



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

Institut für Reaktorwerkstoffe / Heiße Zellen

**Bestrahlungserprobung
von THTR-Brennelementen
im DRAGON-Reaktor**

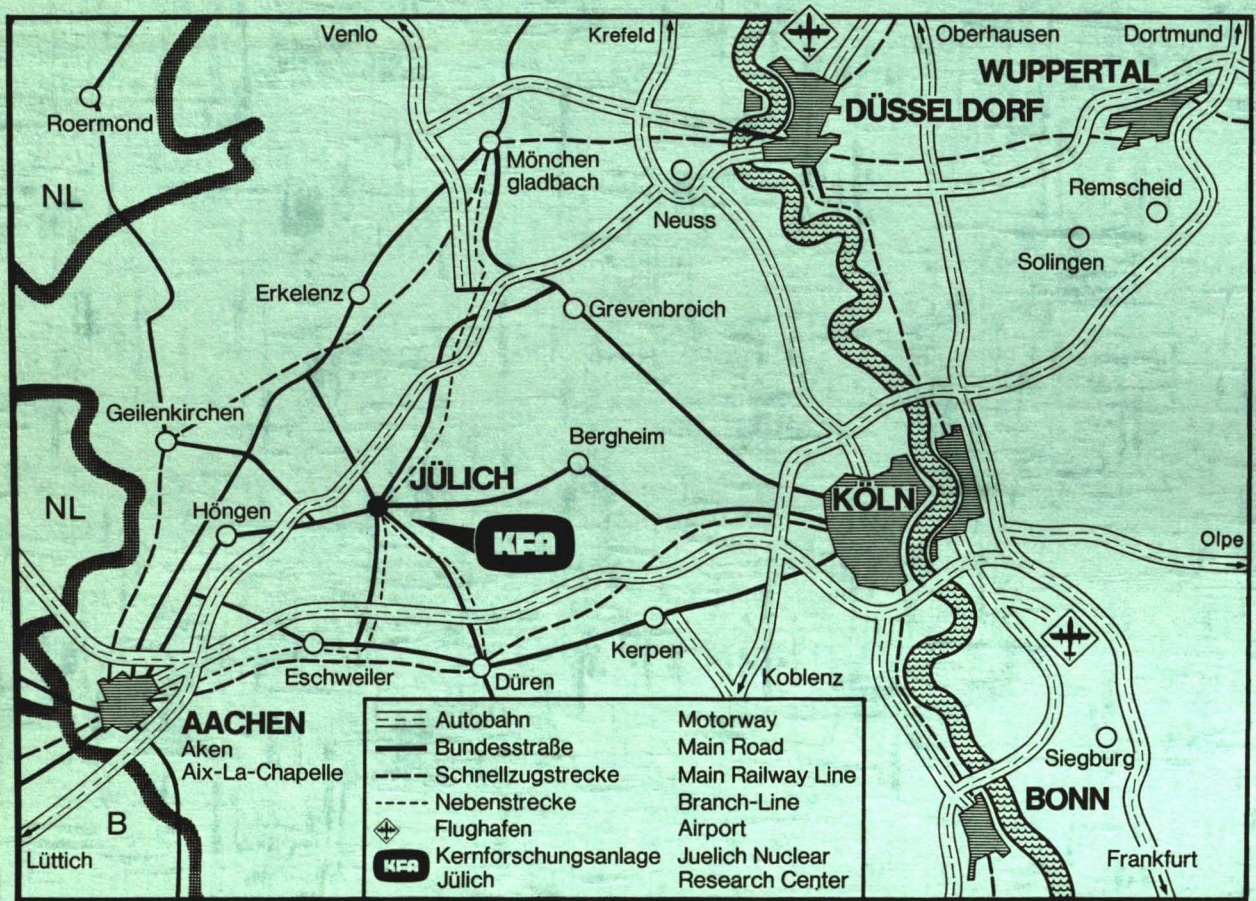
(Bestrahlungsexperiment DR-K3)

von

W. Burck, R. Duwe, E. Groos und H. Müller

**Jül - 1408
März 1977**

Als Manuskript gedruckt
ISSN 0366-0885



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 1408

Institut für Reaktorwerkstoffe / Heiße Zellen Jül - 1408

Im Tausch zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH,
Jülich, Bundesrepublik Deutschland

**Bestrahlungserprobung
von THTR-Brennelementen
im DRAGON-Reaktor**

(Bestrahlungsexperiment DR-K3)

von

W. Burck, R. Duwe, E. Groos und H. Müller

A b s t r a c t

Within the scope of the program "Development of Spherical Fuel Elements for HTR", 25 similar fuel elements (f.e.) have been irradiated in the DRAGON reactor. The f.e. were fabricated by NUKEM and were to be tested under HTR conditions to scrutinize their employability in the THTR.

The fuel was in the form of coated particles moulded into A3 matrix. The kernels of the particles were made of mixed oxide of uranium and thorium with an U 235 enrichment of 90 %. Each f.e. contained 2.2 g U 235.

The 25 spheres were arranged in a vertical column inside a modified DRAGON fuel element, rendering possible the measurement of the fission gas release during the irradiation.

The irradiation time was 719 full power days with maximum f.e.-surface temperatures of 1100°C. The burn up was between 8 and 15 % fima, the fast neutron dose between 2 and $5 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$), depending upon the vertical position of the f.e. in the column.

One aim of the post irradiation examination was the investigation of irradiation induced changes of mechanical properties (dimensional stability and elastic behaviour) and of the corrosion behaviour, which were compared with the properties determined with unirradiated f.e. The measurement of the fission gas release in annealing tests and ceramographic examinations exhibited no damage of the coated particles. The measured concentration distribution of fission metals led to conclusions about their release.

All results showed, that neither the coated particles nor the integral fuel spheres experienced any significant changes that could impair their utilization in the THTR.

Zusammenfassung

Im Rahmen des Programms "Entwicklung kugelförmiger Brennelemente für HTR" wurden im DRAGON-Reaktor 25 gleichartige von der Firma NUKEM hergestellte Brennelemente (BE) bestrahlt. Ziel der Bestrahlung war die Erprobung der BE unter HTR-Bedingungen und die Überprüfung dieses BE-Typs für den Einsatz im THTR.

Der Brennstoff - Uran-Thorium-Mischoxid mit einer U 235-Anreicherung von 90 % - war in Form beschichteter Brennstoffteilchen in einer A3-Matrix gepreßt. Jedes BE enthielt 2,2 g U 235.

Die BE waren als vertikale Säule so in einem DRAGON-Brennelement angeordnet, daß die von ihnen freigesetzten gasförmigen Spaltprodukte während der Bestrahlung gemessen werden konnten.

Die Bestrahlung dauerte 719 Vollasttage, dabei wurden bei maximalen BE-Oberflächentemperaturen von 1100°C Abbrände zwischen 8 und 15 % fima sowie schnelle Fluenzen zwischen 2 und $5 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ ($E \geq 0,1 \text{ MeV}$) je nach vertikaler Position der BE in der Säule erreicht.

In umfangreichen Nachuntersuchungen wurden die Veränderungen der mechanischen Eigenschaften und des Korrosionsverhaltens der BE im Vergleich zu unbestrahlten BE ermittelt. Dabei wurden an einer ausreichenden Zahl gleichartiger BE verschiedene Eigenschaften, z.B. Dimensionsstabilität und elastisches Verhalten in Abhängigkeit von Bestrahlungsparametern wie Fluenz und Temperatur untersucht. Die Messung der Freisetzung von Spaltgasen im Ausheiztest sowie die keramografische Untersuchung lassen Aussagen über das Verhalten der Brennstoffpartikeln zu; sie ergaben keine bestrahlungsbedingten Schäden. Durch die Bestimmung der Verteilung fester Spaltprodukte konnten Angaben über deren Transport- und Freisetzungverhalten gemacht werden.

Alle Ergebnisse zeigen, daß sowohl die Brennstoffpartikeln als auch die integralen Kugelbrennelemente durch die Bestrahlung keine wesentlichen Veränderungen erfahren haben, die den Einsatz solcher BE im Reaktorbetrieb beeinträchtigen könnten.

Inhaltsverzeichnis

- 0 Einleitung
- 1 Zielsetzung und Auslegung
- 2 Probenbeschreibung und Bestrahlungsangaben
 - 2.1 Herstellung und Beschreibung der Testproben
 - 2.1.1 Beschichtete Brennstoffteilchen
 - 2.1.2 Brennelemente
 - 2.2 Bestrahlung
 - 2.2.1 Testanordnung
 - 2.2.2 Positionen und Bestrahlungsdaten
 - 2.2.3 Temperaturen und Fluenzen
 - 2.2.4 Abbrand
- 3. Nachuntersuchungen
 - 3.1 Untersuchungen zum Brennelementverhalten
 - 3.1.1 Sichtprüfung
 - 3.1.1.1 Sichtprüfung der BE
 - 3.1.1.2 Sichtprüfung der Grafitkalotten
 - 3.1.2 Gewichtsbestimmung
 - 3.1.3 Dimensionsmessungen
 - 3.1.3.1 Dimensionsmessungen an BE
 - 3.1.3.2 Dimensionsmessungen an Grafitkalotten
 - 3.1.4 Untersuchung der mechanischen Festigkeit
 - 3.1.4.1 Zerdrückttest
 - 3.1.4.2 Falltest
 - 3.1.5 Untersuchungen zum Korrosionsverhalten
 - 3.1.5.1 Oxidationstest
 - 3.1.5.2 Falltest zur Untersuchung des Einflusses von Korrosion auf die Festigkeit
 - 3.1.6 Spaltgas-Ausheiztest
 - 3.1.6.1 Messung der Spaltgasfreisetzung
 - 3.1.6.2 Partikelberstversuche
 - 3.1.7 Keramografische Untersuchungen
 - 3.1.8 Untersuchungen nach Zerlegung eines BE
 - 3.1.8.1 Partikelverteilung
 - 3.1.8.2 Verteilung des freien Urans
 - 3.1.8.3 Optischer Anisotropiefaktor
 - 3.2 Untersuchung zum Verhalten fester Spaltprodukte
 - 3.2.1 Probennahme
 - 3.2.2 Messung
 - 3.2.3 Bestimmung des Inventars
 - 3.2.4 Ergebnisse
 - 3.2.4.1 Konzentrationsprofile und Freisetzung von Cs 134 und Cs 137
 - 3.2.4.2 Konzentrationsprofile und Freisetzung von Sr 90
 - 3.2.4.3 Konzentrationsprofile und Freisetzung von Ag 100m
 - 3.2.4.4 Sonstige Spaltprodukte

0 Einleitung

Im Anschluß an die im DRAGON-Reaktor mit kugelförmigen HTR-Brennelementen durchgeführten Bestrahlungs-Experimente TD1 /1/ und TD2 /2/ wurden in einem Langzeit-Bestrahlungsversuch DR-K3 (frühere Bezeichnung TD3) 25 gleichartige, gepreßte Brennelemente (im weiteren abgekürzt BE) mit oxidischem Brenn- und Brutstoff in Pyrokohlenstoff (PyC)-beschichteten Partikeln untersucht.

Ziel des Tests war die Erprobung dieser BE hinsichtlich ihrer Eignung für den THTR. Es sollte unter möglichst realistischen HTR-Bedingungen bezüglich Leistung, Temperatur, Schwermetall-Abbrand und schneller Fluenz das Bestrahlungsverhalten untersucht werden. Die in einer vertikalen Säule angeordneten BE wurden positionsbedingt hinsichtlich der genannten Parameter verschieden stark belastet, so daß die Abhängigkeit der Eigenschaften von diesen Parametern untersucht werden konnte.

Das Bestrahlungs-Experiment DR-K3 wurde von der KFA in Zusammenarbeit mit dem DRAGON-Projekt durchgeführt.

Dabei übernahmen die in Klammern angegebenen Beteiligten schwerpunktmäßig folgende Teilbereiche

- Zielsetzung und Auslegung des Versuchs
(BBK, NUKEM unter Mitwirkung von KFA)
- Herstellung und Charakterisierung der Bestrahlungsproben
(NUKEM, DRAGON)
- Vorbereitung und Durchführung der Bestrahlung
(KFA, DRAGON)
- Untersuchung nach der Bestrahlung
(KFA, DRAGON unter Mitwirkung von HRB - vormals BBK - und
HOBEK vormals NUKEM)
- Auswertung der Ergebnisse
(HRB, KFA)

Der Ausarbeitung der vorliegenden Zusammenstellung lagen die im Quellenverzeichnis angeführten Detailberichte zugrunde.

1. Zielsetzung und Auslegung

Die Zielwerte für die Erprobung der BE bis zur vollen THTR-Belastung bezüglich Abbrand und Fluenz schneller Neutronen bei Betriebstemperaturen sind in Tab. 1 zusammengestellt /3/.

Tabelle 1

Zielwerte des Bestrahlungstests DR-K3

Maximale * Zentraltemperatur	°C	1250
Maximale Oberflächentemperatur	°C	1050
Maximale Anfangsleistung	kW	4,0
Maximaler Abbrand	% fima	14
Maximale Fluenz schneller Neutronen E > 0,1 MeV	cm ⁻²	6·10 ²¹
Bestrahlungsdauer	Vollasttage	800
N-Wert (Atome Th / Atome U 235)		4,16
U 235-Gehalt	g/BE	2,2

* = entsprechend Position in der Säule

Um im DRAGON-Reaktor volle THTR-Dosisbelastungen zu erreichen, mußte die Bestrahlungszeit gegenüber dem vorangegangenen Experiment TD2 verdreifacht werden. Das ergab insgesamt gegenüber TD2 eine Verdoppelung des Abbrandes und eine Verdreifachung der schnellen Fluenz bei etwa gleichen Temperaturen.

Im vorliegenden Bericht sind neben den im DRAGON-Projekt gewonnenen Ergebnissen vor allem die in der KFA Jülich durchgeführten Nachuntersuchungen und deren Ergebnisse zusammengestellt. Der Schwerpunkt lag bei vergleichenden Messungen zur Dimensionsstabilität und zur Festigkeit der Brennelemente sowie bei der Bestimmung der Verteilung der Freisetzung der wichtigsten Spaltprodukte. Da die BE von ihrer Herstellung her gleich

waren, konnte in diesem Bestrahlungstest die Abhängigkeit der Eigenschaften von der positionsbedingt verschieden starken Bestrahlungsbelastung untersucht werden.

Ein wesentlicher Unterschied zu den beiden vorausgegangenen Bestrahlungstests im DRAGON-Reaktor war, daß bei diesem Versuch alle BE in Grafitkalotten eingesetzt wurden, die ihrerseits als senkrechte Säule im zentralen Grafitrohr eines zur Aufnahme von Proben mit 6 cm Durchmesser erweiterten modifizierten DRAGON-Brennelementes (D 9) angeordnet waren und von Spülgas umströmt wurden (Abb. 1). Durch diese Anordnung sollte ermöglicht werden, den Transport der Spaltprodukte aus den BE in umgebende Medien zu verfolgen.

Die Zentraltemperaturen der BE sollten anfänglich - je nach Position in der Säule - zwischen 800 und 1250°C liegen und im Verlauf der Bestrahlung um bis zu 200 K absinken. Tatsächlich lagen die Temperaturen bedeutend höher (siehe 2.5). Die Anfangsleistungen der BE sollten zwischen 2,5 und 4,0 kW betragen, die Bestrahlungsdauer war mit ca. 800 Tagen so gewählt, daß die BE am Ende der Bestrahlung maximal eine schnelle Fluenz von $6 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ ($E > 0,1 \text{ MeV}$) erhalten haben sollten. Mit dieser Vorgabe von Fluenz und N-Wert des Brennstoffs war der Abbrand von 14 % fima festgelegt.

2. Probenbeschreibung und Bestrahlungsangaben

2.1 Herstellung und Beschreibung der Testproben

2.1.1 Beschichtete Brennstoffteilchen

Zur Beladung der Brennelemente wurden Brennstoffteilchen der Partikelsorte WO 468f der Firma NUKEM verwendet /4/. Sie enthielten nach dem Emulsionsverfahren hergestellte (U,Th) O_2 -Kerne, deren Kornfraktion mit Durchmessern von 315 bis 420 μm in einer 1 kg-Wirbelbettcharge 3fach mit PyC beschichtet worden waren.

Die Dichte der Kerne lag mit $8,85 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ unter dem THTR Nominal-Wert von $9,5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, die Beschichtung entsprach den THTR-Anforderungen /5/ /6/.

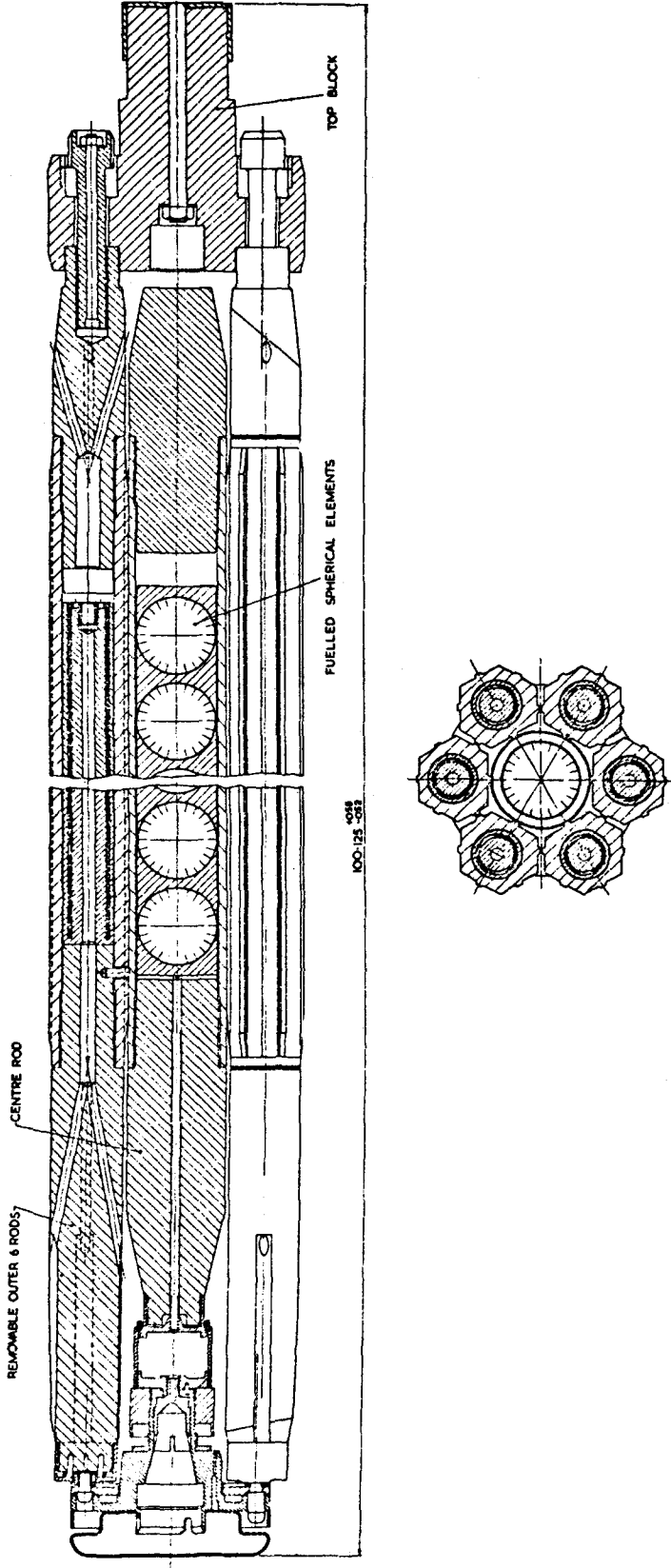


ABB. 1 DRAGON-BRENNELEMENT D9

Tabelle 2
 Daten der im Bestrahlungsexperiment DR-K3 eingesetzten Partikelserie

Partikel-Sorte	Kern				Beschichtung					Partikel				
	Zusammensetzung	Durchmesser μm	Dichte $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	Schicht Nr.	Abscheide-Temp. $^{\circ}\text{C}$	Beschichtungsgas	Dicke μm	Dichte $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$	Durchmesser μm	U-Gesamt Gew. %	U 235-Anreicherung Gew. %	Th-Gesamt Gew. %	N-Wert (Atome Th/U 235)	
WO 468F	(U,Th) O_2	315-420	8,85	1	1450	C_2H_2	63	1,92	707-1000	8,25	89,84	30,5	4,16	
				2	1680	CH_4	32							
				3	2050	CH_4	90							

Die wichtigsten Herstellungsdaten und Eigenschaften der Partikeln WO 468f zeigt Tab. 2; diese Sorte wurde auch in den Bestrahlungsversuchen BR2-P5, FRJ2-P7 sowie FRJ2-K3 verwendet.

2.1.2 Brennelemente

Die BE wurden bei NUKEM hergestellt. Als Matrixmaterial wurde die Sorte A3 verwendet.

Zur Erreichung der gewünschten Leistung war eine Beladung mit 2,2 g U 235 erforderlich - eine deutliche Erhöhung im Vergleich zu der beim THTR vorgesehenen Menge von 1g.

Der N-Wert (Atomzahlenverhältnis Th/U 235) wurde mit 4,16 so gewählt, daß die für das THTR-Element geforderte Schwermetallbeladung von 11,5 g in den BE enthalten war. Wegen der relativ niedrigen Dichte der Partikelkerne ergab sich mit dieser Schwermetallmenge jedoch eine größere Partikelzahl pro BE und damit eine höhere Volumenbeladung in der Brennstoffzone als beim THTR-Element. Insgesamt war die Volumenladung 16,6 % statt 12,1 % beim THTR.

Für das Bestrahlungs-Experiment wurden aus 45 Brennelementen, die unter Produktionsbedingungen hergestellt worden waren, von BBK mit Hilfe einer Zufallstabelle die 25 BE für den Einsatz im Test DR-K3 entnommen.

Die wesentlichen charakteristischen Daten dieser BE, die auch im Bestrahlungsversuch FRJ2-K3 (JK3) /7/ bestrahlt wurden, sind in Tab. 3 angegeben.

Von allen im Test eingesetzten BE wurden mehrere Röntgenaufnahmen angefertigt. Die Aufnahmen, die die jeweils beste und schlechteste Partikelverteilung eines Elementes zeigen, sind im Werksabnahmezeugnis /4/ dokumentiert. Seit der Herstellung für diesen Test ist es gelungen, eine weit aus bessere Homogenität der Brennstoffverteilung zu erzielen, als sie in den Röntgenaufnahmen dieser Testelemente zu erkennen ist.

Tabelle 3

Auslegungsdaten der BE

Kugeltyp / Matrixsorte		gepreßt / A3
Durchmesser von BE / Brennstoffzone	mm	60 / 50
Partikelsorte		WO 468f
Brennstoff		(U,Th)O ₂
N-Wert (Atome Th/ Atome U 235)		4,16
U 235-Beladung	g/BE	2,2
Schwermetallbeladung	g/BE	11,42
Volumenbeladung der Partikeln in der Brennstoffzone	%	16,6
Mittleres Brennelementgewicht	g	204,6
Mittleres Partikelgewicht pro BE	g	29,7
Korrosionsrate bei 1000°C	mg·cm ⁻² ·h ⁻¹	1,06 bis 1,43

2.2 Bestrahlung

2.2.1 Testanordnung

Die BE wurden in zylindrische Grafitteile mit endseitigen Halbkugelhohlformen (Kalotten) eingesetzt (Abb. 1) /8/. Diese waren übereinander in einem Grafitrohr angeordnet, das die Position des zentralen Brennstabes eines speziell konstruierten DRAGON-Elementes D9, einnahm. Diese Konstruktion ermöglichte das bei einer langen Bestrahlungsdauer erforderliche Austauschen der sechs Treiber-Brennstäbe. Da die Grafitteile von einem gemeinsamen Grafitüllrohr umgeben waren, das sie vom Kühlgas abtrennte, konnte anders als bei den vorangegangenen DRAGON-Bestrahlungstests für kugelförmige Brennelemente (TD1 und TD2) die Spaltgasfreisetzung der BE integral während der Bestrahlung über das DRAGON-Purge-System gemessen werden.

Die gemessenen R/B-Werte für Kr 85 sind Integralwerte über alle 25 BE. Sie überstiegen den Wert von $3 \cdot 10^{-5}$ nicht /9/. Die in /9/ angegebenen Meßwerte stellen eine repräsentative Auswahl aus den bei DRAGON während der gesamten Bestrahlungszeit gemessenen Werte dar.

In sechs BE waren Thermoelemente zur Messung der Oberflächentemperaturen angebracht und zwar in den BE 13, 15, 19, 21, 23 und 25 (im DRAGON-Core von oben nach unten gezählt). Für die Thermoelementzuführungen mußten in diese BE Aussparungen gebohrt werden. Die Meßstelle der Thermoelemente in der brennstofffreien Kugelschale lag 2 bis 3 mm unter der Oberfläche.

2.2.2 Positionen und Bestrahlungsdaten

Eine Zusammenstellung der wichtigsten Bestrahlungsdaten ist in Tab. 4 gegeben.

Tabelle 4
Bestrahlungsdaten

Maximale Oberflächentemperatur	°C Bestrahlungsbeginn	1100
	°C Bestrahlungsende	910
Leistung bei Bestrahlungsbeginn	kW/BE max.	ca. 4
	min.	ca. 2
Abbrand	% fima max. *	15,1
	min.	8,0
Schnelle Fluenz (E > 0,1 MeV)	cm ⁻² max.	5,1 · 10 ²¹
	min.	2,2 · 10 ²¹
Bestrahlungsdauer	Volllasttage	719

* = max. und min. bezieht sich auf die Bestrahlungsposition

Die Bestrahlung der Test-BE begann am 2.7.1968 und endete nach einer Bestrahlung von 719 Reaktor-Volllasttagen in 1446 Tagen am 17.6.1972. In der Zeit von Juli bis Dezember 1968 kam kein stationärer Betrieb des DRAGON-Reaktors zustande, von Ende Oktober 1969 bis Ende März 1970 war eine längere Abschaltpause. Im Verlauf der Bestrahlung wurde die Position des Brennelementes im DRAGON-Reaktor mehrfach gewechselt, die Position sowie die jeweils akkumulierten Volllasttage und maximale schnelle Fluenz sind in Tab. 5 zusammengestellt.

Tabelle 5

Positionen und Bestrahlungsdaten des Testelements DR-K3

Charge Core Position	Zeitraum	Akkumulierte Volllasttage	Max. akkumulierte schnelle Fluenz $10^{21} \text{ cm}^{-2} (E > 0,1 \text{ MeV})$
III	1-7 4 / 2	2.7.68 bis 26.10.69	205
	8-9 3 / 1	23.3.70 " 26. 9.70	335
IV	1 3 / 2	31.12.70 " 8. 5.71	437
	2-4 5 / 1	18.6.71 " 16. 6.72	719

2.2.3 Temperaturen und Fluenzen

Alle sechs Thermoelemente zur Messung der BE-Oberflächentemperatur arbeiteten zu Beginn der Bestrahlung einwandfrei. Nach kurzer Bestrahlungszeit fielen jedoch die Thermoelemente der BE 13 und 9 aus. Im Verlauf der weiteren Bestrahlung auch vorübergehend die Thermoelemente der BE 15, 23 und 25 (Abb. 2).

Die maximal gemessene Oberflächentemperatur betrug zu Beginn des Tests bei BE 13 kurzzeitig 1150°C , bei BE 15 1100°C und war damit höher als erwartet. Mit fortschreitendem Abbrand sank die Oberflächentemperatur der BE allmählich ab. Am Bestrahlungsende lag die gemessene Oberflächentemperatur von BE 15 noch bei 900°C . Die aus den Thermoelement-Messungen abgeleiteten Oberflächentemperaturen der BE als Funktion der Höhe im Core ist in Abb.2 aufgetragen. Für mehrere Zwischenzeitpunkte sind die gemessenen Oberflächentemperaturen eingetragen. Aus der berechneten Leistung der BE und den Oberflächentemperaturen wurden die Zentraltemperaturen berechnet. Diese lagen zu Beginn des Versuchs bei maximal 1500°C und sanken im Verlauf der Bestrahlung auf etwa 1050°C (BE 10).

In der Tab. 6 /10/ /11/ /12/ sind die Leistungen, Oberflächen- und Zentraltemperaturen von BE 10, das die höchste Oberflächentemperatur erreichte, für die in Abb. 2 erfaßten Zeitpunkte angegeben.

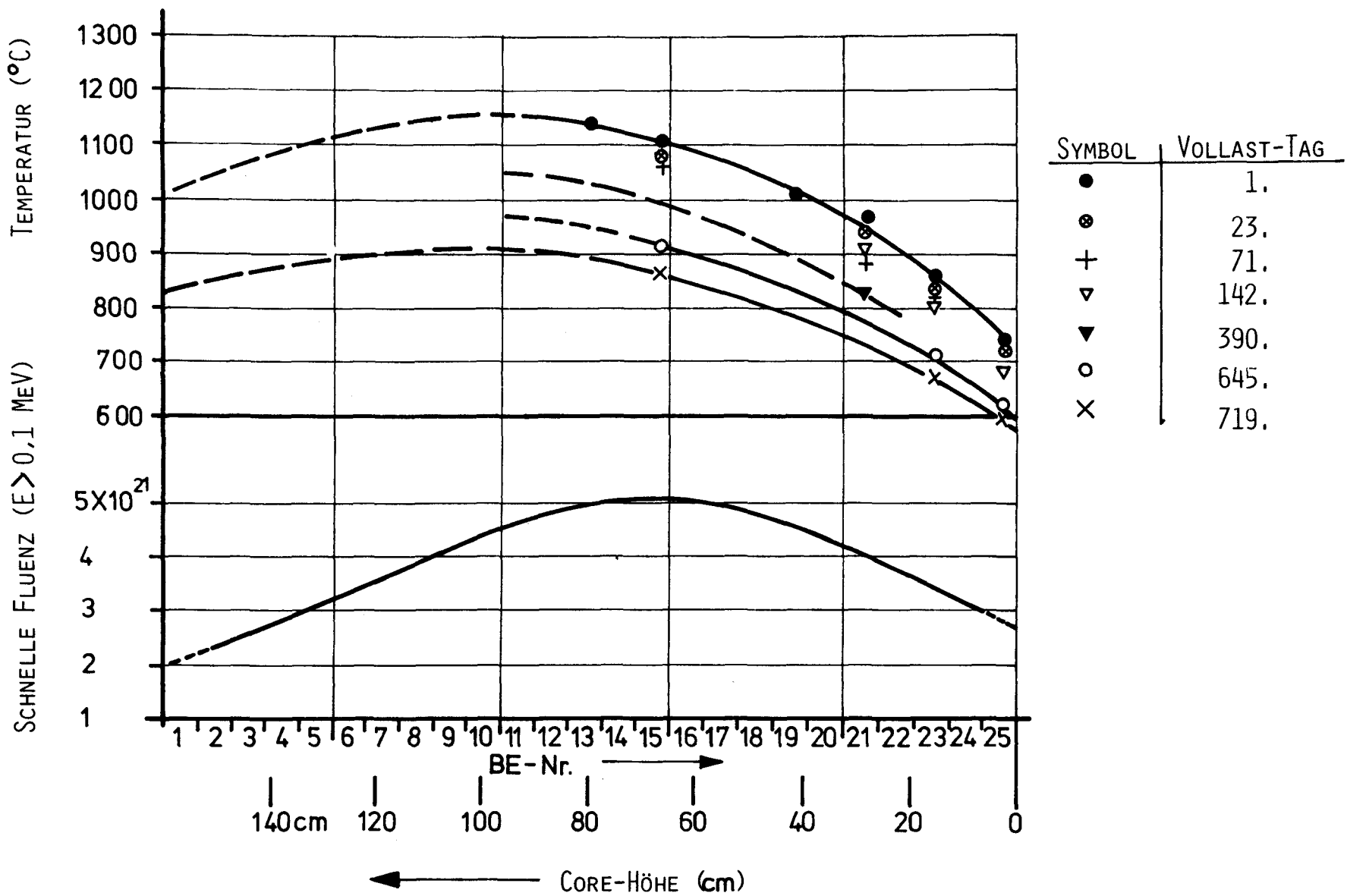


ABB. 2 OBERFLÄCHENTEMPERATUREN UND FLUENZEN DER BE

Aus diesen Daten geht hervor, daß bei diesem BE fast 400 Vollasttage lang die Oberflächentemperatur über 1050°C lag, einer Temperatur, die bei THTR-BE nur kurzzeitig erreicht wird.

Tabelle 6

Leistung und Temperaturen von BE 10 nach verschiedenen Bestrahlungszeiten

Vollasttage	Leistung kW	Oberflächen-Temperatur °C	Zentral-Temperatur °C
0	3,8	1210	1480
23	3,8	1130	1400
71	3,3	1110	1350
142	2,9	1100	1330
390	2,2	1050	1250
645	1,5	975	1110
719	1,5	910	1050

Die Fluenz schneller Neutronen als Funktion der Höhe im Core ist ebenfalls in Abb. 2 eingezeichnet. Die maximale Fluenz ($E > 0,1$ MeV) beträgt demnach in Core-Mitte $5 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$, am unteren und oberen Ende der Kugelsäule etwa $3 \cdot 10^{21}$ und $2 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$.

2.2.4 Abbrand

Der Abbrand aller 25 BE wurde durch gammaspektrometrische Messung /13/ /14/ /15/ des Cs 137-Inventars bestimmt.

Die Fehlergrenzen bei dieser Bestimmung betragen + 10 %, - 5 %. Die Einzelwerte sind in Tab. 8 bzw. in Abb.3 eingetragen. Das Maximum von 15,1 % fima liegt bei BE 16. Den Minimalwert von 8,0 % fima zeigt BE 1 (11,4 % bei BE 25).

Neben der gamma-spektrometrischen Bestimmung wurde an Partikeln von fünf BE der Abbrand auch durch massenspektrometrische Bestimmung der Uraniso-

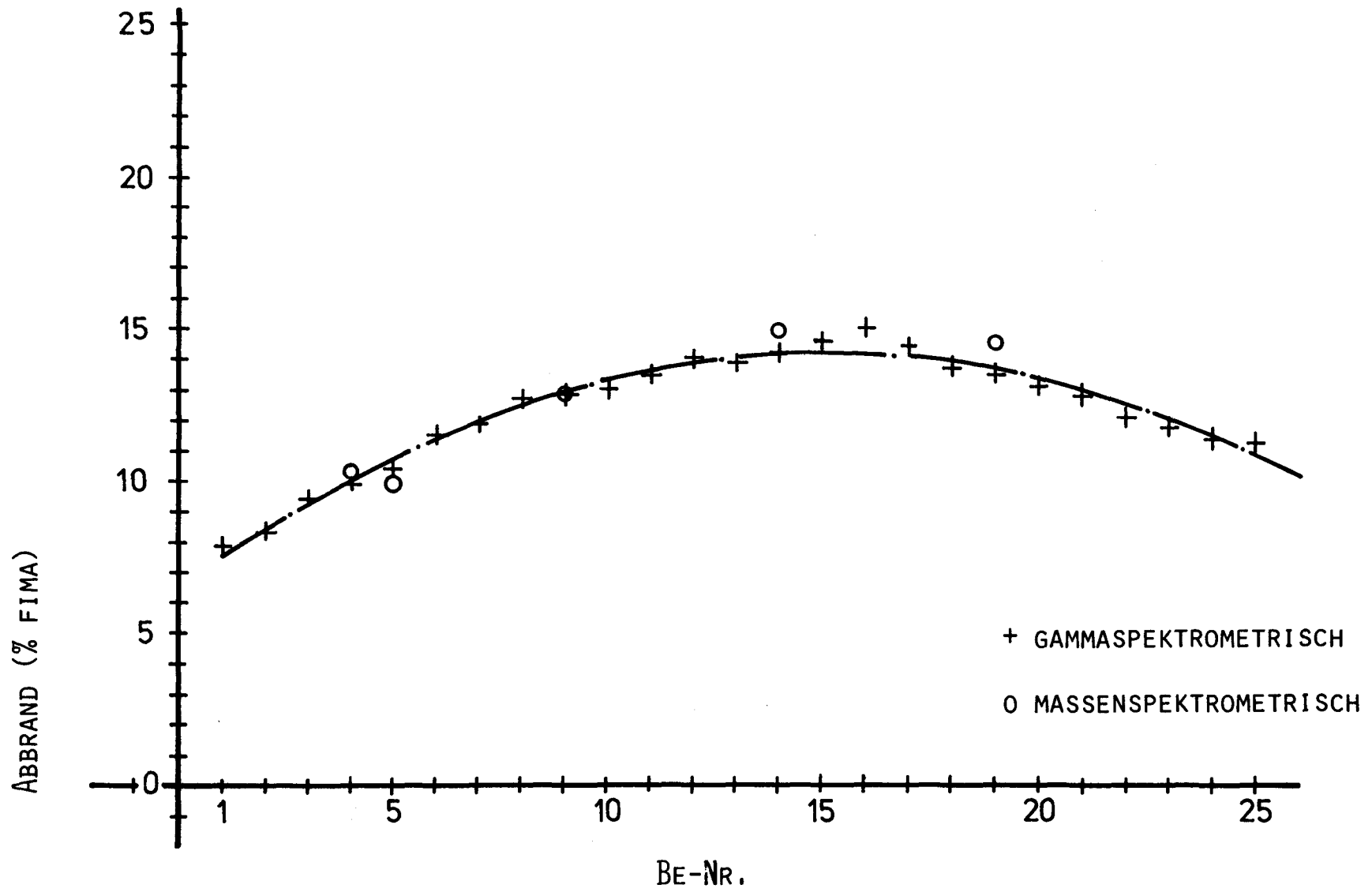


ABB. 3 ABBRANDWERTE DER BE

topen-Verhältnisse ermittelt /18 /48/. In Tab. 7 sind diese Werte den gamma-spektrometrisch gefundenen Werten gegenübergestellt, wobei sich die sehr gute Übereinstimmung zeigt.

Tabelle 7

Abbrand der BE

BE	Abbrand % fima	
	gamma-spektrometrisch	massen-spektrometrisch
4	10,00	10,40
5	10,50	10,33
9	12,90	12,90
14	14,30	14,95
19	13,60	24,60

3. Nachuntersuchungen

An den BE wurde nach der Zerlegung des DRAGON-Brennelementes z.T. im A.E.E. Winfrith, z.T. in der KFA Jülich ein intensives Nachuntersuchungsprogramm durchgeführt /19/ bis /22/. Es umfaßte die Kontrolle auf äußere Beschädigungen, Dimensionsmessungen, Bestimmung der Spaltgasfreisetzung, der mechanischen Festigkeit, des Korrosionsverhaltens, metallografische Untersuchungen, Abbrandmessungen sowie Bestimmung der Konzentrationsverteilung und der Freisetzung fester Spaltprodukte. Erste Ergebnisse wurden bereits mitgeteilt /23/ bis /26/.

3.1 Untersuchungen zum Brennelementverhalten

3.1.1 Sichtprüfung

3.1.1.1 Sichtprüfung der BE

Bei der Sichtprüfung wurden keine Veränderungen der BE infolge der Bestrahlung, weder Beschädigungen noch Hinweise auf Oberflächenkorrosion beobachtet. Als Beispiel zeigen die Abb. 4 bis 11 die Oberflächen einiger BE.

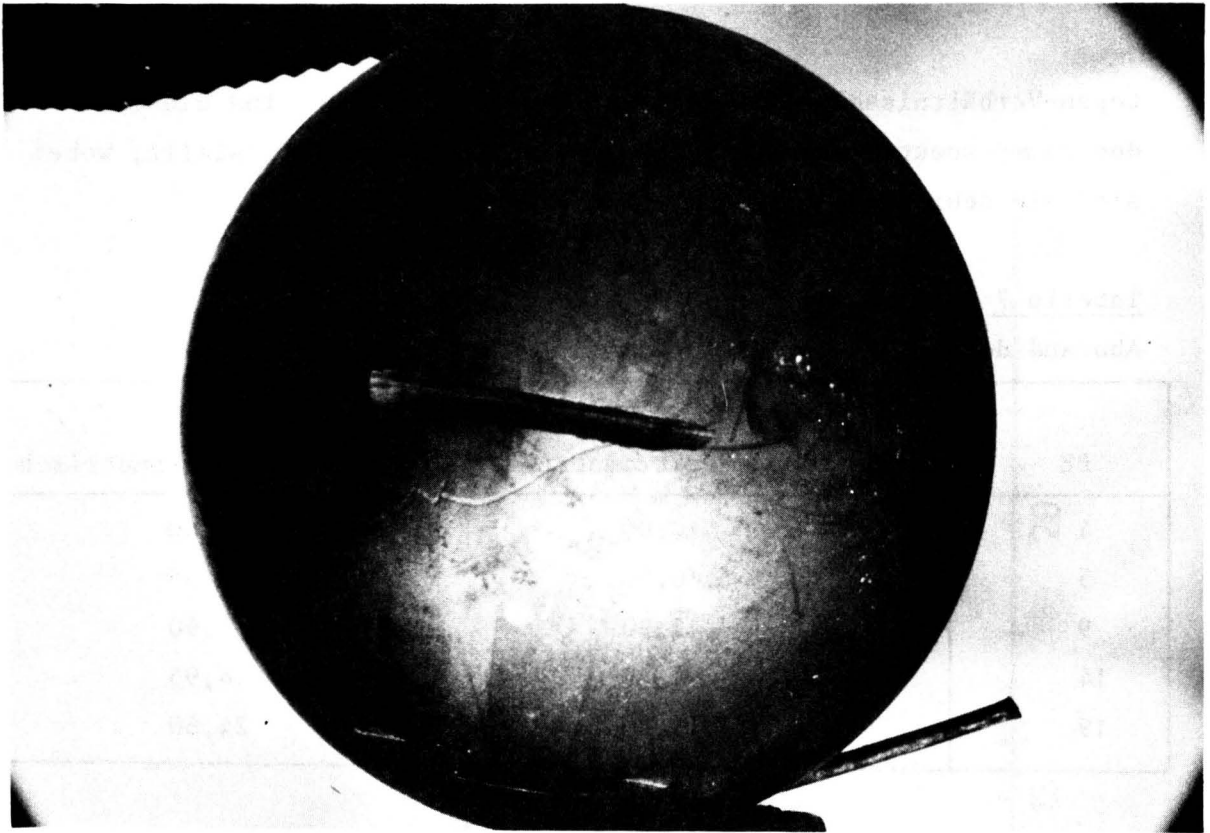


ABB.: 4

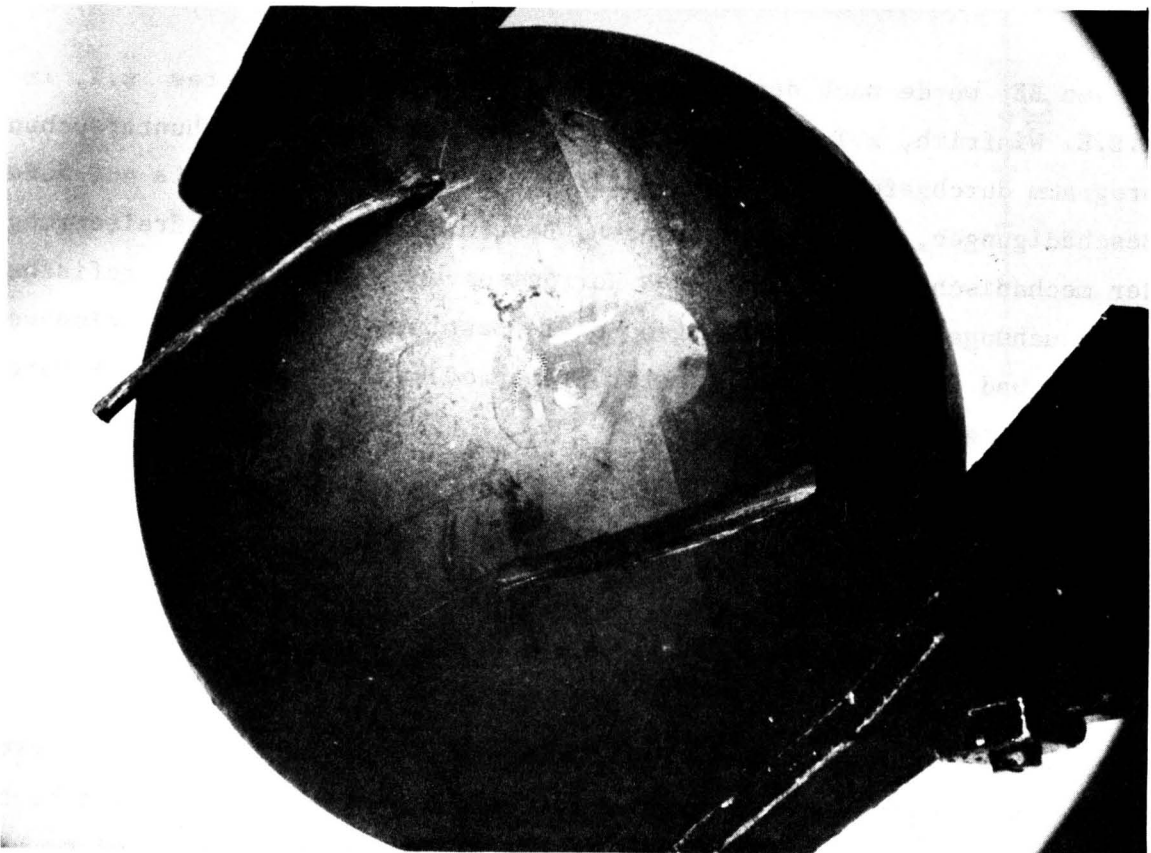


ABB.: 5

BE NR. 19 AUFNAHME NR. 58/1/503 - 3/84 UND 3/82

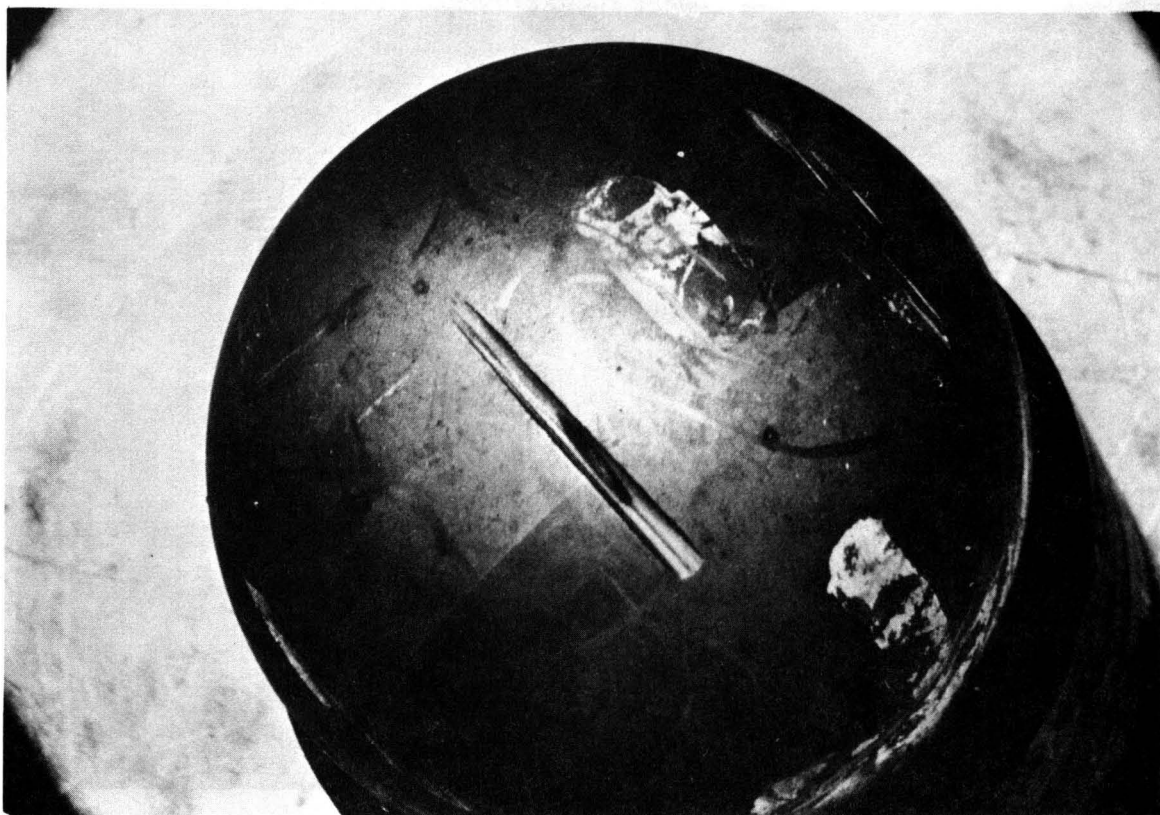


ABB.: 6

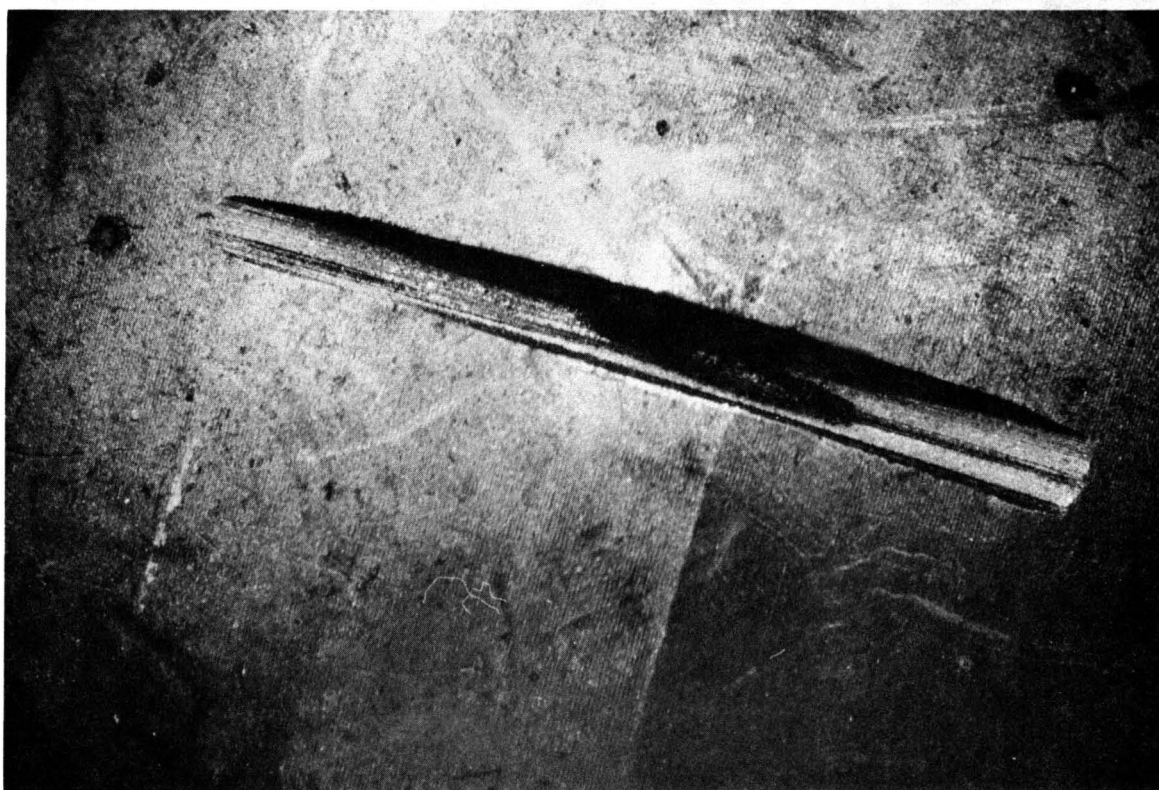


ABB.: 7

BE NR. 20 AUFNAHME NR. 58/1/503 - 4/41 UND 4/53

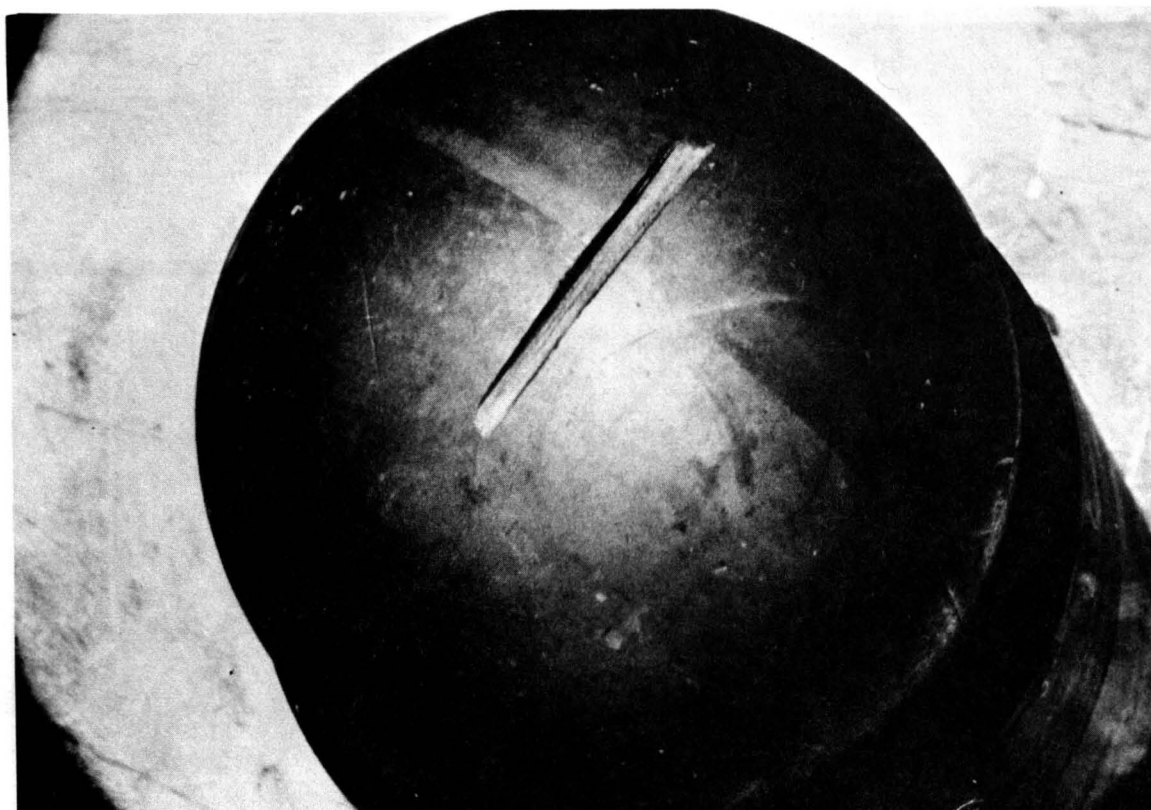


ABB.: 8



ABB.: 9

BE NR. 14 AUFNAHME NR. 58/1/503 - 4/37 UND 4/51



Abb.: 10



Abb.: 11

BE NR. 5 AUFNAHME NR. 58/1/503 - 4/43 UND 4/45

Die Bilder enthalten Totalansichten von BE sowie Einzelheiten der Oberfläche und die Thermoelementbohrungen, die alle die einwandfreie Oberflächenbeschaffenheit erkennen lassen.

3.1.1.2 Sichtprüfung der Grafitkalotten

Bei der Oberflächenkontrolle der Grafitkalotten wurden ebensowenig wie an den BE Veränderungen oder Schäden durch Korrosion während der Bestrahlung beobachtet.

3.1.2 Gewichtsbestimmung

Die Gewichte der BE sind in der Tab. 8 zusammengestellt; die Gewichte vor der Bestrahlung wurden vor Anbringung der Bohrungen für die Thermoelemente ermittelt.

Zwischen den von der NUKEM und den von DRAGON ermittelten Gewichten der unbestrahlten BE bestanden Differenzen bis zu 0,5 % der Gesamtgewichte, die nicht geklärt werden konnten. Da durch den Bestrahlungseinfluß nur eine Gewichtsabnahme verständlich ist, sich aber aus den DRAGON-Werten bei fast allen BE eine Gewichtszunahme ergibt, wurden die von NUKEM angegebenen Werte /4/ vor Bestrahlung als zuverlässiger für die Auswertung ausgewählt.

Für die Gewichte nach Bestrahlung betrug die Meßunsicherheit $\pm 0,05$ g. Für die Gewichte vor der Bestrahlung betrug der Mittelwert bzw. die Standard-Abweichung 204,66 g bzw. 0,16 g, für die Gewichte nach der Bestrahlung 204,54 g bzw. 0,25 g bei den BE ohne Thermoelementbohrung und 204,27 g bzw. 0,21 g bei den BE mit Thermoelementbohrung. Der mittlere Gewichtsverlust pro BE ergibt sich daraus zu 0,12 g.

Die vorab nach Jülich transportierten BE 5, 9, 14 und 20 sind nach der Bestrahlung nicht gewogen worden.

Tabelle 8

Bestrahlungsdaten und Gewichte der BE

BE-Nr. Pos. Herst.	Fluenz E > 0,1 MeV 10 ²¹ cm ⁻²	Abbrand % fima	G e w i c h t e			
			vor Be- strahlung g	nach Be- strahlung g	Differenz g	
1	461	2,1	7,95	204,57	204,5	-0,07
2	452	2,4	8,40	204,71	204,6	-0,11
3	428	2,65	9,50	204,80	204,7	-0,10
4	443	2,9	10,00	204,65	204,55	-0,10
5	463	3,15	10,50	204,71		
6	427	3,4	11,60	204,86	204,8	-0,06
7	422	3,65	11,95	204,96	204,85	-0,11
8	451	3,95	12,80	204,60	204,5	-0,10
9	445	4,15	12,90	204,53		
10	454	4,45	13,10	204,67	204,6	-0,07
			13,60			
11	453	4,65	13,60	204,68	204,65	-0,03
12	426	4,85	14,10	204,95	204,90	-0,05
13	460	5,0	13,95	204,46	204,45 *	-0,01
14	447	5,05	14,30	204,47		
15	439	5,1	14,70	204,71	204,5 *	-0,21
16	433	5,05	15,10	204,80	204,5	-0,30
17	444	4,95	14,50	204,40	204,1	-0,30
18	441	4,75	13,80	204,70	204,4	-0,30
19	462	4,6	13,60	204,56	204,5 *	-0,06
20	458	4,3	13,25	204,46		
21	435	4,05	12,90	204,62	204,4 *	-0,22
22	440	3,75	12,20	204,58	203,95	-0,63
23	424	3,45	11,90	204,90	204,15 *	-0,75
24	456	3,15	11,50	204,53	204,45	-0,08
25	429	2,9	11,40	204,55	204,1 *	-0,45

* = BE mit Thermoelementbohrung

3.1.3 Dimensionmessungen

Wegen der für einwandfreien Durchgang der BE in Transporteinrichtungen und Core geforderten Dimensionsstabilität sind umfangreiche Dimensionmessungen durchgeführt worden, um die Schrumpfung der BE und gegebenenfalls deren Anisotropie unter Bestrahlung festzustellen. Außerdem wurden Dimensionmessungen an den Grafitkalotten durchgeführt (3.1.3.2) sowie an Hüllrohrabschnitten /27/.

3.1.3.1 Dimensionmessungen an BE

Die Durchmesser aller BE wurden vor (d_0) und nach Bestrahlung bestimmt. An den bestrahlten BE wurden dabei jeweils einmal parallel (d_{\parallel}) und zweimal (um 90° versetzt) senkrecht zur Preßrichtung ($d_{\perp 1}$ und $d_{\perp 2}$) gemessen.

Die Ergebnisse sämtlicher Dimensionmessungen an den BE sind in Tab. 9 aufgeführt. Der Durchmesser vor Bestrahlung (d_0) lag bei allen BE zwischen 59,92 und 59,95 mm; alle Durchmesser bestrahlter BE lagen niedriger und zwar zwischen 59,22 und 59,60 mm.

Unter \bar{d}_{\perp} ist der Mittelwert der beiden Meßwerte senkrecht zur Preßrichtung angegeben, deren Differenz maximal 0,06 mm betrug.

Die Unterschiede der Durchmesser vor und nach Bestrahlung sind in der Tab. 9 als absolute und prozentuale Schrumpfung aufgeführt. Die prozentualen Dimensionsänderungen parallel zur Preßrichtung als auch senkrecht zur Preßrichtung (Mittelwert) sind in Abb.12 dargestellt. Wie sowohl aus der Tab. 9 als auch aus den Abbildungen hervorgeht, treten die stärksten Schrumpfungen im Bereich der höchsten schnellen Fluenz auf, sind jedoch stets geringer als 1,5 % (2 % sollen nicht überschritten werden /28/). Dabei liegt die Schrumpfung parallel zur Preßrichtung infolge Bestrahlung deutlich niedriger als die senkrecht zur Preßrichtung.

Die Anisotropie der Dimensionsänderung, definiert als das Verhältnis der durch Bestrahlung verursachten Dimensionsänderung senkrecht und parallel zur Preßrichtung ist in der letzten Spalte der Tab. 9 angegeben.

Tabelle 9

Dimensionsänderungen an BE von DR-K3

BE-Nr. Pos. Herst.	Durchmesser vor Bestr. d_o mm	Durchmesser nach Bestrahlung									
		$d_{\perp 1}$ mm	$d_{\perp 2}$ mm	\bar{d}_{\perp} mm	Schrump- fung mm	$(d_{\perp} - d_o) / d_o$ %	d_{\parallel} mm	Schrump- fung mm	$(d_{\parallel} - d_o) / d_o$ %	Anisotropie der Schrumpfung	
1	461	59,94	59,50	59,50	59,50	0,44	0,735	59,60	0,34	0,568	1,294
2	452	,93	,49	,49	,49	0,44	0,735	,54	0,39	0,65	1,131
3	428	,93	,44	,46	,45	0,48	0,80	,49	0,44	0,735	1,088
4	443	,925	,38	,41	,40	0,525	0,875	,39	0,535	0,895	0,978
5	463	,93	,34	,31	,33	0,60	1,00	,40	0,53	0,885	1,130
6	427	,94	,27	,30	,29	0,65	1,085	,42	0,52	0,869	1,249
7	422	,93	,27	,28	,28	0,65	1,085	,34	0,59	0,985	1,102
8	451	,92	,25	,23	,24	0,68	1,135	,31	0,61	1,02	1,113
9	445	,93	,23	,29	,26	0,67	1,12	,24	0,69	1,15	0,974
10	454	,94	,21	,22	,22	0,72	1,20	,35	0,59	0,985	1,218
11	453	,93	,23	,23	,23	0,70	1,17	,31	0,62	1,035	1,130
12	426	,95	,23	,22	,23	0,72	1,20	,35	0,60	1,00	1,200
13	460	,93	,24	,22	,23	0,70	1,17	,26	0,67	1,12	1,045
14	447	,93	,22	,25	,23	0,695	1,16	,24	0,69	1,15	1,009
15	439	,93	,25	,26	,26	0,67	1,12	,27	0,66	1,10	1,018
16	433	,94	,26	,23	,25	0,69	1,15	,29	0,65	1,085	1,060
17	444	,92	,28	,30	,29	0,63	1,05	,28	0,64	1,07	0,981
18	441	,93	,28	,24	,26	0,67	1,12	,29	0,64	1,08	1,037
19	462	,93	,29	,26	,28	0,65	1,085	,32	0,61	1,02	1,064
20	458	,93	,27	,28	,28	0,65	1,085	,33	0,60	1,00	1,085
21	435	,93	,29	,30	,30	0,63	1,05	,33	0,60	1,00	1,050
22	440	,93	,31	,31	,31	0,62	1,035	,36	0,57	0,95	1,089
23	424	,93	,38	,38	,38	0,55	0,918	,40	0,53	0,885	1,037
24	456	,925	,41	,40	,41	0,515	0,86	,42	0,505	0,844	1,019
25	429	59,94	59,51	59,51	59,51	0,43	0,717	59,54	0,40	0,667	1,075

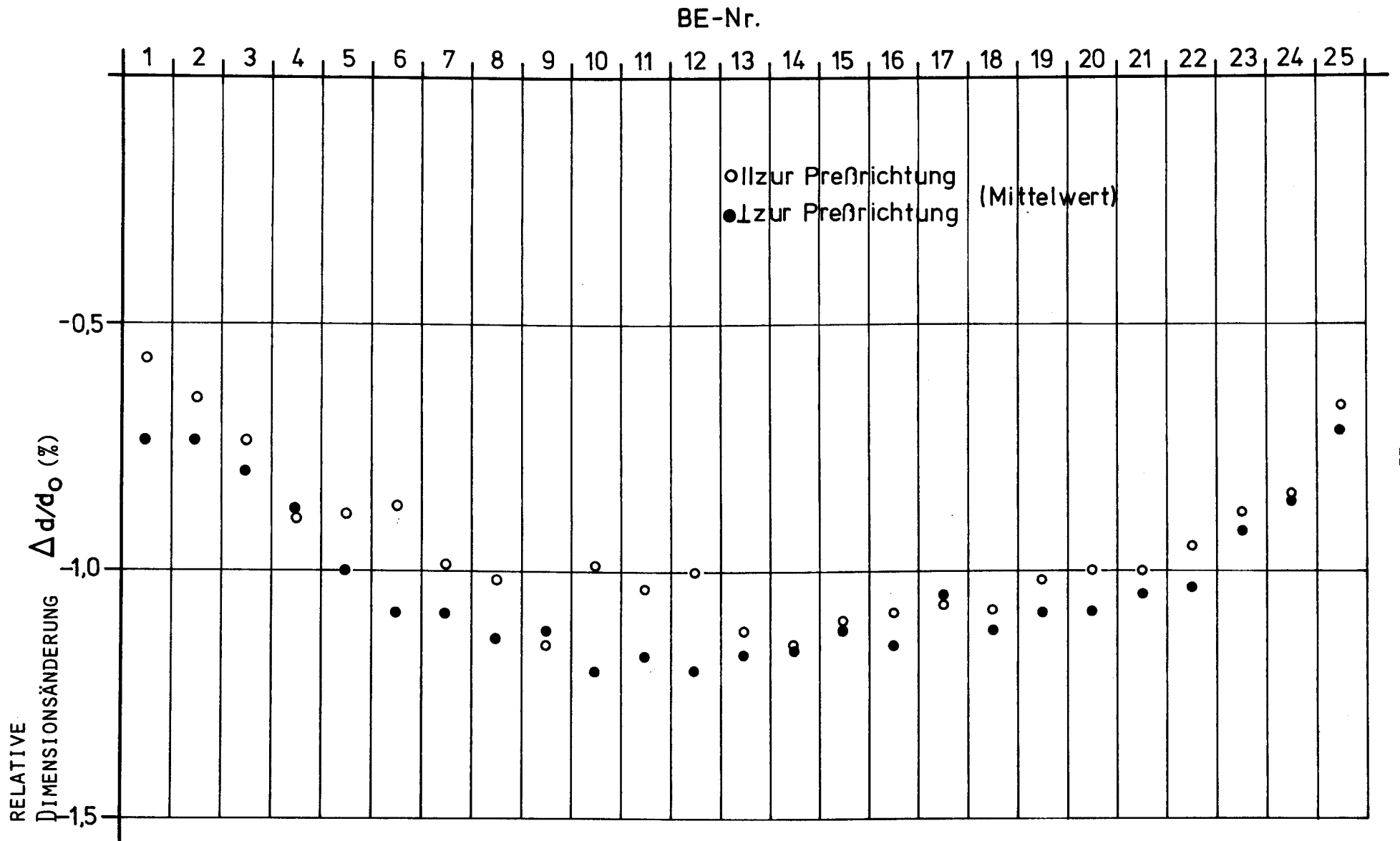


ABB. 12 DIMENSIONSÄNDERUNGEN DER BE DURCH BESTRAHLUNG

Extrem- und Mittelwerte der relativen Dimensionsänderung sind in Tab. 10 zusammengestellt:

Tabelle 10

Extrem- und Mittelwerte von Dimensionsänderungen

	Änderung in %		Anisotropie der Dimensionsänderung
	zur Preßrichtung	zur Preßrichtung (Mittel aus 2 Werten)	
Minimal	-0,57 (BE 1)	-0,72 (BE 25)	0,97 (BE 9)
Maximal	-1,15 (BE 9)	-1,20 (BE 10)	1,29 (BE 1)
im Mittel	-0,95	-1,03	1,09

In Abb. 13 sind die Dimensionsänderungen für alle BE in Abhängigkeit von der Fluenz dargestellt.

Alle ermittelten Dimensionsänderungen sind in ihrer Fluenz-Abhängigkeit in guter Übereinstimmung mit Werten an BE, die im AVR Jülich und im R2 Studsvik bestrahlt wurden, obwohl die Bestrahlungsgeschichte der DR-K3-BE anders war /28/ /29/ /30/.

3.1.3.2 Dimensionsmessungen an Grafitkalotten

Die Außendurchmesser der Grafitkalotten wurden in drei verschiedenen Höhen bestimmt (Abb.14), am oberen Rand, in der Mitte und am unteren Rand. Die Endkalotten 1 und 26 wurden nur an den beiden Enden vermessen (oben und unten). Außerdem wurde an allen Kalotten die Höhe b ermittelt. Die genaue Bezeichnung an den Grafitkalotten, wie sie in der Tab. 11 und der Abb.15 verwendet wurden, geht aus der schematischen Darstellung Abb.14 hervor.

Anders als bei den BE, die quasi-isostatisch gepreßt werden, führt die Strangpreßtechnik bei den Grafitkalotten zu einer Anisotropie die durch

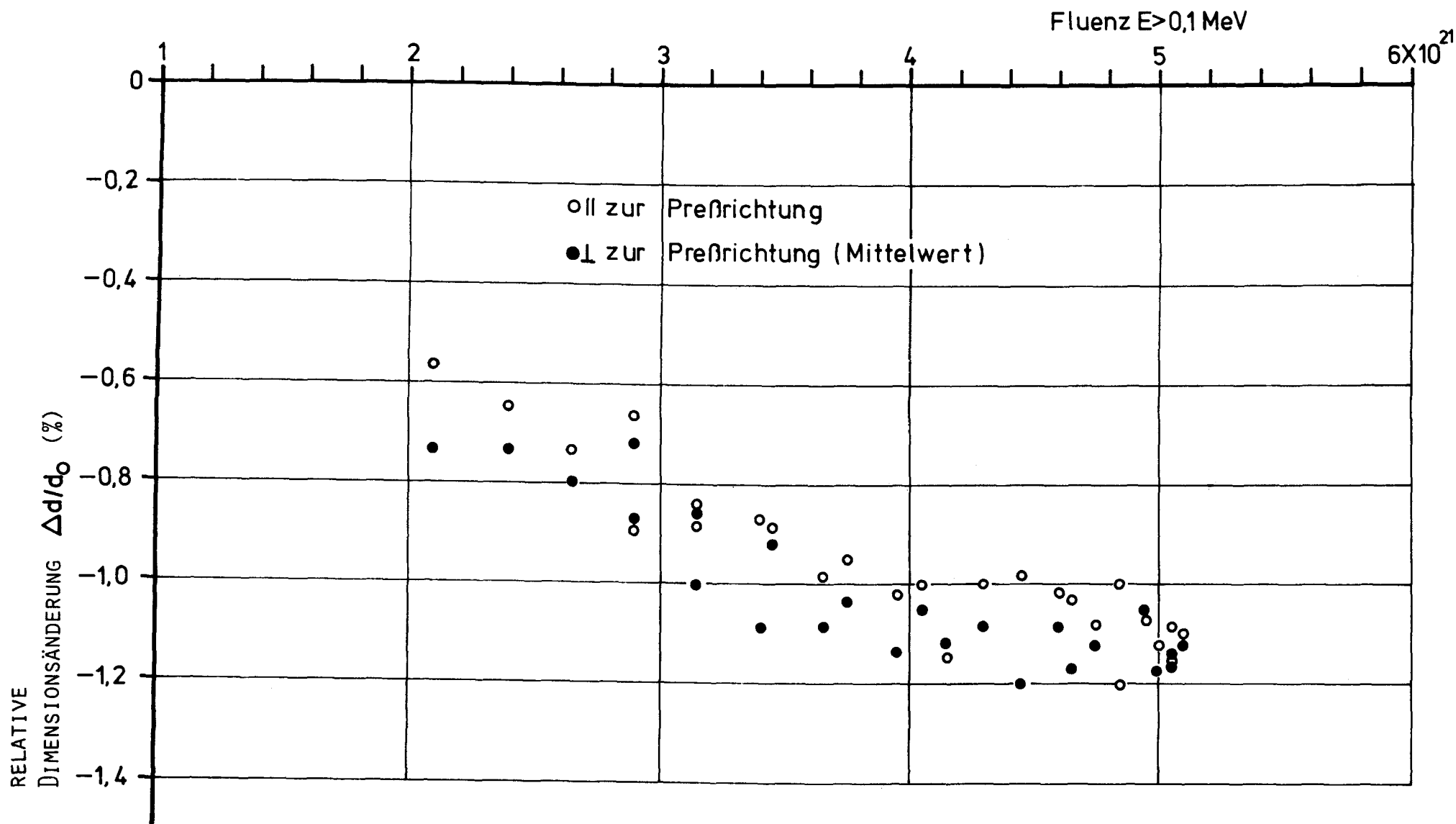


Abb. 13 DIMENSIONSÄNDERUNGEN DER BE IN ABHÄNGIGKEIT VON DER FLUENZ

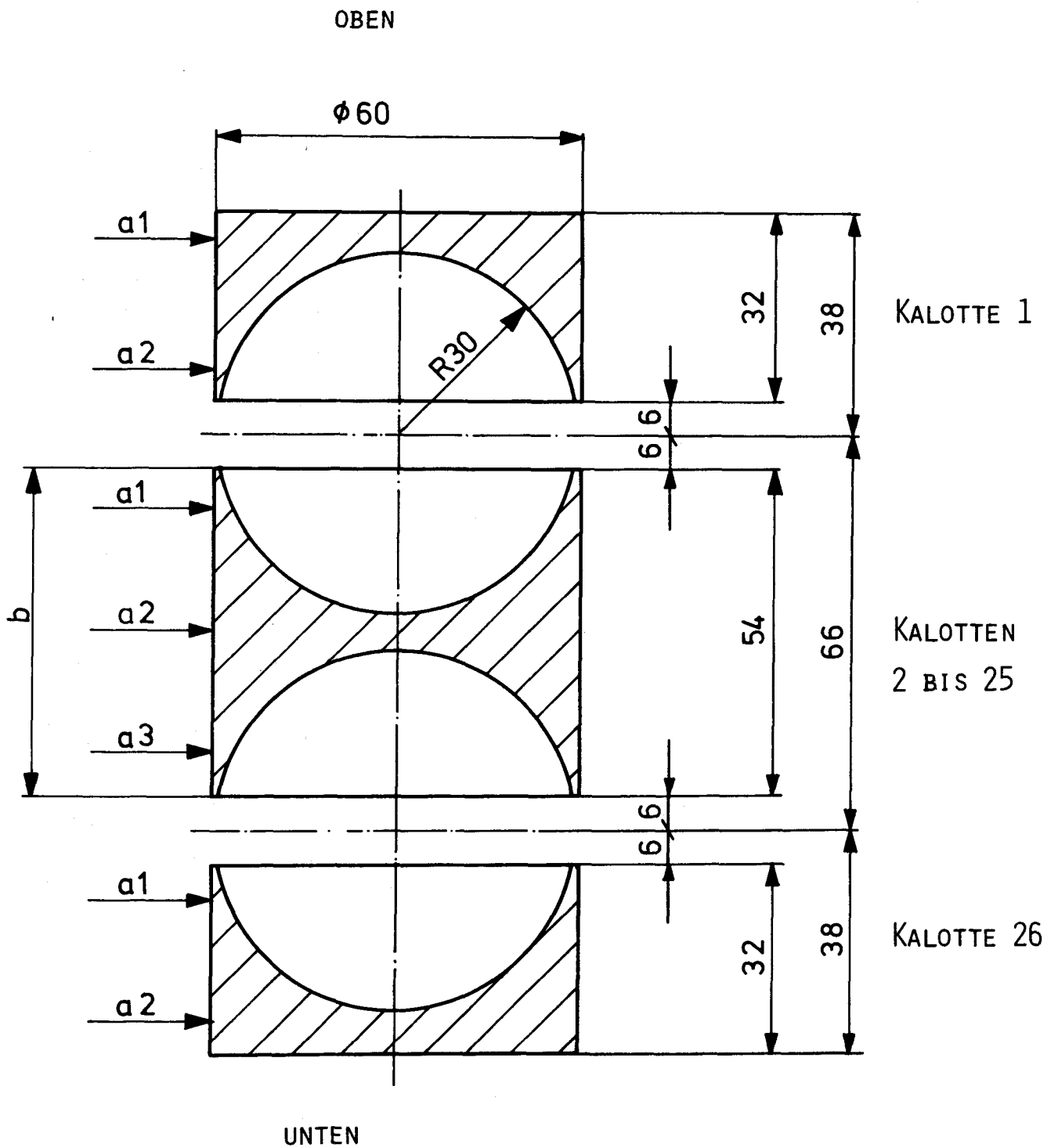


ABB. 14 BEZEICHNUNG AN GRAFITKALOTTEN

Tabelle 11

Dimensionsänderungen der Grafitkalotten

Grafit- kalotte Nr.	oben	Mitte	unten	Höhe
	a1 d/d_o %	a2 d/d_o %	a3 d/d_o %	b b/b_o %
1	0,03	-	0,08	0,24
2	0,09	0,11	0,17	0,05
3	0,21	0,25	0,29	0,06
4	0,32	0,34	0,54	0,23
5	0,44	0,44	0,49	0,36
6	0,49	0,53	0,58	0,80
7	0,55	0,59	0,61	0,75
8	0,65	0,68	0,70	0,94
9	0,70	0,70	0,75	1,18
10	0,84	0,85	0,88	0,97
11	0,83	0,73	0,77	1,12
12	0,90	0,87	0,93	0,95
13	0,79	0,78	0,73	0,82
14	0,83	0,79	0,88	1,09
15	0,86	0,76	0,81	0,77
16	0,78	0,72	0,69	0,66
17	0,72	0,64	0,69	0,64
18	0,62	0,51	0,55	0,51
19	0,51	0,43	0,44	0,26
20	0,48	0,38	0,37	0,28
21	0,39	0,37	0,37	0,41
22	0,32	0,30	0,29	0,34
23	0,21	0,22	0,22	0,32
24	0,19	0,21	0,15	0,30
25	0,09	0,10	0,07	0,26
26	0,09	-	0,10	0,14

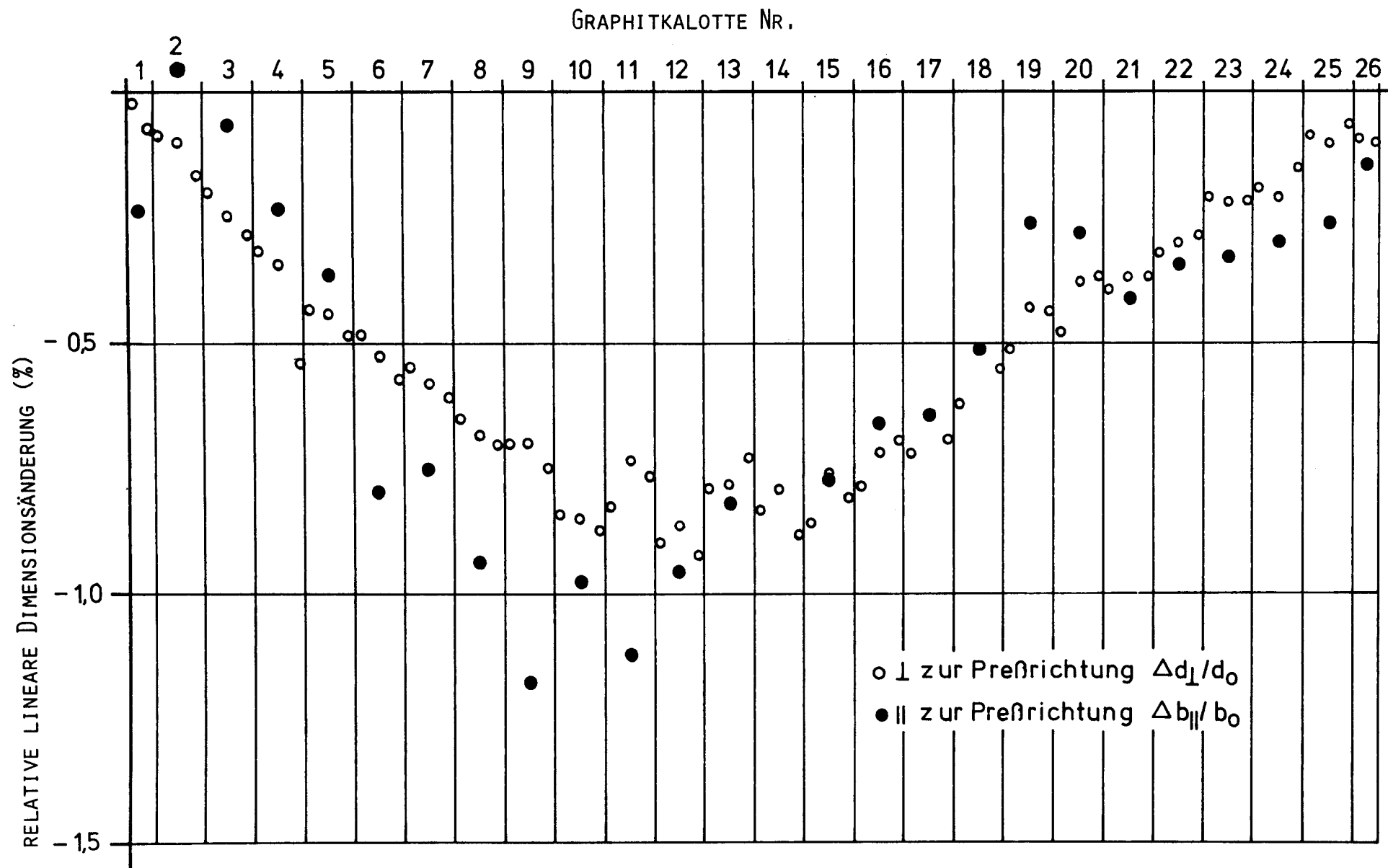


ABB. 15 DIMENSIONSÄNDERUNGEN DER GRAPHITKALOTTEN DURCH BESTRAHLUNG

die Auszeichnung der Strangpreßrichtung gekennzeichnet ist. Die Parallele zur Strangpreßrichtung liegt gleichzeitig parallel zur Achse der zylindrischen Kalotten,

In Abb. 15 sind die relativen Dimensionsänderungen in der Richtung der Zylinderachse und senkrecht dazu dargestellt in Abhängigkeit von der axialen Position im Reaktor. Deutlich ist ein Maximum der Schrumpfung im Bereich der höchsten Temperaturen zu erkennen, wobei der höchste Wert parallel zur Preßrichtung (1,12 %) deutlich über dem höchsten Wert senkrecht zur Preßrichtung (0,9 %) liegt. Die Meßgenauigkeit in Längsrichtung ist geringer als in Durchmesserrichtung.

Die höhere Streuung dieser Meßwerte beruht auf der größeren Meßgenauigkeit bei der Höhenmessung an den scharfen, schmalen Kalottenrändern, die teilweise Höhenunterschiede aufwiesen. Dies kommt in der Streuung der Meßwerte (Abb. 15) deutlich zum Ausdruck.

3.1.4 Untersuchung der mechanischen Festigkeit

Bei Kugelhaufen-Reaktoren mit frei in das Core einfahrenden Regel- und Abschaltstäben und mit BE-Umwälzung werden besonders hohe Anforderungen an die Widerstandsfähigkeit der kugelförmigen BE gegenüber mechanischen Belastungen gestellt. Einerseits fallen die BE bei der Core-Beschickung aus etwa 4 m Höhe auf das Core, andererseits sind sie beim Einfahren der Regel- und Abschaltstäbe großen statischen Belastungen ausgesetzt. Als Maß für die Widerstandsfähigkeit gegen solche Belastungen wurden zwei charakteristische Größen eingeführt, nämlich die zum Bruch der Kugel zwischen parallelen Stahlplatten erforderliche Kraft (Zerdrückfestigkeit K_{Bruch}) und die Zahl der Fälle aus 4 m Höhe auf ein Kugelbett, die ein BE ohne Beschädigung übersteht (Fallfestigkeit) /30/ bis /35/. Da der Falltest aus 4 m Höhe aus räumlichen Gründen in den HEISSEN ZELLEN nicht durchgeführt werden kann, wurde stattdessen an bestrahlten BE ein Falltest aus 2 m Höhe, jedoch auf eine ebene Stahlplatte, eingeführt. Dabei wurde erwartet, daß die Kurzzeitbelastung dabei im Mittel etwa die gleiche ist. Außerdem wurde ein weiterer, zer-

störungsfreier Falltest aus 1 m Höhe auf eine ebene Stahlplatte, eingeführt, bei dem die maximale Kraft (K_{\max}) und die Rücksprunghöhe (h_r) gemessen werden. Dieser Test sollte ohne zusätzlichen Probenbedarf weitere Information über den Einfluß der Bestrahlung auf das Stoßverhalten der BE geben.

3.1.4.1 Zerdrücktest

Die Zerdrückfestigkeit wurde bei den fünf BE 4, 9, 14, 19 und 23 parallel und bei den fünf diesen jeweils benachbarten BE 3, 8, 13, 18 und 22 senkrecht zur Preßrichtung gemessen. Die BE wurden dazu zwischen zwei parallelen Stahlplatten mittels einer hydraulischen Presse mit einer Vorschubgeschwindigkeit von 42 mm/min bis zum Bruch belastet. Diese Bruchlastwerte sind dem Wert der Zerdrückfestigkeit von 2100 kp - der als Mittelwert von 29 Messungen an unbestrahlten BE ermittelt worden war /4/ - in der Tab. 12 gegenübergestellt. Die Orientierung der unbestrahlten BE hinsichtlich der Preßrichtung war dabei willkürlich und nicht wie bei den bestrahlten entweder parallel oder senkrecht zur Preßrichtung. Mit Ausnahme des BE 14 liegen die an den bestrahlten BE gemessenen Bruchlasten mit einem Mittelwert von 1900 kp niedriger als der Mittelwert der unbestrahlten BE.

Die prozentuale Abnahme des Mittelwertes beträgt 9,6 %. Zu einer Beurteilung der Abhängigkeit der Zerdrückfestigkeit von der Fluenz schneller Neutronen reicht die Zahl der Meßwerte nicht aus.

Die Abb. 16 bis 27 zeigen die Bruchstücke einzelner BE. Bei der Belastung eines BE zwischen zwei parallelen Platten treten auf der Mantelfläche eines Kegels (Druckkegel genannt) - der die Berührungsfläche zwischen Platte und Kugel zur Basis hat - die maximalen Schubspannungen auf. Auf dieser Mantelfläche beginnt in der Regel der Bruch. Anschließend spaltet sich die Kugel vom Druckkegel ausgehend entlang von Längengraden meistens in drei, manchmal in vier größere Teile (Kugelle). In Abb. 17 bis 22 ist der Druckkegel deutlich sichtbar. Im allgemeinen war der Feinanteil gering (unter 10 %), gebrochene Partikeln waren nicht zu erkennen. Bei dem BE 13 (Abb. 24 und 25) ist das steckengebliebene Thermoelementende im Detailfoto sichtbar.

Tabelle 12

Mechanische Eigenschaften der BE

BE-Nr. Pos. Herst.	Maximale Kraft		Rücksprunghöhe		Lage zur Preß- rich- tung	K _{Bruch} nach Bestrahlung	Änderung von K _{Bruch} gegenüber Mittelwert unbestrahlter BE	
	K _{max} kp	Standard- Abweichung %	h _r cm	Standard- Abweichung %			Differenz kp	Quotient %
1 461	673,5	1,1	20,4	5,4				
2 452								
3 428	686,4	1,2	21,4	8,0	⊥	1840	-260	-12,4
4 443	681,4	1,1	20,6	3,6		1900	-200	- 9,5
5 463	696,7	4,1	21,5	6,3				
6 427	705,4	1,5	21,7	4,2				
7 422								
8 451	706,8	2,4	23,0	7,2	⊥	1860	-240	-11,4
9 445	715,2	1,5	22,0	2,8		1780	-320	-15,2
10 454	725,6	1,8	22,8	2,9				
11 453	729,0	0,9	22,7	2,5				
12 426								
13 460	733,9	0,9	22,8	4,8	⊥	1840	-260	-12,4
14 447	740,8	0,7	23,7	4,2		2240	+140	- 6,7
15 439	742,8	1,0	24,6	8,7				
16 433	748,3	1,0	24,2	3,5				
17 444								
18 441	757,0	1,1	24,0	3,0	⊥	1790	-310	-14,8
19 462	742,8	3,5	24,0	6,4		1940	-160	- 7,6
20 458	746,2	1,5	23,7	3,2				
21 435								
22 440	743,2	7,7	23,4	4,6	⊥	1980	-120	- 5,7
23 424	735,3	0,8	23,0	4,9		1880	-220	-10,5
24 456	724,9	3,2	21,9	4,5				
25 429	752,0	1,2	21,8	3,0				
Mittelwert						1900 +130 (7 %)		
29 unbestrahlte BE, Mittelwert					*	2100 +190 (9 %)	*) Lage statistisch	
1 unbestr. BE 449	678,6	2,3	24,9	4,3				

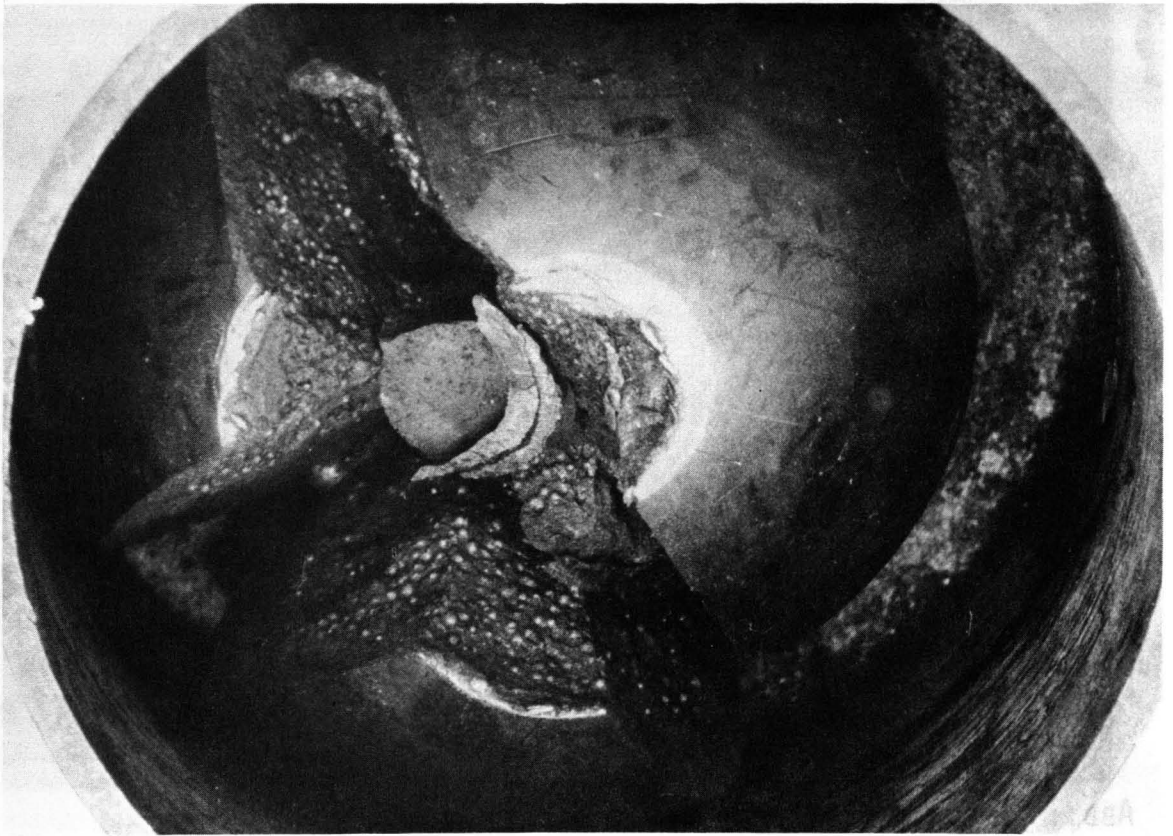


ABB.: 16

BE NR. 13 58/4/503/20

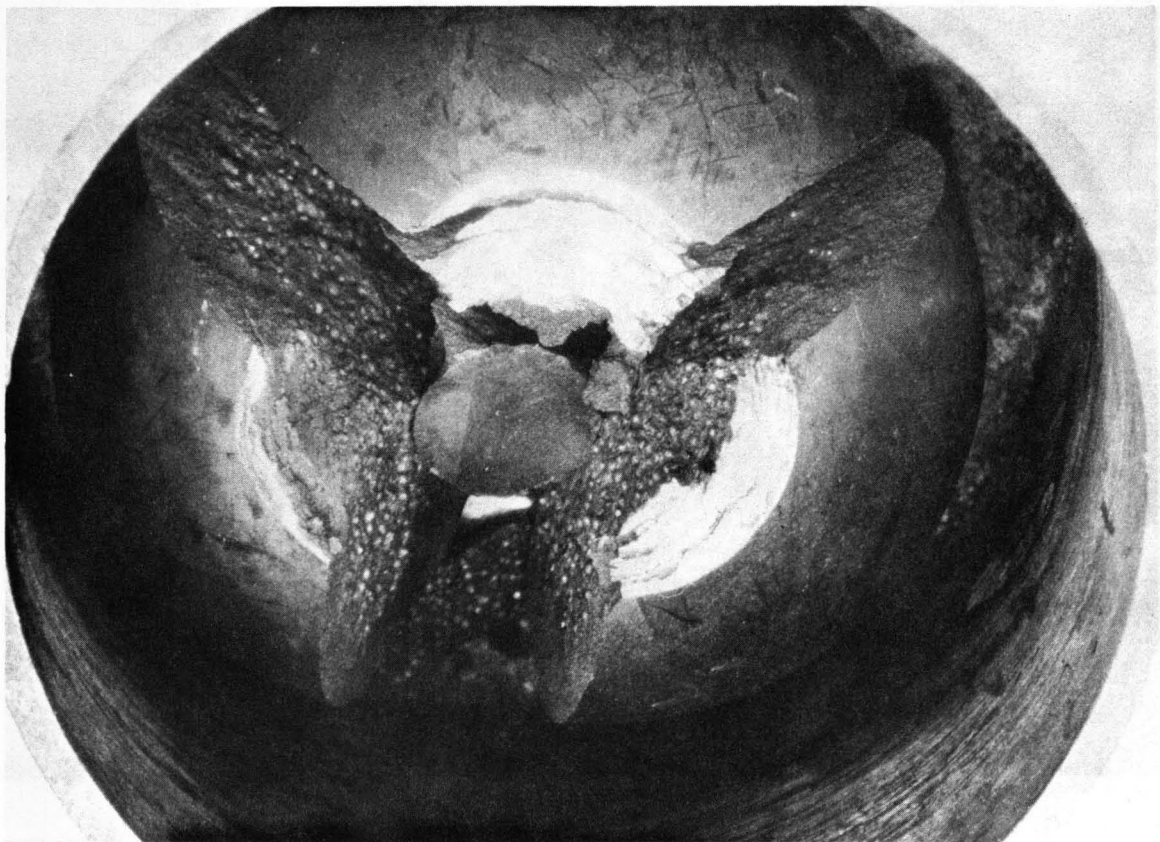


ABB.: 17

BE NR. 8 BRUCHSTÜCKE NACH ZERDRÜCKEN 58/4/503/10



ABB.: 18

BE NR. 3 5 x TEILE NACH ZERDRÜCKEN 58/6/50

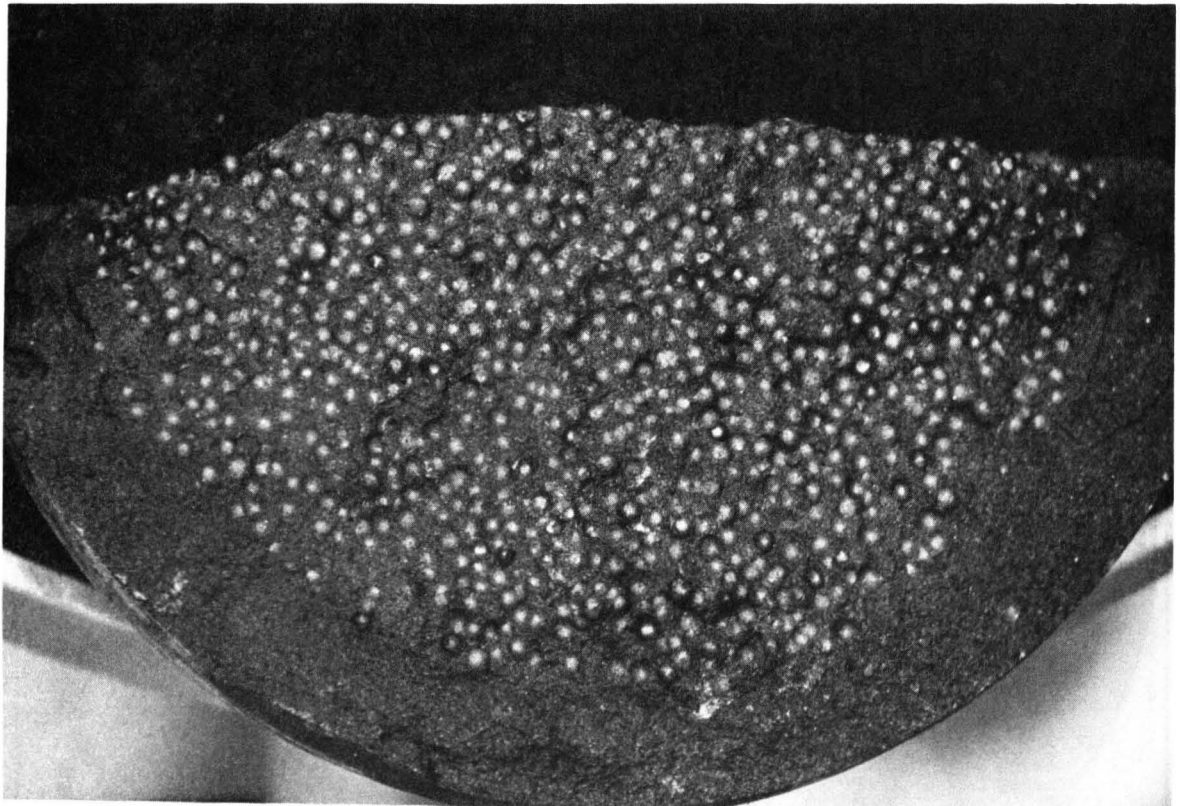


ABB.: 19

BE NR. 3 12 x BRUCHSTÜCKE 58/6/82

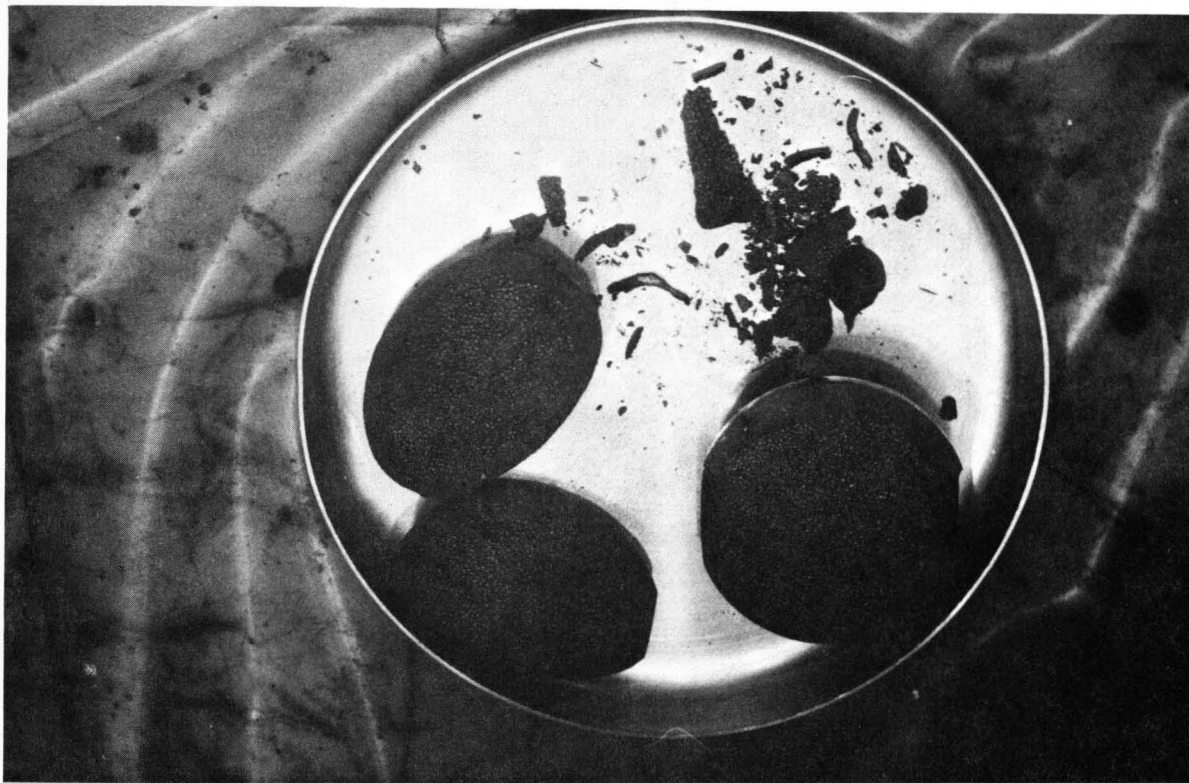


ABB.: 20

BE NR. 13

5 x

TEILE NACH ZERDRÜCKEN

58/5/21

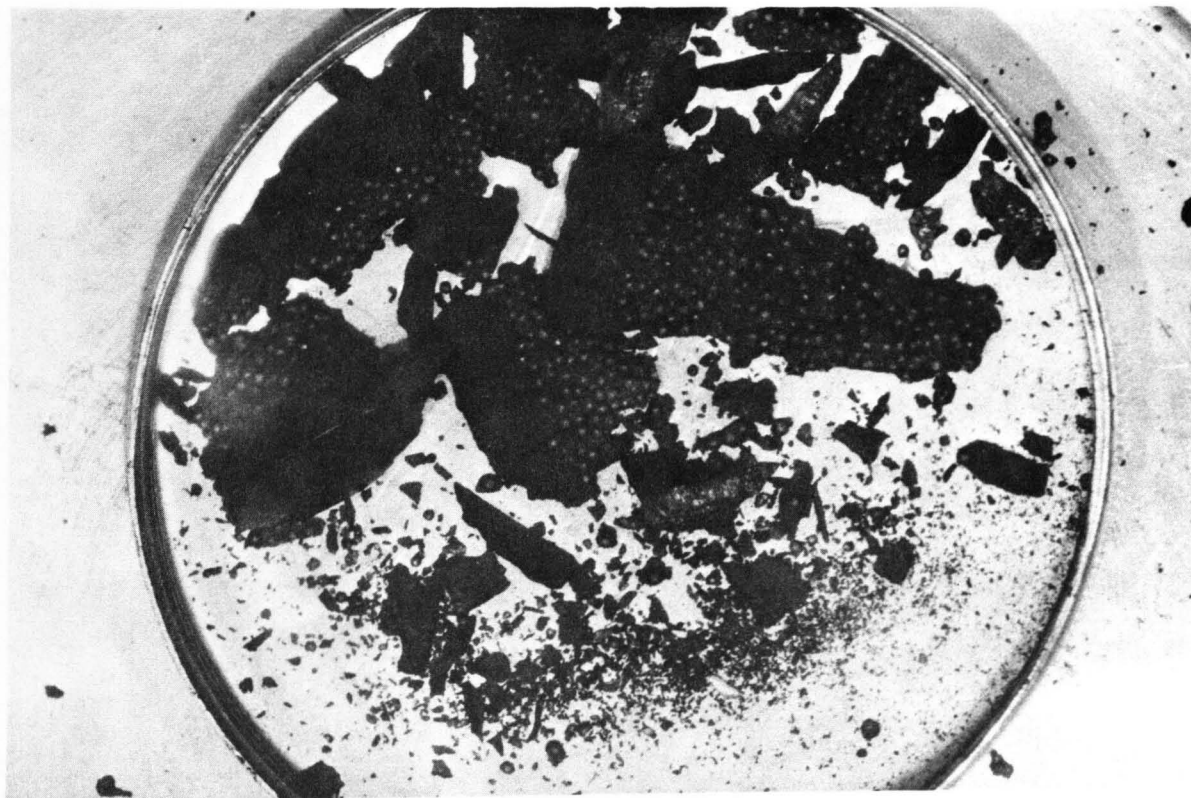


ABB.: 21

BE NR. 13

12 x

FEINANTEILE NACH ZERDRÜCKEN

58/5/19

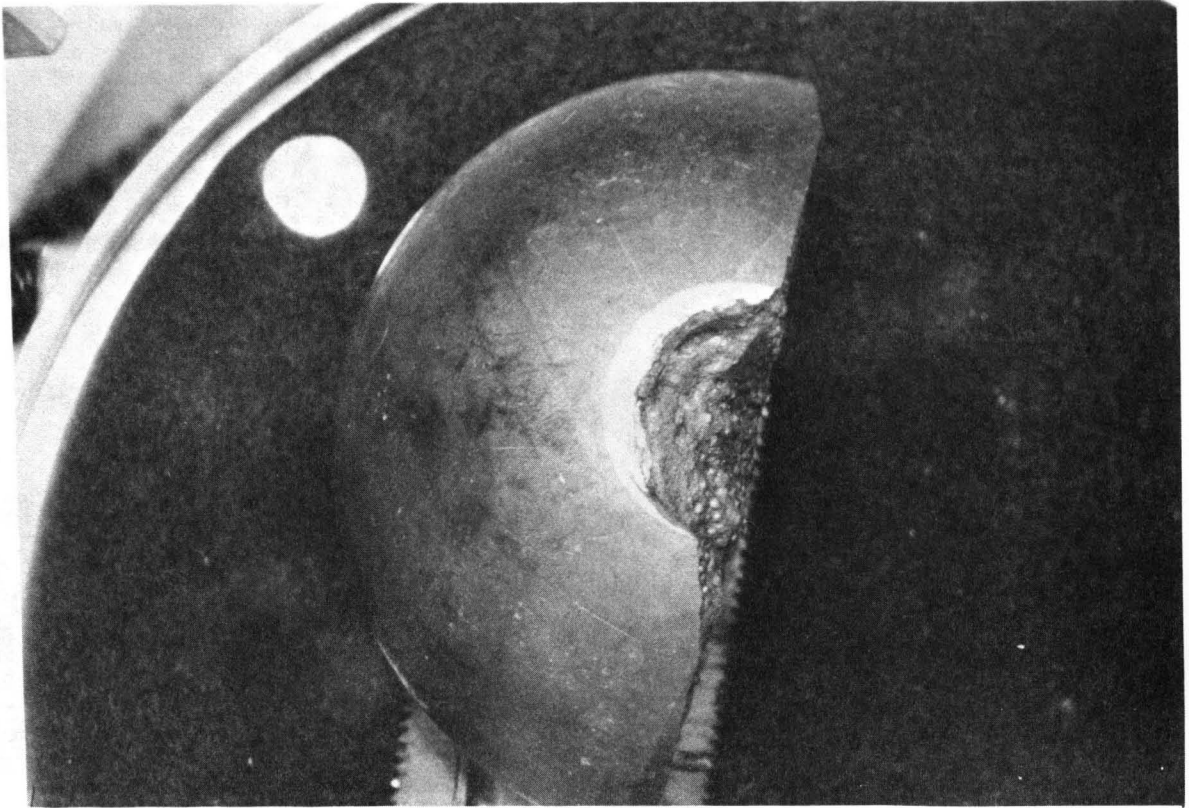


ABB.: 22

BE NR. 13

12 x

BRUCHSTÜCK

58/5/74

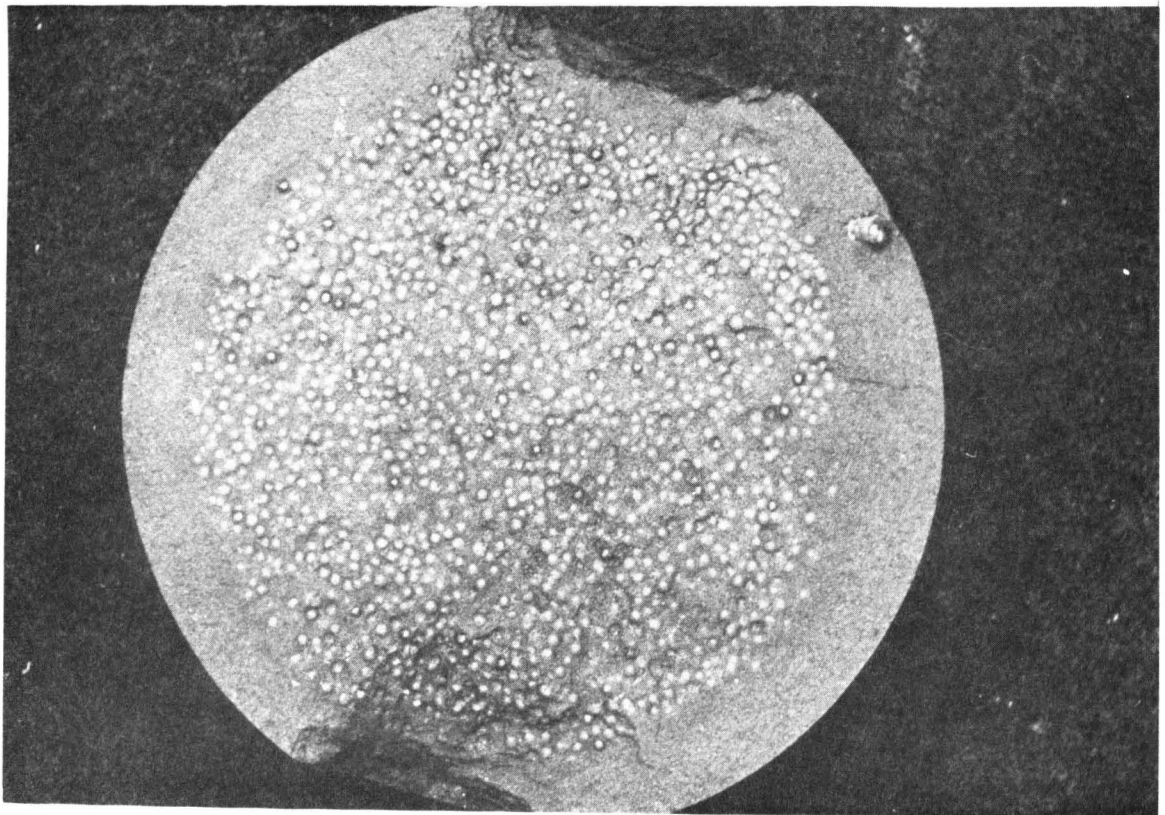


ABB.: 23

BE NR. 13

12 x

BRUCHSTÜCK

58/5/64



ABB.: 24

58/5/82

BE NR. 13 40 x

TEILANSICHT BRUCHSTÜCK MIT THERMOELEMENT- ENDE

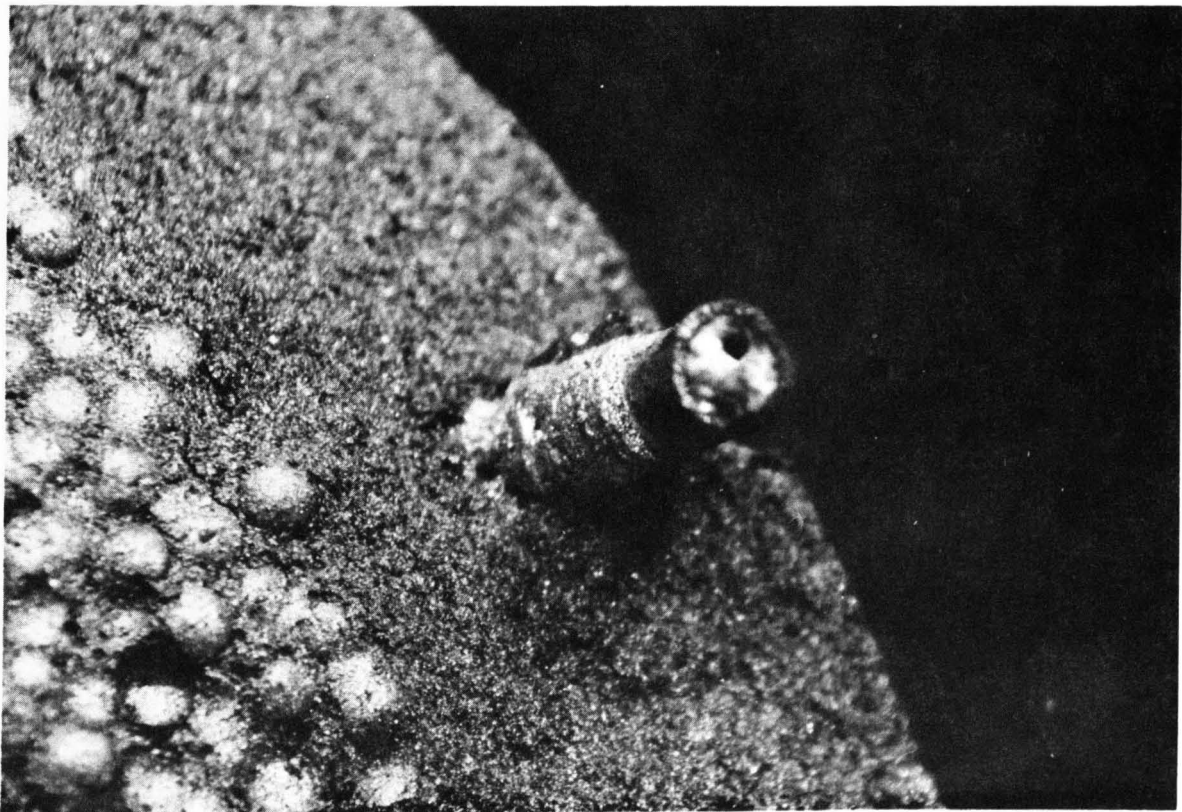


ABB.: 25

58/5/68

BE NR. 13 40 x

TEILANSICHT BRUCHSTÜCK MIT THERMOELEMENT- ENDE

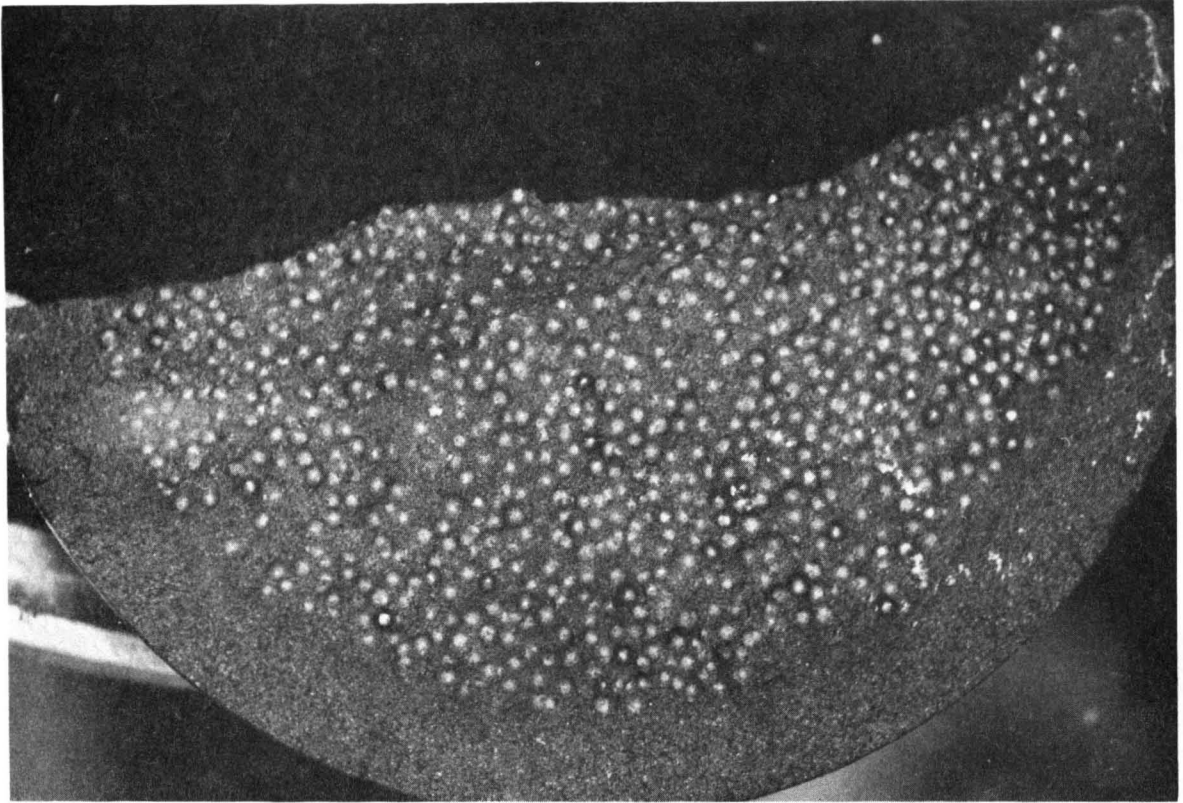


ABB.: 26

BE NR. 13

12 x

BRUCHSTÜCK

58/5/86

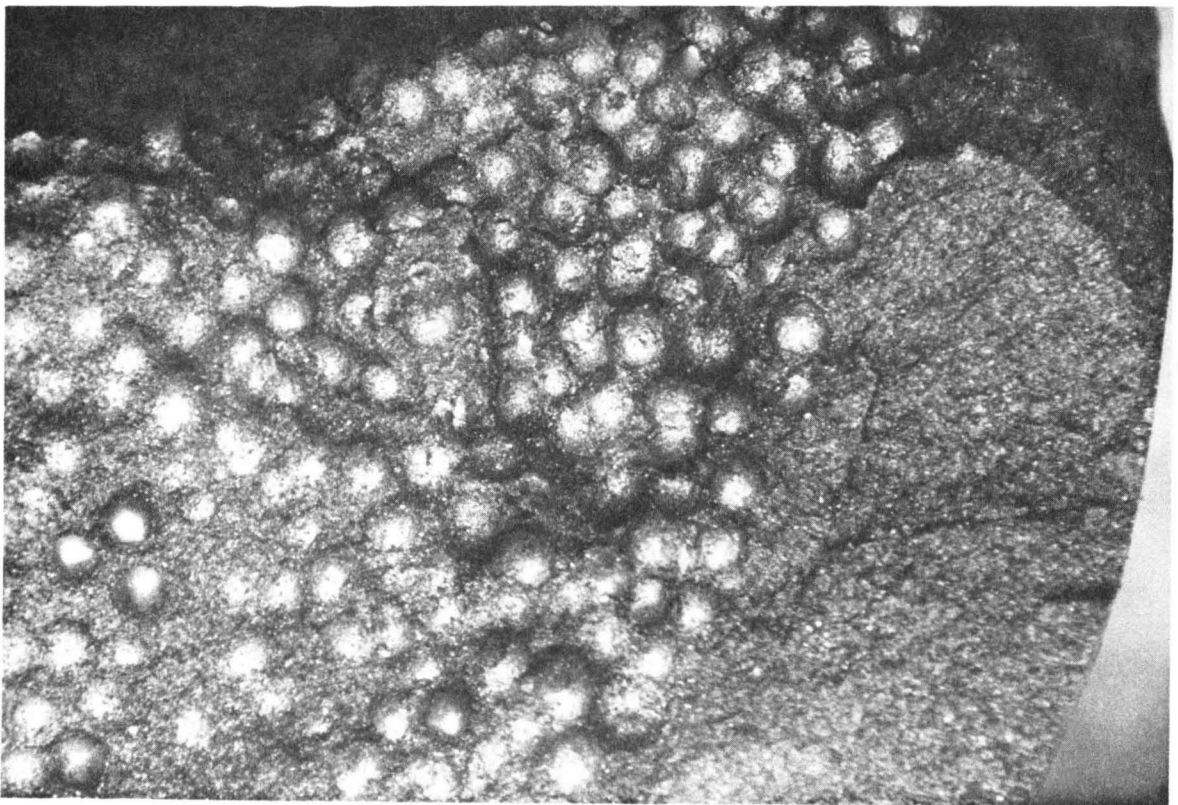


ABB.: 27

BE NR. 13

40 x

BRUCHSTÜCK (TEILANSICHT)

58/5/15

3.1.4.2 Falltest

Die Falltests aus 1 m Höhe wurden an allen bestrahlten BE außer BE 2, 7, 12, 17 und 21 durchgeführt. Jedes BE fiel jeweils 10mal auf eine Stahlplatte. Bei jedem Fall wurde die maximale Kraft (K_{\max}) und die Rücksprunghöhe (h_r) gemessen.

Aus den Ergebnissen der Fallversuche wurden für jedes BE Mittelwerte der maximalen Kraft (K_{\max}) und der Rücksprunghöhe (h_r) bestimmt /35/, die in der Tab. 12 zusammengefaßt sind. Die K_{\max} -Werte liegen zwischen 670 kp (BE 1) und 760 kp (BE 18), die Rücksprunghöhe zwischen 20,4 cm (BE 1) und 24,6 cm (BE 15). Die Standard-Abweichung der K_{\max} -Werte eines BE liegt im Mittel bei 1 %, die der h_r -Werte bei etwa 5 %.

In den Abb. 28 und 30 sind die Mittelwerte von K_{\max} und h_r in Abhängigkeit von der Brennelement-Position, in den Abb. 29 und 31 in Abhängigkeit von der Fluenz dargestellt. Außerdem ist in Abb. 31 die maximale Oberflächentemperatur der BE an den Meßpunkten vermerkt.

Aus Abb. 29 ist zu erkennen: Von 2 bis $5 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ nimmt h_r von 20,5 cm auf 24,5 cm etwa linear mit der Fluenz zu. Beim unbestrahlten BE beträgt h_r 24,9 cm, so daß für die Fluenz-Abhängigkeit unterhalb $2 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ etwa der gestrichelt eingezeichnete Verlauf vermutet werden kann.

In /36/ bis /38/ wird ein Zusammenhang zwischen K_{\max} und h_r einerseits und dem E-Modul andererseits angegeben. Darauf soll hier nicht eingegangen werden, vielmehr sollen einige qualitative Aussagen zu K_{\max} und h_r gemacht werden.

h_r/h_0 ist der Bruchteil der Energie, der beim Aufprall nicht umgewandelt wird, d.h. der Bruchteil der während des Stoßvorganges elastisch gespeichertten Energie. Er beträgt für gepreßte BE etwa 25 %. Die übrigen 75 % der Energie werden während des Stoßes durch plastische Verformung bzw. innere Reibung aufgezehrt.

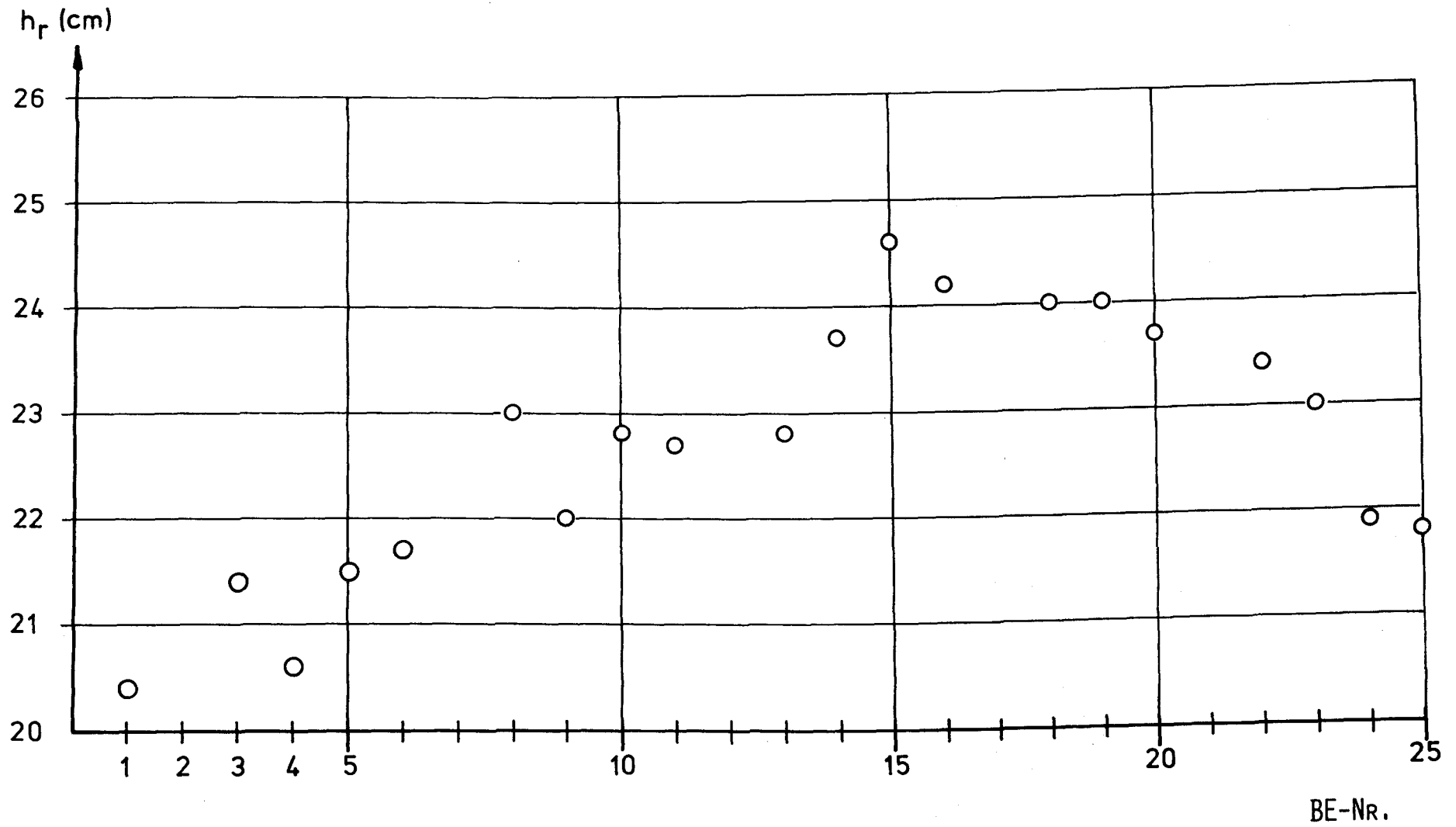


ABB. 28 RÜCKSPRUNGHÖHE DER BE

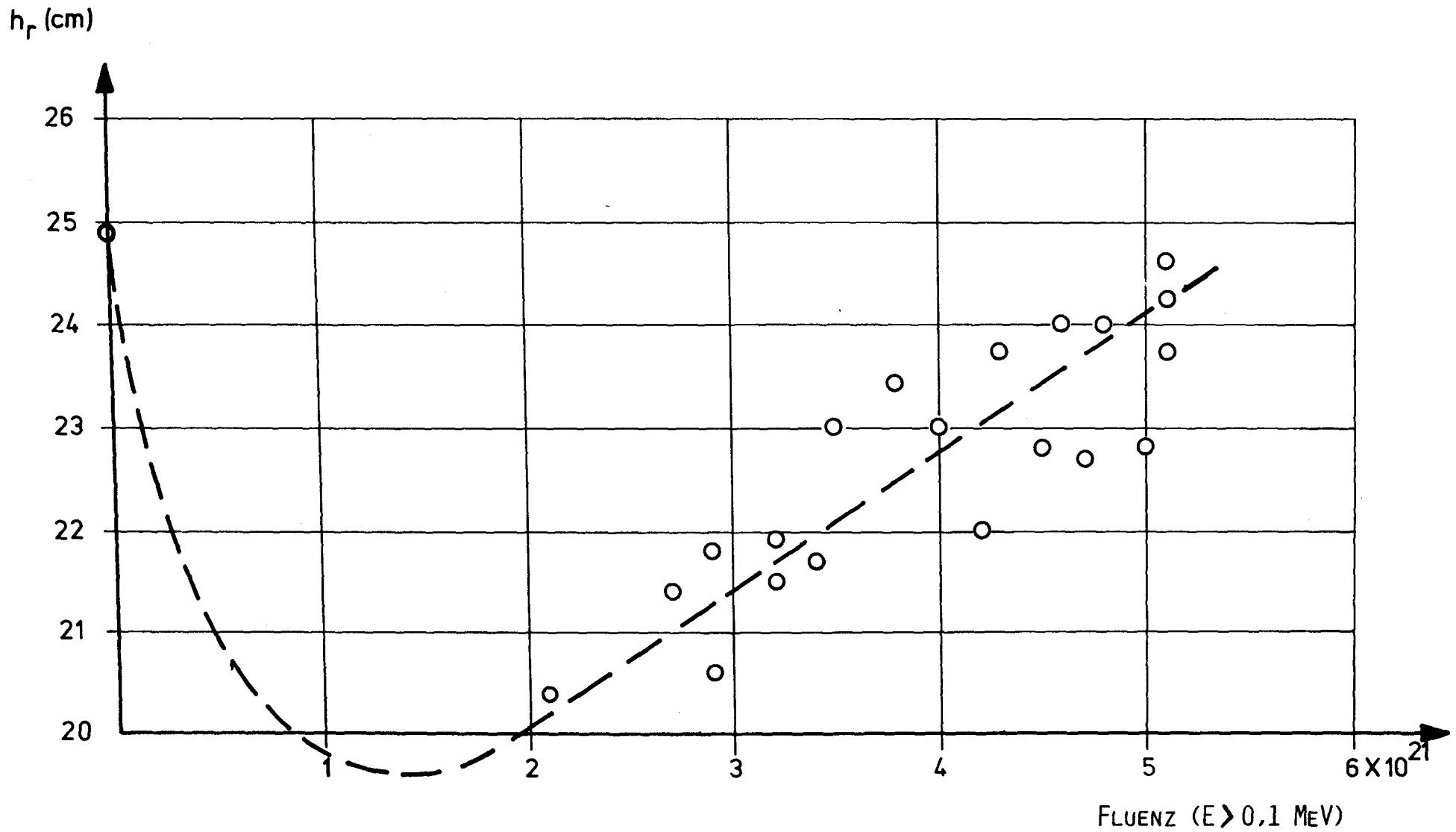


ABB. 29 RÜCKSPRUNGHÖHE DER BE IN ABHÄNGIGKEIT VON DER FLUENZ

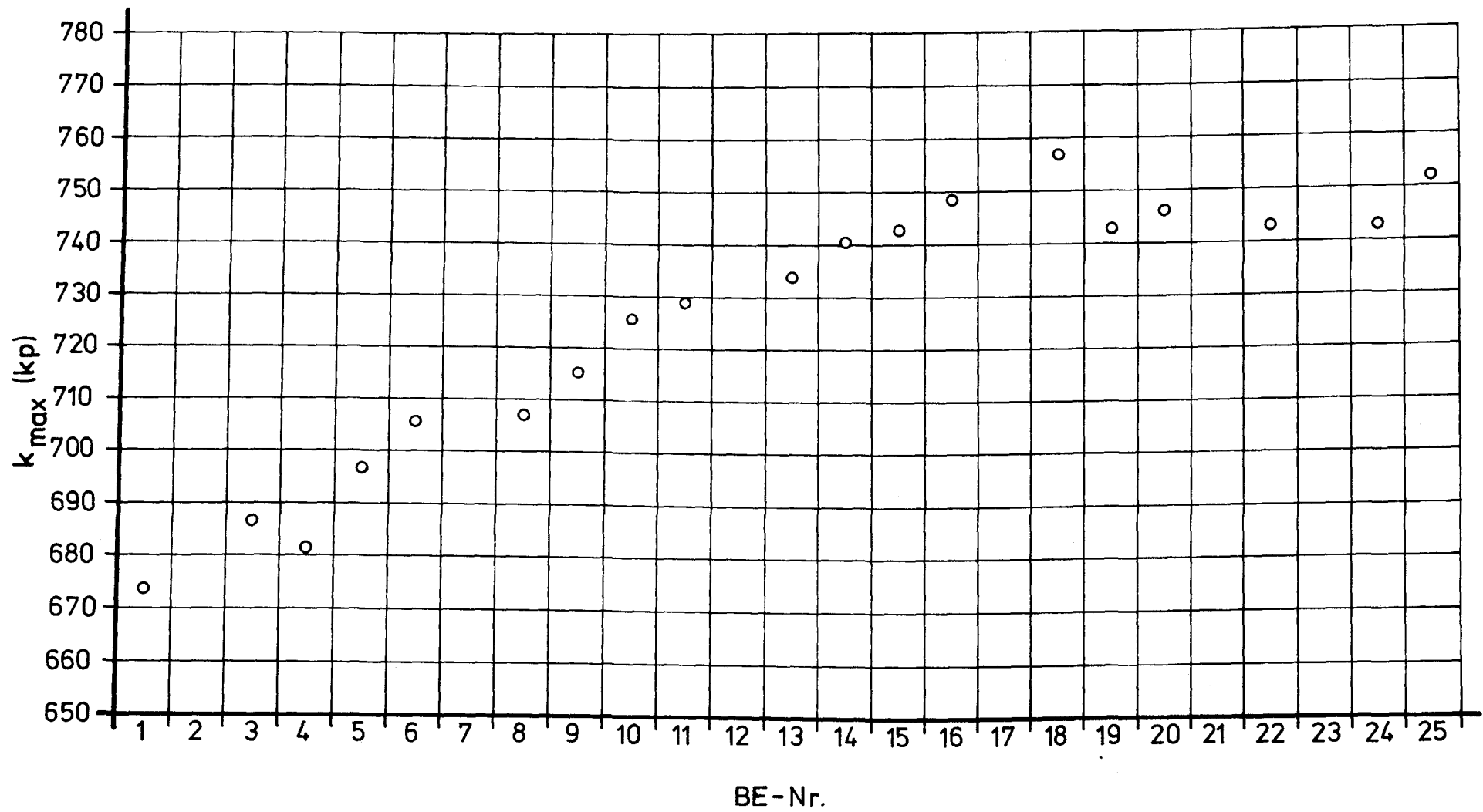


ABB. 30 MAXIMALE KRAFT DER BE BEIM FALL

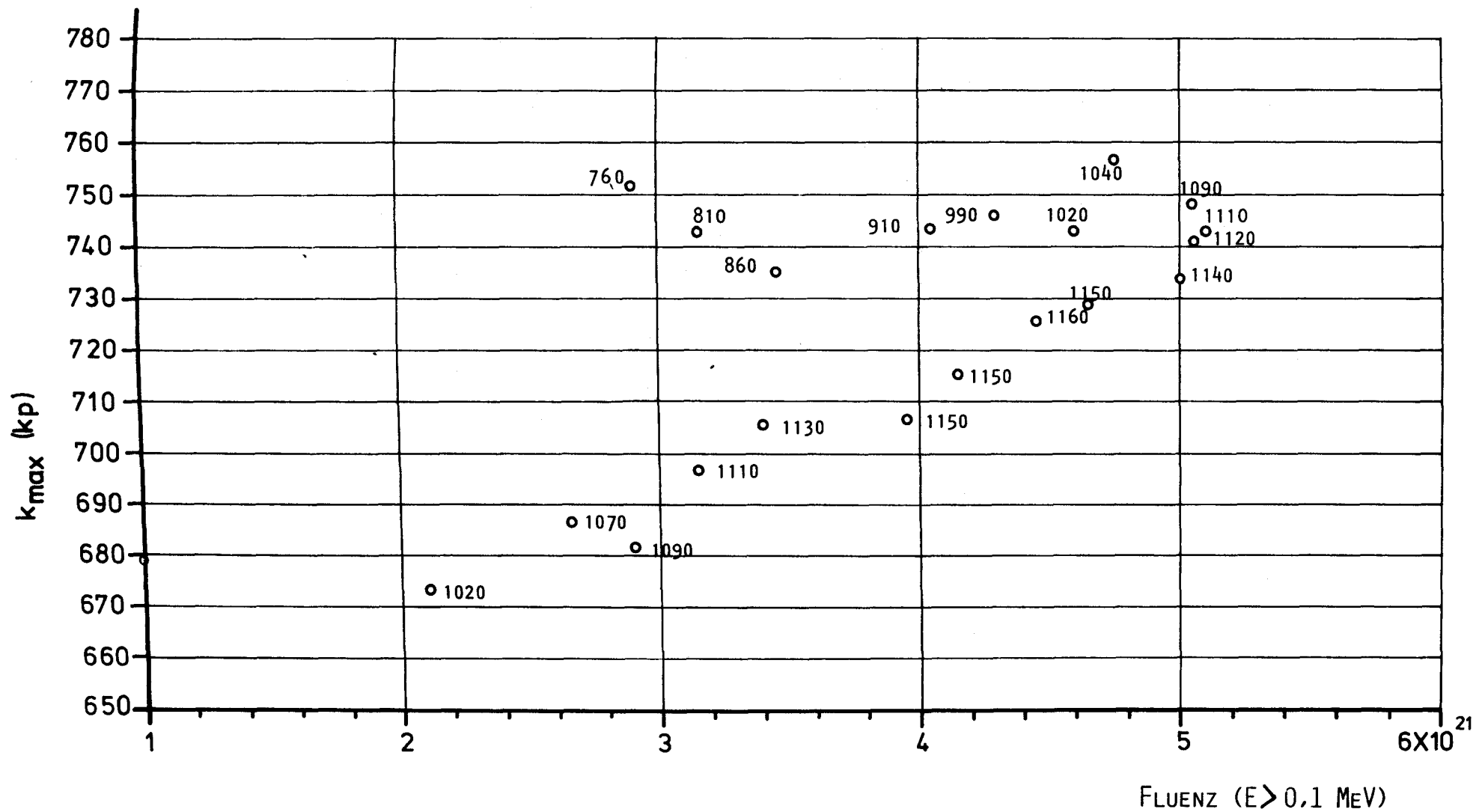


ABB. 31 MAXIMALE KRAFT DER BE BEIM FALL
IN ABHÄNGIGKEIT VON DER MAXIMALEN OBERFLÄCHENTEMPERATUR UND DER FLUENZ

Bei rein elastischem Stoß würde K_{\max} umso größer sein, je größer der E-Modul ist, weil bei konstanter Energiedichte $\sim \frac{\sigma^2}{E}$ die Spannungen und damit die äußere Kraft mit dem E-Modul zunehmen. Bei teilelastischem Stoß ist der inelastische Anteil umso größer, je größer K_{\max} ist, weil der inelastische Anteil mit Kraft und Verformung stark zunimmt. Also sollte mit zunehmendem E-Modul h_r abnehmen. Dieser Tendenz entspricht die Fluenz-Abhängigkeit in Abb. 31, da der E-Modul zunächst mit der Fluenz stark zunimmt und nach Erreichen des Maximums bei etwa $0,5 \cdot 10^{21}$ bei hohen Temperaturen von niedrigerem Maximum schwächer, bei niedrigeren Temperaturen von höherem Maximum stärker abnimmt.

Bei K_{\max} sollten zwei gegenläufige Tendenzen bestehen:

- I. Bei gleichbleibendem Bruchteil der elastischen Energie, also gleichem h_r sollte mit zunehmender Temperatur wegen des abnehmenden E-Moduls K_{\max} abnehmen. Diese Tendenz ist in Abb. 31 bei etwa $3 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-2}$ deutlich zu erkennen.
- II. Bei zunehmendem h_r , also zunehmendem Bruchteil der elastischen Energie, sollte K_{\max} zunehmen. Dieser Einfluß überwiegt bei den hohen Temperaturen, bei denen sich der E-Modul nur wenig mit der Fluenz ändert, den unter I. genannten Einfluß wie ebenfalls in Abb. 31 deutlich erkennbar.

Der Falltest aus 2 m Höhe wurde an den unkorrodierten BE 6 und 11 und an den korrodierten BE 1 und 7 durchgeführt. Die Ergebnisse sind im Abschnitt 3.1.5.2 beschrieben. Der Vergleich der maximalen Kräfte $K_{\max}(1 \text{ m})$ und $K_{\max}(2 \text{ m})$ bei den BE 6 und 11 zeigt, daß sie sich etwa wie die Auftreffgeschwindigkeiten verhalten ($1 : \sqrt{2}$). $K_{\max}(2 \text{ m})$ liegt mit etwa 1000 kp weit unter der gemessenen statischen Zerdrückkraft von etwa 1900 kp. Trotzdem führen etwa 350 Fälle zum Bruch.

3.1.5 Untersuchungen zum Korrosionsverhalten

Korrosionsvorgänge im oberflächennahen Bereich der BE können zur Abnahme des Durchmessers bzw. zur Verringerung der mechanischen Festigkeit führen. Zur Untersuchung dieser Effekte wird der Einfluß der Bestrahlung

auf die Beständigkeit gegen Oxidation durch Wasserdampf bei erhöhten Temperaturen ermittelt. Die mechanische Festigkeit korrodierter und nicht korrodierter BE wird im Falltest aus 2 m Höhe auf eine Stahlplatte verglichen.

3.1.5.1 Oxidationstest

Zur Beurteilung der Korrosionsbeständigkeit wird der Gewichtsverlust der BE bestimmt, den sie bezogen auf Zeit- und Oberflächeneinheit, bei festgelegten Temperaturen in einem definierten Gasstrom erleiden (Korrosionsrate). Die sechs BE 1, 5, 7, 15, 16 und 25 wurden je 10 Stunden bei drei verschiedenen Temperaturen (830, 900 und 1000°C) in einem He-Strom mit 1 Vol-% Wasserdampf (Strömungsgeschwindigkeit zwischen 100 und 300 NL/h) oxidiert /39/ /40/.

Die Korrosionsrate bei der höchsten Temperatur von 1000°C wurde an zwei hinsichtlich der Fluenz - nicht der Temperatur - besonders hoch (BE 16) bzw. besonders niedrig (BE 25) beanspruchten BE bestimmt. Daneben sollte auch ein eventueller katalytischer Einfluß auf die Korrosionsrate erfaßt werden. Dieser Einfluß sollte sich besonders bei relativ niedriger Temperatur durch erhöhte Korrosionsrate bemerkbar machen. Deshalb wurden die thermisch ähnlich, jedoch bezüglich Fluenz sehr unterschiedlich belasteten BE 5 und 15 jeweils bei 830°C oxidiert.

Die bei 900°C oxidierten BE 1 und 7 wurden zur Untersuchung des Einflusses der Korrosion auf mechanische Eigenschaften verwendet. Das Ergebnis der Oxidationstests zeigt Tab. 13.

An den beiden bei 830°C oxidierten BE waren die gemessenen Korrosionsraten 0,02 bzw. 0,015 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$. Der Vergleich dieser Werte mit den Werten für bestrahlte A3-Grafit-BE /41/ /42/ bei 750°C (0,013 bis 0,021 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$) und bei 800°C (0,037 bis 0,049 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$) ergab keinen Hinweis auf katalytischen Einfluß auf das Korrosionsverhalten der BE.

Tabelle 13

Oxidationstest an BE

BE-Nr.	Korrosionstemperatur °C	Gewichtsverlust %	Korrosionsrate $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$
5	830	0,01	0,02
15	830	0,01	0,015
1	900	0,16	0,29
7	900	0,06	0,11
16	1000	0,66	1,16
25	1000	0,87	1,64

Die Korrosionsraten der bei 1000°C oxidierten BE 16 und 25 weichen nicht signifikant von den an zwei unbestrahlten BE bei 1000°C gefundenen Raten von 1,06 und 1,43 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$ ab, und überschreiten nicht die für THTR zulässigen Werte /43/. Entsprechendes gilt für die Korrosionsrate bei 900°C (bei 900°C zeigte ein unbestrahltes BE eine Korrosionsrate von 0,22 $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$) /4/. Da diese Korrosionsrate bei 900°C in Argon gemessen worden ist, ist sie für den Vergleich mit den in Helium gemessenen des bestrahlten BE mit einem Faktor >1 zu multiplizieren. Zum mindesten bei dem BE 7 kann dann bei diesem Vergleich ein korrosionsmindernder Einfluß der Bestrahlung vermutet werden /40/.

3.1.5.2 Falltests zur Untersuchung des Einflusses von Korrosion auf die Festigkeit

An den BE 1, 6, 7, 11 und 16 wurden Falltests mit visuellen Zwischenprüfungen durchgeführt, bei denen die Anzahl der Fälle aus 2 m Höhe auf Stahl bis zum Bruch des BE (AFB) gezählt und dabei in regelmäßigen Intervallen von 50 Fällen die BE-Oberfläche auf eingetretene Schäden hin untersucht wurden.

Die Versuchsabläufe und Ergebnisse sind in der Tab. 14 und den Anmerkungen dazu angegeben /44/.

Tabelle 14

Falltest nach unterschiedlicher Vorbehandlung

BE-Nr.	Oxidations-Vorbehandlung	AFB	Ergebnis der visuellen Prüfung	K_{\max} (2 m) kp
16	1000°C	118	nach 50 Fällen eine Abplatzung ca. 20 x 15 mm nach 118 Fällen zwei Abplatzungen ca. 20 x 20 mm	1024
1	900°C	170	nach 150 Fällen eine Kerbe 5 mm lang nach 170 Fällen eine Abplatzung ca. 30 x 40 mm	823
7	900°C	262	nach 262 Fällen Schalenbruch mit Kernfreilegung ca. 50 mm \emptyset	913
6	keine	337	nach 337 Fällen Schalenabplatzung ca. 25 % der Kugel- oberfläche, Kernfrei- legung, Waffelmuster erkennbar	986
11	keine	348	nach 348 Fällen eine Abplatzung ca. 20 x 20 mm	1044

Die unterschiedliche Vorbehandlung verursachte bei den BE 6 und 11 (keine Oxidation) sowie BE 16, 1 und 7 (Oxidation bei 1000°C bzw. 900°C) deutlich verschiedene AFB-Werte. Der Bruch trat bei den oxidierten BE eindeutig früher ein als bei den nicht oxidierten. Dies deutet auf eine Schwächung der mechanischen Festigkeit durch vorhergehende Oxidation hin.

Außerdem ist die maximale Auftreffkraft K_{\max} (2 m) (mit Ausnahme bei BE 16) deutlich niedriger als bei den unkorrodierten BE. Dies deutet auf einen längeren plastischen Verformungsweg während des Stoßvorganges.

3.1.6 Spaltgas-Ausheiztest

Die Hüllschichten von Brennstoffpartikeln können während der Bestrahlung oder beim Aufheizen nach Bestrahlung schadhafte werden. Das Bersten hat zur Folge, daß ein wesentlicher Teil des Spaltgases aus

dem Partikel entweicht, was je nach Abklingzeit durch Messung des freigesetzten Xe 133 oder Kr 85 erkannt werden kann.

Da aus reaktortechnischen Gründen eine Messung der Spaltgasfreisetzung aus einzelnen BE während der Bestrahlung nicht möglich war /9/ /12/, wurden an einigen BE Spaltgasausheiztests nach der Bestrahlung durchgeführt. Die BE wurden dazu einzeln im Heliumstrom auf 1000°C bzw. 1250°C erhitzt und die Xe 133- bzw. Kr 85-Freisetzung gemessen /45/ /46/.

Werden BE auf Temperaturen oberhalb der Bestrahlungstemperatur gebracht, so werden zusätzliche Spaltgasfreisetzungen beobachtet, die als Folge des Berstens von Partikelhüllen während der Temperaturbehandlung gedeutet werden können. Die Experimente in denen dies untersucht wird, werden als Partikelberstversuche bezeichnet /47/. Hier werden nur einige Nachuntersuchungs-Ergebnisse an BE eines Bestrahlungsexperimentes mitgeteilt. Eine zusammenhängende detaillierte Interpretation aller Partikelberstversuche, zu denen auch BE weiterer Bestrahlungsexperimente verwendet wurden, ist nur nach ausführlicher Versuchs-Auswertung möglich und erfolgt an anderer Stelle.

3.1.6.1 Messung der Spaltgasfreisetzung

Die BE 5, 9 und 14 wurden zu einem Zeitpunkt an dem noch genügend Xe 133 vorhanden war, einzeln auf 1000°C bis zur Gleichgewichtsfreisetzung aufgeheizt und die Freisetzungsrates des Xe 133 gemessen.

Aus technischen Gründen verzögerte sich die Durchführung der weiteren Tests so lange, daß keine nachweisbaren Xe 133-Mengen mehr vorhanden waren; es wurde daher die Kr 85-Freisetzung bestimmt und zwar an den BE 4, 8, 10, 15 und 19 bei 1000°C, an den BE 4, 8 und 19 anschließend auch noch bei 1250°C. Die Ergebnisse sind in Tab. 15 zusammengestellt.

Tabelle 15

Freisetzung der Spaltgase im Ausheiztest

BE-Nr.	1000°C			1250°C
	Xe 133		Kr 85	Kr 85
	10^{-5} R/B	10^{-12} R/N s ⁻¹	10^{-12} R/N s ⁻¹	10^{-12} R/N s ⁻¹
4			9	20
5	6	90	100	
8			9	200
9	7	100	30	200
10			70	
14	3	50	60	
15			100	
19			6	700

Üblicherweise wird die Freisetzung von Xe 133 während des Reaktorbetriebes in R/B-Werten angegeben, d.h. die Freisetzungsrates R wird auf die Bildungsrate B bezogen, die im Gleichgewicht mit der Zahl der vorhandenen Xe 133-Atome durch den Faktor λ (Zerfallskonstante) verknüpft ist. Es gilt dann die Beziehung $N = N_G = B/\lambda$. Für Xe 133 ist wegen seiner Halbwertszeit von 5,3 Tagen die Gleichgewichtsbedingung mit hinreichender Näherung noch nach 3 bis 4 Wochen Bestrahlung erfüllt. Für Nachuntersuchungs-Ausheiztests wird $\lambda \cdot N = B$ beim Bestrahlungsende aus Bestrahlungsdaten berechnet und zur Berechnung der R/B-Werte verwendet.

N = Anzahl der vorhandenen Atome	} in einem BE
N_G = Anzahl der im Gleichgewicht vorhandenen Atome	
B = Anzahl der pro Zeiteinheit entstehenden Atome	
λ = Zerfallskonstante	

Wird statt Xe 133 Kr 85 gemessen, so dürfen die Freisetzungsraten nicht auf die Bildungsraten bezogen werden, da wegen der langen Halbwertszeit des Kr-Isotops das Bildungs-Zerfalls-Gleichgewicht auch nicht annähernd erreicht wird, somit $N \ll N_G$ gilt. Sinnvollerweise kann bei Kr 85 die Freisetzungsraten nur auf die Zahl N der vorhandenen Atome bezogen werden. Zum Vergleich der Freisetzungen von Xe 133 und Kr 85 müssen dann für beide Nuklide die R/N-Werte herangezogen werden (Tab. 15, für Xe 133 sind der Vollständigkeit halber die R/B-Werte mit angegeben).

Xe 133-Freisetzungen von $R/B = 5 \cdot 10^{-5}$ bei 1000°C , wie sie für die BE 5, 9 und 14 gemessen wurden, deuten eindeutig auf unbeschädigte BE bzw. Brennstoffpartikel. Die Werte entsprechen R/N-Werten von 50 bis $100 \cdot 10^{-12} \text{ s}^{-1}$ und stimmen in vertretbaren Grenzen mit den für Kr 85 bei 1000°C gemessenen Werten überein. Die Werte bei 1250°C weichen stark voneinander ab, was durch Partikelbersten verursacht sein könnte.

3.1.6.2 Partikelberstversuche

An den BE 1, 4, 7, 8, 12, 13, 18 und 22 wurden Partikelberstversuche bei erhöhten Temperaturen durchgeführt. Dazu wurden BE oder BE-Bruchstücke in der Ausheiztest-Apparatur stufenweise bis auf 1500°C aufgeheizt und bei jeder Temperaturstufe die Zahl der Kr 85-Atome ermittelt, die infolge Bruchs der Beschichtung von Partikeln freigesetzt wurden /47/.

Einige Ergebnisse sind in Tab. 16 zusammengefaßt. Bei diesen Versuchen zeigte sich, daß mit steigendem Abbrand der BE die Temperatur sinkt, bei der das erste Berstereignis beobachtet wird.

Die Häufigkeit der Berstereignisse nimmt mit zunehmender Temperatur zu, ebenso die Kr 85-Freisetzung pro Berstereignis.

Die bei den Berstereignissen zusätzlich freigesetzte Zahl der Kr 85-Atome kann dabei auf das Gesamtinventar an Kr 85 im BE oder auf das Kr 85-Inventar eines Partikels bezogen werden. Da die Zahl der Partikel pro BE aufgrund der Auslegung bekannt ist, kann das Inventar pro Partikel abgeschätzt werden.

Tabelle 16

Einige Ergebnisse der Partikelberstversuche

BE-Nr.	Versuchs- probe: Kugel = K Bruchst. = B	Abbrand % fima	Temperatur des frühesten Partikel- berstens °C	Bei dieser Temperatur freigesetzte Atome Kr 85	Berechnetes Inventar Atome Kr 85 der Probe bei Bestrahlungsende	Freigesetzter Bruchteil von Kr 85	Kr 85-Inventar eines Partikels	Zahl der freigesetzten Partikel- Inventare
1	K	7,95	1500	7,2 +13	6,5 +18	1,1 -5	1,5 +14	0,5
4	B	10,00	1200	1,9 +14	2,6 +18	7,3 -5	1,9 +14	1,0
7	K	11,95	1100	7,4 +13	9,7 +18	7,6 -6	2,3 +14	0,3
8	B	12,80	800	1,4 +14	3,2 +18	4,4 -5	2,4 +14	0,6
12	K	14,10	800	9,0 +13	1,1 +19	8,2 -6	2,7 +14	0,3
13	B	13,95	800	6,6 +14	2,7 +18	2,4 -4	2,6 +14	2,5
18	B	13,80	800	1,2 +14	3,0 +18	4,0 -4	2,6 +14	0,5
22	B	12,20	900	1,9 +14	2,9 +18	6,5 -4	2,3 +14	0,8

Die Größenordnung der bei den Temperaturen des frühesten Partikelberstens freigesetzten Partikelinventare betrug etwa 1, wobei jedoch nicht die Zahl der Partikel angegeben werden kann, aus der dieses Partikel-Inventar Kr 85 freigesetzt worden ist.

3.1.7 Keramografische Untersuchungen

Zur Beurteilung eventuell aufgetretener strahlungsbedingter Veränderungen wurden die Bruchstücke der fünf zerdrückten BE 4, 9, 14, 19 und 23 sowie Partikel dieser Bruchstücke keramografisch untersucht. Die Untersuchung ließ keine Beeinträchtigung von Partikeln und Matrix durch die Bestrahlung erkennen. Typische repräsentative Beispiele werden in den Abb. 32 bis 44 gezeigt. Darin ist der einwandfreie Zustand der Partikeln, der Matrix und des Übergangs zwischen beiden zu sehen. Die Partikeln werden - wie bei den unbestrahlten BE - eng von der Matrix umschlossen. Zum Vergleich sind in den Abb. 45 bis 50 keramografische Schliffe von partikelhaltigen Proben des unbestrahlten BE 449 dargestellt. Außer den üblichen Bestrahlungseffekten, wie Zunahme der Porosität im Kern und leichte Verdichtung der Pufferschicht, konnten an den Partikeln der bestrahlten BE keine bestrahlungsbedingten Veränderungen beobachtet werden.

3.1.8 Untersuchungen nach Zerlegung eines BE

Bei der ÖSGAE Seibersdorf /48/ wurde am BE 5 eine elektrolytische Durchbohrung vorgenommen, wobei aus den einzelnen Bohrproben die Partikelverteilung sowie die Verteilung der Spaltprodukte und des Urans außerhalb intakter Partikel ermittelt werden konnte (vgl. 3.2.1).

Nach integraler Zerlegung der Restkugel wurde an bei der Zerlegung gewonnenen Partikeln der OAF gemessen.

3.1.8.1 Partikelverteilung

Die elektrolytische Bohrung wurde in insgesamt 28 Schritten ausgeführt, von denen die Fraktionen 1 bis 4 und 25 bis 28 in der brennstofffreien, die Fraktionen 5 bis 24 in der Brennstoff-Zone lagen.

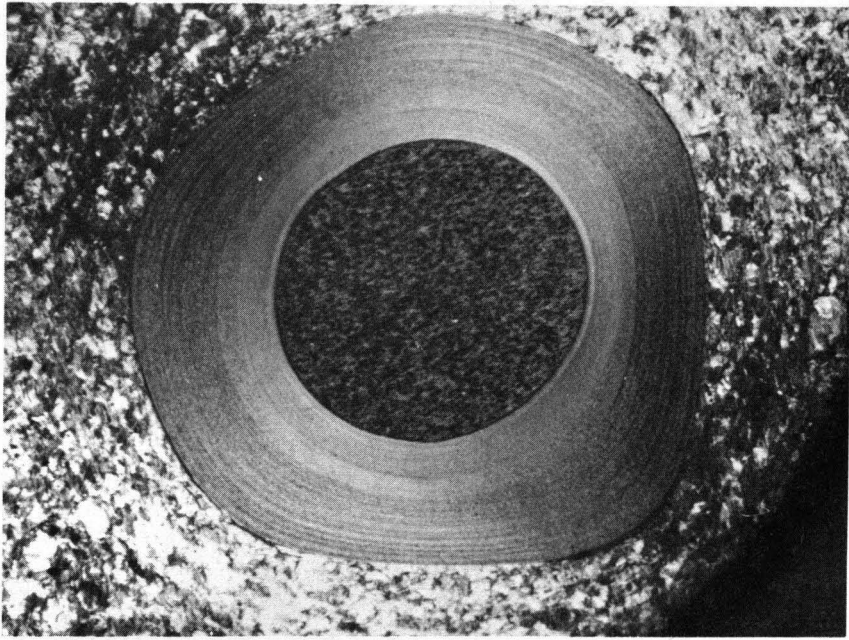


ABB.: 32

BE NR. 9 100 x 5364

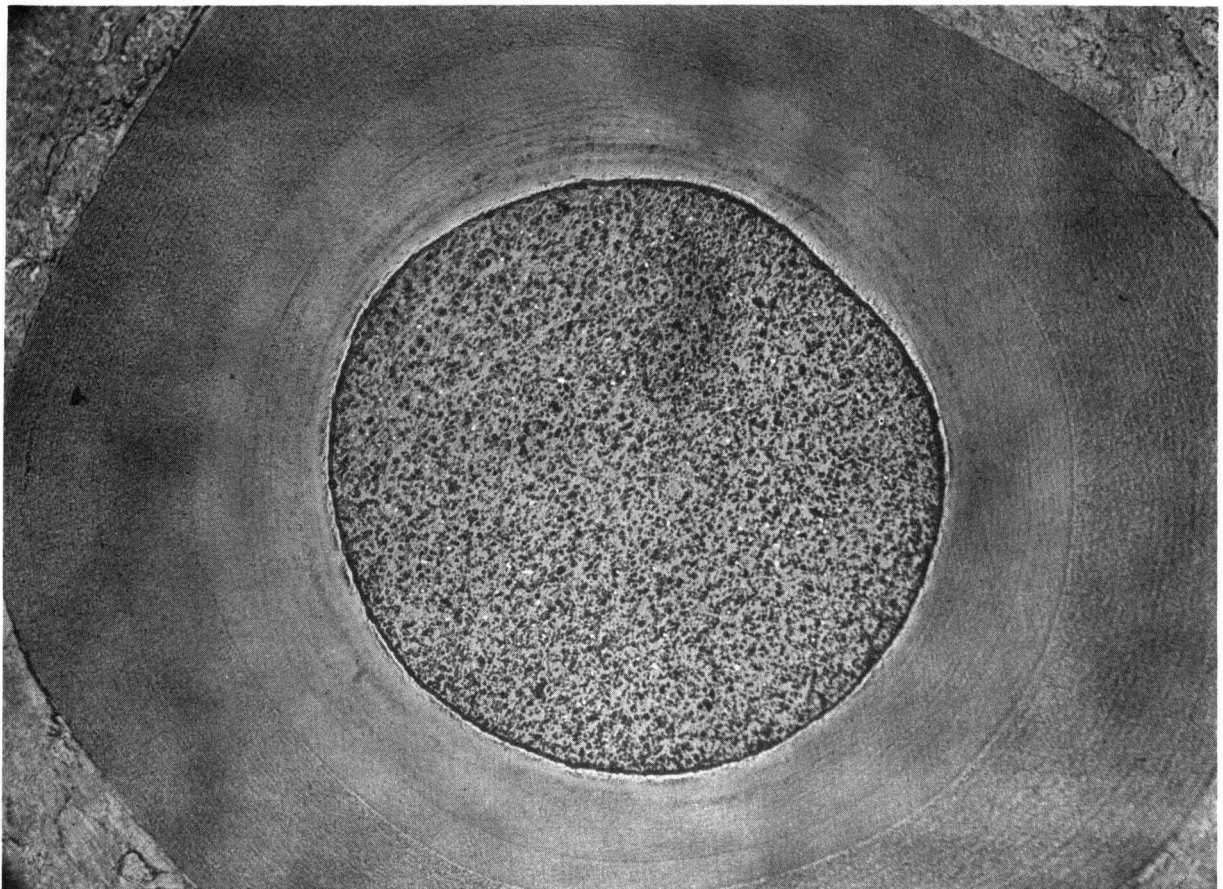


ABB.: 33

BE NR. 9 200 x 5366

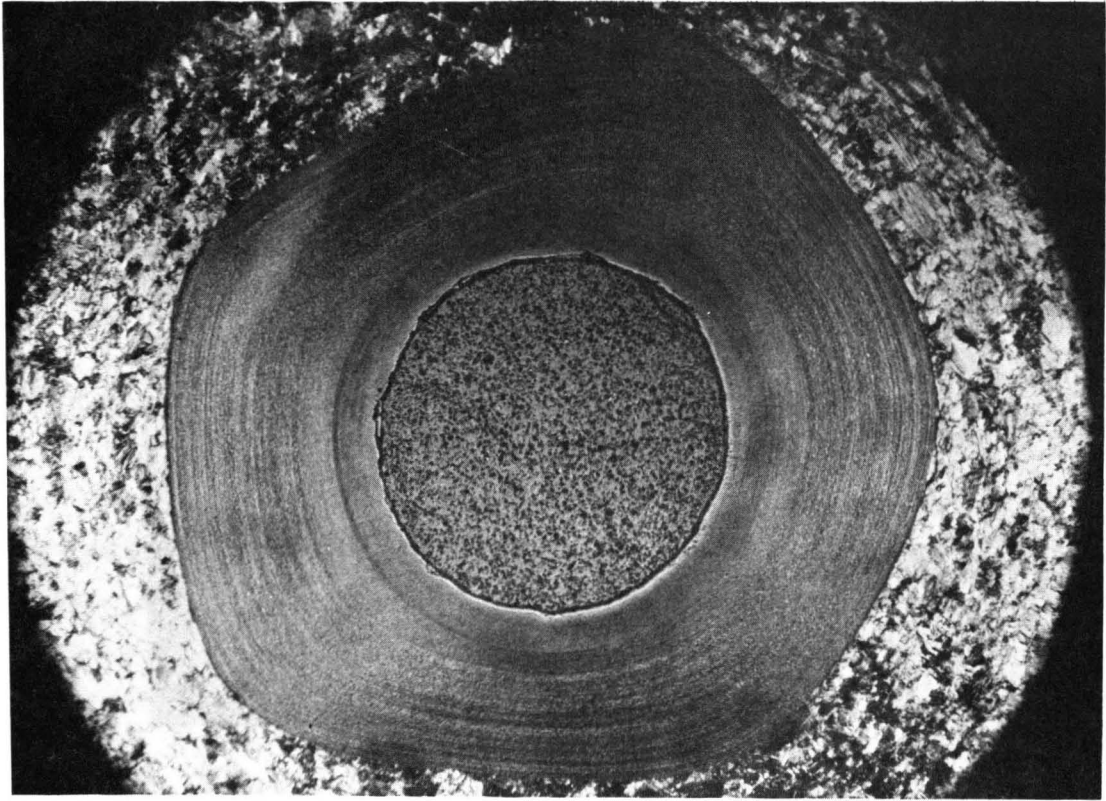


ABB.: 34

BE NR. 9 150 x 5368

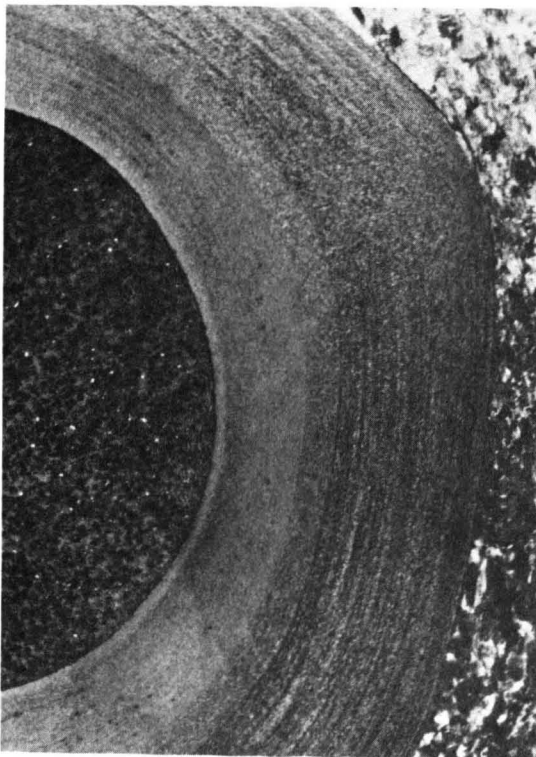


ABB.: 35

BE NR. 9 200 x 5363

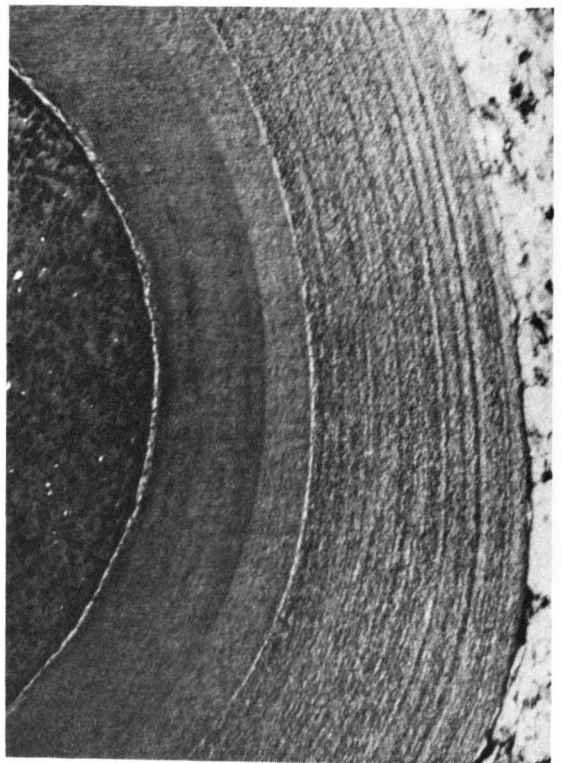


ABB.: 36

BE NR. 9 300 x 5367

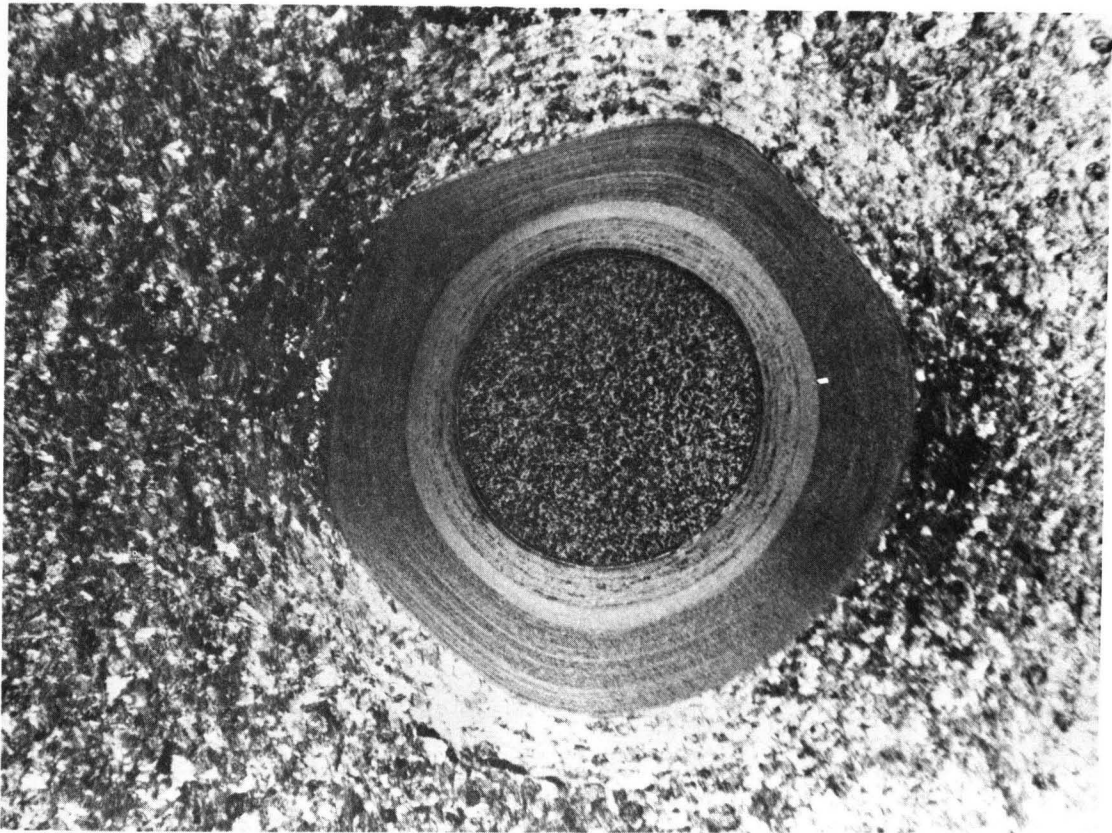


ABB.: 37

BE NR. 9 100 x 5370

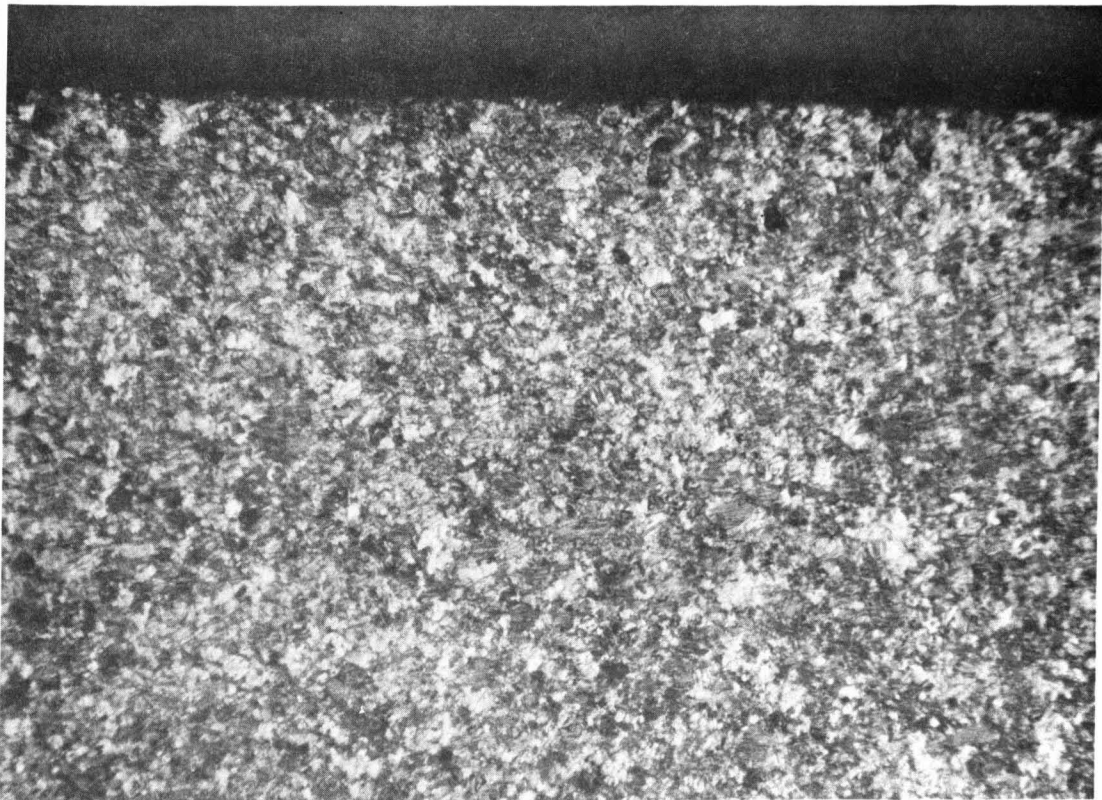


ABB.: 38

BE NR. 9 100 x 5369

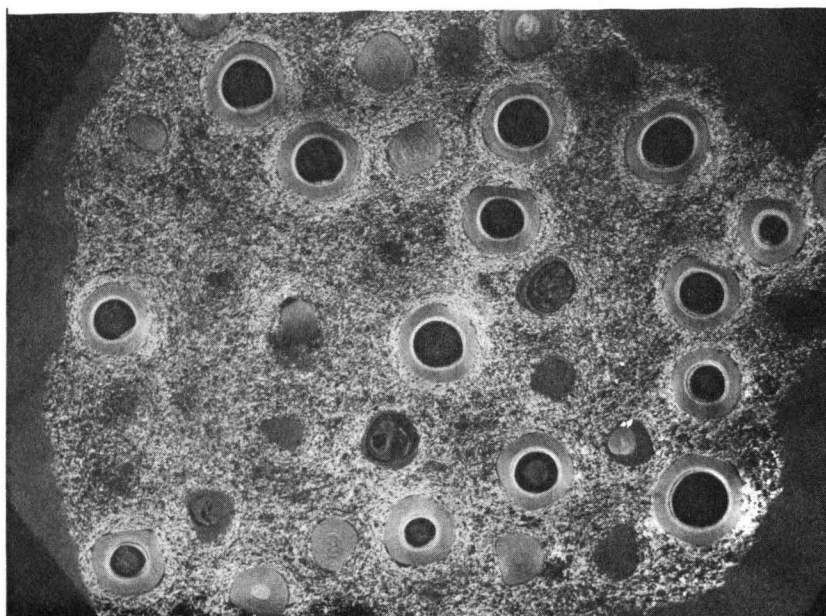


ABB.: 39

BE NR. 14 10 x 5374

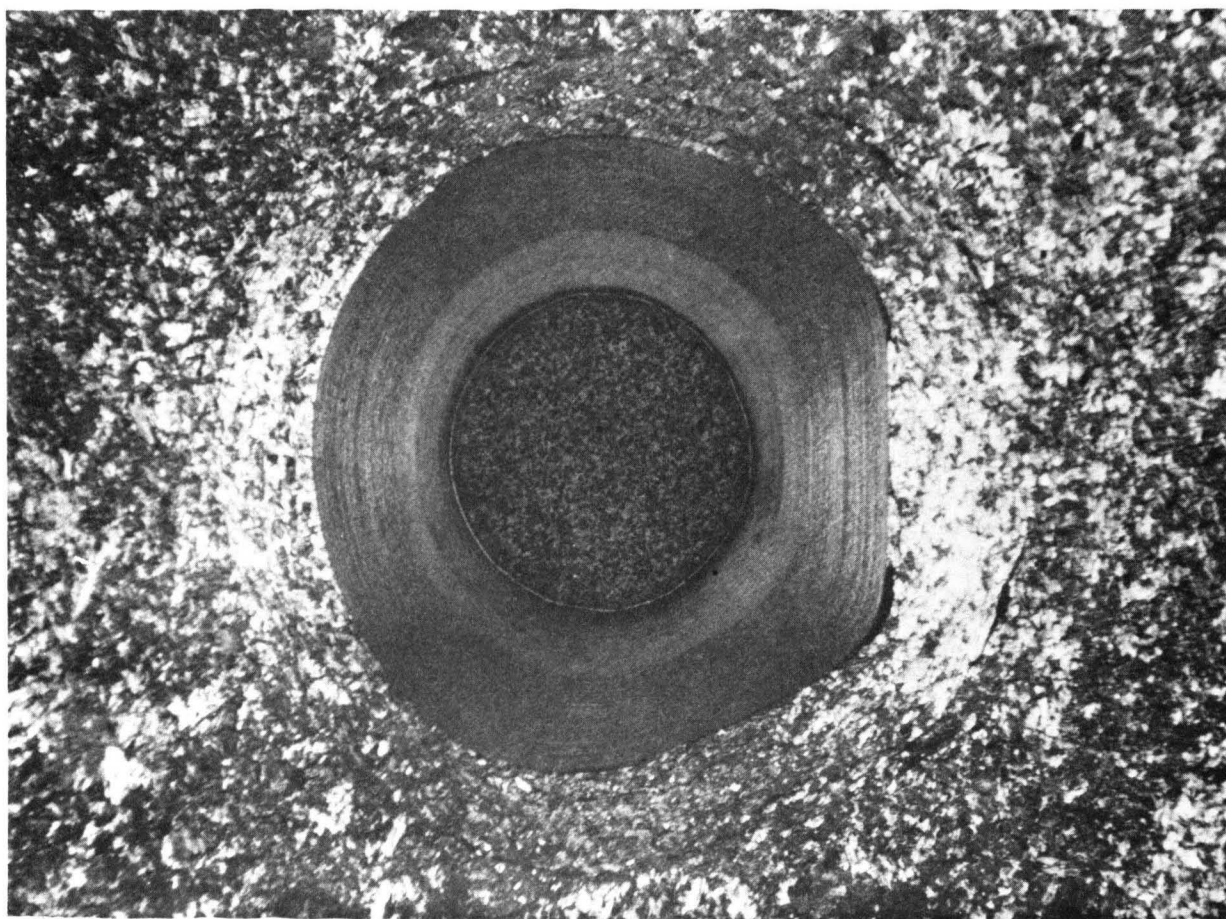


ABB.: 40

BE NR. 14 100 x 5372

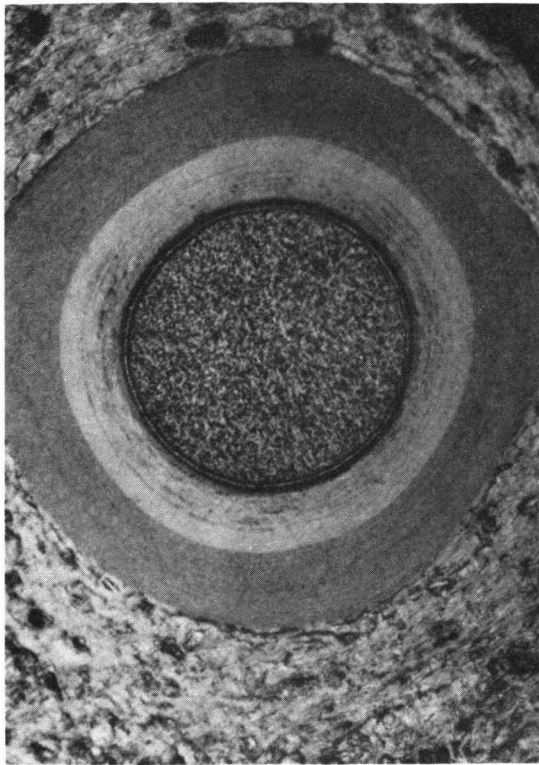


ABB.: 41
BE NR. 19 100 x 5664

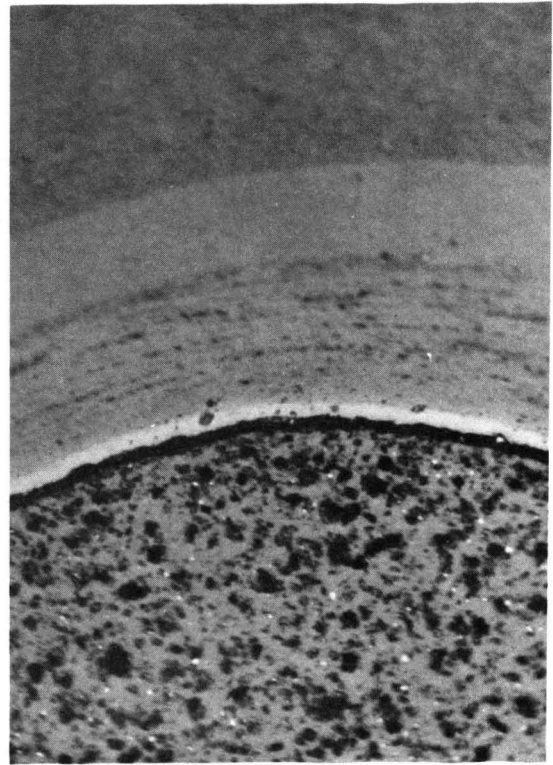


ABB.: 42
BE NR. 19 500 x 5663

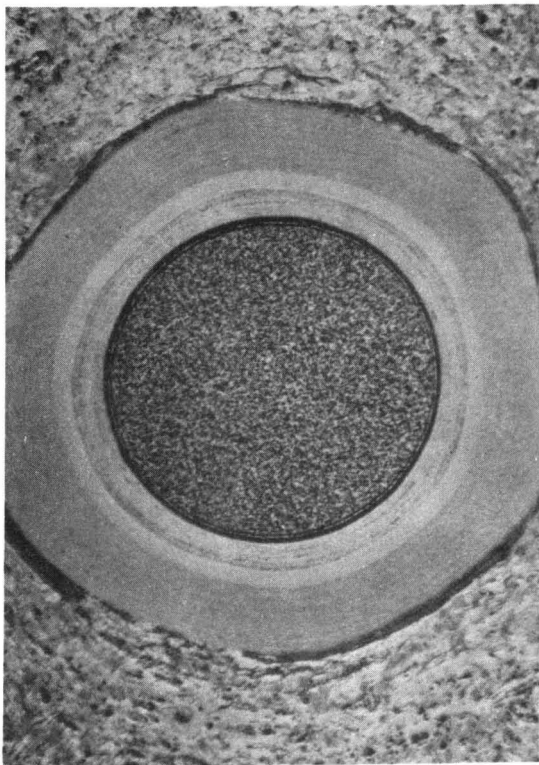


ABB.: 43
BE NR. 23 100 x 5651

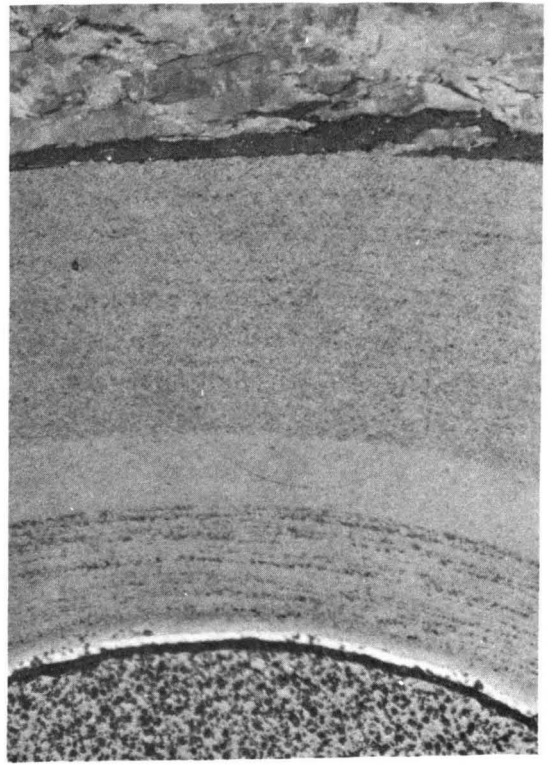


ABB.: 44
BE NR. 23 500 x 5652

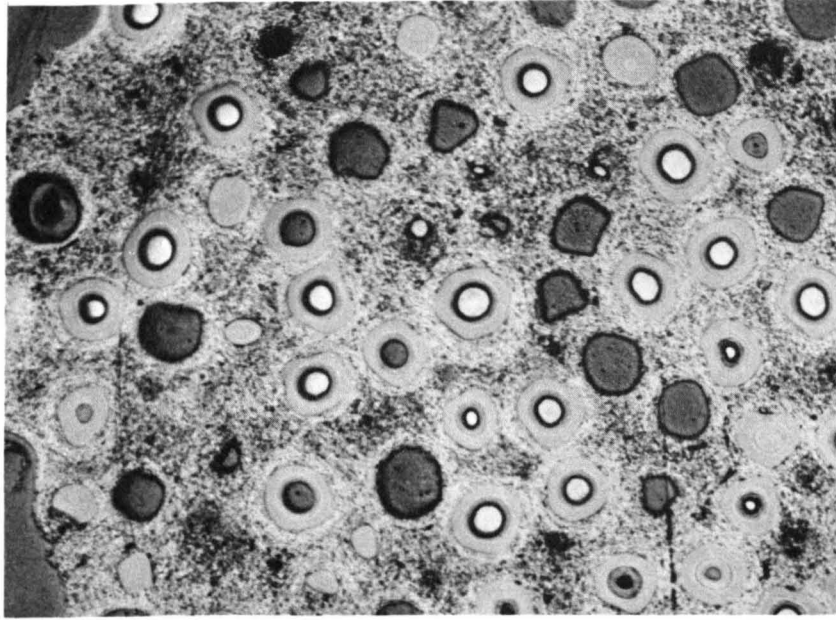


ABB.: 45

UNBESTRAHLTES BE NR. 449 10 x 14147

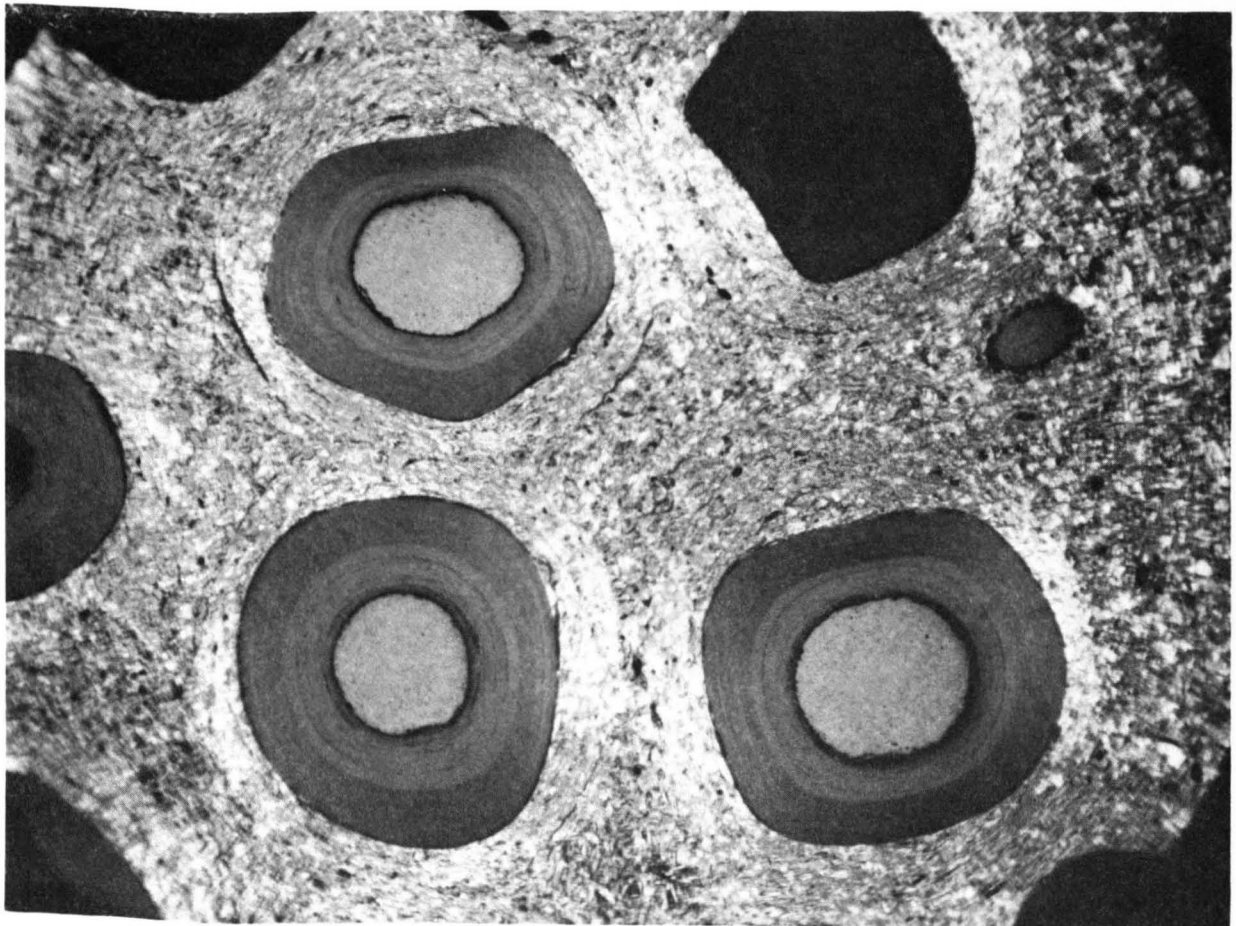


ABB.: 46

UNBESTRAHLTES BE NR. 449 50 x 14150

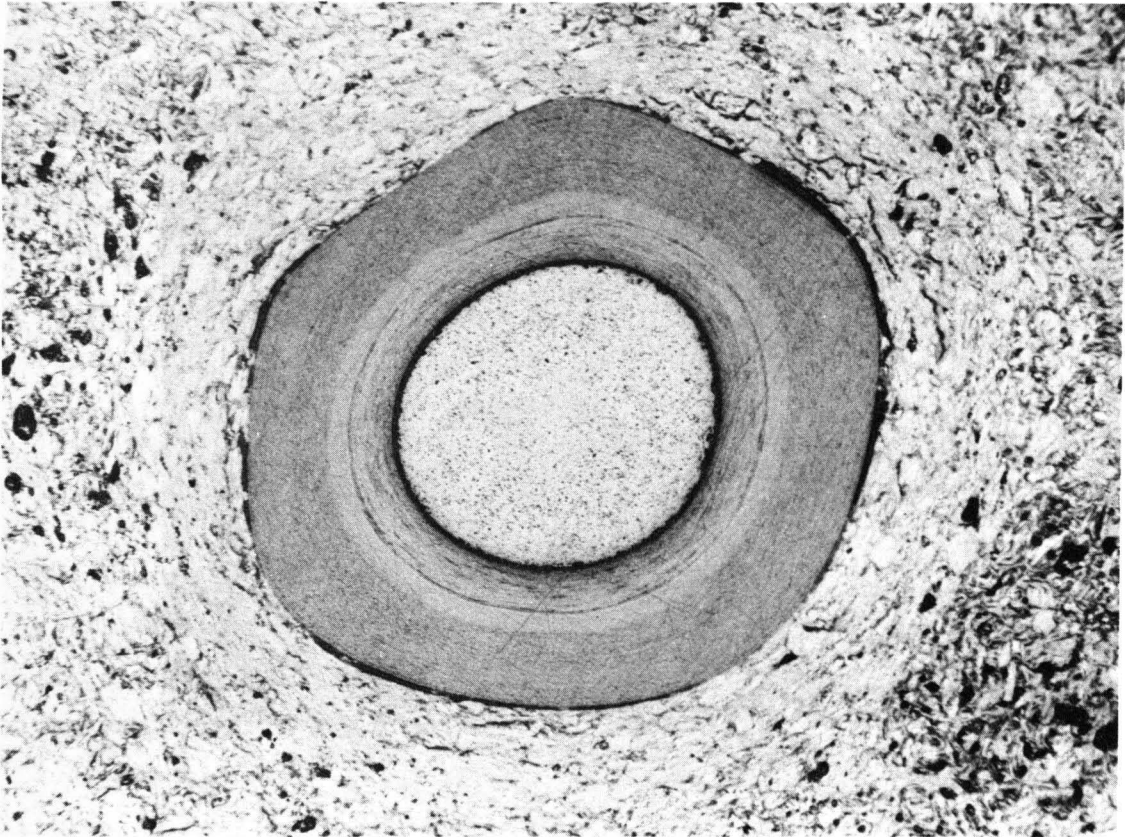


ABB.: 47

UNBESTRAHLTES BE NR. 449 100 x 14148

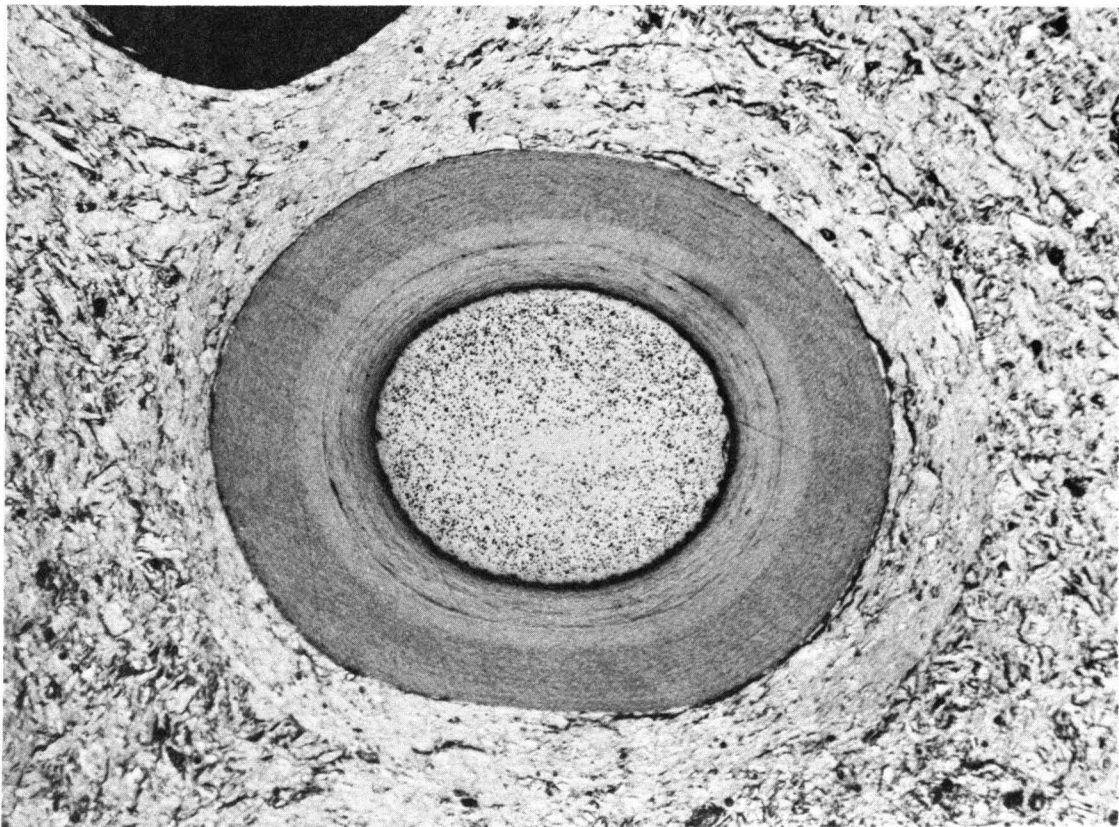


ABB.: 48

UNBESTRAHLTES BE NR. 449 100 x 14149

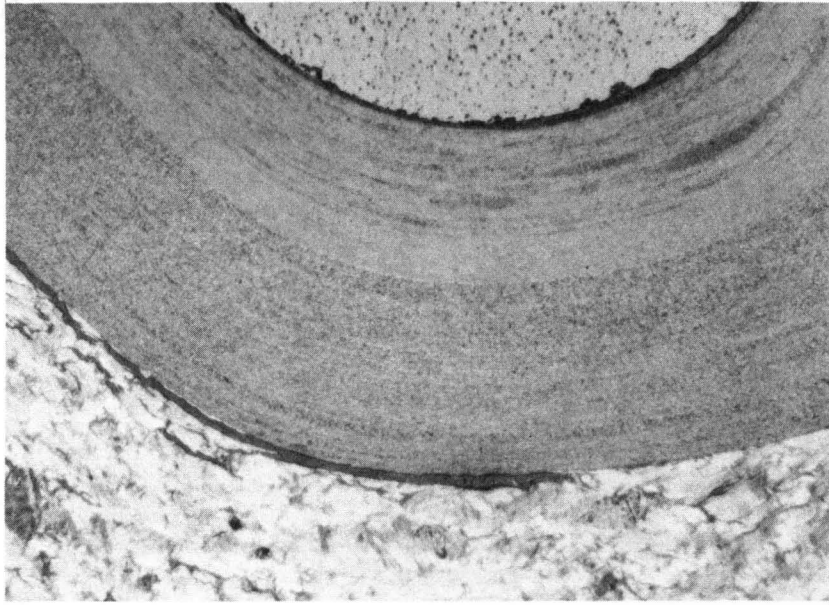


ABB.: 49

UNBESTRAHLTES BE NR. 449 200 x 14152

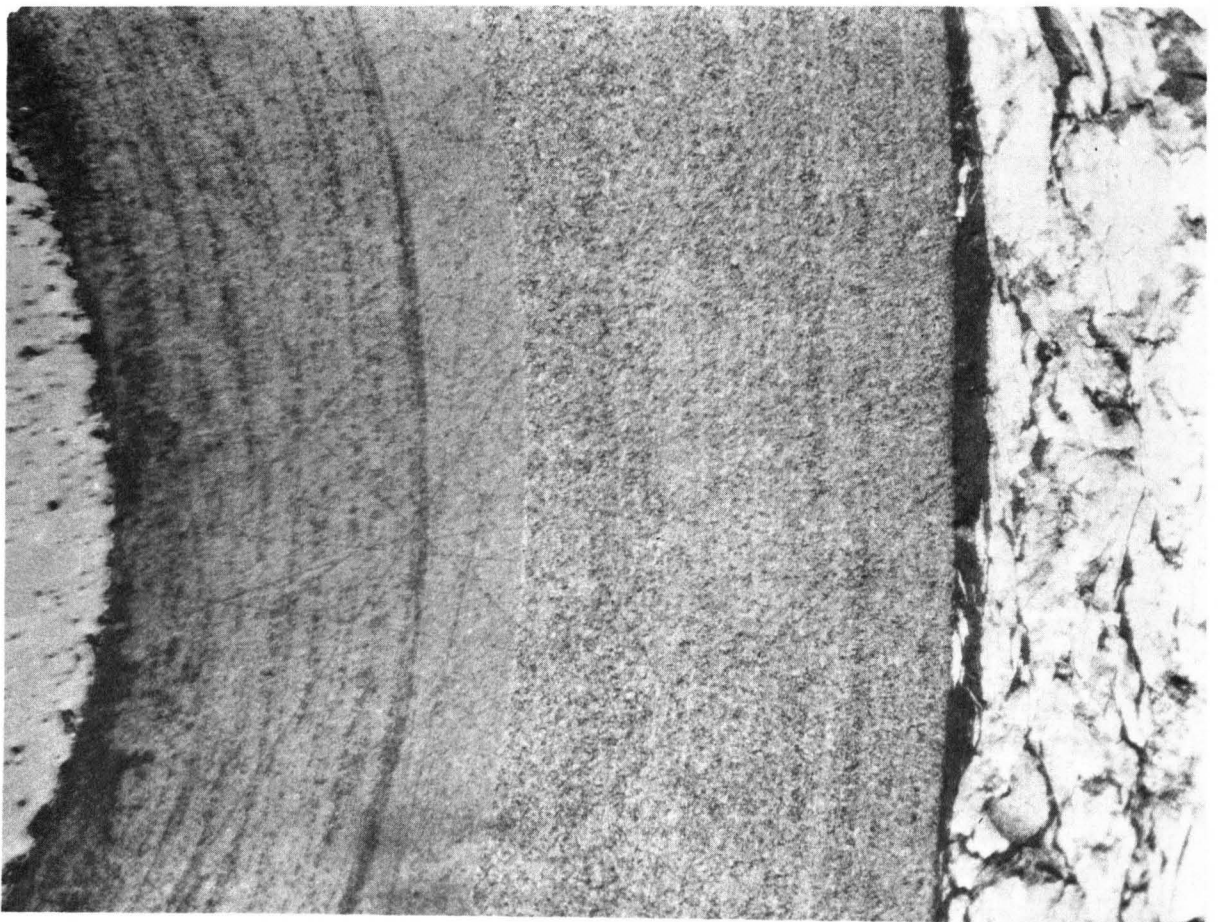


ABB.: 50

UNBESTRAHLTES BE NR. 449 500 x 14153

Das Profil der Partikelverteilung zeigt Abb. 51. Dabei ist die sehr inhomogene Verteilung der Partikel erkennbar (wie bereits bei 2.2 erwähnt).

Bei dieser Profilbohrung wurden etwa 4800 Partikeln freigelegt, von denen eine repräsentative Anzahl stereomikroskopisch untersucht wurden. Dabei wurden an einigen Partikeln Risse im Coating festgestellt (vgl. 3.2.4.1).

3.1.8.2 Verteilung des freien Urans

Die Uranmengen, die nach der elektrolytischen Zerlegung im Matrixmaterial und im Elektrolyten vorgefunden wurden, wurden mit der Uranmenge, die bei der thermischen Chlorierung intakter Teilchen bestimmt werden konnten, zur gesamten "freien" Uranmenge zusammengefaßt. Eine stereoskopische Kontrolle der Partikel ergab keine Schädigung von vorher intakten Partikeln infolge der Chlorierung.

Die Bruchteile des freien Urans sind für die Fraktionen in Matrix und Elektrolyt in Abb. 52 als Treppenprofil dargestellt. Die $U_{\text{frei}}/U_{\text{total}}$ Werte der Teilchen sind in Balkendarstellung ebenfalls eingezeichnet, wobei die aufgesetzten schraffierten Teile dem Partikelanteil mit Beschichtungsbruch entsprechen.

Diese Bruchteile freien Urans zeigen zwei Maxima in den Zonen hoher Beladungsdichte.

3.1.8.3 Optischer Anisotropiefaktor

Die Anisotropiefaktoren der inneren und äußeren Methan-PyC-Schicht wurden nach einer optischen Methode an Partikeln aus Rand und Zentrum des BE 5 bestimmt. Die OAF-Werte wurden jeweils an drei verschiedenen dicken Schichtstellen sowohl für die zweite als auch für die dritte Schicht bestimmt. Tab. 17 faßt die gemessenen Anisotropie-Mittelwerte als Funktion der Schichtdicke in Rand- und Zentrumposition aus der BE-Bohrung zusammen.

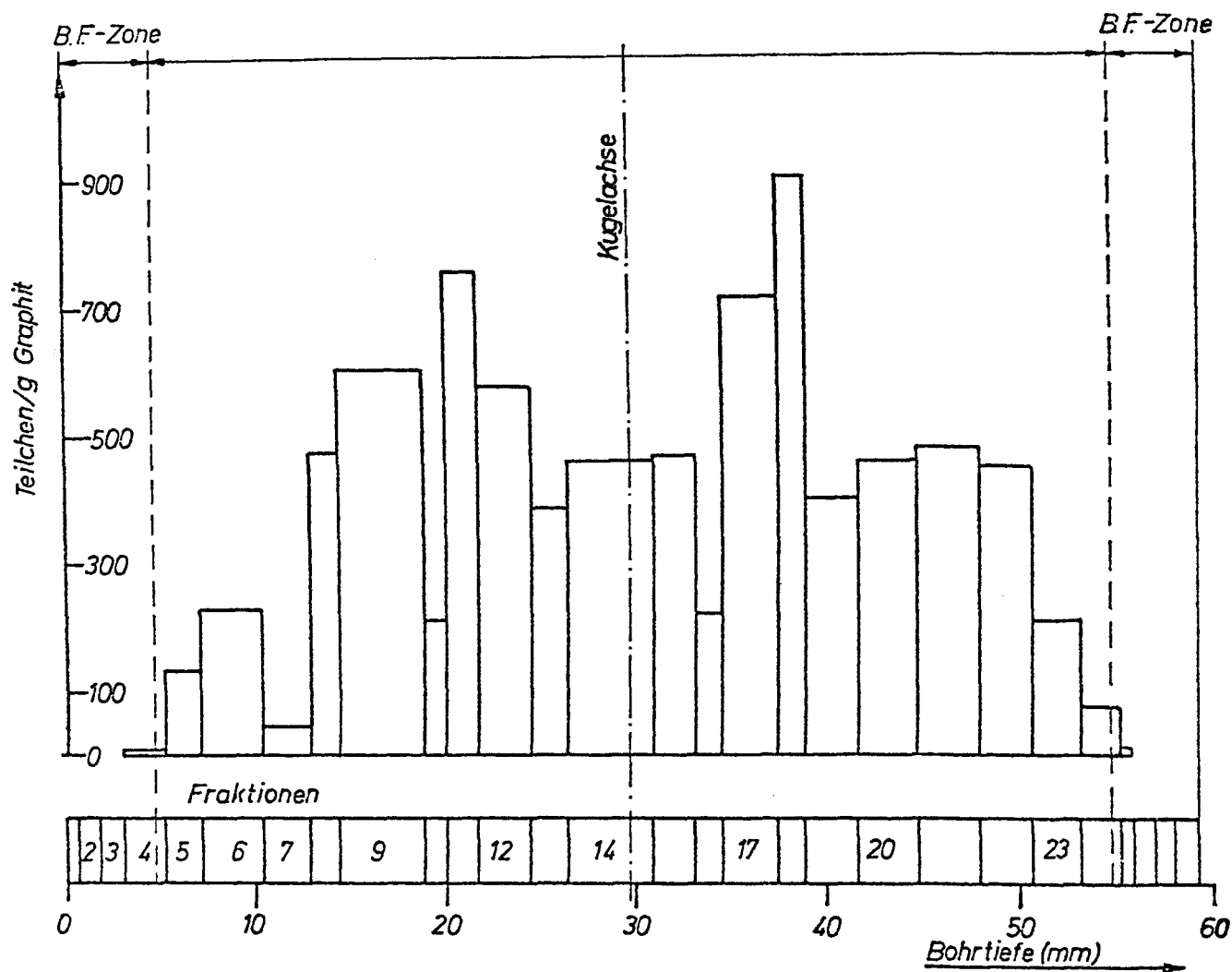


ABB. 51: PROFIL DER TEILCHENVERTEILUNG ENTLANG DER BOHRUNG VON BE 5

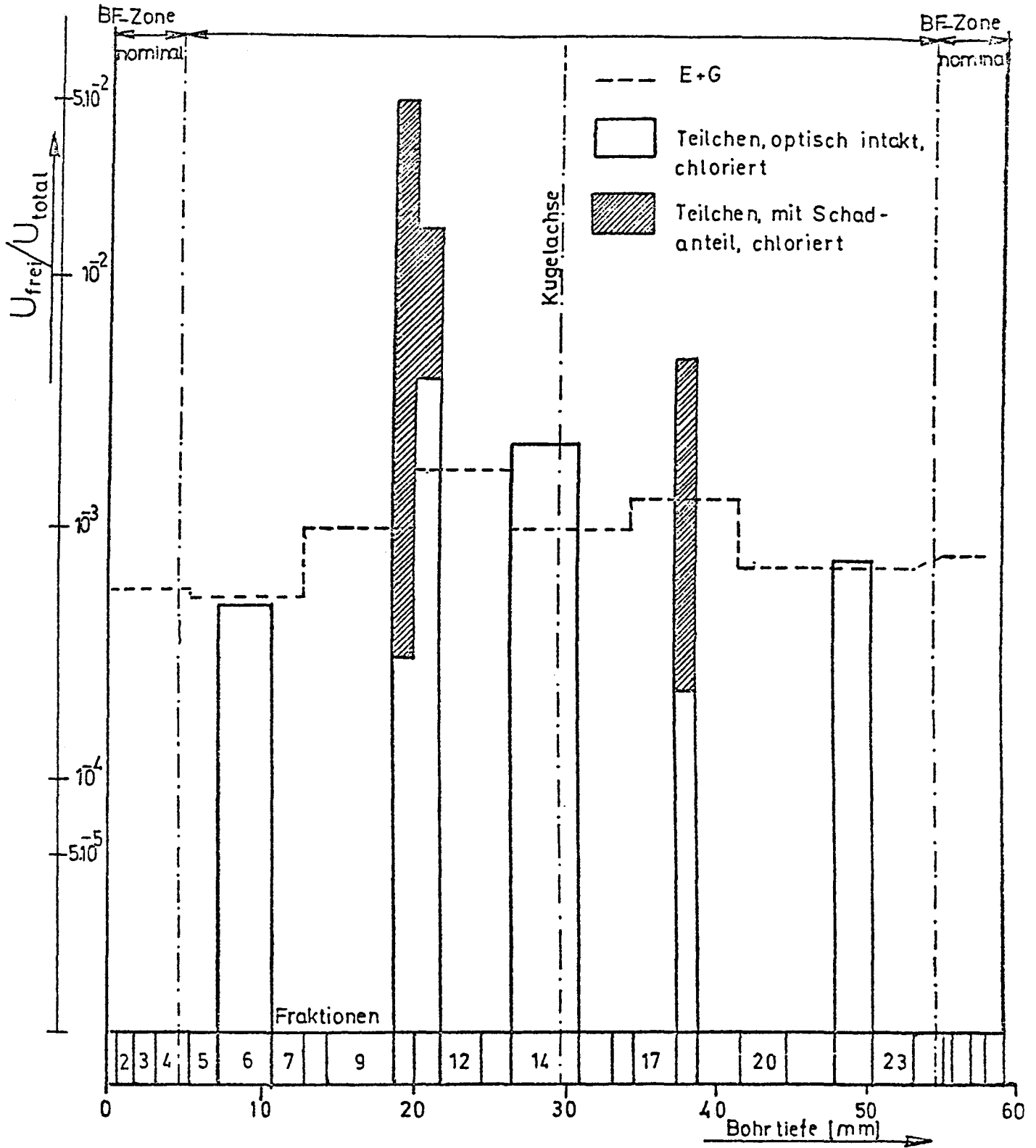


ABB. 52: FREIES URAN IN FRAKTIONEN DER ELEKTROLYTISCHEN PROFILBOHRUNG AM BE 5

Tabelle 17

Anisotropiewerte BE 5

Probe	2. Schicht (innere PyC)		3. Schicht (äußere PyC)	
	Schichtdicke (μm)	BAF opt.	Schichtdicke (μm)	BAF opt.
Rand- position	17	1,41	84	1,51
	25	1,24	101	1,29
	33	1,20	119	1,23
Kugel- zentrum	21	1,28	99	1,34
	23	1,24	109	1,24
	26	1,21	116	1,22

3.2 Untersuchung zum Verhalten fester Spaltprodukte

Die Spaltproduktuntersuchungen am Experiment DR-K3 sollten das Freisetzungsverhalten fester Spaltprodukte in einem THTR-Langzeittest klären. Um die Gesamtmenge der aus den Brennelementen freigesetzten Spaltprodukte zu erfassen, wurde nicht direkt mit Reaktorkühlgas gespült, sondern ein gesonderter Spülgaskreislauf benutzt, der eine integrale Erfassung gasförmiger Spaltprodukte erlaubt. Die einzelnen BE waren durch die Grafitkalotten voneinander getrennt.

An den BE 5, 10, 15 und 20 wurde die Gesamtmenge der in den BE vorhandenen Spaltprodukte, deren Verteilung in den brennstofffreien Zonen dieser BE, den dazugehörigen Grafitkalotten und den entsprechenden Hüllrohrabschnitten ermittelt /25/.

3.2.1 Probennahme

Brennstofffreie Zone:

Zur Bestimmung der Konzentrationsverteilung von Spaltprodukten wurden aus den 5 mm starken brennstofffreien Zonen der vier BE Drehproben entnommen (Abb. 53). Dabei wurde über einen Kugelumfang eine Rille von 4 mm Tiefe und 6 mm Breite in Schritten von je 0,4 mm in den Schalen grafit gedreht und der anfallende Grafitstaub gesammelt und analysiert. Die Drehebene wurde dabei soweit wie möglich 45° zur Äquatorebene des BE (bezogen auf ihre Lage im Reaktor) gelegt. Zur Kontrolle der Drehproben wurden zusätzlich Bohrproben entnommen. Dabei wurden dicht neben der eingedrehten Rille mittels eines Kronenbohrers 5 mm starke Stifte von etwa 4 mm Länge entnommen und jeweils in vier Scheibchen von 1 mm Stärke zersägt.

Brennstoffzone:

Von der ÖSGAE Seibersdorf wurde eine elektrolytische Bohrung durch das BE 5 durchgeführt /48/. Dabei konnten in Abhängigkeit vom Radius Fraktionen von Partikeln und entsprechendem Matrixmaterial getrennt werden. Für die einzelnen Fraktionen des Matrixmaterials wurden Analysen von Sr 90, Rh 106, Cs 134, Cs 137 und Ce 144 durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tab. 18 bzw. Abb. 63 dargestellt. Anschließend wurde das gesamte BE elektrolytisch zerlegt und ebenfalls bezüglich freigesetzter Spaltprodukte untersucht. Die Ergebnisse sind in Tab. 19 zusammengestellt.

Brennstoffzone:

Von der ÖSGAE Seibersdorf wurde eine elektrolytische Bohrung durch das BE 5 durchgeführt /48/. Dabei konnten in Abhängigkeit von Radius Fraktionen von Partikeln und entsprechendem Matrixmaterial getrennt werden. Für die einzelnen Fraktionen des Matrixmaterials wurden Analysen von Sr 90, Rh 106, Cs 134, Cs 137 und Ce 144 durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tab. 18 aufgelistet. Anschließend wurde das gesamte BE elektrolytisch zerlegt und ebenfalls bezüglich freigesetzter Spaltprodukte untersucht. Die Ergebnisse sind in Tab. 19 zusammengestellt.

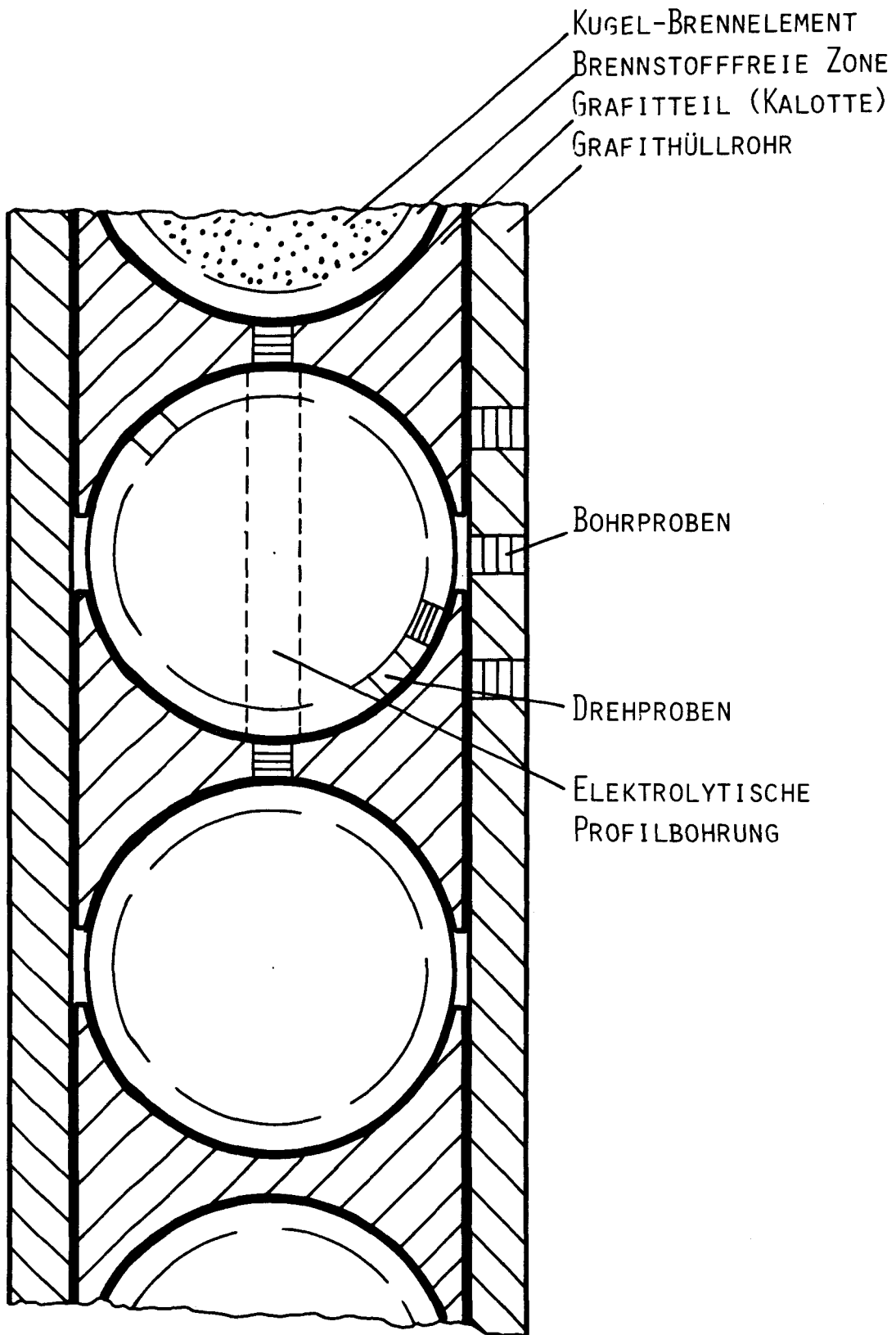


ABB. 53: PROBENENTNAHMEPLAN FÜR MESSUNGEN FESTER SPALTPRODUKTE

Tabelle 18

Spaltproduktfreisetzungprofil in der Matrix des BE 5

durch elektrolytische Bohrung

(Freigesetzter Bruchteil des Inventars pro Gramm Grafit)

Frakt. Nr.	BE-Durchmesser (mm)	Cs 137 (10 ⁻⁶)	Cs 134 (10 ⁻⁶)	Ce 144 (10 ⁻⁶)	Ru 106 * (10 ⁻⁶)	Sr 90 (10 ⁻⁶)
1		8,6	12,5	0,73	0,23	0,074
2		7,4	10,7	-	0,24	0,119
3		8,2	11,1	-	0,22	0,573
4		9,7	13,0	1,9	0,43	0,330
5		14,9	19,9	6,8	1,30	-
6	10	22,7	26,5	12,1	2,5	5,3
7		39,1	46,7	15,9	3,4	-
8		81,0	89,9	22,8	5,1	9,0
9		51,5	60,0	18,3	3,5	-
10	20	200,5**	226,6**	40,1**	-	7,8
11		169,2	191,2	32,6	4,4	-
12		154,0	173,5	67,7	3,8	16,3
13		153,7	166,0	75,2	3,9	-
14	30	60,6	68,5	21,4	3,9	5,5
15		63,1	67,7	26,9	3,6	-
16		69,5	81,3	24,5	3,6	5,3
17		80,7	90,8	24,1	3,7	-
18		495,2	539,0	39,3	11,2	8,2
19	40	100,2	109,1	21,7	5,6	-
20		45,0	47,6	21,4	5,5	4,5
21		52,3	54,6	26,8	4,6	-
22	50	46,7	51,1	25,6	4,5	5,4
23		62,4	71,4	16,1	2,6	-
24		68,3	81,2	5,5	2,0	2,6
25		29,8	35,5	2,8	1,0	-
26		37,3	44,6	4,4	0,6	1,6
27		38,9	44,9	9,8	-	4,7
28	60	12,7	14,9	2,1	0,8	-

gew.MW

1 - 4	8,6	11,9	1,6	0,3	0,19
5 - 24	56,7	64,5	17,2	3,3	4,9

* im Elektrolyten kein Ru 106 meßbar

** abgeschätzter Wert

Tabelle 19

Freisetzungswerte aus integraler elektrolytischer Zerlegung

	Elektrolyt x E - 4	Graphit x E - 4	E + G x E - 4
Cs 137	38,1	2,20	40,3
Cs 134	45,2	2,43	47,6
Ce 144	21,7	1,83	23,6
Ru 106	n.m.	4,78	4,8
Sr 90	2,33	2,46	4,8
Uran	2,22	8,9	10,8

Grafitkalotten:

Um die Konzentrationsverteilung der Spaltprodukte in den Grafitteilen zwischen zwei BE verfolgen zu können, wurden gegenüber dem Kugelpol Bohrproben aus den Grafitteilen entnommen; die 5 mm langen Bohrkerne wurden in fünf Scheibchen zerlegt.

Grafit-Hüllrohr:

Die Brennelemente und die Grafitkalotten steckten in einem Grafit-Hüllrohr (Abb. 1). Zur Ermittlung der Verteilung der Spaltprodukte in diesem Hüllrohr wurden aus diesem in den Bereichen der untersuchten BE an drei übereinanderliegenden Stellen Bohrkerne entnommen und in jeweils vier Scheibchen zerlegt.

Alle Proben wurden gewogen, um eine Berechnung der insgesamt in brennstofffreie Zonen, Grafitkalotten und entsprechende Hüllrohrabschnitte freigesetzten Spaltproduktmenge zu ermöglichen.

3.2.2 Messung

Die gammaspektrometrischen Messungen der verschiedenen Proben wurden mit einem Ge(Li)-Halbleiterdetektor in Verbindung mit einem 4096 Kanal-Impulshöhenanalysator durchgeführt. Die Auswertung der Gammaskpektren erfolgte mittels Computerprogramm. Dabei wurden die Peakflächen der zu ana-

lysierenden Proben und entsprechender Eichpräparate verglichen. Die Bestimmung des Sr 90 erfolgte durch radiochemische Analyse *.

3.2.3 Bestimmung des Inventars

Um ein relatives Maß für die Spaltproduktfreisetzung zu haben, wird die freigesetzte Menge auf die Gesamtmenge der im BE vorhandenen Spaltprodukte bezogen. Die Inventarwerte sind in Tab. 20 zusammengestellt.

Tabelle 20

Inventarwerte

(Ag 110m wurde in Winfrith gerechnet,

Cs 134 und Cs 137 in Jülich gammaspektrometrisch gemessen)

BE	Ag 110m (s^{-1})	Cs 134 (s^{-1})	Cs 137 (s^{-1})
5	2,8 E +8	1,5 E +11	1,5 E +11
10	5,2 E +8	2,2 E +11	1,75 E +11
15	5,7 E +8	2,9 E +11	2,0 E +11
20	4,9 E +8	2,1 E +11	1,9 E +11

3.2.4 Ergebnisse

3.2.4.1 Konzentrationsprofile und Freisetzung von Cs 134 und Cs 137

In Abb. 54 bis 62 sind die Konzentrationsverteilungen von Cs 134 und Cs 137 in den brennstofffreien Zonen, den Grafitkalotten und im Hüllrohr dargestellt. Dabei wurde die Probenaktivität auf 1 g Probenmenge bezogen und über der Probenentnahmeposition aufgetragen. Die Konzentrationsverteilung in den brennstofffreien Zonen der BE 5, 10 und 15 zeigen einen flachen Verlauf. Beim BE 20 hingegen ist ein Anstieg zur Oberfläche hin zu beobachten.

* Die Sr 90-Bestimmungen wurden im ZAC der KFA durchgeführt

SPEZIFISCHE AKTIVITÄT
ZERF. $s^{-1} g^{-1}$

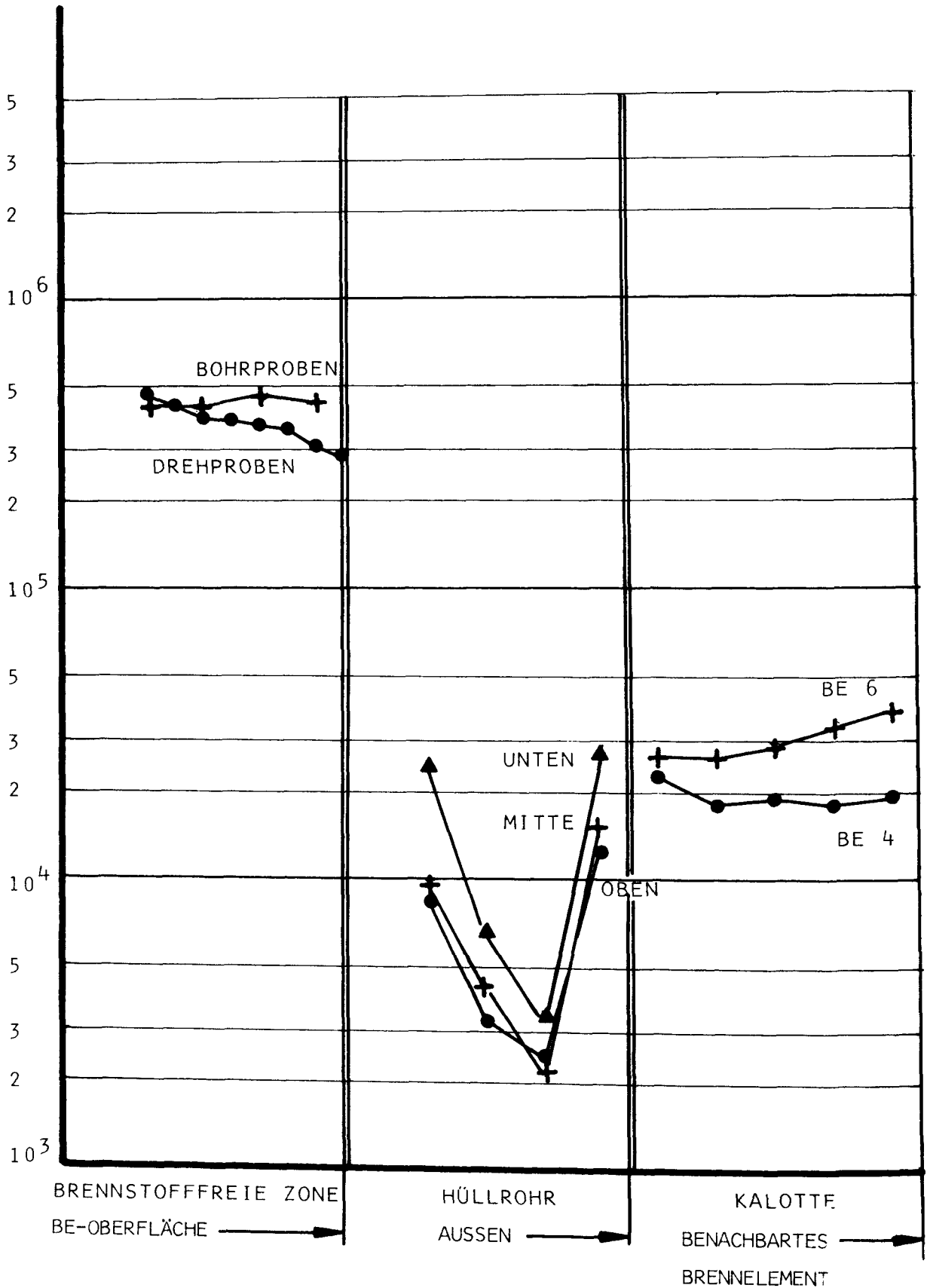


ABB.54 KONZENTRATIONSVERLAUF VON $Cs-134$ IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE,
IN DEN KALOTTEN UND IM HÜLLROHR
EXPERIMENT DR-K3 BRENNELEMENT 5

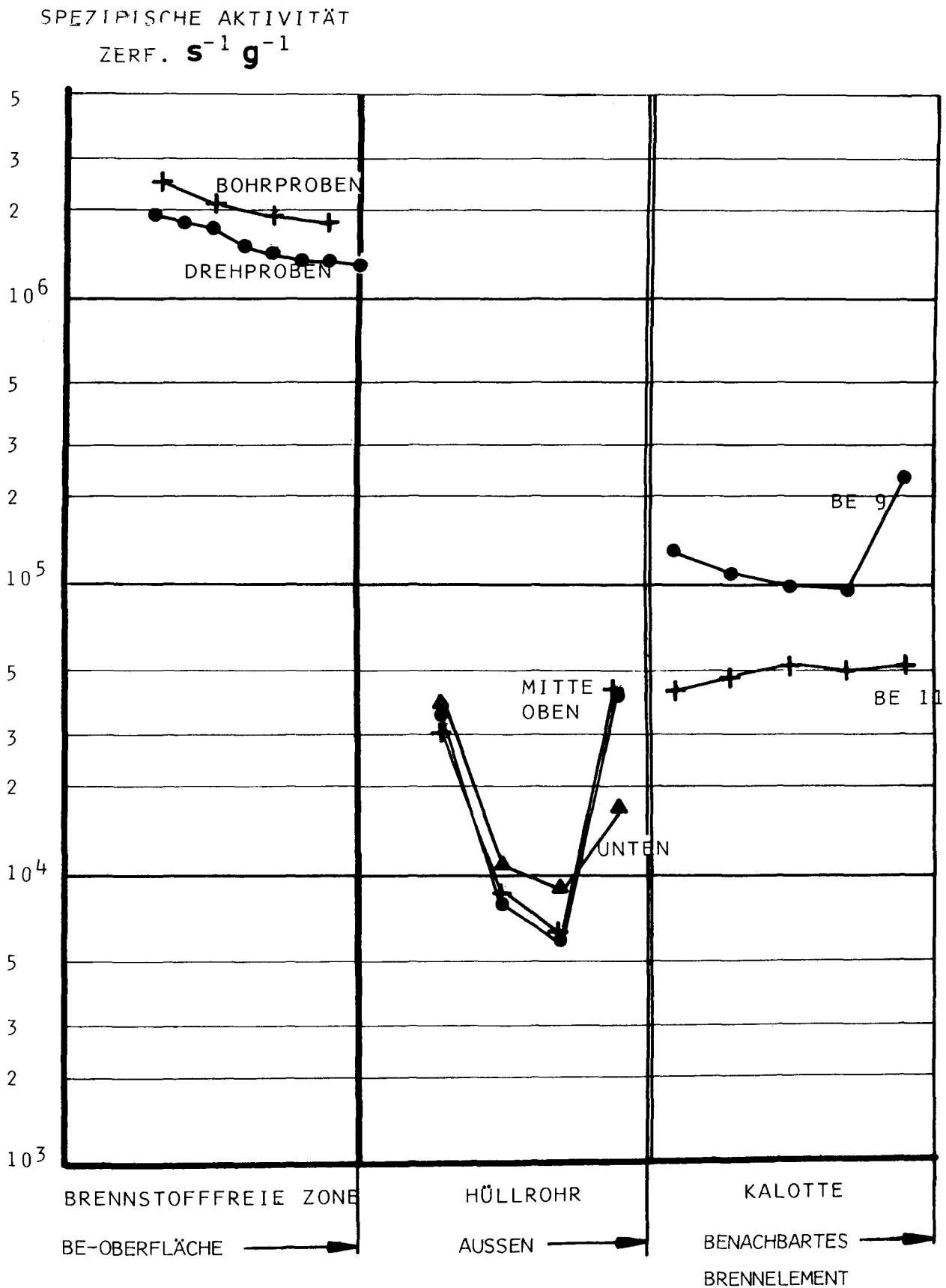


ABB. 55 KONZENTRATIONSVORLAUF VON ^{134}Cs IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE, IN DEN KALOTTEN UND IM HÜLLROHR
EXPERIMENT DR-K3 BRENNELEMENT 10

SPZIFISCHE AKTIVITÄT
ZURF. $s^{-1} g^{-1}$

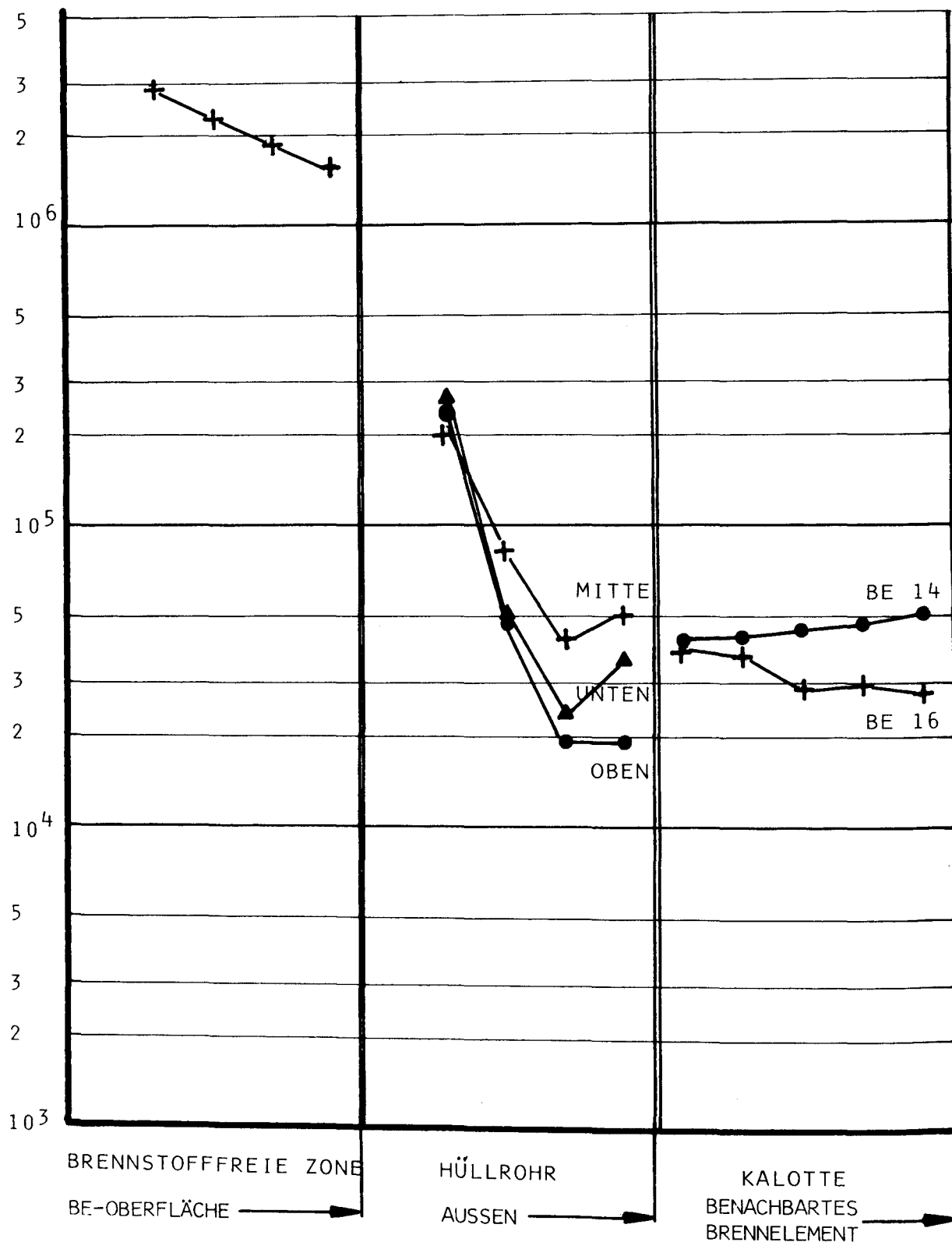


ABB 56 KONZENTRATIONSVORLAUF VON Cs^{134} IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE, IN DEN KALOTTEN UND IM HÜLLROHR

EXPERIMENT DR-K3 BRENNNELEMENT 15

SPEZIFISCHE AKTIVITÄT
ZERF. $s^{-1} g^{-1}$

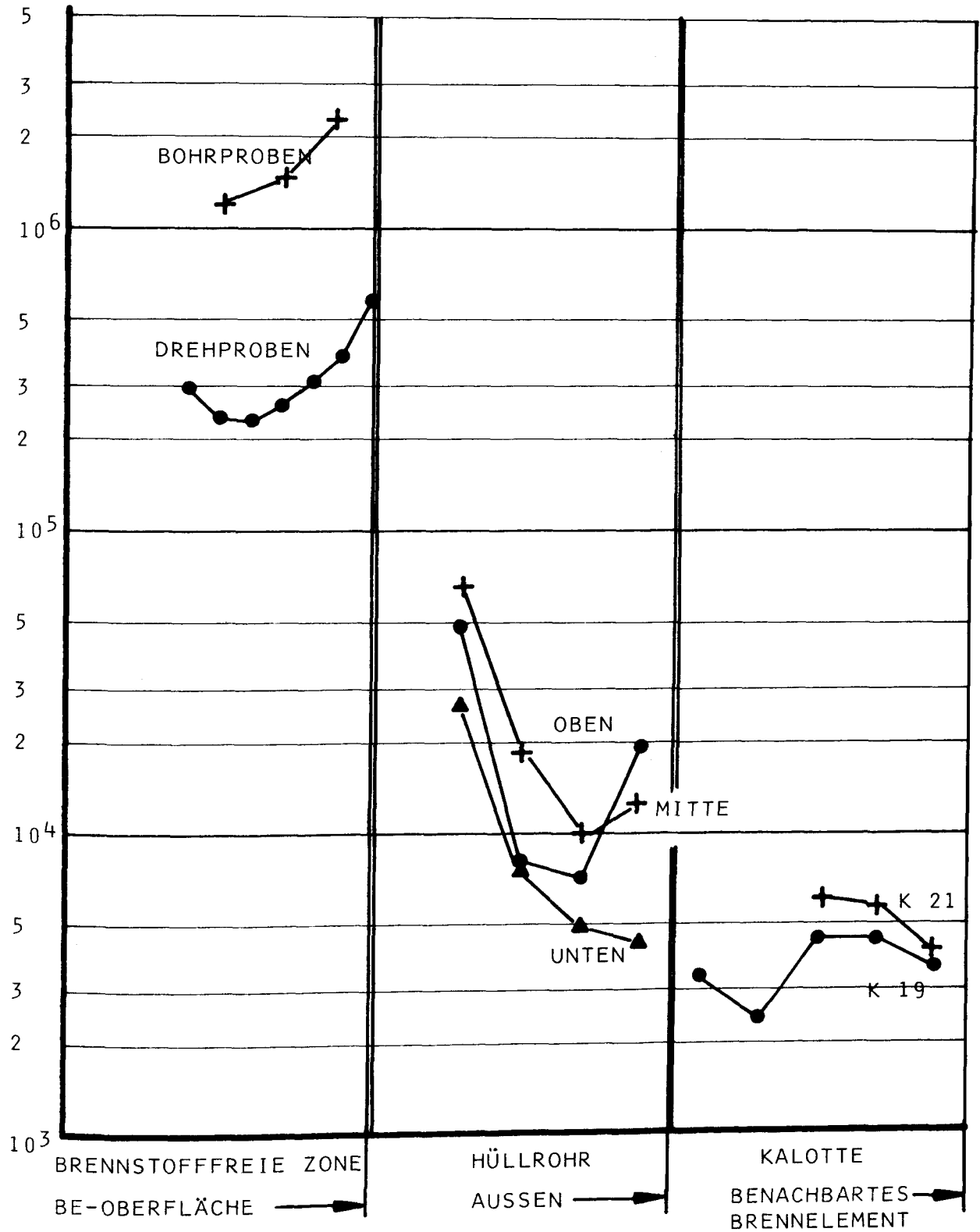


ABB 57 KONZENTRATIONSVERLAUF VON **Cs** 134 IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE,
IN DEN KALOTTEN UND IM HÜLLROHR
EXPERIMENT DR-K3 BRENNNELEMENT 20

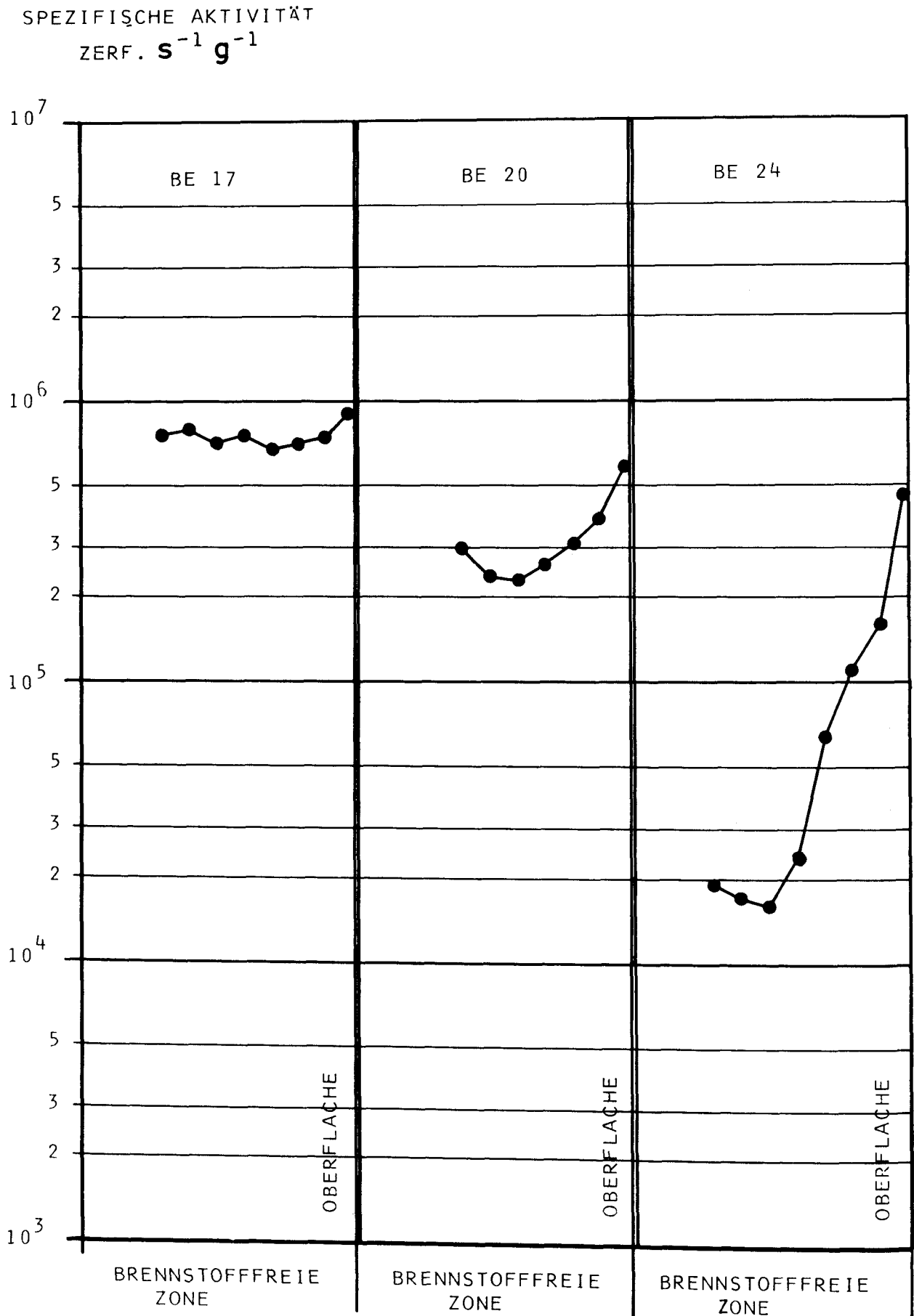


ABB. 58 VERLAUF DER Cs 134 KONZENTRATION IN DEN BRENNSTOFFFREIEN ZONEN DER BRENNELEMENTE 17, 20 UND 24

EZIFISCHE AKTIVITÄT

ZERF. $\cdot s^{-1} \cdot g^{-1}$

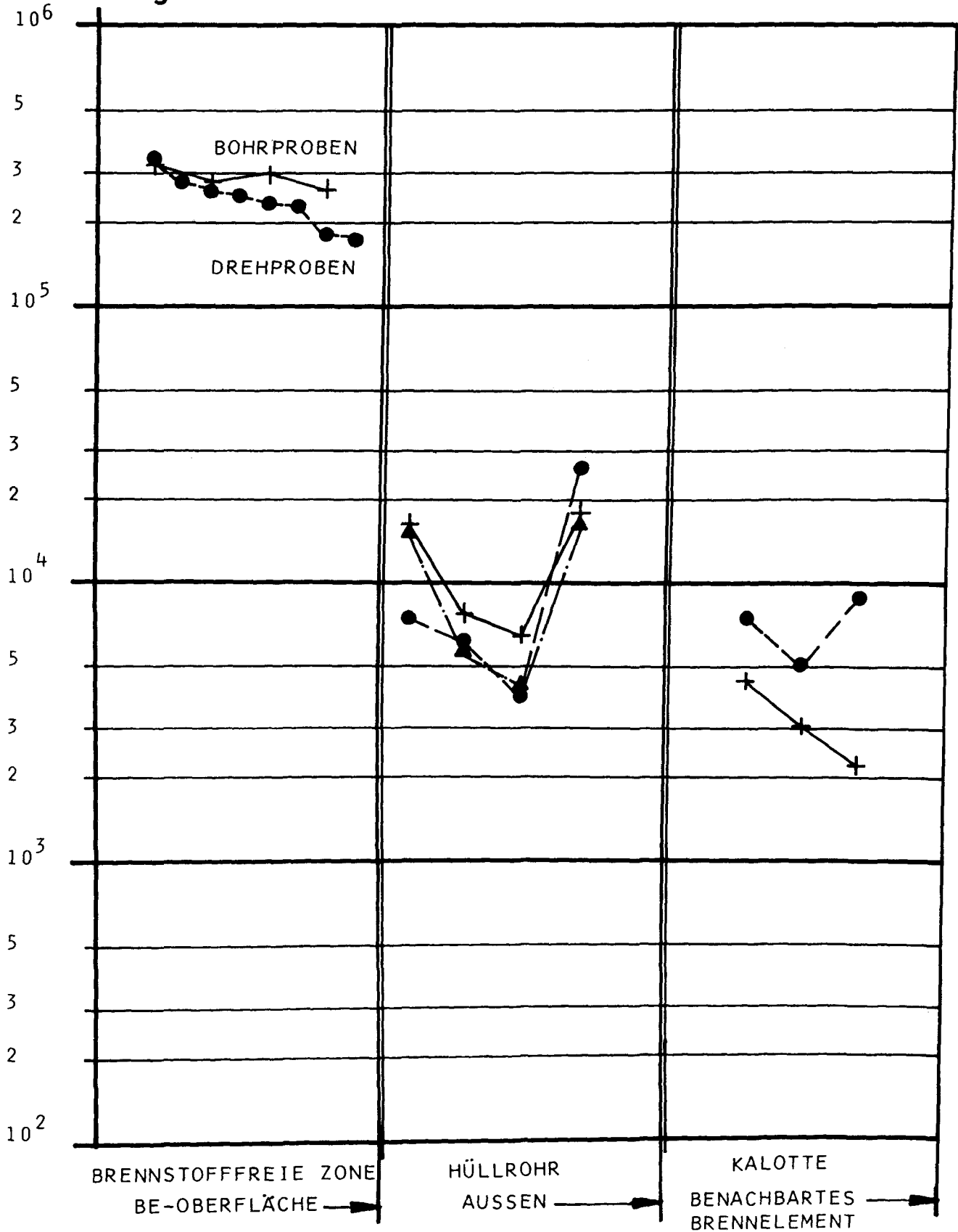


ABB.59 : KONZENTRATIONSVERLAUF VON Cs 137 IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE, IM HÜLLROHR UND IN DEN KALOTTEN

EXPERIMENT DR-K3

BRENELEMENT 5

SPEZIFISCHE AKTIVITÄT

ZERF. $\cdot s^{-1} \cdot g^{-1}$

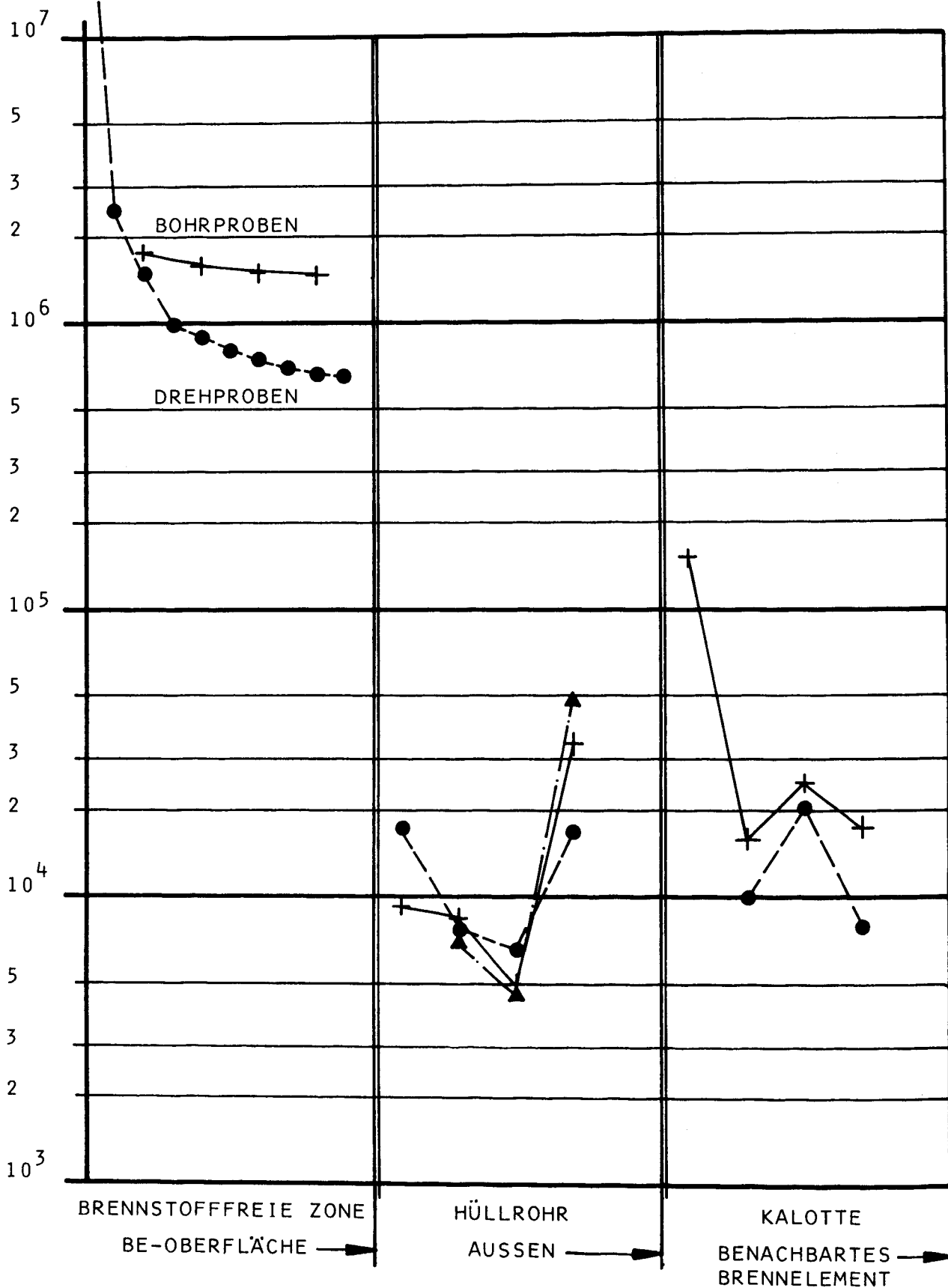


ABB.60 : KONZENTRATIONSVERLAUF VON Cs^{137} IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE, IM HÜLLROHR UND IN DEN KALOTTEN

EXPERIMENT DR-K3

BRENNELEMENT 10

SPEZIFISCHE AKTIVITÄT
 ZERF. · s⁻¹ · g⁻¹

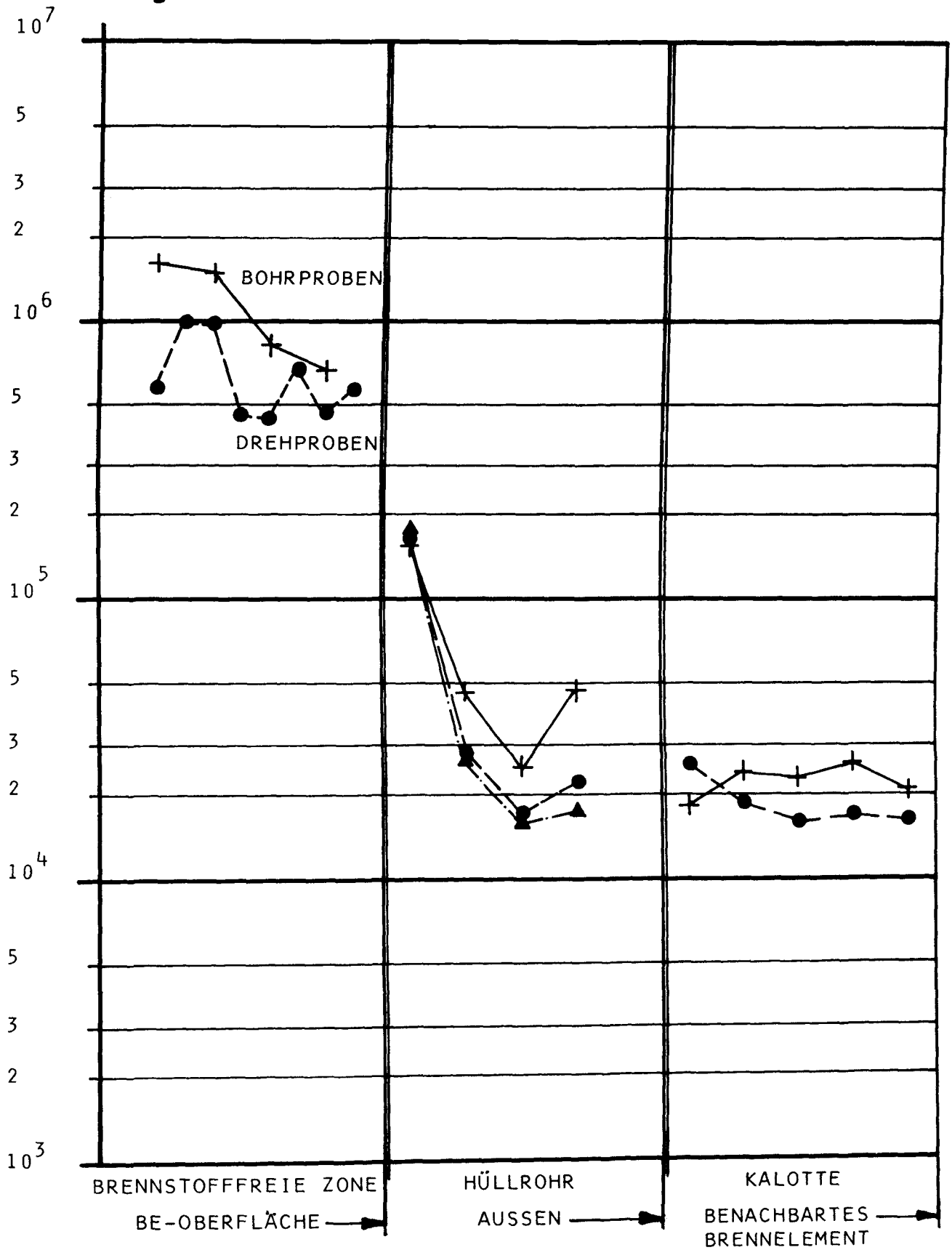


ABB. 61: KONZENTRATIONSVERLAUF VON Cs 137 IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE, IM HÜLLROHR UND IN DEN KALOTTEN

EXPERIMENT DR-K3

BRENNELEMENT 15

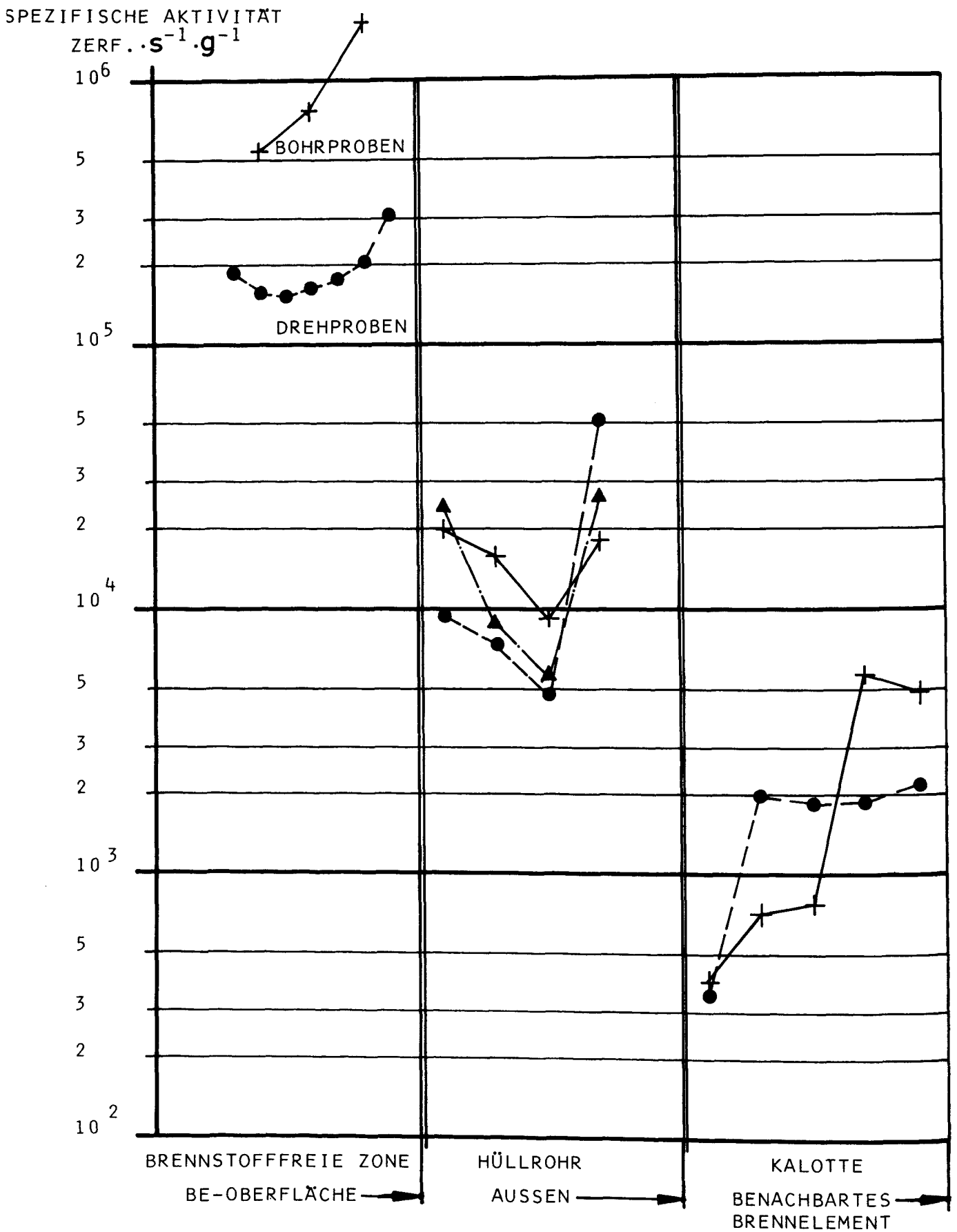


ABB.62 : KONZENTRATIONSVERLAUF VON Cs^{137} IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE, IM HÜLLROHR UND IN DEN KALOTTEN

EXPERIMENT DR-K3 BRENNELEMENT 20

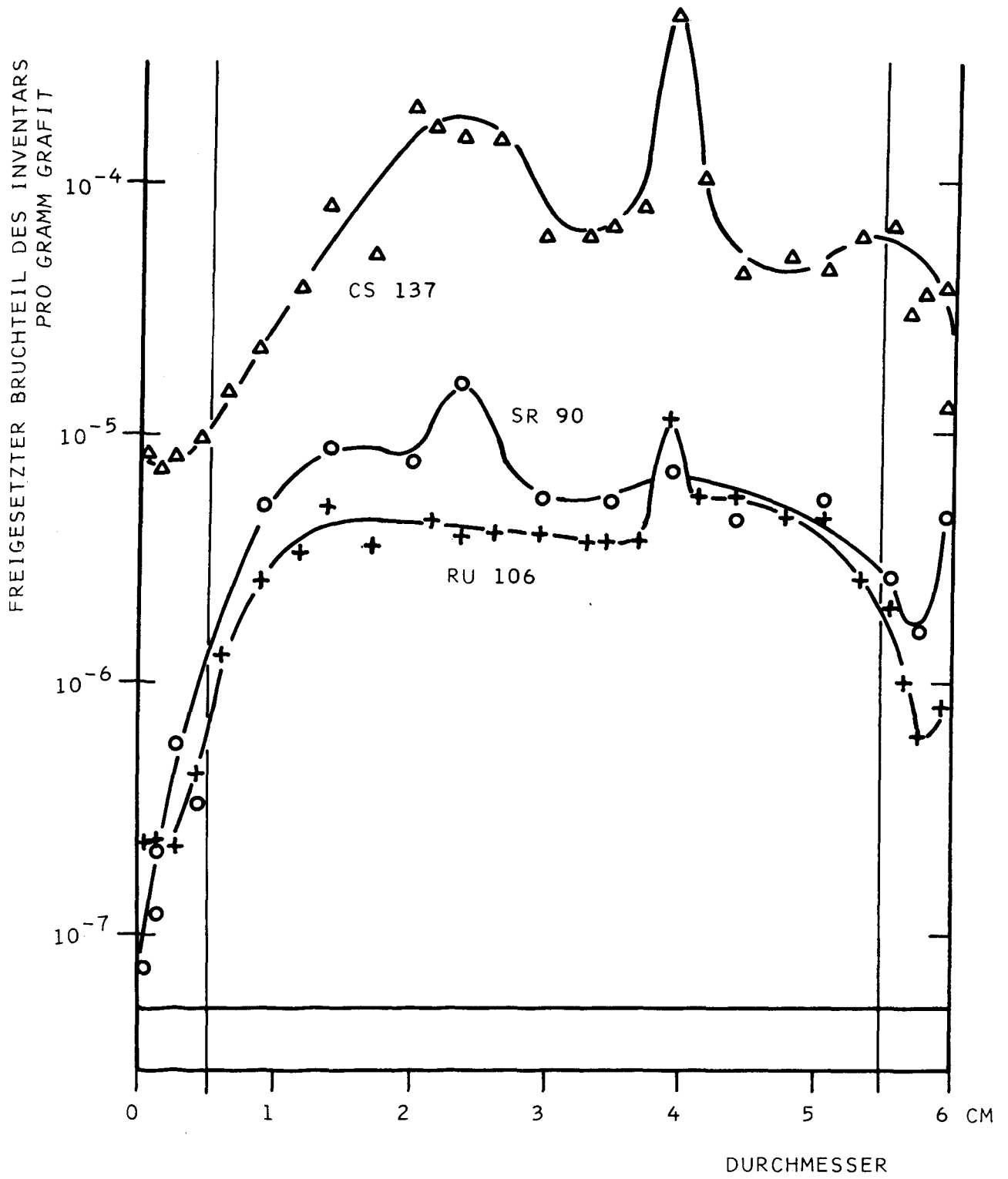


ABB.63 VERTEILUNG VON SPALTPRODUKTEN IM BE 5 / DR - K3

Um sicher zu sein, daß dieser Konzentrationsanstieg signifikant ist, wurden zusätzlich analoge Messungen an den BE 17 und 24, die oberhalb bzw. unterhalb des BE 20 bestrahlt worden sind, durchgeführt. Es zeigte sich, daß ein entsprechender Konzentrationsanstieg auch bei diesen BE zu beobachten war (Abb. 58), und zwar bei BE 17 weniger stark, bei BE 24 noch deutlicher als bei BE 20. Da während der Bestrahlung Spülgas von oben nach unten, also von BE 1 zum BE 25 strömte, kann sich das Gas mit freigesetzter Cs-Aktivität angereichert haben, so daß bei relativ hoher Spülgasanreicherung im unteren Bereich der Brennelementsäule Cs von außen in die brennstofffreie Zone eingedrungen ist und den bei den BE 17, 20 und 24 zur Oberfläche hin ansteigenden Konzentrationsverlauf verursacht hat. Bemerkenswert ist, daß dieser Anstieg bei BE 24, das die niedrigste Temperatur hatte, am ausgeprägtesten war.

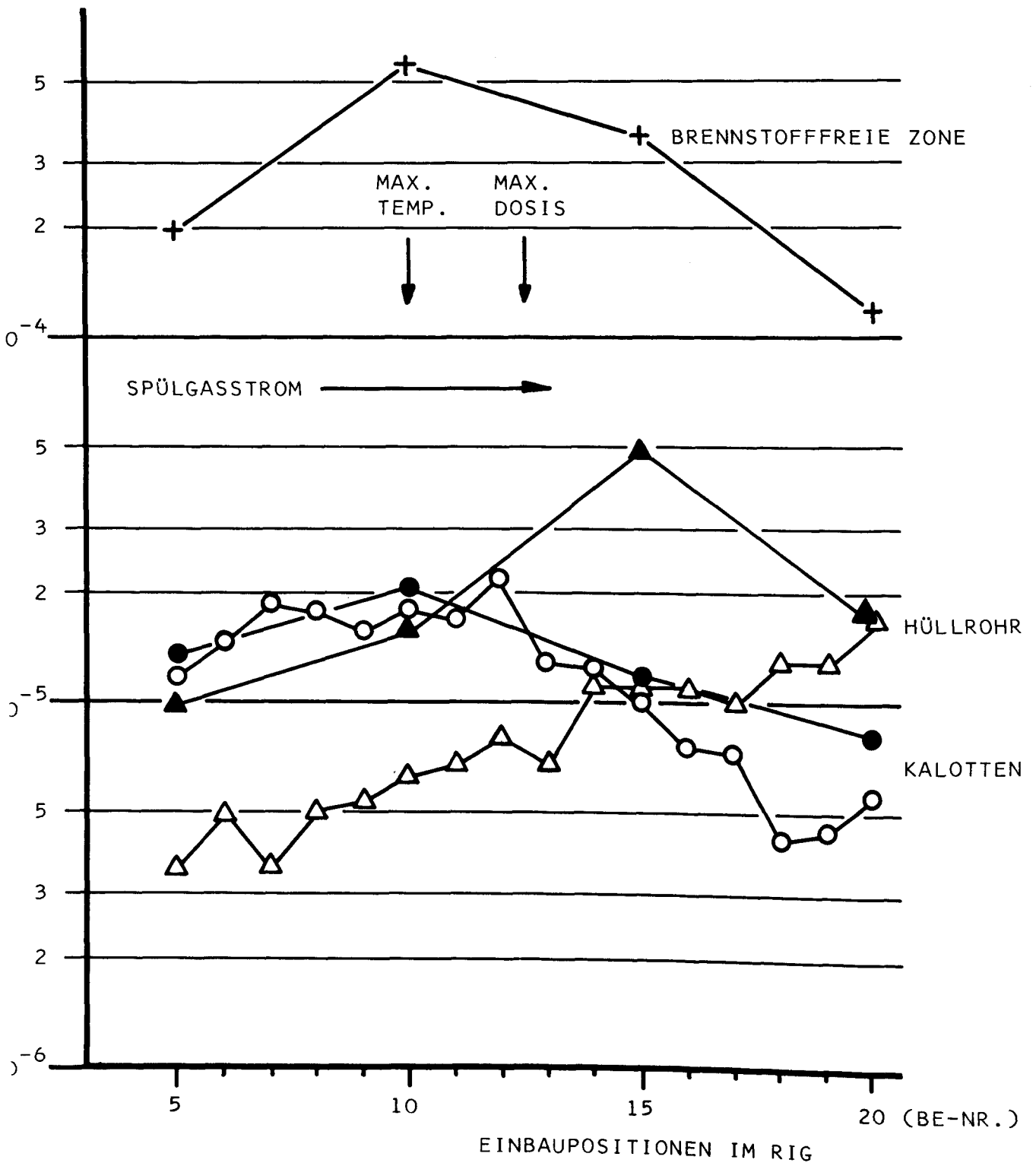
In der Matrix der brennstofffreien Zone liegt die Cs-Konzentration - wie Messungen in Seibersdorf an BE 5 zeigen - etwa eine Größenordnung höher als in der brennstofffreien Zone. An zwei Stellen wird dort eine örtlich begrenzte, etwa doppelt so hohe Cs-Konzentration gefunden. An den gleichen Stellen ist eine höhere Partikeldichte festgestellt worden und sind Partikeln mit mikroskopisch sichtbaren Rissen in der Beschichtung gefunden worden /48/.

In der 6 mm starken Wand der einzelnen Hüllrohrabschnitte wird zu der inneren und der äußeren Oberfläche hin ein Konzentrationsanstieg beobachtet und zwar mit steilerem Verlauf als in der brennstofffreien Zone der BE. Die Ursache für den größeren Gradienten dürfte in der niedrigeren Temperatur und dem entsprechend niedrigeren Diffusionskoeffizienten liegen. Cs-Ablagerungen aus kontaminiertem Spülgas an der Innenseite und Reaktorkühlgas an der Außenseite des Hüllrohres können dieses Konzentrationsprofil verursacht haben.

Das in den Grafitteilen zwischen den BE gemessene Konzentrationsprofil zeigt einen flachen Verlauf, jedoch liegt in den einzelnen Grafitteilen die mittlere Aktivität pro Gramm um mehr als 1 Größenordnung unter der der brennstofffreien Zone. Die Ursache dafür kann in den unterschiedlichen Materialien, nämlich A3-Grafit in der brennstofffreien Zone und Elektrografit in den Grafitteilen, gesehen werden. Die Höhe des Konzentrationssprunges nimmt mit zunehmender Temperatur ab, ist also bei BE 10 am größten und bei BE 20 am kleinsten. In Abb. 64 und 65 sind die in die brennstofffreien Zonen, in die Hüllrohrabschnitte und in die Grafitteile freigesetzten Bruchteile des Cs-Inventars in Abhängigkeit von der Brennelementposition während der Bestrahlung dargestellt. Dabei wurde vorausgesetzt, daß die in einem Grafitteil ermittelte Aktivität zu gleichen Teilen den beiden benachbarten Brennelementen zugeordnet werden kann.

Die Menge des in die brennstofffreie Zone freigesetzten Cs ist abhängig von der Bestrahlungstemperatur (siehe Temperaturverlauf Abb. 2), die maximale Freisetzung in die brennstofffreie Zone und in die umgebenden Grafitteile wird daher bei dem bei der höchsten Temperatur bestrahlten BE 10 gefunden. Die Cs-Menge, die in einem dem jeweiligen BE zuzuordnendem Hüllrohrbereich ermittelt wurde, kann von verschiedenen BE stammen. Hier ist wahrscheinlich ein beträchtlicher Teil von freigesetztem Cs von den weiter oben liegenden heißeren BE durch das Spülgas transportiert und im unteren Bereich des Hüllrohres abgelagert worden. In diesem Zusammenhang muß beachtet werden, daß für die Berechnung des Bruchteils des auf den Hüllrohrabschnitten abgelagerten Cs-Inventars jeweils das Inventar des diesem Rohrabchnitt direkt gegenüberliegenden BE benutzt wurde. Ein Vergleich der insgesamt freigesetzten Bruchteile der beiden Cs-Isotope in brennstofffreien Zonen, Grafitkalotten und Hüllrohrabschnitte ergibt beim BE 10 für Cs 134 in der brennstofffreien Zone $6 \cdot 10^{-4}$ und in der Umgebung des BE $7 \cdot 10^{-5}$; für Cs 137 wurden $5 \cdot 10^{-4}$ in der brennstofffreien Zone und ungefähr $3 \cdot 10^{-5}$ in der Umgebung gefunden. Er-

FREIGESETZTER BRUCHTEIL
DES CS134-INVENTARS



64 : FREIGESETZTER BRUCHTEIL DES CS134-INVENTARS.

MESSWERTE DRAGON : —○— KALOTTEN
 —△— HÜLLROHR

MESSWERTE KFA : —+— BRENNSTOFFFREIE ZONE
 —●— KALOTTEN
 —▲— HÜLLROHR

FREIGESETZTER BRUCHTEIL
DES CS137-INVENTARS

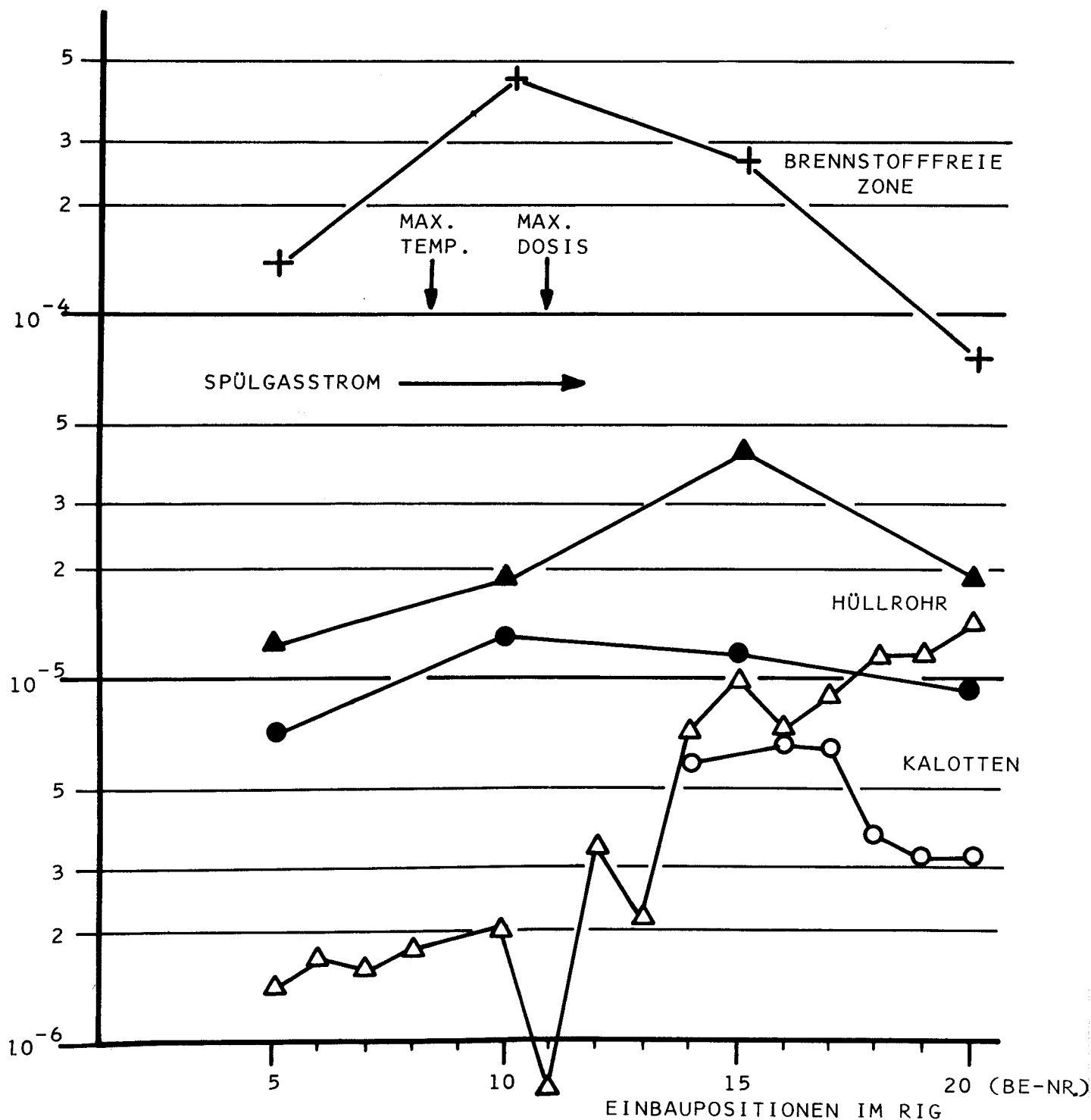


ABB.65 : FREIGESETZTER BRUCHTEIL DES CS137-INVENTARS.

- MESSWERTE DRAGON : —○— KALOTTEN
 —△— HÜLLROHR
- MESSWERTE KFA : —+— BRENNSTOFFFREIE ZONE
 —●— KALOTTEN
 —▲— HÜLLROHR

gänzende Messungen wurden in Winfrith durchgeführt /25/. Dort wurde die axiale Aktivitätsverteilung durch Gamma-Scan ermittelt und daraus Freisetzungen berechnet. Die Ergebnisse sind in Abb. 64 und 65 dargestellt.

3.2.4.2 Konzentrationsprofile und Freisetzung von Sr 90

Die Konzentrationsverteilung von Sr 90 in den brennstofffreien Zonen, Grafitkalotten und Hüllrohrabschnitten sind in Abb. 66 - 69 dargestellt. Dabei sind wie beim Cs spezifische Aktivitäten über den entsprechenden Probenentnahmepositionen aufgetragen. Die BE 5 und 10 zeigen in den brennstofffreien Zonen im Vergleich zum Cs ein steileres Konzentrationsgefälle zur Kugeloberfläche hin (Diffusionsfront).

Die im unteren Teil des BE-Säule bestrahlten BE 15 und 20 weisen in der brennstofffreien Zone ein Konzentrationsminimum auf, es hat sich ein sogenanntes "Wannenprofil" gebildet. Ähnlich wie beim Cs könnte auch in diesem Fall ein Teil es im oberen Bereich der BE-Säule freigesetzten Sr die Konzentrationsprofile der im unteren Teil liegenden BE beeinflusst haben. Die Konzentrationsprofile des Sr in den Grafitteilen zwischen den BE zeigen einen dem Cs vergleichbaren flachen Verlauf. Dasselbe gilt für die Konzentrationsprofile in der Hüllrohrwand. In allen Fällen wurden in den Hüllrohrabschnitten "Wannenprofile" gefunden, die durch in die Rohrwandung von innen und von außen eingedrungenes Sr verursacht sein können.

In Abb. 70 sind die insgesamt freigesetzten Bruchteile des Sr-Inventars in den brennstofffreien Zonen, den umgebenden Grafitteilen und dem dazugehörigen Hüllrohrabschnitt dargestellt. Auffällig ist die im Vergleich zu den BE 5 ($4 \cdot 10^{-5}$) und 10 ($1 \cdot 10^{-4}$) niedrige Freisetzung in die brennstofffreien Zonen der BE 15 ($8 \cdot 10^{-7}$) und 20 ($1 \cdot 10^{-6}$). BE 15 und 20 hatten während der Bestrahlung niedri-

SPEZIFISCHE AKTIVITÄT

ZERF. $\cdot s^{-1} \cdot g^{-1}$

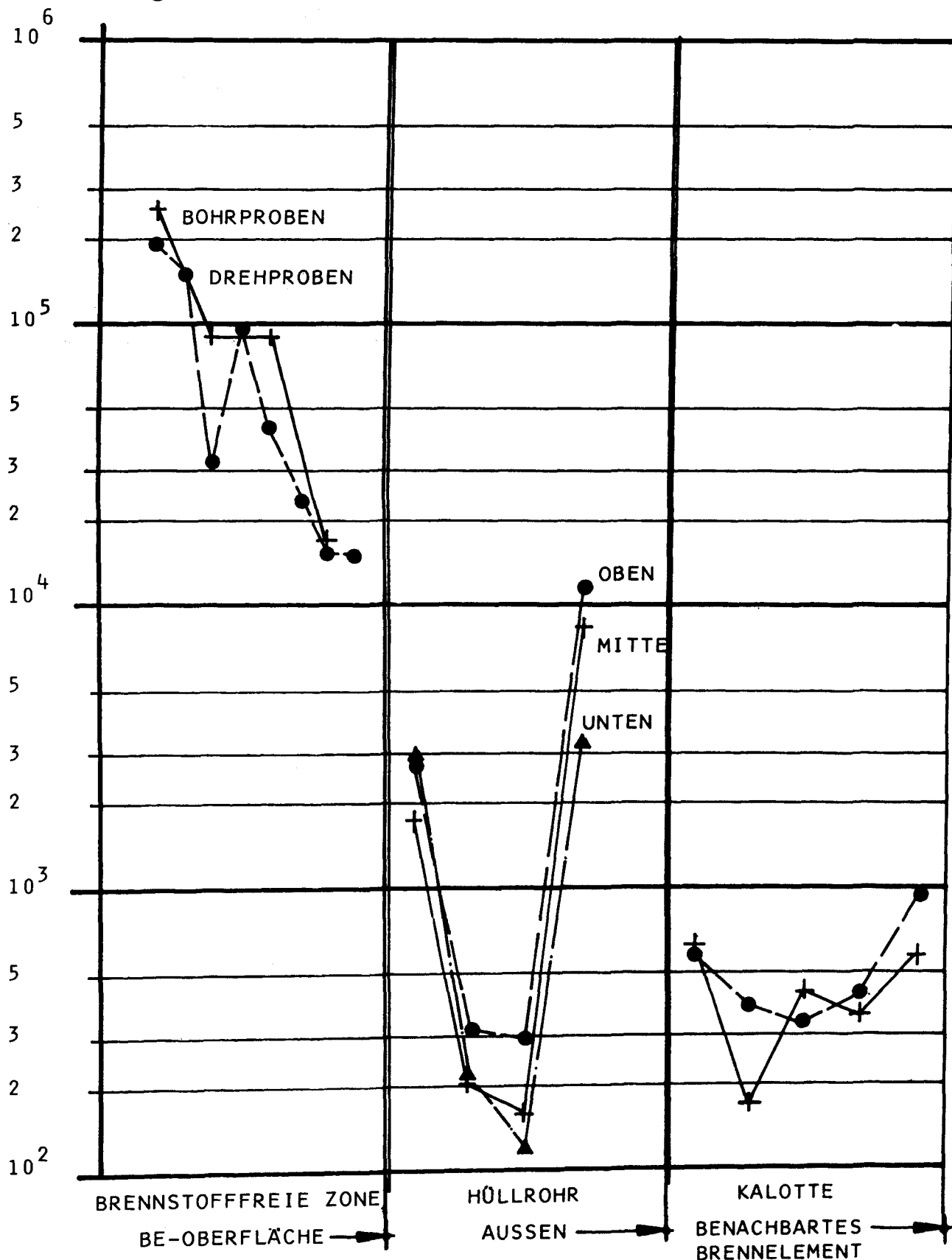


ABB. 66: KONZENTRATIONSVORLAUF VON Sr 90 IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE, IM HÖLLROHR UND IN DEN KALOTTEN

EXPERIMENT DR-K3

BRENNELEMENT 5

SPEZIFISCHE AKTIVITÄT
ZERF. · s⁻¹ · g⁻¹

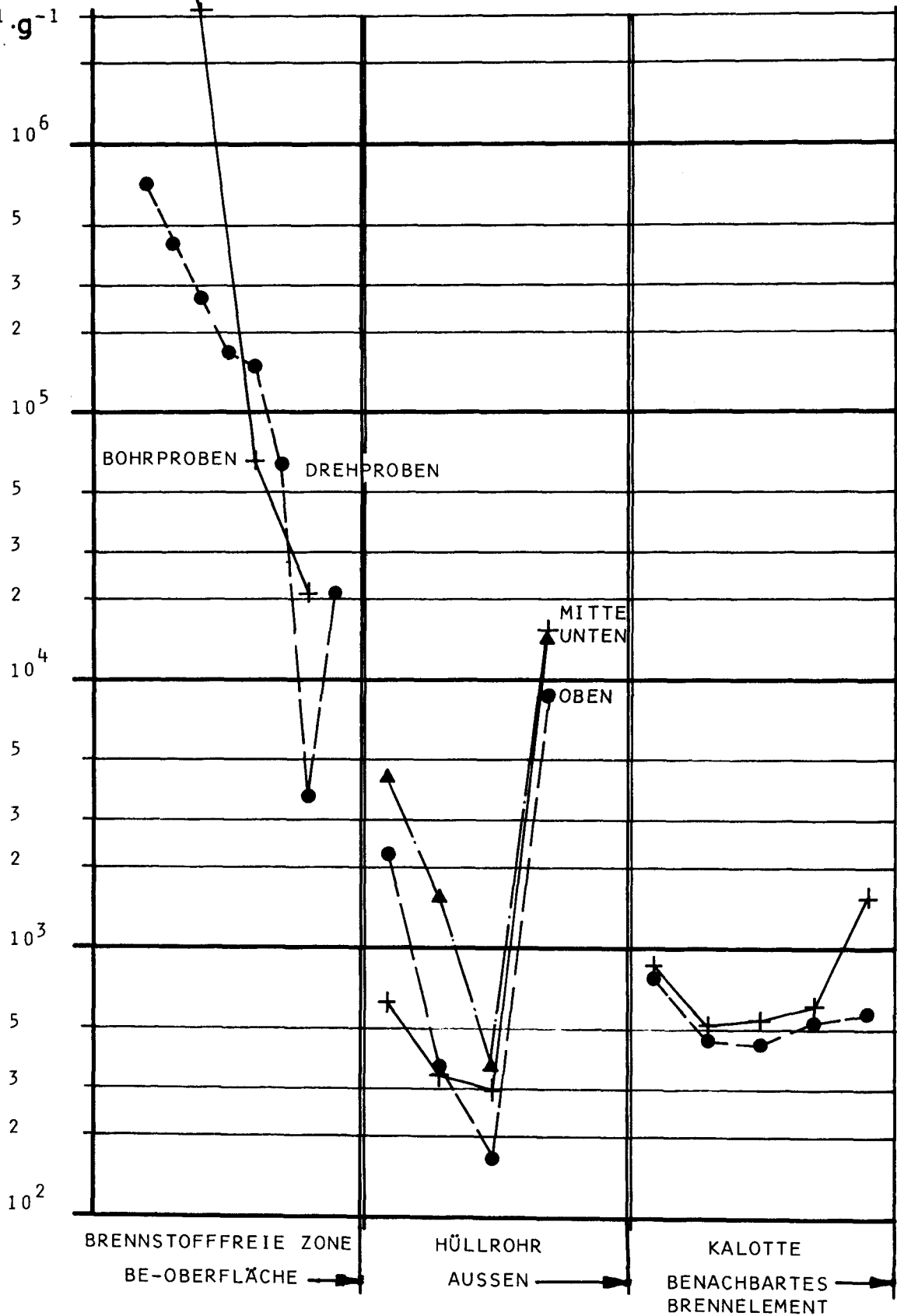


ABB.67 : KONZENTRATIONSVORLAUF VON Sr 90 IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE, IM HÜLLROHR UND IN DEN KALOTTEN

EXPERIMENT DR-K3

BRENNELEMENT 10

SPEZIFISCHE AKTIVITÄT

ZERF. $\cdot s^{-1} \cdot g^{-1}$

10^6

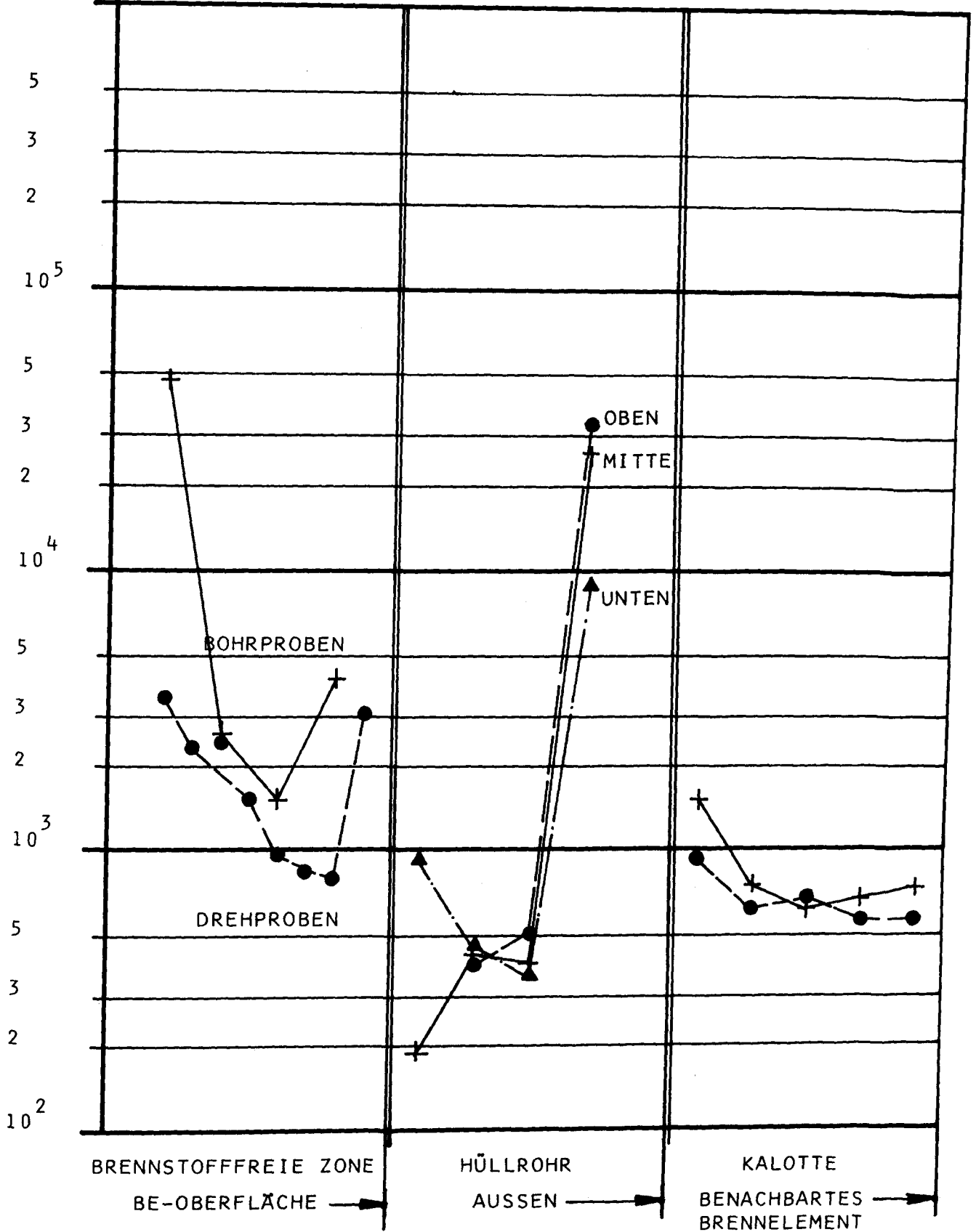


ABB. 68: KONZENTRATIONSVERLAUF VON Sr 90 IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE, IM HÜLLROHR UND IN DEN KALOTTEN

EXPERIMENT DR-K3 BRENNELEMENT 15

SPEZIFISCHE AKTIVITÄT
ZERF. $\cdot s^{-1} \cdot g^{-1}$

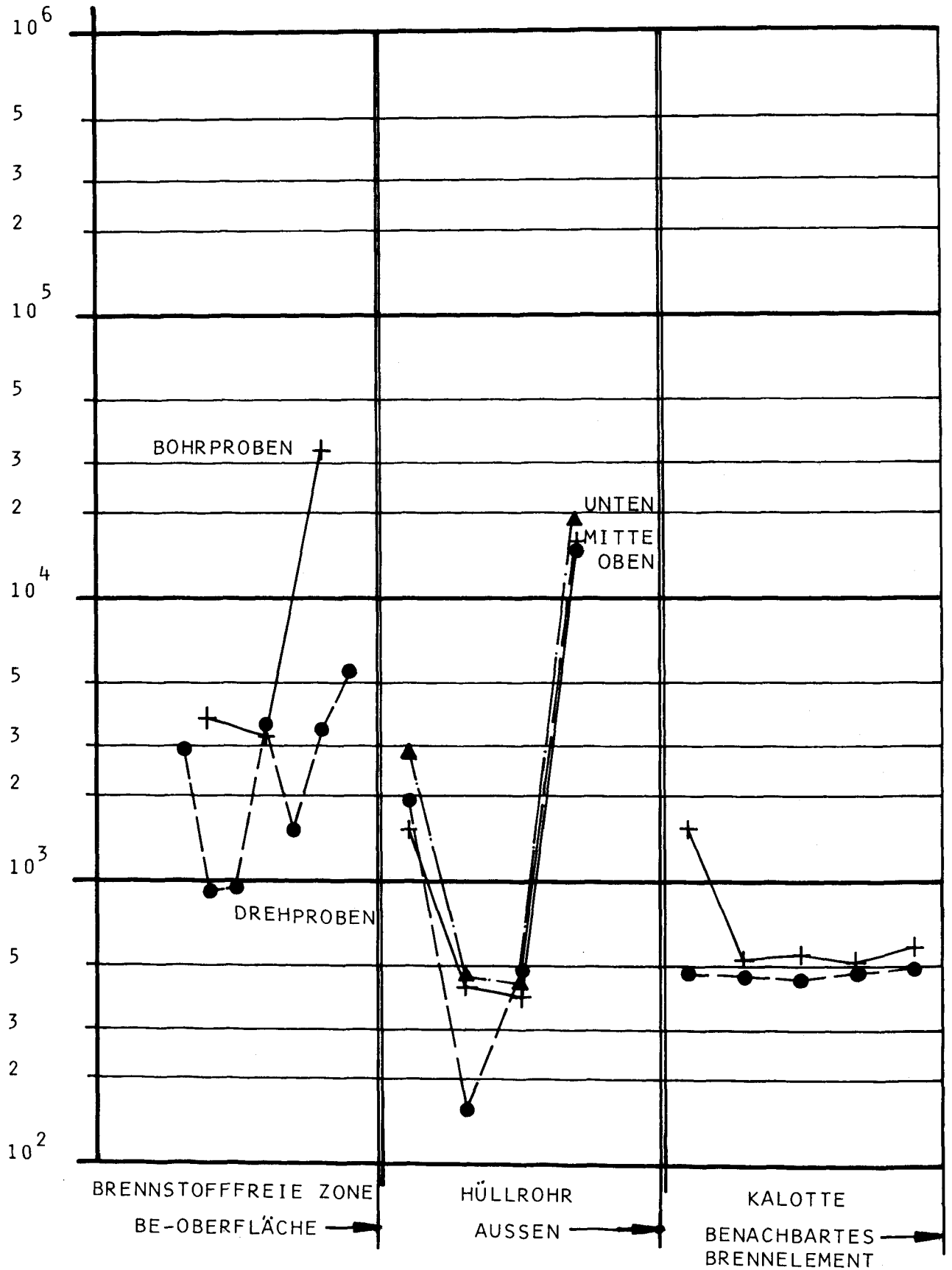


ABB. 69: KONZENTRATIONSVERLAUF VON Sr 90 IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE, IM HÜLLROHR UND IN DEN KALOTTEN

EXPERIMENT DR-K3

BRENNELEMENT 20

FREIGESETZTER BRUCHTEIL
DES $Sr\ 90$ -INVENTARS

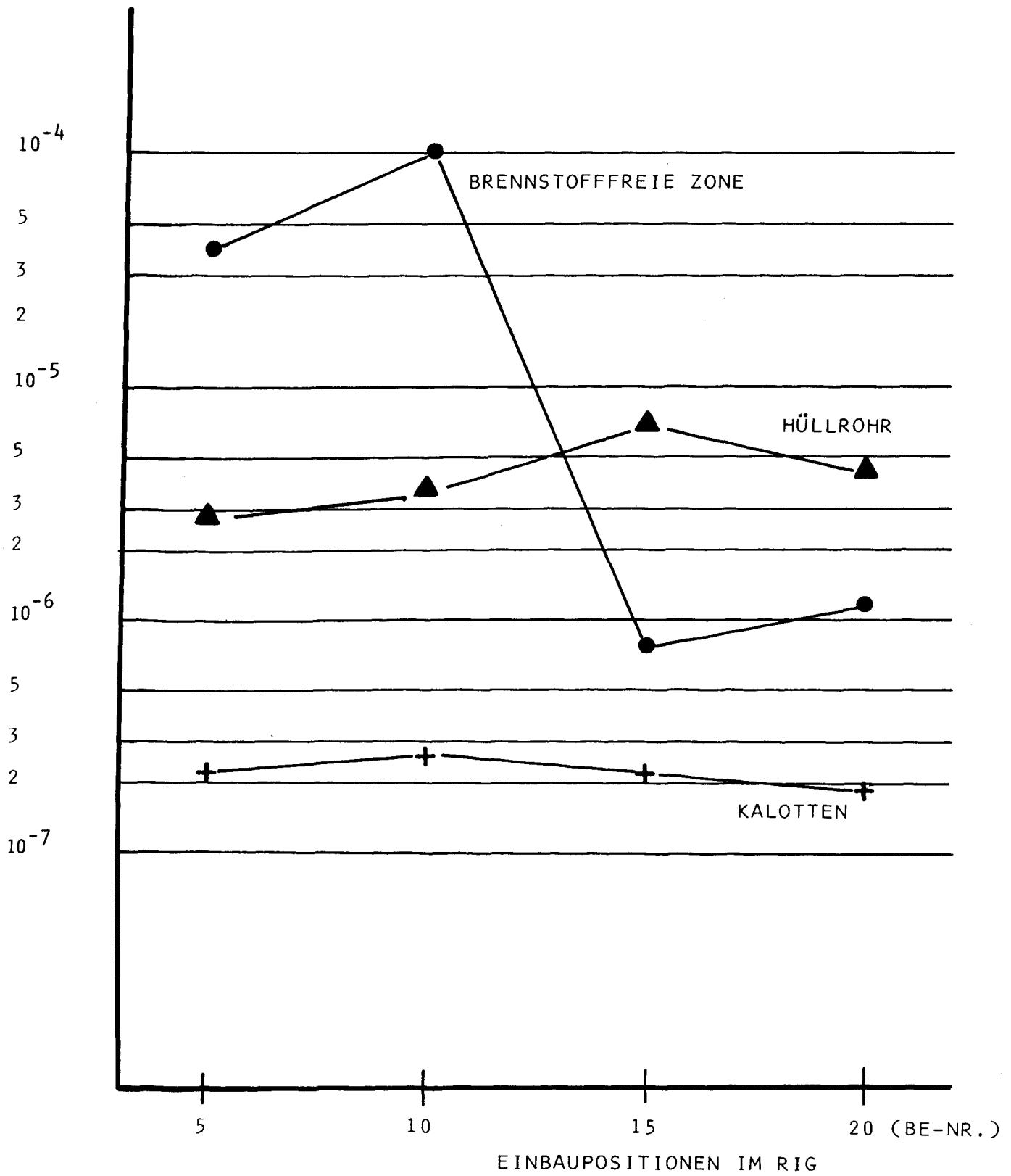


ABB.70 : FREIGESETZTER BRUCHTEIL DES $Sr\ 90$ -INVENTARS IN DEN BRENNSTOFF-FREIEN ZONEN, DEN HÜLLROHRABSCHNITTEN UND DEN KALOTTEN DER BRENNELEMENTE 5, 10, 15, 20

EXPERIMENT DR-K3

gere Temperaturen als die BE 5 und 10, so daß aus der Brennstoffzone sehr wenig Sr in die brennstofffreie Zone eingedrungen ist, was an der fehlenden Diffusionsfront erkennbar ist.

Die in Abb. 70 dargestellten freigesetzten Bruchteile des Sr 90-Inventars in die Hüllrohrabschnitte mit Konzentrationsmaximum im Bereich des BE 15 geben ebenfalls einen Hinweis auf vom Spülgas aus dem oberen BE-Säulenbereich zum unteren transportierten Sr. In den Grafitteilen zwischen den BE folgt die gefundene Sr-Menge der Temperaturverteilung. Insgesamt liegen die Sr-Freisetzungswerte in Hüllrohr und Grafitteilen etwa 1 Größenordnung niedriger als die entsprechenden Cs-Werte. Anhand der vorliegenden Daten kann über das Transportverhalten in der brennstofffreien Zone keine eindeutige Aussage gemacht werden, weil die Konzentrationsprofile bei Bohr- und Drehproben teilweise gegenläufige Tendenz zeigen (z.B. BE 10).

3.2.4.3 Konzentrationsprofile und Freisetzung von Ag 110m

Die Konzentrationsverteilung von Ag 110m in den brennstofffreien Zonen, den Hüllrohrabschnitten und den Grafitkalotten sind in Abb. 71 bis 74 dargestellt. Die Konzentrationsverläufe in den Grafitteilen zwischen den BE zeigen im Vergleich mit Cs ein stärker ausgebildetes "Wannenprofil". Bei dem BE 15 wurde nur noch im brennelementnahen Bereich der Grafitteile Ag 110m gefunden, bei BE 20 konnte im Grafitteil nichts mehr nachgewiesen werden. Bei der Messung der Ag 110m-Aktivitätsverteilung in der Hüllrohrwand konnten nur noch in Oberflächennähe meßbare Konzentrationen ermittelt werden.

Bei Benutzung des im DRAGON-Projekt Winfrith berechneten Ag 110m-Inventars ergeben sich hohe Freisetzungsraten. Der höchste freigesetzte Bruchteil wird für BE 10 beobachtet. Wie aus Abb. 75 zu ersehen ist, beträgt er für die brennstofffreie Zone und die Grafitteile jeweils $2 \cdot 10^{-1}$. In dieser Abb. sind die in Winfrith ermittelten Freisetzungswerte zusätzlich dargestellt.

SPEZIFISCHE AKTIVITÄT
ZERF $s^{-1} g^{-1}$

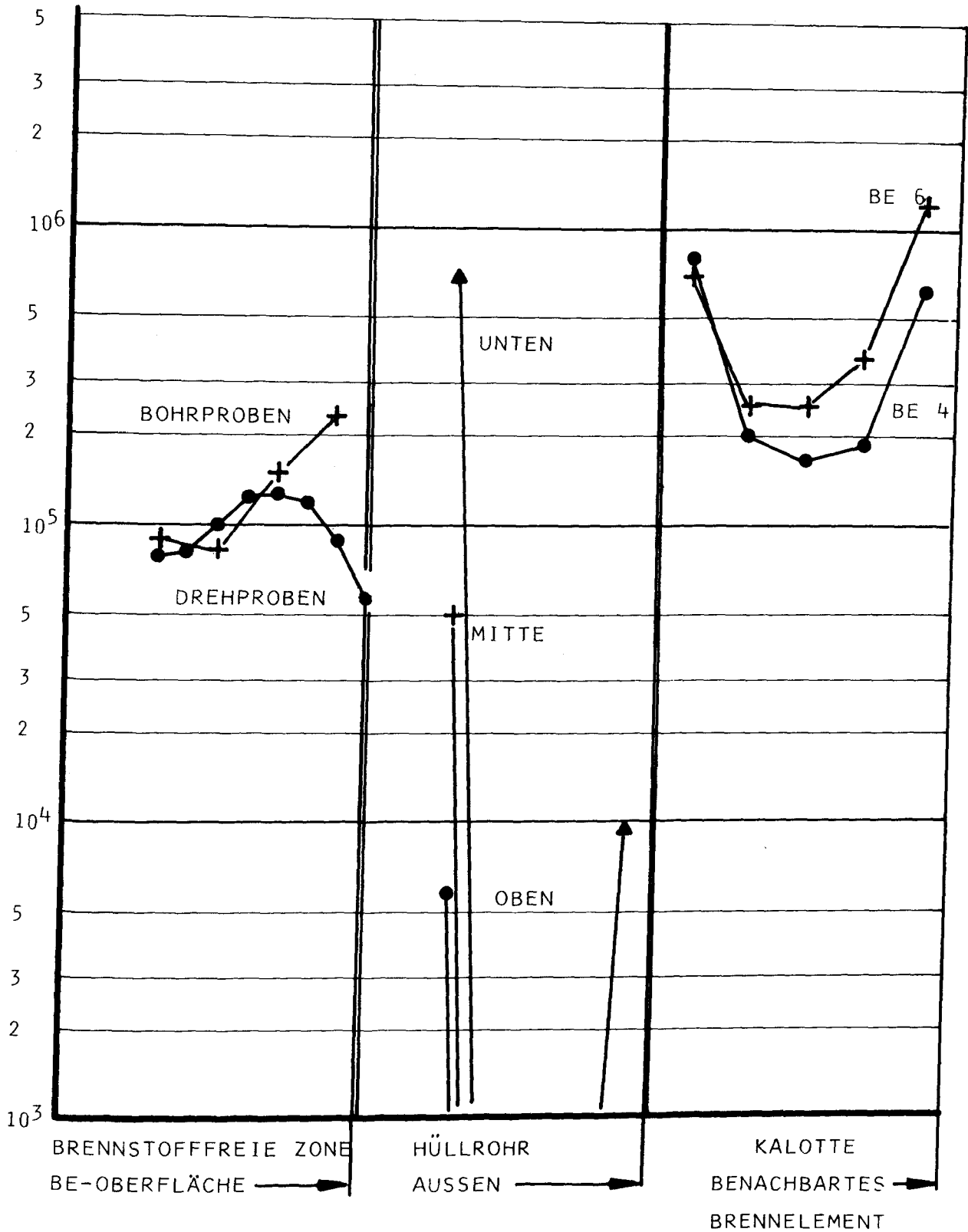


ABB.71 KONZENTRATIONSVORLAUF VON Ag^{110m} IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE, IN DEN KALOTTEN UND IM HÜLLROHR

EXPERIMENT DR-K3 BRENNELEMENT 5

SPEZIFISCHE AKTIVITÄT

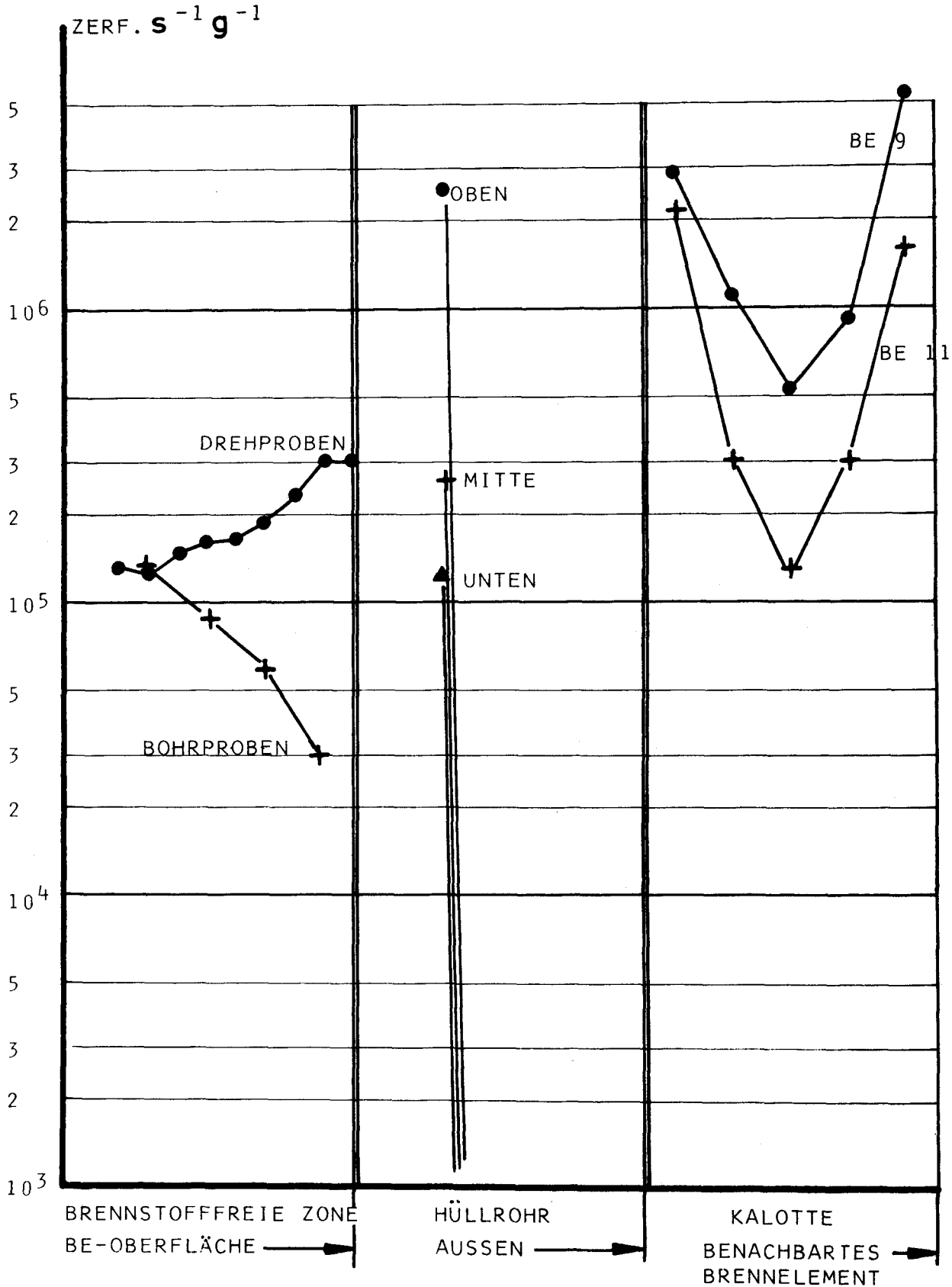
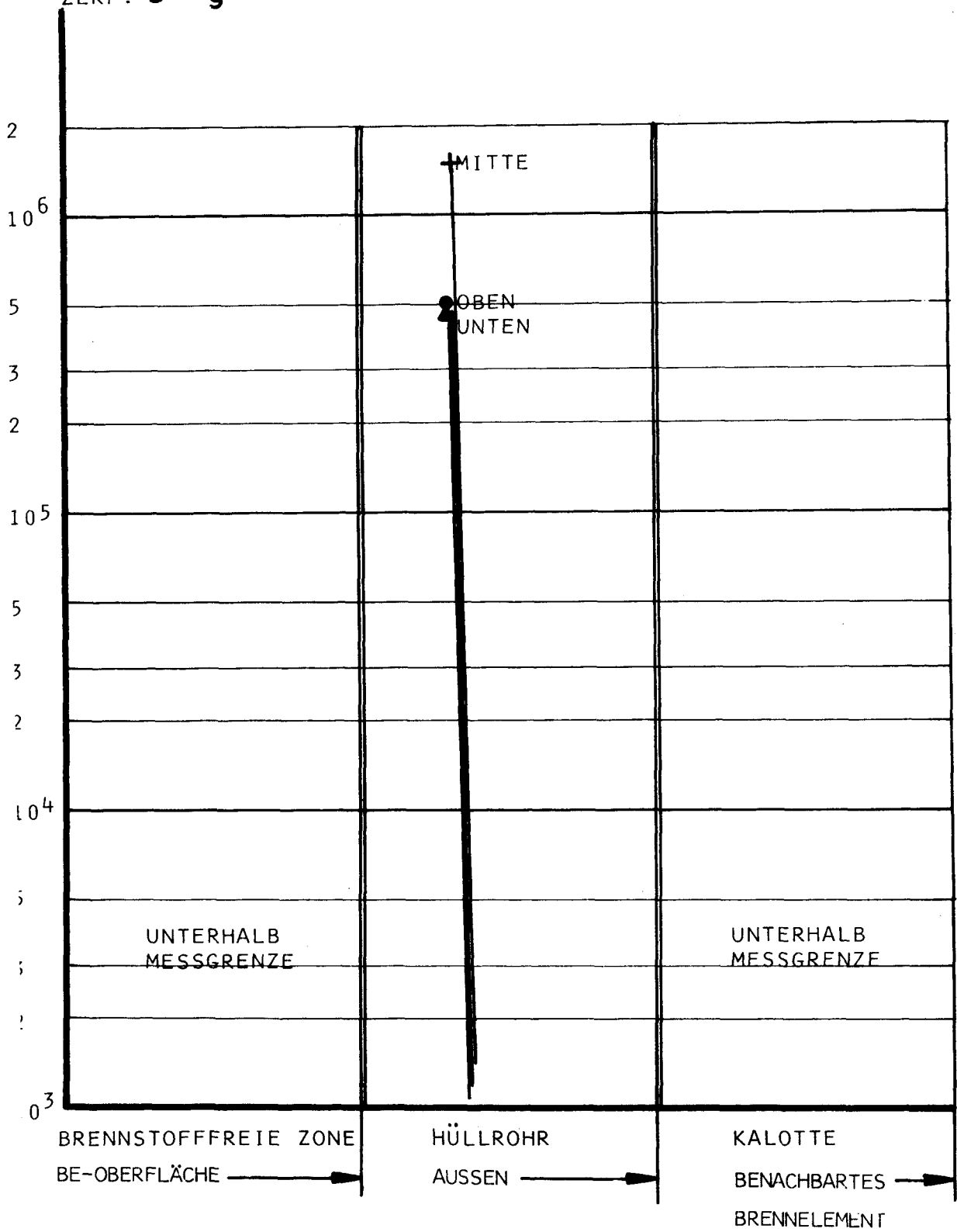


ABB. 72 KONZENTRATIONSVERLAUF VON Ag^{110m} IN DER BRENNSTOFFFREIEN ZONE, IN DEN KALOTTEN UND IM HÜLLROHR

EXPERIMENT DR-K3 BRENNELEMENT 10

SPEZIFISCHE AKTIVITÄT
ZERF. $s^{-1} g^{-1}$



B.74 KONZENTRATIONSVERLAUF VON Ag^{110m} IM HÜLLROHR

EXPERIMENT DR-K3 BRENNELEMENT 20

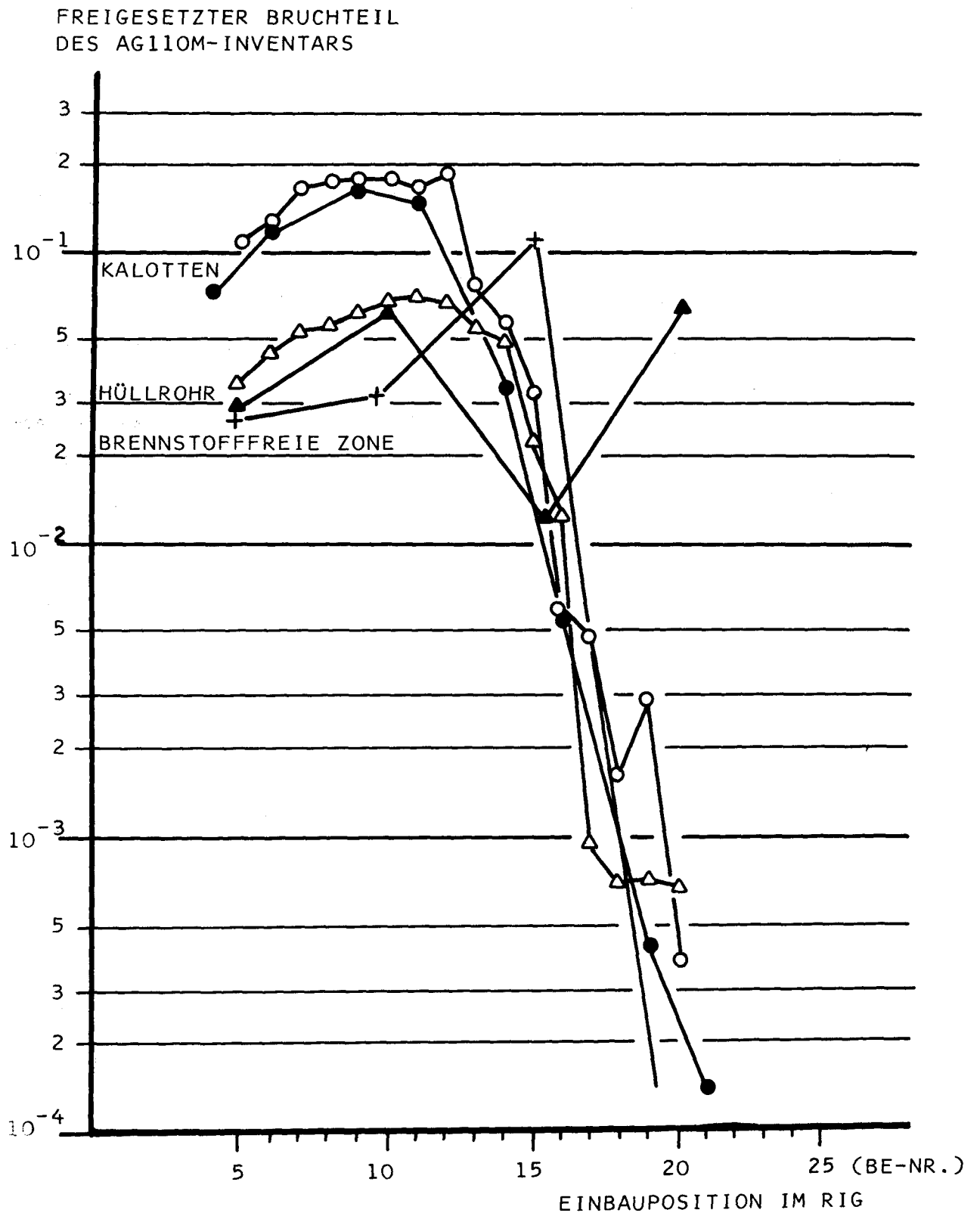


ABB. 75 : FREIGESETZTER BRUCHTEIL DES AG110M-INVENTARS.
 MESSWERTE DRAGON : ○ — KALOTTEN
 △ — HÜLLROHR
 MESSWERTE KFA : + — BRENNSTOFFFREIE ZONE
 ● — KALOTTEN
 ▲ — HÜLLROHR

3.2.4.4 Sonstige Spaltprodukte

Zr 95 und Ba 140 waren in den vorliegenden Proben nicht analysierbar, da die Aktivitäten unter der Nachweisgrenze lagen.

3.2.5 Zusammenfassung

Nachuntersuchungen zum Spaltprodukttransport an BE und Grafitteilen aus dem Bestrahlungsexperiment DR-K3 bestanden in der Bestimmung von Verteilungsprofilen

- in den brennstofffreien Zonen der BE 5, 10, 15 und 20,
- in den Grafitkalotten, die zur Aufnahme der BE dienten,
- in der Wand der zu diesen Grafitkalotten bzw. BE gehörenden Hüllrohrbereichen.

Ausgewertet wurden Cs 134, Cs 137, Sr 90 und Ag 110m. Aus den gemessenen Konzentrationswerten wurde der freigesetzte Bruchteil des Spaltproduktinventars in der brennstofffreien Zone und den entsprechenden Komponenten berechnet.

Im Bereich der am stärksten belasteten BE wurden folgende Freisetzungen ermittelt:

Tabelle 21

	brennstofffreie Zone	umgebender Grafit
Cs 134	$6 \cdot 10^{-4}$	$7 \cdot 10^{-5}$
Cs 137	$4,5 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-5}$
Sr 90	$1 \cdot 10^{-4}$	$7 \cdot 10^{-6}$
Ag 110m	$1 \cdot 10^{-1}$	$2 \cdot 10^{-1}$

Quellen

- /1/ B. Gardham, A.J. Eycott, R.P. Sinden, M.S.T. Price
The DRAGON First Charge THTR Element, Part 1: Preparation and Safety
in Operation
DRAGON-Report DPR 480, Sept. 1966
- /2/ E. Groos
Bestrahlung von Brennelementen für den THTR im DRAGON-Reaktor
EURATOM-Mitteilung 2921, Kategorie 10.1 (1972)
- /3/ W. Theymann
BBK-Arbeitsbericht E 67/37, 14.4.1967
- /4/ L. Aumüller, P. Bröcker
Bestrahlungstest TD3, Zielsetzung und Auslegung, Datenzusammenstellung
NUKEM-Bericht, Nov. 1968
- /5/ K.G. Hackstein, F.J. Hermann, H. Huschka, P. Vygen
Fortschritte bei der Herstellung von Brennelementen für den THTR-
Reaktor
Reaktortagung des DATF 1971, Tag.Ber. S. 618
- /6/ L. Aumüller, E. Balthesen, W. Krug, H. Ragoß, K. Röllig
Bestrahlungserprobung der Brennelemente für den THTR
Reaktortagung des DATF 1971, Tag.Ber. S. 622
- /7/ G. Pott, B. Hürttlen
Bestrahlungsexperiment JK 3 (LV 4), 24.1.1969

H. Gottaut, E. Groos, J. Rau
Spaltproduktverteilung und -freisetzung im Hochtemperatur-Bestrahlungs-
experiment JK 3
IRW-IB-17/70, 19.10.1970
- /8/ O.E.C.D. High Temperatur Reactor Project DRAGON
Tenth Annual Report 1968-1969, p. 114
- /9/ Monatliche Information über den Stand der HTR-Bestrahlungsexperimente
(Interne Information der KFA)
- /10/ L. Aumüller
Bestrahlungstest TD3, Bestrahlungsbericht, 1. Zwischenbericht (1.7.1968
- 15.2.1969)
NUKEM-Bericht, 18.3.1969
- /11/ L. Aumüller
Bestrahlungsexperiment TD3, 2. Bestrahlungs-Zwischenbericht
IRW-TN-4/70, 23.6.1970

- /12/ U. Brinkmann; persönliche Mitteilung 22.12.1972
- /13/ R. Duwe, F. Johnen, K. Landsgesell
Gamma-spektrometrische Ergebnisse des Bestrahlungsexperimentes
DR-K3 (TD3)
IRW-IN-45/72, 25.9.1972
- /14/ W. Kühnlein, R. Schröder, K. Landsgesell, H. Dahmen
Ergebnisse gamma-spektrometrischer Messungen des Experimentes DR-K3
(Spaltproduktprofile)
IRW-IN-82/74, Aug. 1974
- /15/ W. Kühnlein, R. Schröder, H. Dahmen, K. Landsgesell
Ergänzende gamma-spektrometrische Messungen an den Kugeln Nr. 17 und 24
des Experimentes DR-K3 (Spaltproduktprofile)
IRW-IN-47/75, 13.5.1975
- /16/ H.J. Bücken
Bestrahlungsexperiment DR-K3; Entnahme von Bohrproben aus 4 Grafitrohr-
stücken, 5 Kugeln und 10 Kalotten
IRW-TN-99/73, Nov. 1973
- /17/ H.J. Bücken
Bestrahlungsexperiment DR-K3 (TD3); Nachtrag zur Drehprobenentnahme aus
2 Brennelementen
IRW-TN-53/74, 6.9.1974
- /18/ H. Müller; persönliche Mitteilung 30.10.1974
- /19/ W.D. Zienert
TD3-Nachuntersuchungsvorschläge
NUKEM, 6.7.1970
- /20/ K. Röllig
Vorschläge zur Nachbestrahlungsuntersuchung von DR-K3
HRB-Aktenvermerk, 2.5.1972
- /21/ U. Brinkmann
Nachuntersuchungsprogramm für Bestrahlungsexperiment DR-K3 (TD3),
durchzuführen in den Heißen Zellen der AEE Winfrith
HTRB-TN-3/72, 8.3.1972
- /22/ H. Ragoß
Bestrahlungsexperiment DR-K3 (TD3) Nachuntersuchungsprogramm
IRW-TN-61/72, Aug. 1972
- /23/ U. Brinkmann
DR-K3 (TD3) 1. Nachuntersuchungs-Zwischenbericht.
Zerlegung und erste Ergebnisse (Heiße Zellen Winfrith)
HTRB-TN-14/72, 24.7.1972

- /24/ P.D. Good
The Post Irradiation Examination of Fuel Element 045 Containing KFA
Experiment DR-K3 (TD3)
DRAGON PID/045/1, Febr. 1973
- /25/ A. Flavell, T.A. Harrison, J. Simpson, P. Smith, J. York
Post Irradiation Gamma Spectrometry
DRAGON PIGS 8/72A, 2.11.1972
- /26/ U. Brinkmann, H. Ragoß
Bestrahlungsexperiment DR-K3. Einige Nachuntersuchungsergebnisse.
IRW-TN-84/73, Okt. 1973
- /27/ W. Keutmann, G. Schürer
Nachuntersuchung an DR-K3 - Hüllrohrabschnitten
IRW-IN-40/75, 16.4.1975
- /28/ L. Aumüller, E. Balthesen, K. Ehlers, K.H. Hackstein, M. Hrovat,
B. Liebmann, K. Röllig
Fuel Elements for High Temperature Reactor-Production Experience and
Irradiation Test in the Federal Republic of Germany
Forth International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy
Geneva, 6-16 Sept. 1971
A/CONF. 49/P/385
- /29/ E. Balthesen, H. Ragoß
Irradiation Behaviour of Fuel Elements for Pebble Bed Reactors
(Vortrag zur CEGB International Conference on the Physical Metallurgy
of Reactor Fuel Elements, Berkeley/England, Sept.2-7, 1973)
IRW-TN-19/74
- /30/ H. Ragoß, H. Derz, M. Wimmers
Untersuchung an Brennelementen aus dem AVR
Reaktortagung des DAtF 1973, Tag.Ber. S. 235
- /31/ D. Bedenig, H. Heim, G. Merten, G. Schmidt
Untersuchungen zu den mechanischen Brennelementbelastungen im Core
eines Kugelhaufens durch frei einfahrende Absorberstäbe
Reaktortagung des DAtF 1970, Tag.Ber. S. 450
- /32/ A. Kleine-Tebbe, H. Ragoß
Beeinflussung der Festigkeit kugelförmiger Brennelemente durch Bedin-
gungen des Reaktorbetriebes
Internat.Kohlenstoff-Tag. "Carbon '72", Juni 1972; Tag.Ber. S. 197
- /33/ E. Balthesen, H. Ragoß, K. Röllig, W. in der Schmitt
Bestrahlungserprobung von HTR-Brennelementen
Reaktortagung des DAtF 1973, Tag.Ber. S. 231
- /34/ J. Röser
Untersuchung der Fall- und Bruchfestigkeit von Brennelementen mit
11,6 g Schwermetall aus dem Bestrahlungsexperiment LV 4/JK1
BBC/Krupp-Versuchsbericht V 68/25, 14.3.1968

- /35/ W. Mergler
Untersuchung der mechanischen Festigkeit der im Bestrahlungsexperiment DR-K3 (TD3) eingesetzten Brennelemente
HRB/AVR-BE Versuchsbericht E II-73/131, AZ 569,520 i.A.3473, 1.10.73
- /36/ W.Delle, G. Haag, H. Nickel, H.A. Schulze, R.-E. Schulze
The Influence of Irradiation Induced Graphitization of Graphitic Materials on their Property Behaviour after Fast Neutron Exposure at High Temperatures
4th London Intern.Carbon and Graphite Conf., 23.-27.9.1974, S. 235
- /37/ A. Kleine-Tebbe
THTR-Projekt; Berücksichtigung unelastischer Anteile beim Stoß zweier Kugeln
BBC/Krupp Arbeitsbericht V 69/111, 12.6.1969
- /38/ A. Kleine-Tebbe
THTR-Projekt; Berechnung des scheinbaren Elastizitätsmoduls von Brennelementen aus den Bestrahlungsexperimenten JK 2 und JK 3
BBC/Krupp Arbeitsbericht V 69/146, 5.8.1969
- /39/ B. Heinrich
Korrosionsverhalten bestrahlter BE
HRB-THTR Versuchsbericht VB E II-73/42, AZ 244/250 i.A. 3342, 13.3.73
- /40/ B. Heinrich, R. Weimann
Korrosionsverhalten bestrahlter BE (DR-K3)
HRB-THTR Versuchsbericht E II-74/22, AZ 244/220/0244 i.A.3667, 13.3.74
- /41/ B. Heinrich
Einfluß des Inertgases bei der Messung von Grafitoxidationsraten
BBC/Krupp Arbeitsbericht V 71/122, 3.8.1971
- /42/ B. Heinrich, R. Weimann
Korrosionsraten von Brennelementen der 13. bis 28. AVR-Probeentnahme "Spaltproduktanalyse"
HRB Arbeitsbericht E II-74/25, 15.3.1974
- /43/ H. Jauer, B. Heinrich
Grafitkorrosion im THTR
HRB Arbeitsbericht EI.2-73/7, 29.1.1973
- /44/ Ch. Bauer, F.J. Hoengen
Untersuchungen zum Pellkartoffeleffekt. AFB-Falltest mit Zwischenprüfungen
IRW-IN-16/74, Febr. 1974
- /45/ P.D. Good, P. Giles
Post Irradiation Annealing Measurements of Fission Gas Release from KFA Fuel Elements TD3/DR-K3
DRAGON-Notiz, 12.10.1972

- /46/ W. Schenk
Spaltgas-Ausheiztest DR-K3
IRW-TN-80/74, 14.11.1974
- /47/ W. Burck, H. Ragoß
Versuche zum Berstverhalten bestrahlter beschichteter Brennstoffteilchen
(- Partikelberstversuche -, 1. Mitteilung)
IRW-TN-49/74, Aug. 1974
- /48/ G. Falta, P. Patek, G. Reitsamer, G. Stolba, F. Pichlmayer
Nachbestrahlungsuntersuchungen am Experiment DR-K3, Kugel 5
SGAE-Ber. No. 2549, CH-177/75, Dez. 1975