

**SPANNUNGSANALYSE AN BESCHICHTETEN
BRENNSTOFFTEILCHEN ZUR BESTIMMUNG
IHRES ABBRANDVERHALTENS IM HOCHTEMPERATURREAKTOR**

K. BONGARTZ,

Institut für Reaktorwerkstoffe, Kernforschungsanlage Jülich, Jülich, Germany

ABSTRACT

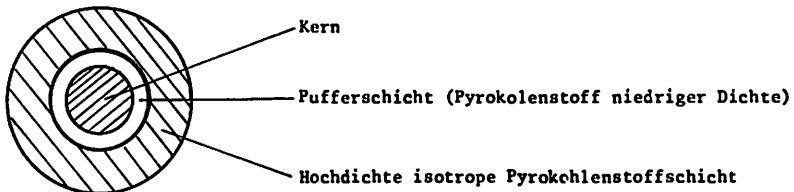
Stresses are induced into the coatings of a spherical coated fuel particle in a HTR mainly by dimensional changes of the material caused by the fast neutron flux and by fission gas pressure and swelling of the fuel material caused by burnup. By these stresses the lifetime of the fuel in the reactor is limited. Using a model established by H. Walther (SORIN) the lifetime of a multilayer particle for a power reactor was calculated. The calculation results indicate how the lifetime depends on the geometry of such a particle. Furthermore the results of an irradiation test with practically no burnup was compared with the calculation result. This led to an understanding of the mechanisms induced by the fast dose which most probably should have caused the desintegration of the particle in the test.

1. Zweck der Modellrechnung zur Spannungsanalyse

Viele mit coated particle-Brennstoff für Hochtemperaturreaktoren durchgeführte Bestrahlungen deuten darauf hin, daß mechanische Effekte, d.h. Spannungen, die sich im Laufe der Bestrahlung im Teilchen ausbilden und zu Risßbildung führen können, sein Verhalten im Reaktor wesentlich beeinflussen können. Daher wurden von Prados und Scott [1] und Kaae [2] Modelle entwickelt, um solche Spannungen zu berechnen. Das von Herrn Dr. Walther [3] aufgestellte Modell ist eine Erweiterung derselben und seiner Anwendungsmöglichkeit wesentlich vielseitiger.

2. Allgemeines über Rechenmodelle zur Spannungsanalyse

Ein beschichtetes Brennstoffteilchen im Hochtemperaturreaktor hat im allgemeinen einen porösen Kern, der den Brennstoff enthält, z.B. in Form von $(U,Th)O_2$. Sein Durchmesser liegt je nach Reaktorkonzept zwischen 250 und 800 (μ m). Dieser Kern ist von einer Beschichtung umgeben.



Die Beschichtung besteht im einfachsten Fall aus einer porösen Pyrokohlenstoffschicht, der sog. Pufferschicht und einer hochdicht isotropen Pyrokohlenstoffschicht, PyC-HDI genannt. Der Sinn dieser Beschichtung ist es, die während des Abbrandes entstehenden Spaltprodukte möglichst weitgehend im Brennstoffteilchen zurückzuhalten. Die Porosität im Kern und in der Pufferschicht dient zur Aufnahme der Spaltgase, ebenfalls soll sie das Schwellen des Kernmaterials, welches durch den Abbrand verursacht wird, auffangen. Die hochdichte isotrope Außenschicht (PyC-HDI) dient als Druckkessel für die Spaltgase, ebenfalls ist sie eine Diffusionsbarriere für die metallischen Spaltprodukte und den Brennstoff im Kern.

Eine Ursache für Versagen der Teilchen im Reaktor ist Risßbildung in der Außenschicht infolge zu hoher Tangentialspannungen. Bei Auftreten eines solchen Risses oder gar Abplatzen der Schicht würden die bis dahin zurückgehaltenen Spaltstoffe zu einem großen Teil aus dem Teilchen freigesetzt, und könnten durch die Graphitmatrix, in welche die Teilchen normalerweise verpreßt sind, sowie die Graphit-Strukturteile des Brennelementes in das Kühlgas des Reaktors gelangen.

Die Spannungen in der Beschichtung des Teilchens werden im wesentlichen durch folgende Mechanismen erzeugt:

- 1) Durch den Spaltgasdruck innerhalb der hochdichten Außenschicht.
- 2) Durch das Schwellen des Kerns.
- 3) Durch Dimensionsänderungen der PyC-HDI Schicht, die durch den schnellen Neutronenfluß

induziert werden. Diese Dimensionsänderungen setzen sich wiederum zusammen:

- a) aus Schrumpfen bzw. Schwellen der Schicht in tangentialer bzw. radialer Richtung (siehe Abbildung 1). Die Schicht hat die Eigenschaft im spannungsfreien Zustand in tangentialer und radialer Richtung zu schrumpfen, ab einer Neutronendosis von etwa oberhalb 5×10^{21} (nvt) dehnt sie sich dagegen in radialer Richtung aus.
- b) aus Kriechen der Schicht, welches bei Vorhandensein von Spannungen auftritt.

Um über die Lebensdauer von beschichteten Teilchen im Reaktor Voraussagen machen zu können, wurden die mathematisch physikalischen Modelle entwickelt. Man will die Spannungen berechnen, die durch die genannten Effekte verursacht werden und zu Rißbildung der Beschichtung führen können. Die Modelle setzen Kugelsymmetrie der Teilchen voraus und berücksichtigen nur mechanische Effekte.

Wesentliche Materialeigenschaften, die in ein solches Modell eingehen, sind, in der Reihenfolge ihrer Bedeutung:

- 1) Schrumpfen bzw. Schwellen des PyC-HDI
- 2) Kriechen des PyC-HDI
- 3) Anisotropie des PyC-HDI. Diese geht über die gemessenen Daten für das Schrumpfen bzw. Schwellen des Materials, welche stark von der Anisotropie abhängen, ein. In gleicher Weise geht die Dichte des Materials ein.
- 4) Zerreißfestigkeit des PyC-HDI
- 5) Schwellen des Kernmaterials
- 6) Elastizitätsmodul der verschiedenen Zonen des Teilchens
- 7) Thermische Ausdehnung der verschiedenen Materialien.

Für die in die Modelle eingehenden Daten sind momentan keine genauen Werte sondern Bereiche bekannt. Dies liegt einerseits an meßtechnischen Schwierigkeiten und andererseits an der Tatsache, daß die Materialien noch nicht streng reproduzierbar herzustellen sind. Daher sollte man vom Modell noch keine qualitativ genauen Ergebnisse erwarten, außerdem läßt sich eine im Modell gemachte Voraussetzung, nämlich Kugelsymmetrie der Teilchen, in der Praxis nicht streng realisieren.

In Amerika hat man viele Teilchensorten, die bis zu verschiedenen Abbränden bestrahlt worden waren, mit einem Rechenmodell nachgerechnet und anschließend den im Test erzielten Abbrand mit dem vom Modell vorhergesagten verglichen.

In der Abbildung 2 ist auf der Abszisse der nach dem Modell berechnete und auf der Ordinate der im Test erzielte Abbrand aufgetragen. Die Diagonale trennt den linken oberen Bereich, wo nach dem Modell Versagen zu erwarten wäre, vom rechten unteren Bereich, wo die Teilchen nach dem Modell überleben sollten. Die offenen Marken bezeichnen Überleben der Teilchensorte im Test, die geschlossenen Marken Versagen. Es sind hier hohe Abbrände untersucht worden, was mit den amerikanischen Reaktorkonzepten zusammenhängt. Wir haben uns dagegen bisher nur für Abbrände von 10-15 % (fima) interessiert.

Mann entnimmt der Abbildung, daß die Teilchensorten, die im Test versagt haben, vorwiegend in demjenigen Teil des Plots liegen, wo dies nach dem Rechenmodell zu erwarten ist. Mit den Teilchensorten, die den Test überdauert haben, verhält es sich analog.

Dieser Darstellung entnimmt man, daß dem Modell eine gewisse Aussagekraft zukommt. Wenn es auch noch keine quantitativ richtigen Aussagen machen kann, so sollte es doch geeignet sein, Trends im Teilchenverhalten aufzuzeigen: z.B. wie ändert sich die Lebensdauer, wenn man den Durchmesser oder die Porosität des Kerns ändert, bzw. die Dicken oder die Materialeigenschaften der einzelnen Schichten des coatings. Das Modell wurde daher bei Dragon und KFA Jülich bis jetzt im wesentlichen dazu benutzt, Anhaltspunkte zu geben, wie man die Teilchen optimieren kann.

Übergang von einem Teilchen mit einer PyC-Beschichtung zu einem solchen mit Siliziumkarbid-Zwischenschicht.

Man nimmt an, daß Siliziumkarbid (SiC) ein wesentlich besseres Rückhaltevermögen bezüglich fester Spaltprodukte haben sollte als PyC. Man hat daher Teilchen entwickelt, die eine SiC-Zwischenschicht haben, die in die äußere hochdichte PyC-Schicht eingelagert ist. Für ein solches komplexes Teilchen wurde von Herrn Dr. Walther (SORIN) ein erweitertes Modell entwickelt. Für die Berechnung eines solchen Teilchens benötigt man außer den bisher genannten Materialdaten auch noch diejenigen für SiC, die aber nicht so stark in das Modell eingehen, da SiC relativ formstabil ist. Auch das erweiterte Modell erweist sich in der Anwendung auf SiC-beschichtete Partikel als leistungsfähig. Dies zeigt die Nachrechnung von zwei Bestrahlungstests, die sich, wenn man sie in den Plot einträgt, richtig einordnen.

3. Einige Ergebnisse von Optimierungsrechnungen

An Teilchen mit SiC-Zwischenschicht wurden mit dem Modell von Dr. Walther Optimierungsrechnungen vorgenommen. Als Kriterium für die Lebensdauer des Teilchens wurde Reißen der SiC-Schicht angenommen und als Zerreißspannung des SiC 0 bzw. 3500 kp/cm^2 . Da das Modell nur qualitative Ergebnisse liefern kann, wurde die berechnete Lebensdauer bei Variation eines Parameters immer ausgedrückt in Prozent bezogen auf die Lebensdauer des Standardteilchens. Als Beispiel sei hier ein Diagramm angeführt, das die Lebensdauer eines Teilchens in Abhängigkeit von der Dicke seiner Pufferschicht wiedergibt, Abbildung 3. Man sieht eine starke Zunahme der Lebensdauer mit zunehmender Dicke der Pufferschicht. Die folgende Abbildung 4 zeigt die Lebensdauer in Abhängigkeit von der Dicke der SiC-Schicht. Hier erscheint die Abhängigkeit innerhalb von Dickenbereichen, die technisch interessant sind, geringfügig. Bei Variation der Dicken der inneren und äußeren PyC-Schicht zeigt die Modellrechnung ebenfalls nur eine geringfügige Abhängigkeit. Weiterhin zeigt die Modellrechnung, daß die Lebensdauer stark abhängt vom Kernradius und seiner Porosität. Sie nimmt zu mit kleiner werdendem Radius und zunehmender Porosität.

4. Interpretation von Bestrahlungstests mit der Modellrechnung

In einem Dounreay-Bestrahlungstest mit sehr hoher schneller Dosis ($160 \times 10^{20} \text{ nvt}$, $E > 0,1 \text{ Mev}$) und vernachlässigbar kleinen Abbrand, wurden u.a. Teilchen mit SiC Zwischenschicht bestrahlt. An diesem Test ließen sich die von der schnellen Dosis allein induzierten Effekte besonders gut untersuchen. Es sind dies im wesentlichen Effekte, die durch die dosisinduzierten Längenänderungen des PyC-HDI hervorgerufen werden. Der Spaltgasdruck und das Schwellen des Kernmaterials sind dabei vernachlässigbar klein. Der Test ergab, daß bei

den Teilchen mit SiC Zwischenschicht die Beschichtung vollkommen gerissen oder von den Kernen abgeplatzt war. Der Verlauf der Maximalspannungen in den beiden PyC-HDI-Schichten sowie der SiC-Zwischenschicht dieses Teilchens in diesem Test wurde mit dem Modell des Herrn Dr. Walther nachgerechnet. Es ergab sich folgendes Bild:

Zu Beginn der Bestrahlung besteht ein Spalt zwischen Kern und Pufferschicht, der von der Fabrikation herrührt. Die Pufferschicht verdichtet sich zur theoretischen Dichte und reißt. Nach einer bestimmten schnellen Dosis reißt die innere PyC-HDI-Schicht. Diese Schicht ist danach spannungsfrei, sie hat die Eigenschaft, in diesem Zustand in radialer Richtung zu schwellen. Dadurch wird der Spalt zwischen Kern und Beschichtung bald geschlossen.

Da der Kern jetzt mit der Beschichtung gekoppelt ist, wird durch das weitere Schwellen der PyC-HDI-Schicht die SiC-Schicht so stark unter Zugspannung gesetzt, daß sie augenblicklich reißt und mit ihr die äußere PyC-HDI-Schicht.

Diese These wurde durch ein später ausgewertetes Dounreay Experiment, bei welchem die Teilchen bis zu verschiedenen Dosiswerten bestrahlt worden waren, erhärtet. Die Abbildung 5 zeigt Schliffbilder von Teilchen, die bis zu verschiedenen Dosiswerten bestrahlt sind. Bild a) zeigt ein Teilchen mit geringerer Dosis, bei welchem die innere Schicht noch intakt ist. Man sieht, der Spalt zwischen Kern und Pufferschicht ist noch vorhanden. Das Teilchen auf Bild b) hat eine etwas höhere Dosis, hier ist das innere PyC-HDI gerissen und radial bereits so stark geschwollen, daß der Spalt zwischen Puffer und Kern geschlossen ist. Auf dem letzten Bild c), welches ein Teilchen mit noch höherer Dosis zeigt, sieht man, wie das SiC durch den Druck, den die weiterhin schwellende PyC-HDI-Schicht ausübt, gerissen ist.

Man kann aus diesem Experiment in Verbindung mit der Rechnung schließen, daß ein aus Methan abgeschiedenes PyC-HDI niedriger Dichte wahrscheinlich günstiger wäre, da es weniger schrumpft in tangentialer Richtung und daher auch nicht so schnell reißt. Das spannungsfreie radiale Schwellen würde damit verhindert. Eine zweite Möglichkeit wäre, anstelle des bisher üblichen PyC-HDI, welches aus Methan abgeschieden ist, solches zu verwenden, welches aus Propylen abgeschieden ist, da nach unserem bisherigen Wissen letzteres formstabiler ist und daher weniger schnell schrumpft und infolgedessen nicht so schnell reißt.

Literatur:

1. J.W. Prados, J.L. Scott, "Mathematical Model for predicting coated particles Behaviour," Nucl. Appl., 2. Oktober 1966.
2. J.L. Kaae, "A Mathematical Model for calculating Stress in a pyrocarbon - an Silicon Carbide-Coated fuel particle", GA-8563
3. H. Walther, "Stress Analysis in Coated fuel particles - Theory and Examples," D.P. Report 604, Part. 1

1. Strahleninduzierte Dimensionsänderungen für PyC-HDI im spannungsfreien Zustand.

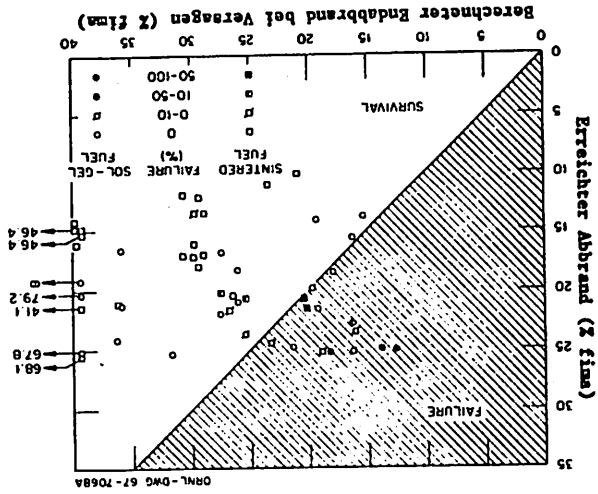
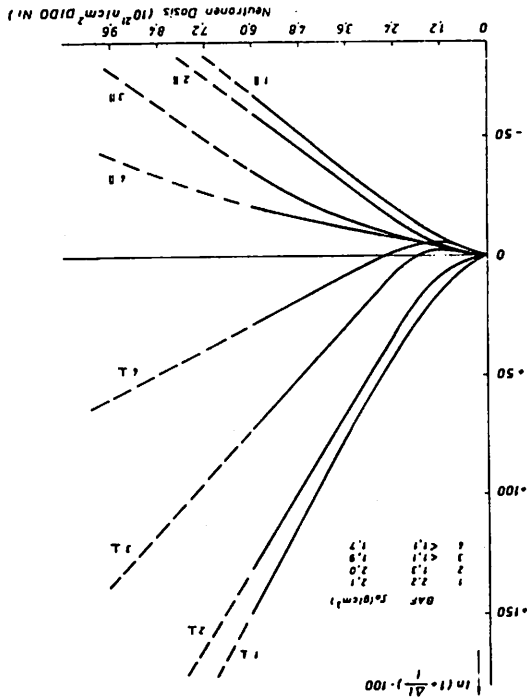
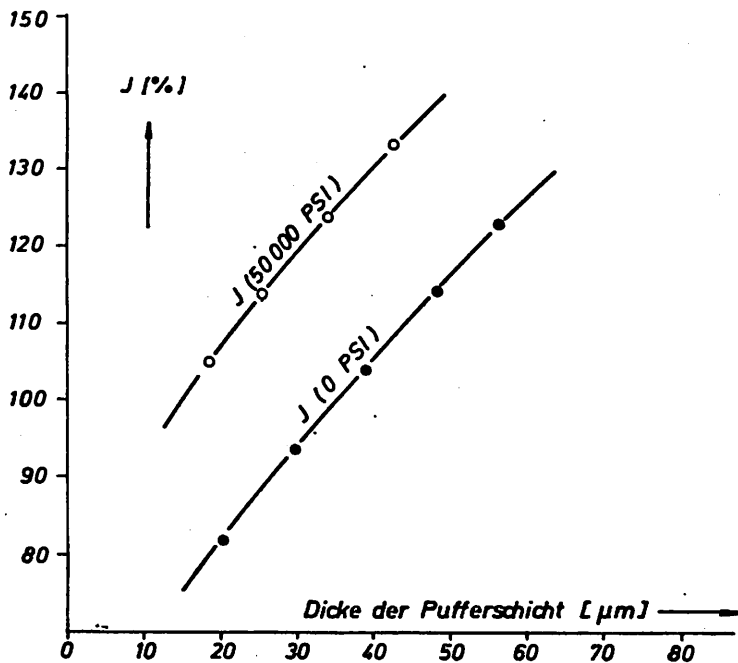
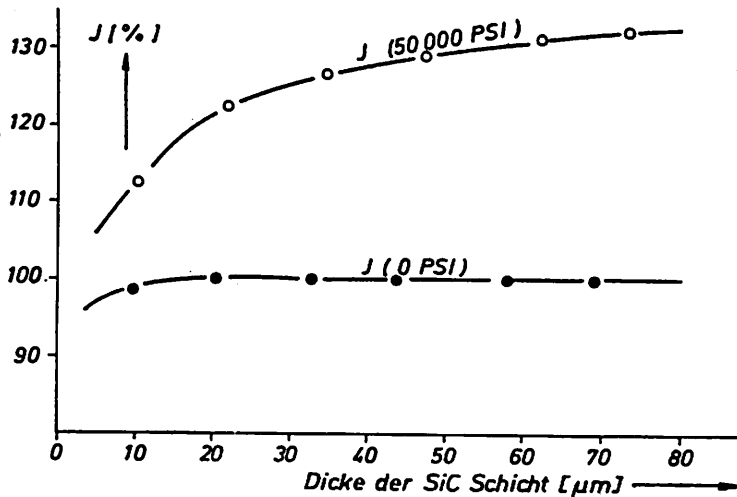


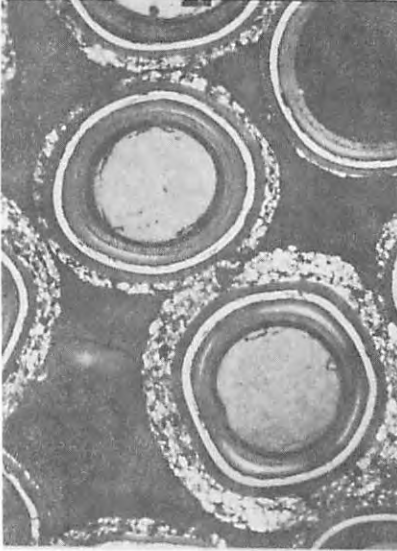
Abb. 2 Vergleich von im Test erzieltem Abbrand mit dem von der Rechnung vorhergesagtem.



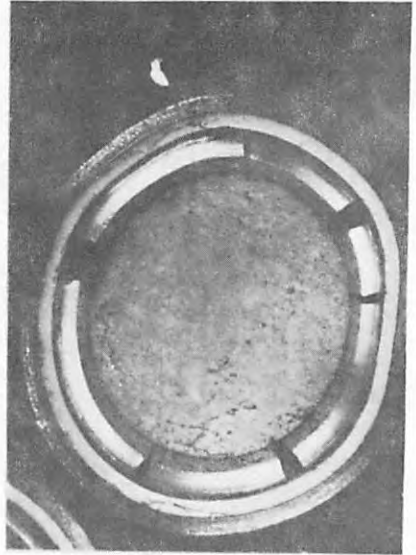
3. Relative Lebensdauer J berechnet für ein beschichtetes Brennstoffteilchen. Die Dicke der Pufferschicht ist variiert. Zerreiβfestigkeit des SiC: 0 bzw. 50000 psi



4. Relative Lebensdauer J berechnet für ein beschichtetes Brennstoffteilchen. Die Dicke der SiC-Schicht ist variiert. Zerreiβfestigkeit des SiC: 0 bzw. 50000 psi

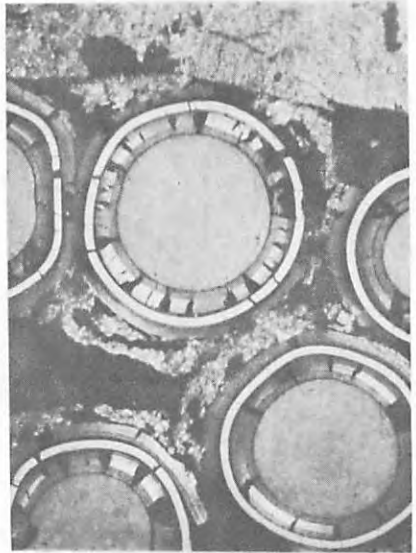


a) Bestrahlungstemperatur 900°C
Schnelle Dosis $3 \cdot 10^{21}$ [nvt Dido-Ni]



b) Bestrahlungstemperatur 800°C
Schnelle Dosis $4 \cdot 10^{21}$ [nvt Dido-Ni]

Abb. 5 Schliffbilder von beschichteten Brennstoffteilchen mit SiC Zwischenschicht



c) Bestrahlungstemperatur 1100°C
Schnelle Dosis $5 \cdot 10^{21}$ [nvt Dido-Ni]

DISCUSSION

H. WALTHER, Italy

Q

I know from one of your reports that you made calculations on the experimental results of Fig. 5 showing the consecutive failure of the coating layers of a particle observed as function of the dose. Could you comment somewhat more on the agreement between calculated and experimental results ?

K. BONGARTZ, Germany

A

With the model calculation the maximum tangential stresses in each layer of the particle were calculated as a function of fast dose. The agreement between calculation and test result lies mainly in the following features :

1. The inner PyC-HDI layer breaks at a dose value below the end dose reached in the test and so comes into an unrestrained state.
2. The calculation predicts that by the swelling of the inner PyC-HDI in radial direction which starts after breakage a coupling of the coating with the kernel is reached soon afterwards.
3. The calculation indicates that the continuing swelling of the inner PyC-HDI induces a high and rapidly increasing tangential stress into the SiC layer. Therefore the SiC will break quickly. Its rupture stress is not very important as the tangential stresses induced by the broken inner layer increase very fast with dose.

The calculation in connection with the test results shows a way to avoid this kind of failure: this would be the application of an inner PyC-HDI of lower density which shrinks less and therefore probably would not break. The application of a propylene deposited PyC-HDI layer might also be better, because it seems to be more dimensionally stable.

J. L. HEAD, U. K.

Q

Could you explain the mechanism by which many tangential cracks develop in the various layers. (These cracks are shown clearly in one of the slides.) Why is the tangential stress not released fully by the development of the first crack ?

K. DRITTLER, Germany

A

Around a crack the stresses are changed. These compensation stresses decrease with the distance from the crack center at least in the form of one divided by the distance to the third. Now, the lengths of the discussed cracks are small compared to the particle radius. Therefore, the influence region is small compared to the particle volume. From this it follows that at a certain distance from the crack the stresses are approximately like the ones without the crack. At this location a new crack will be produced. This mechanism leads to a lot of cracks all over the layer.

Q R. HAUSERMANN, Switzerland

1. What is the actual scatter of the material properties under irradiation ? Values of strain changes scatter by at least of ~ 20%.
2. What are the methods by which you determine the actual irradiation temperature and doses for the samples ?
3. Does not the shape of the sample influence the test results for graphite irradiation ?
4. Is it not most appropriate to concentrate all the calculations on sensitivity analysis to find the trend and influence of each material parameter ?

A K. BONGARTZ, Germany

1. 2. 4.

Measurement of the material data was not done by me, precise values of scatter for the most relevant data cannot be given. I have done the calculation with the model using the material data I had at hand. Previous parametric studies with variation of material data showed that the scatter in data influence the results of calculations such that absolute values for the particles lifetime are not yet obtainable. Therefore the model was up to now, as is said in the paper, used for optimising the geometry of the coated particles. It was also used for comparing results of irradiation tests with model calculation results. In most cases good qualitative agreement could be seen.

3.

The most relevant data : creep and unrestrained dimensional changes of the PyC-HDI can up to now only be measured on plane specimens. PyC-HDI deposited on plane discs together with coated particles in a fluidized bed should not differ too much from the PyC-HDI on the coated particles.