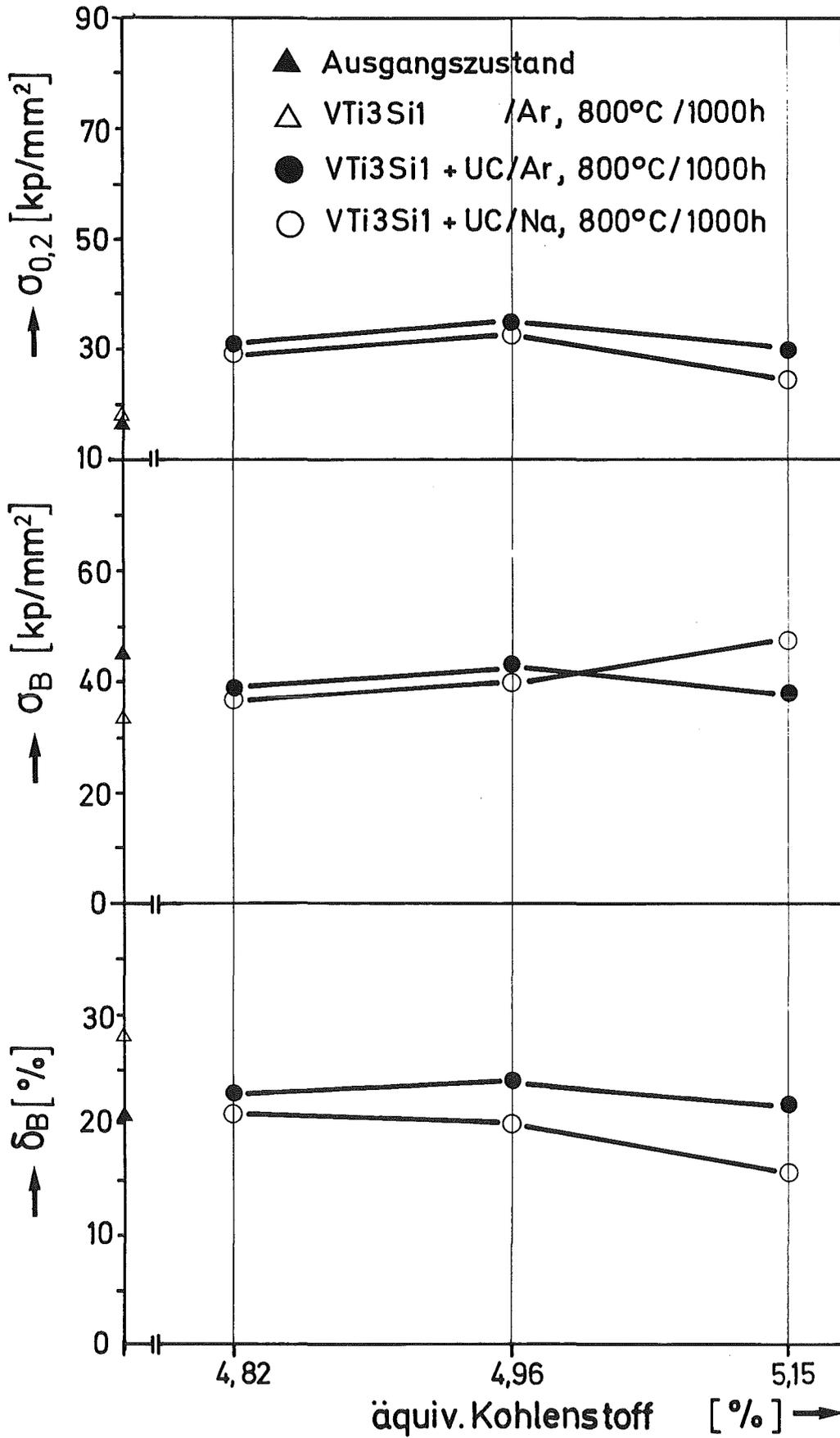


Abb. 33: Hochtemperatur-Eigenschaften (700°C) von VTi3Si1-Proben nach Glühung bei 800°C mit UC verschiedener Zusammensetzung

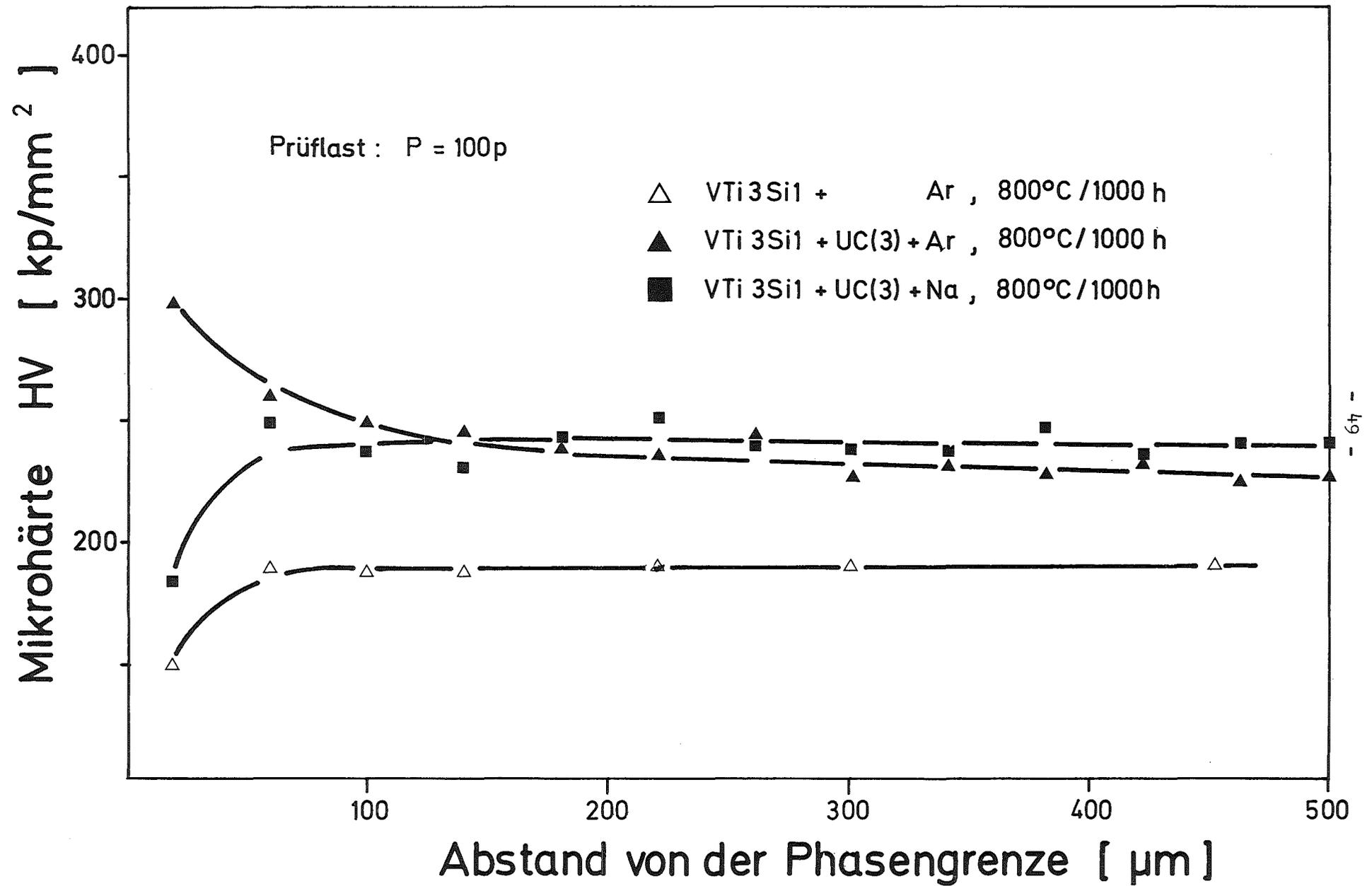


Abb. 34: Härteprofil von VTi₃Si₁-Proben nach Glühung bei 800°C mit und ohne überstöchiometrischem UC

Die mechanischen Eigenschaften von VTi₃Si₁ nach der Auslagerung mit den drei Brennstoffsorten sind für Raumtemperatur in Abb. 32 und für 700°C in Abb. 33 dargestellt. Die Dehnungswerte sind eigentlich nur für die Auslagerung mit der hochkohlenstoffhaltigen Brennstoffsorte mit den Kohlenstoffanalysenwerten in Einklang zu bringen. 800°C ist jedoch für diese Legierung nicht die ungünstigste Auslagerungstemperatur, wie die Abb. 22 schon erkennen ließ. Nach einer Auslagerung bei 600°C sind die Dehnungswerte viel kleiner.

Aus den Härtemessungen (Abb. 34) ist der große Unterschied in der Aufkohlung bei Natriumbindung gegenüber Gasbindung, wie ihn die Analyse zeigt, nicht erkennbar. Möglicherweise ist dafür, wie schon vorher beschrieben, die Sauerstoffreduzierung des Hüllmaterials durch den Brennstoff verantwortlich. Um den Einfluß des Kohlenstoffgehaltes des Brennstoffes auf die Härte dieses Hüllmaterials zu sehen, sind die Härtekurven in Abb. 34 mit denen in Abb. 25 zu vergleichen. Eine deutlich höhere Härte nach Auslagerung mit dem Brennstoff mit höherem Kohlenstoffgehalt ist zu erkennen.

4.7 Vergleich des Verhaltens der verschiedenen

Hüllmaterialien nach Auslagerung mit karbidischem Brennstoff

In diesem letzten Kapitel wird der Versuch unternommen, die gemessenen Werte so darzustellen, daß ein Vergleich des Verhaltens der verschiedenen Hüllmaterialien möglich ist. Bei einigen Darstellungen muß man schon genauer hinschauen, um das herauszulesen, was dargestellt worden ist. In der Abb. 35 ist die Aufkohlung der vier untersuchten

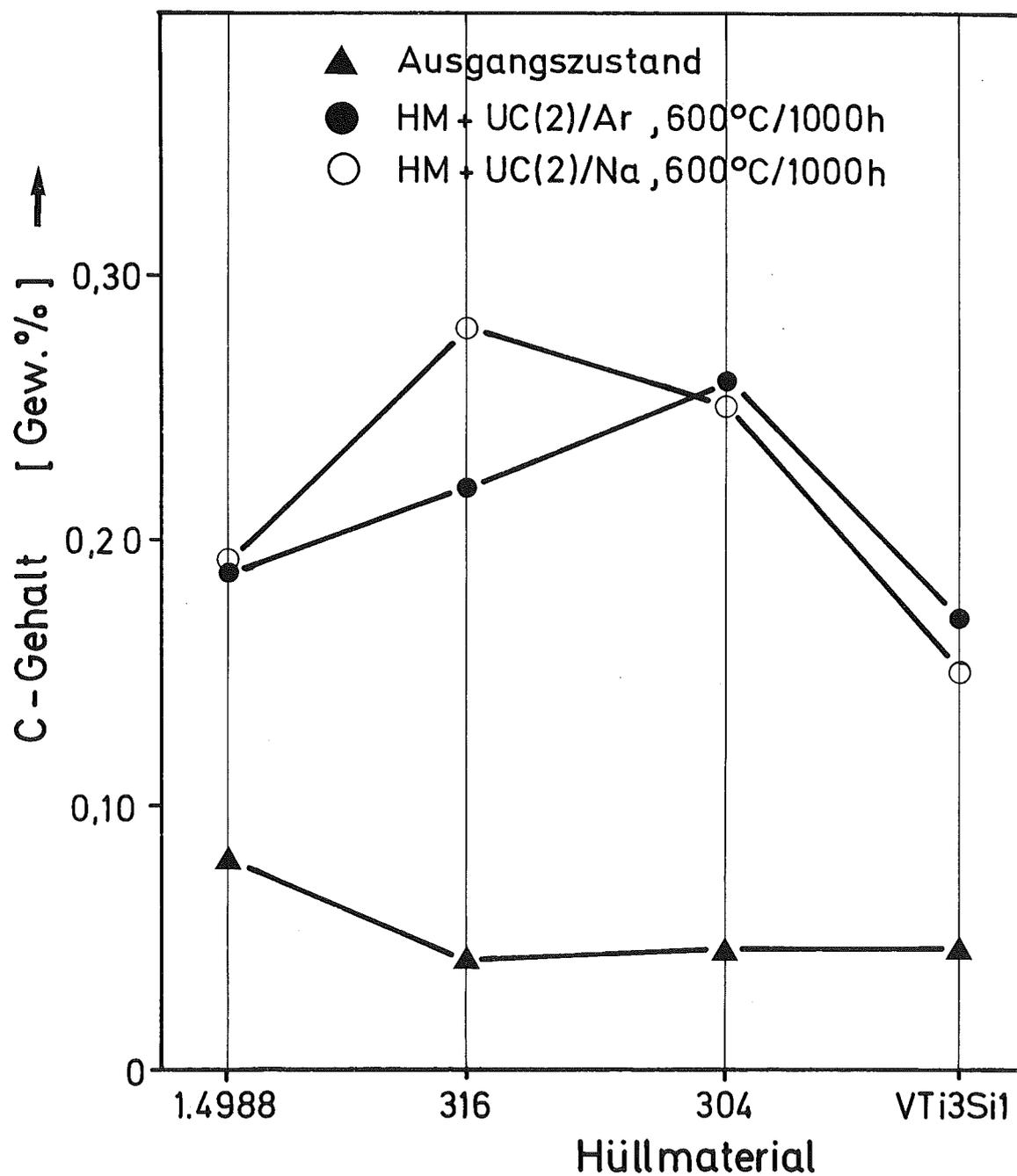


Abb. 35: Kohlenstoffgehalt verschiedener Hüllmaterialien vor und nach der Glühung mit UC bei 600°C

Hüllmaterialien bei 600°C nach 1000 h durch UC(2) bei Argon- und Natriumbindung dargestellt. Der Ausgangskohlenstoffgehalt war beim Stahl vom Typ 1.4988 mit etwa 0,08 Gew.-% am größten. Bei den anderen Materialien lag die Kohlenstoffkonzentration zwischen 0,04 und 0,05 %. Von den Stählen erfuhr der Stahl vom Typ 1.4988 unter den hier aufgeführten Bedingungen die geringste Aufkohlung. Beim 316-Stahl (1.4919) war die Aufkohlung bei Natriumbindung wesentlich höher als bei Gasbindung. Die Aufkohlung der Vanadinlegierung VTi3Si1 war unter diesen Bedingungen mit dieser Brennstoffsorte relativ gering.

In der Abb. 36 sind die bei Raumtemperatur gemessenen Eigenschaften der vier Hüllmaterialien aufgetragen. Besonders stark werden bei den Stählen, wie schon früher ausgeführt, die Dehnungswerte durch die Reaktionen mit dem Brennstoff in Mitleidenschaft gezogen. Schon die Auslagerung bei 600°C über 1000 h ohne Kontakt mit Brennstoff führt zu einer Reduktion der Duktilität. Die chemischen Wechselwirkungen mit dem Brennstoff haben die Bruchdehnungswerte auf ein für alle drei Stahlsorten fast gleiches Niveau von 5-10 % reduziert. Die Duktilität der Vanadinlegierung VTi3Si1 ist auch nach Auslagerung bei 600°C über 1000 h ohne Brennstoff verglichen mit den Stählen schon sehr gering. Die Reaktion mit dem Brennstoff führt dann zu Bruchdehnungswerten von nahezu Null Prozent. Die Festigkeitswerte dagegen sind nach der Auslagerung mit dem Brennstoff bei der Vanadinlegierung am höchsten. Bei den Stählen scheint der Stahl vom Typ 1.4988, was die Bruchbelastbarkeit betrifft, am meisten von den Reaktionen mit dem Brennstoff zu profitieren.

In den nachfolgenden drei Abbildungen sind die für die Hüllmaterialien gemessenen mechanischen Eigenschaften Bruchdehnung, Bruchspannung und Fließgrenze einzeln für Glüh- und Prüftemperaturen von 500, 600 und 700°C miteinander

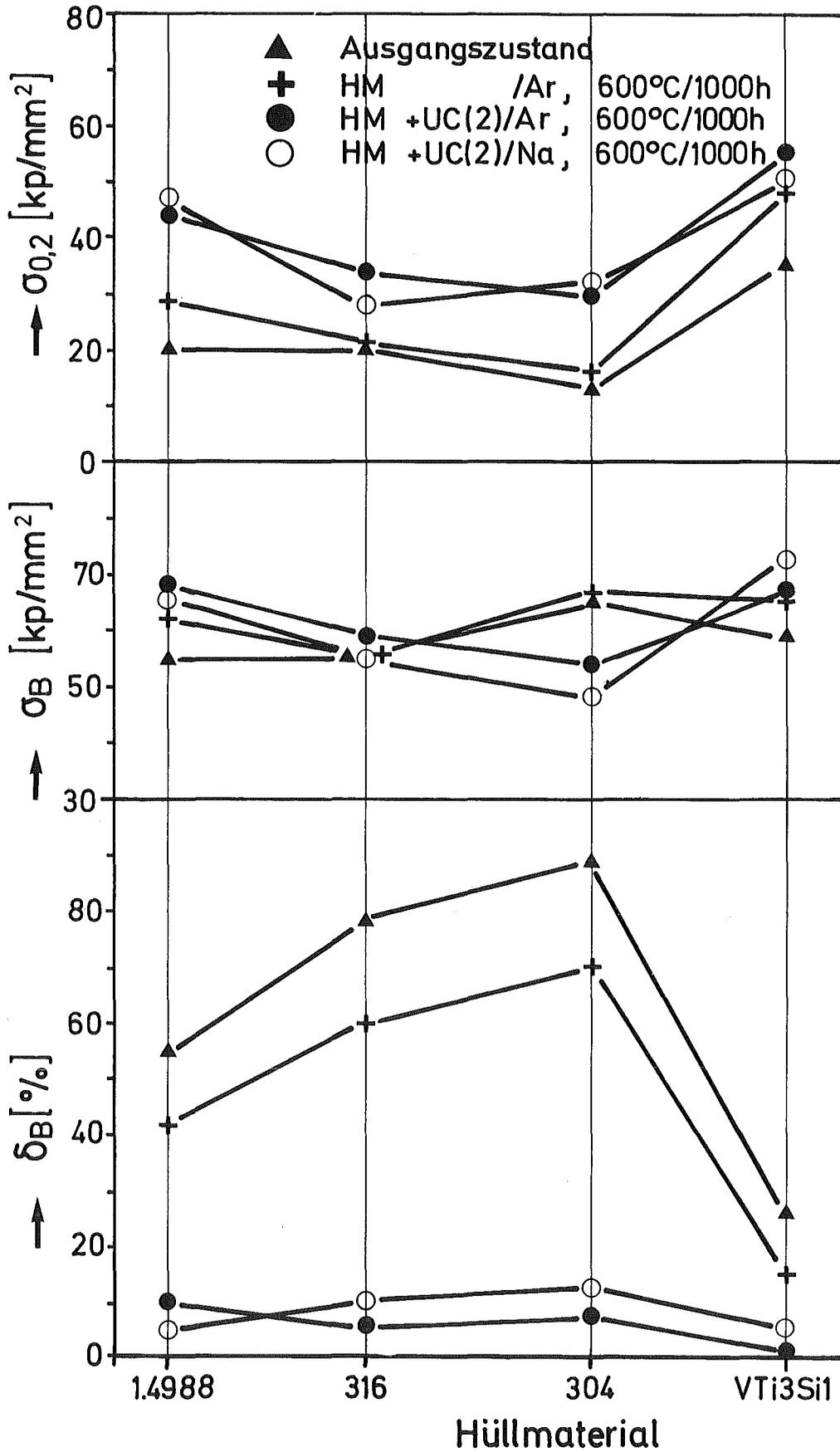


Abb. 36: Raumtemperatur-Eigenschaften verschiedener Hüllmaterialien nach Glühung mit und ohne UC bei 600°C

verglichen. Die Bruchdehnungswerte (Abb. 37) zeigen nach der Auslagerung bei 500°C im wesentlichen den für die unkorrodierten Proben gemessenen Verlauf. Der Unterschied zwischen Natrium- und Gasbindung wird nur bei den Raumtemperaturwerten des 304-Stahles stärker sichtbar. Nach der Auslagerung bei 600°C , der für die Aufkohlung kritischsten Temperatur, findet eine Angleichung der Dehnungswerte für die Hüllmaterialien auf niedrigerem Niveau statt. Die Raumtemperaturdehnungswerte von VTi3Si1 sind besonders niedrig, während die bei 600°C ermittelten Werte der korrodierten Proben denen der unkorrodierten Vergleichsproben entsprechen. Nach der Auslagerung bei 700°C ist ebenfalls eine Angleichung der Werte festzustellen. Hier ist aber die Wirkung der Natriumbindung stärker erkennbar.

Die Werte für die Fließgrenze (Abb. 38) und für die Bruchfestigkeit (Abb. 39) lassen den 1.4988-Stahl etwas günstiger erscheinen als die anderen beiden Stahltypen, was seine Betriebseignung als Hüllmaterial für karbidischen Brennstoff betrifft. Auch die Vanadinlegierung VTi3Si1 zeigt ein relativ gutes Verhalten.

5. Schlußbemerkungen

In diesem Bericht ist eine Fülle von Ergebnissen über das Verträglichkeitsverhalten von Hüllmaterialien mit karbidischem Brennstoff zusammengetragen, von denen nicht jedes einzelne von Interesse sein wird. Auf einen kurzen Nenner gebracht lassen sich die Ergebnisse wie folgt zusammenfassen: Alle Hüllmaterialien werden durch die Wechselwirkungen mit karbidischem Brennstoff in ihren mechanischen Eigenschaften verändert; sie verspröden teilweise. Die stärkste Versprödung findet bei Temperaturen um 600°C statt. Es sieht jedoch nicht so aus, als ob wegen der

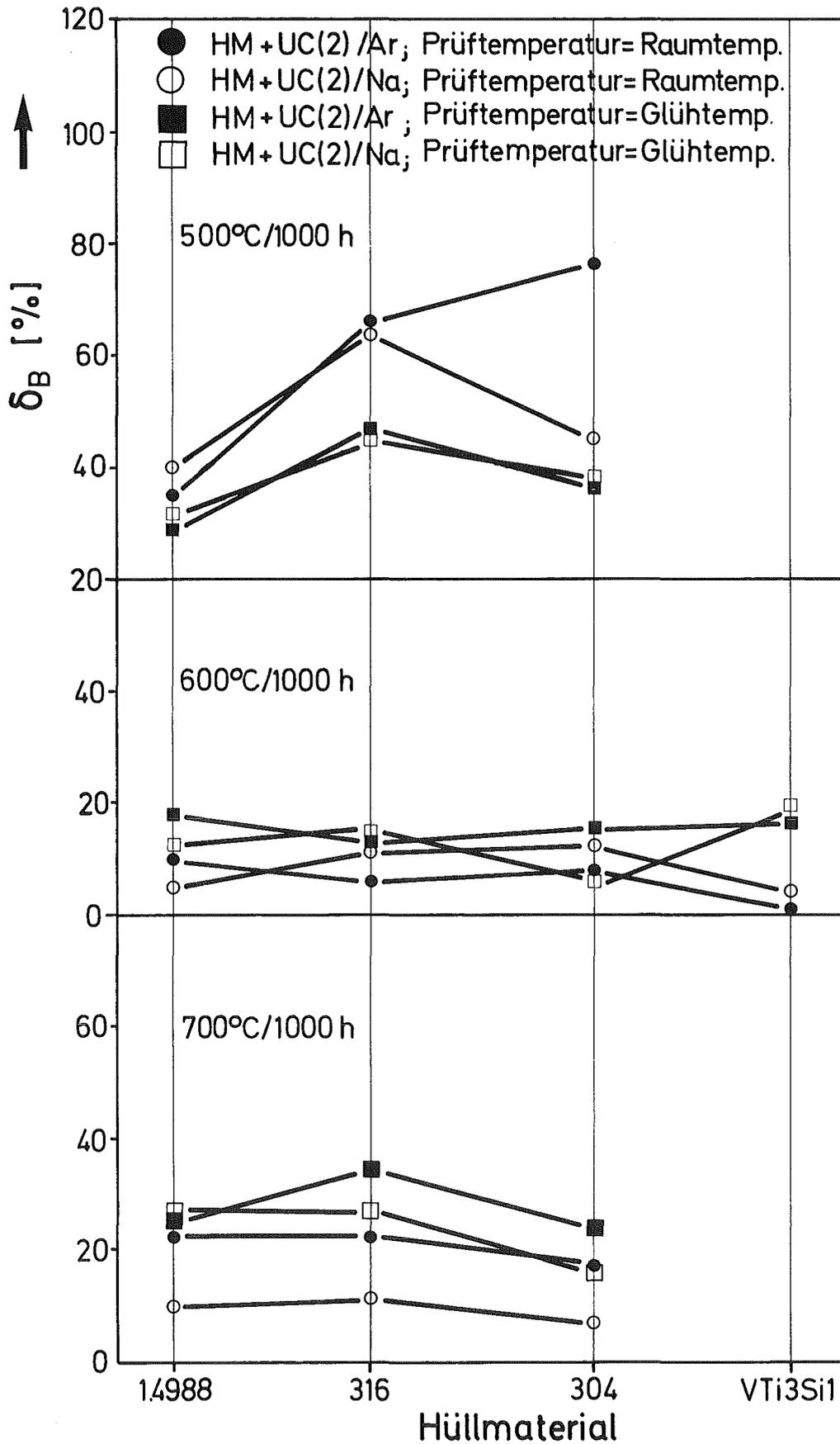


Abb. 37: Bruchdehnungswerte von Hüllmaterialproben nach Glühung mit UC

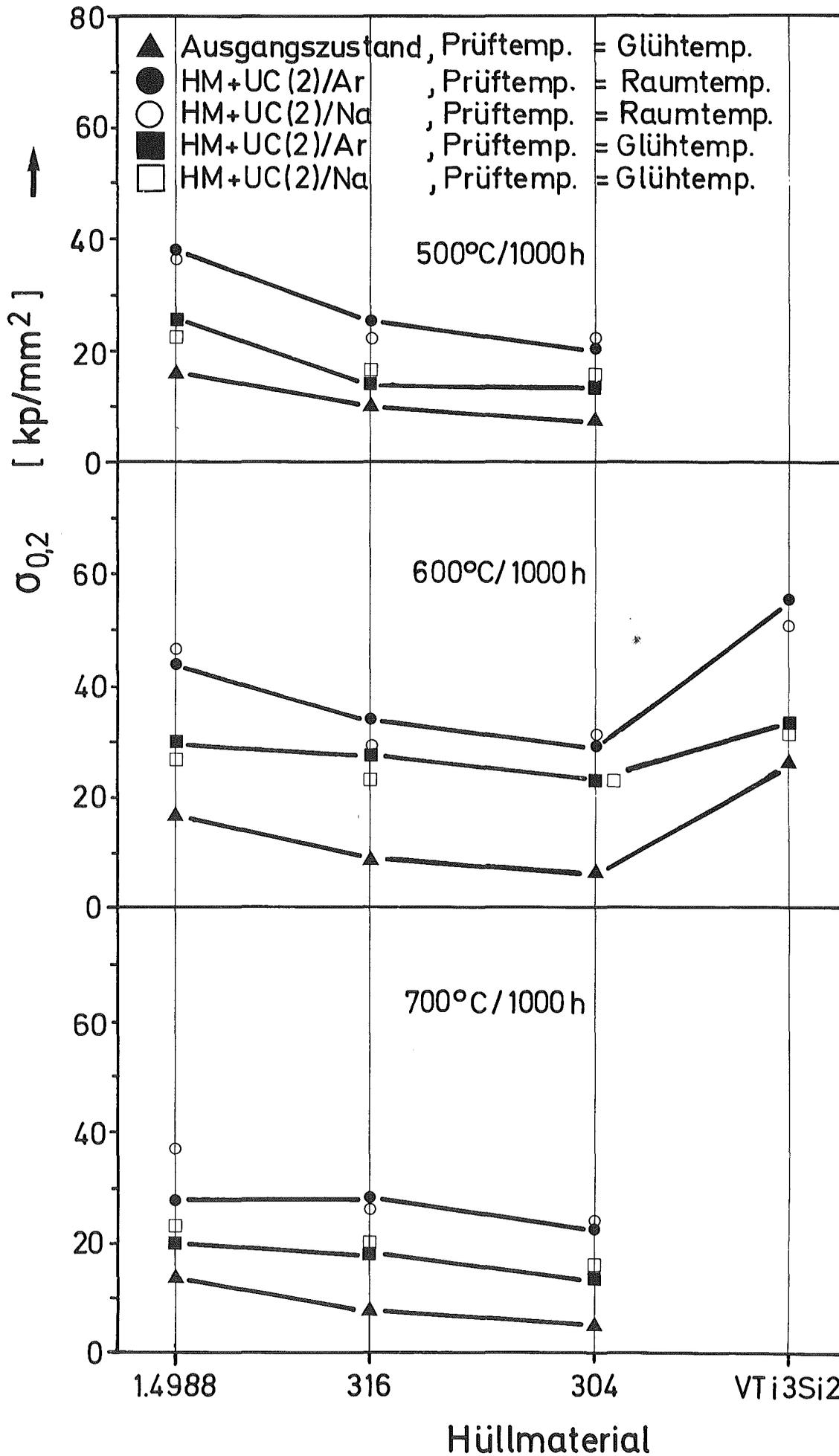


Abb. 38: Fließgrenzen von Hüllmaterialproben nach Glühung mit UC

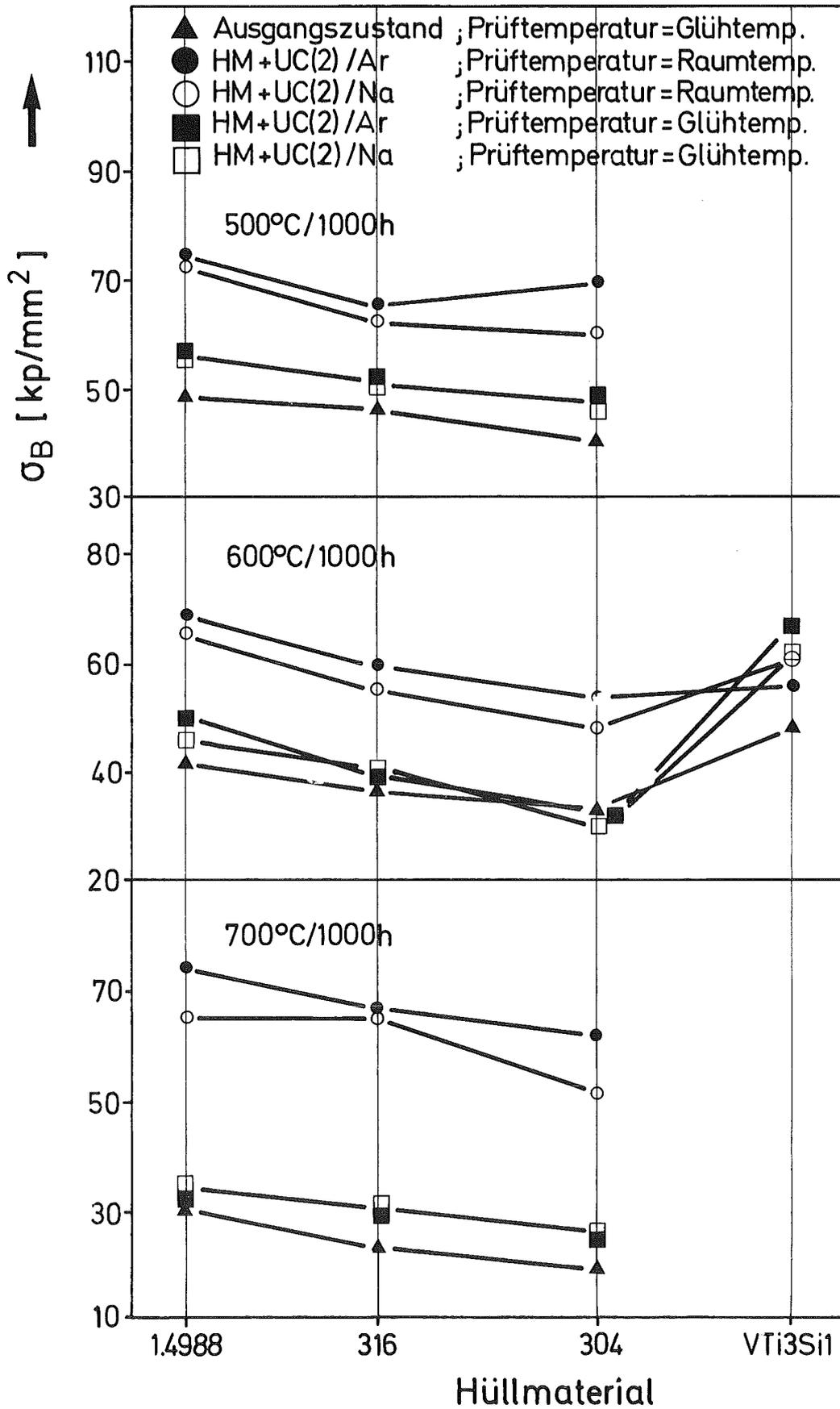


Abb. 39: Bruchfestigkeit von Hüllmaterialproben nach Glühung mit UC

möglichen Wechselwirkung mit dem Brennstoff sowohl die drei untersuchten Stähle als auch die Vanadinlegierung VTi₃Si₁ als Hüllmaterialien für Karbidstäbe unbrauchbar sind. Bei hohen Betriebstemperaturen wird sich möglicherweise die Aufkohlung günstig auf die gewünschten Langzeiteigenschaften auswirken. Die geringe Duktilität bei Raumtemperatur der aufgekohlten Hülle dürfte nur bei der Ent- oder Umladung von Brennstäben eine Rolle spielen. Da aber die Belastbarkeit auch nach der Aufkohlung noch hoch ist, sollte die geringe Raumtemperatur-Dehnung nicht allzu schwerwiegend beurteilt werden. Von den untersuchten Stählen zeigt der stabilisierte 1.4988-Stahl noch das beste Verhalten gegenüber dem karbidischen Brennstoff; d.h., seine mechanischen Eigenschaften werden durch die Wechselwirkungen mit dem Brennstoff in geringerem Maße ungünstig verändert als die der anderen Stähle.

Literatur

- [1] O. Götzmann, D. Scherbl; KFK 1213
- [2] O. Götzmann, P. Hofmann; IAEA/SM-173/III-28
- [3] P. Hofmann; KFK 1832
- [4] R. Dietrich; Dipl. Arbeit, KFK demnächst
- [5] O. Götzmann, P. Hofmann; KFK 1272/4, 113-9
- [6] O. Götzmann, P. Hofmann; KFK 1546