

5)

Int. Cl.: G 21 c, 3/20

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



52)

Deutsche Kl.: 21 g, 21/20

7
6

10)

Auslegeschrift 1 639 249

11)

21)

Aktenzeichen: P 16 39 249.7-33 (G 52646)

22)

Anmeldetag: 13. März 1968

43)

Offenlegungstag: 4. Februar 1971

44)

Auslegungstag: 19. April 1973

Ausstellungspriorität: —

30)

Unionspriorität

32)

Datum: —

33)

Land: —

31)

Aktenzeichen: —

54)

Bezeichnung: Kernreaktor-Brennelement und
Verfahren zu seiner Herstellung

61)

Zusatz zu: —

62)

Ausscheidung aus: —

71)

Anmelder: Gesellschaft für Kernenergieverwertung in Schiffbau und
Schiffahrt mbH, 2000 Hamburg

Vertreter gem. § 16 PatG: —

72)

Als Erfinder benannt: Spalthoff, Werner, Dr.; Wilhelm, Heinrich, Dipl.-Ing.; 2057 Geesthacht

56)

Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht gezogene Druckschriften:

FR-PS 1 412 545

GB-PS 842 317

GB-PS 1 010 901

GB-PS 1 084 750

US-PS 3 141 830

2

Nummer: 1 639 249
Int. Cl.: G 21 c, 3/20
Deutsche Kl.: 21 g, 21/20
Auslegung: 19. April 1973

Rohrförmige Brennstäbe

Abb. 1

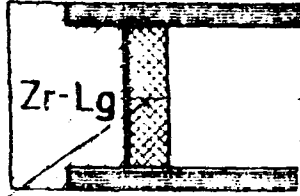
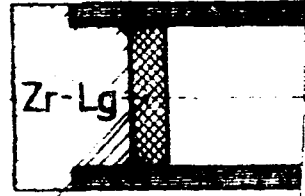
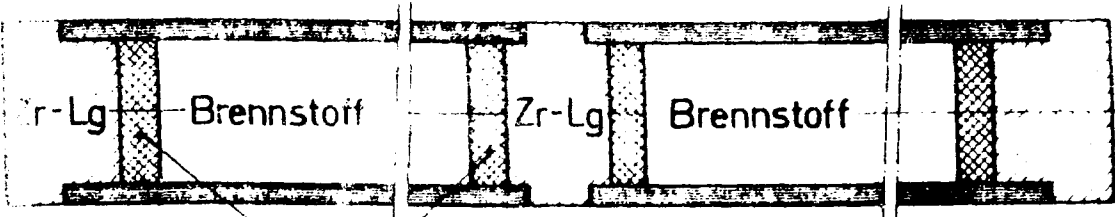


Abb. 2



Wasserstoffaufnahme

Abb. 3



Wasserstoffaufnahme

Abb. 4

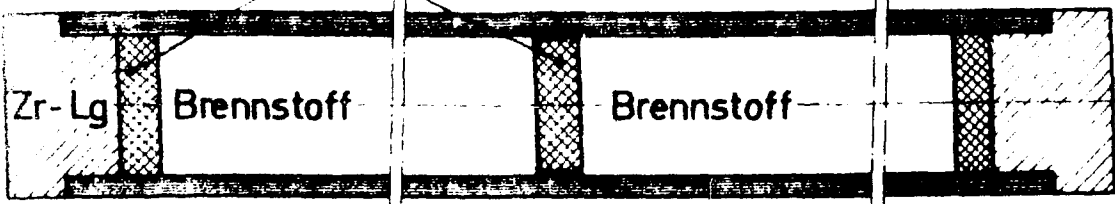
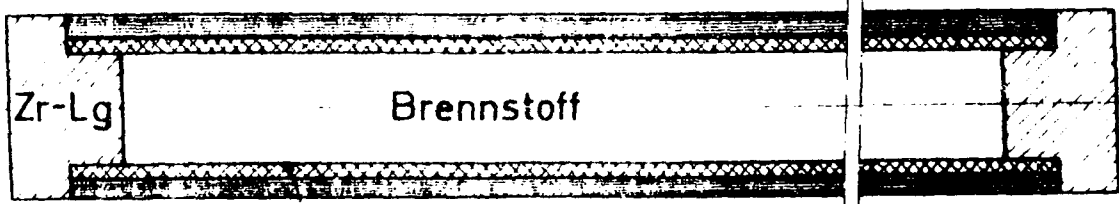


Abb. 5



Wasserstoffaufnahme

Abb. 6



Patentansprüche:

1. Kernreaktor-Brennelement mit einem den Kernbrennstoff umgebenden Außenmantel aus einer Zirkonbasislegierung, das innerhalb des Außenmantels zusätzlich einen Stoff enthält, der in der Lage ist, Wasserstoff zu binden, dadurch gekennzeichnet, daß der Wasserstoff bindende Stoff aus Yttrium, Cer oder einem anderen seltenen Erdmetall oder aus einer Legierung auf der Basis dieser Stoffe besteht und fest mit der Innenseite des Außenmantels verbunden ist.

2. Brennelement nach Anspruch 1 mit einem rohrförmigen Außenmantel, welcher gestapelte Brennstoffpellets umschließt und mit Endstopfen verschlossen ist dadurch gekennzeichnet, daß das fest mit der Innenseite des Außenmantels verbundene, Wasserstoff bindende Material an den Endstopfen des Mantelrohres angeordnet und mit diesem fest verbunden ist.

3. Brennelement nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Wasserstoff bindende Material auch zwischen den Brennstoffpellets angeordnet ist.

4. Verfahren zur Herstellung eines Brennelementes nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß das Wasserstoff bindende Material auf die Innenseite des Außenmantels bzw. der Endstopfen durch Schmelz- oder Diffusionsverschweißung aufgebracht wird.

5. Verfahren zur Herstellung eines Brennelementes nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß das Wasserstoff bindende Material auf die Innenseite des Außenmantels bzw. der Endstopfen galvanisch oder chemisch aufgetragen oder aufgespritzt wird.

Die Erfindung betrifft ein Kernreaktor-Brennelement mit einem den Kernbrennstoff umgebenden Außenmantel aus einer Zirkonbasislegierung, das innerhalb des Außenmantels zusätzlich einen Stoff enthält, der in der Lage ist, Wasserstoff zu binden, und außerdem ein Verfahren zur Herstellung eines solchen Brennelementes. Das Wasserstoff bindende Metall, nachfolgend auch Wasserstoffaufnehmer genannt, ist dadurch gekennzeichnet, daß seine Wasserstoffaffinität größer ist als die von Zirkon und seinen Legierungen. In anderer, thermodynamischer Ausdrucksweise heißt dies, daß im Wasserstoffaufnehmer die partielle molare freie Enthalpie des Wasserstoffs kleiner ist als in Zirkon und seinen Legierungen.

Die partielle molare freie Enthalpie des Wasserstoffs in einem Metall kann aus Zersetzungsdruckmessungen an dem betreffenden Metall-Wasserstoffsystem ermittelt werden. Unsere Untersuchungen zeigten, daß als Wasserstoffaufnehmer bei Zirkonlegierungen im Temperaturbereich 20 bis 500° C, wie er in mit Wasser oder mit organischen Flüssigkeiten gekühlten Reaktoren interessiert, hauptsächlich Yttrium oder andere seltene Erdmetalle in Frage kommen.

Obgleich bekanntermaßen Zirkon eine sehr hohe Wasserstoffaffinität besitzt, ist es mit den oben genannten Wasserstoffaufnehmern bei Herstellung eines geeigneten metallischen Überganges möglich, den in

Bauteilen aus Zirkonlegierungen vorhandenen Wasserstoff bis auf geringe Reste abziehen und fest zu binden. Der Wasserstoff wandert dabei durch Festkörperdiffusion in den Wasserstoffaufnehmer, geht dort zunächst in Lösung und scheidet sich bei höherer Konzentration als Hydrid aus.

Unter den bekannten gasaufnehmenden Metallen nehmen Yttrium und die anderen seltenen Erdmetalle eine Ausnahmestellung ein, die noch dadurch unterstrichen wird, daß die sonst gebräuchlichen gasaufnehmenden Metalle wie Titan, Hafnium, Vanadin, Niob, Tantal, Thorium oder Uran auf Grund ihrer zu geringen Wasserstoffaffinität als Wasserstoffaufnehmer in Verbindung mit Zirkonlegierungen nicht in Frage kommen.

Der derzeitige Stand der Technik kann wie folgt beschrieben werden:

Für die Lebensdauer der Brennstoffumhüllung aus Zirkonlegierungen in mit Wasser oder mit organischen Flüssigkeiten gekühlten Reaktoren ist neben dem Materialverlust durch den Korrosionsangriff des Kühlmittels vor allem die Versprödung durch den aufgenommenen Wasserstoff maßgebend. Die Gefahr eines Aufreißen oder Undichtwerdens der Umhüllung wächst beträchtlich, wenn es zur Ausscheidung von Hydriden im Hüllmaterial kommt. Die bisherigen Methoden, die Wasserstoffversprödung zu beeinflussen, sind folgende:

1. Verwendung einer Schutzschicht zwischen Hüllmaterial und Kühlmittel,
2. Begrenzung der schädlichen Verunreinigungen im Kühlmittel und
3. Veränderung der Zusammensetzung und des Zustandes des Hüllmaterials.

Bei den bisher gebauten und geplanten Landreaktoren ist es üblich, die Kernladung in Abständen von 2 bis 4 Jahren zu wechseln. Im Bereich dieser Brennelementstandzeiten ist die Beherrschung der Wasserstoffversprödung mit den genannten Methoden möglich. Bei Schiffsreaktoren ist jedoch aus wirtschaftlichen Gründen eine wesentlich längere Standzeit der Brennelemente notwendig, und auch bei Landreaktoren besteht die Tendenz zu längeren Brennelementstandzeiten und höheren Kühlmitteltemperaturen.

Die Wasserstoffversprödung ist dabei mit den bisherigen Methoden nicht mehr zu beherrschen.

Es ist bereits die Methode bekannt, die Wasserstoffversprödung in Druckrohren aus Zirkonlegierungen in mit Wasser oder mit organischen Flüssigkeiten gekühlten Reaktoren vom Druckrohrtyp dadurch zu beeinflussen, daß auf der Außenseite der Druckrohre Rippen aus dem gleichen Material wie dem der Druckrohre angeschweißt werden (kanadische Patentschrift 805 850). Da die Rippen sich bei Reaktorbetrieb auf tieferer Temperatur als die Druckrohre befinden, sammeln sich in ihnen die Hydridausscheidungen bevorzugt an. Diese Methode ist auf Brennelementumhüllungen jedoch nicht übertragbar, da sich der notwendige Temperaturunterschied nicht herstellen läßt.

Weiterhin ist ein Brennelement bekannt, bei dem die Endstopfen, welche die Brennstoffumhüllung an beiden Enden abschließen, mit nach innen offenen Hohlräumen versehen sind, in die in lockerer Form ein gasaufnehmendes Metall eingebettet ist (USA.-Patentschrift 3 141 830). Bei diesem Brennelement werden nur die im Innern des Brennelementes vor-

handenen Gase durch das gasaufnehmende Metall gebunden. Dagegen kann weder von innen noch der durch den Korrosionsangriff des Kühlmittels von außen in die Brennelementhülle eingedrungene Wasserstoff wieder daraus entfernt werden, weil der metallische Übergang zum gasaufnehmenden Metall fehlt und außerdem bei längeren Brennelementen der Diffusionsweg zu den Endstopfen für den Wasserstoff zu lang ist.

Es wurde ferner ein Brennelement vorgeschlagen, das innerhalb der Brennstoffumhüllung ein gasaufnehmendes Material, unter anderem Cer, enthält, welches durch Aufnahme der aus dem Brennstoff beim Erhitzen freiwerdenden Gase den Gasdruck im Innern des Elementes kleiner als den Außendruck halten soll (britische Patentschrift 842 317). Es soll dadurch ein guter thermischer Kontakt zwischen Brennstoff und Hülle gewahrt werden. Entsprechend der andersartigen Zielsetzung dieses Brennelementvorschlages fehlt auch hier die metallische Verbindung zwischen dem gasaufnehmenden Material und der Brennelementhülle, welcher notwendig ist, um den in die Hülle eingedrungenen Wasserstoff daraus wieder zu entfernen.

Es sind weiterhin zwei Brennelemente bekannt, bei denen die Brennstoffumhüllung auf ihrer Innenseite mit einer Metallschicht versehen ist. Bei dem einen Element soll die Metallschicht als Diffusionssperre den Austritt von Plutonium aus dem Brennelement verhindern, während bei dem anderen Element die Schicht durch teilweises Eindiffundieren in Brennstoff und Hülle eine gute thermische Verbindung zwischen diesen beiden herstellen soll (französische Patentschrift 1 412 545 und britische Patentschrift 1 084 750). In beiden Fällen besitzen die Metalle oder Metallegierungen, welche für die Schicht vorgeschlagen werden, eine wesentlich geringere Wasserstoffaffinität als Zirkon und seine Legierungen, und sie vermögen daher nicht den Wasserstoff aus einer Brennstoffumhüllung aus Zirkon oder einer Zirkonlegierung zu entziehen.

Der vorliegenden Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde die Ausscheidung von Zirkonhydriden in Brennstoffumhüllungen aus Zirkonlegierungen während der gesamten Betriebszeit zu verhindern und damit längere Brennelementstandzeiten und höhere Kühlmitteltemperaturen als bisher zu ermöglichen. Zu diesem Zweck ist ein Kernreaktor-Brennelement der einleitend genannten Art

erfindungsgemäß dadurch gekennzeichnet, daß der wasserstoffbindende Stoff aus Yttrium, Cer oder einem anderen seltenen Erdmetall oder aus einer Legierung auf der Basis dieser Stoffe besteht und fest mit der Innenseite des Außenmantels verbunden ist.

Die erforderliche gute metallische Verbindung des Wasserstoffaufnehmers mit der Brennstoffumhüllung kann durch eine herkömmliche Schmelzschweißung nach dem Argon-Arc oder Heli-Arc oder nach dem Preßschweißverfahren hergestellt werden oder dadurch, daß das wasserstoffaufnehmende Metall galvanisch oder chemisch aufgetragen oder nach einem herkömmlichen Verfahren aufgespritzt wird.

Weitere Einzelheiten der Erfindung ergeben sich aus der nachfolgenden Beschreibung und den Zeichnungen, in denen bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung beispielsweise veranschaulicht sind.

Abb. 1 zeigt einen rohrförmigen Brennstab, bei dem der Wasserstoffaufnehmer mit dem Hüllrohr-Endstopfen diffusionsverschweißt ist, während in

Abb. 2 eine Schmelzschweißung in Ragnahftform angewandt wurde;

Abb. 3 zeigt eine abgewandelte, insbesondere für längere Brennstäbe geeignete Anordnung des Wasserstoffaufnehmers, bei der die Brennstoff-Säule ein- oder mehrmals durch einen doppelseitigen Endstopfen mit je zwei Wasserstoffaufnehmern unterbrochen ist;

Abb. 4 zeigt das gleiche Prinzip wie Abb. 3, jedoch ohne zwischengeschaltete doppelseitige Endstopfen, da die zwischengeschalteten Wasserstoffaufnehmer mit der Hüllrohrwand direkt verschweißt oder verlötet sind.

Eine andere Form des Einbauprinzips für Wasserstoffaufnehmer ist in Abb. 5 dargestellt. Hier wird ein äußeres Rohr (Zr-Legierung) mit einem inneren Rohr (Wasserstoffaufnehmer) preßverschweißt (Coextrusion).

Die gleiche geometrische Anordnung des Wasserstoffaufnehmers gibt Abb. 6 wieder. Jedoch ist hier das wasserstoffaufnehmende Material auf die Innenseite des Hüllrohres galvanisch oder chemisch aufgetragen oder aufgespritzt.

Das Einbauprinzip des Wasserstoffaufnehmers bei Plattenelementen zeigen die Abb. 7 bis 9. Hierbei ist der Wasserstoffaufnehmer jeweils in einer der drei geometrischen Richtungen zwischen Brennstoff und Rahmen bzw. Plattierung angeordnet.

Hierzu 1 Blatt Zeichnungen



Brennstoffplatten

Abb. 7

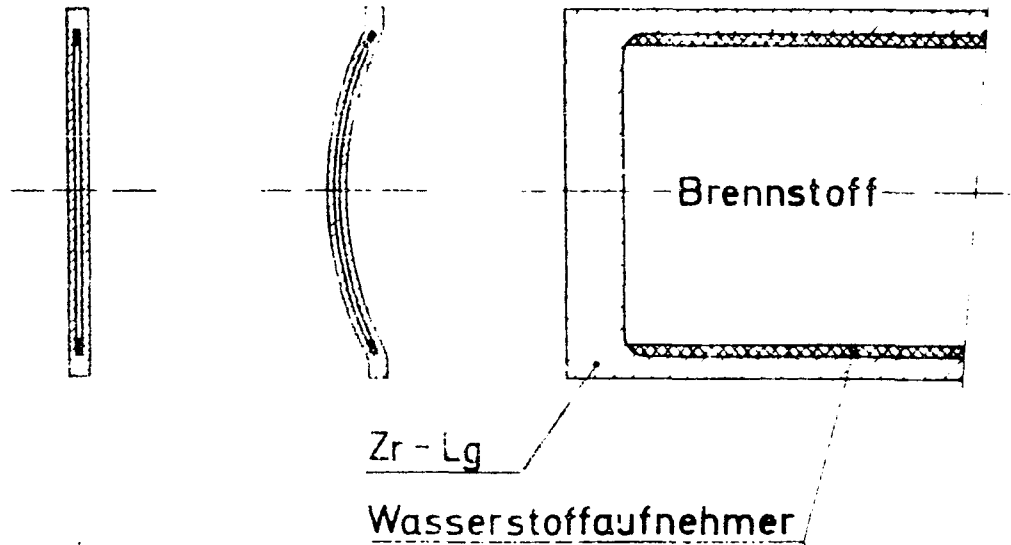


Abb. 8

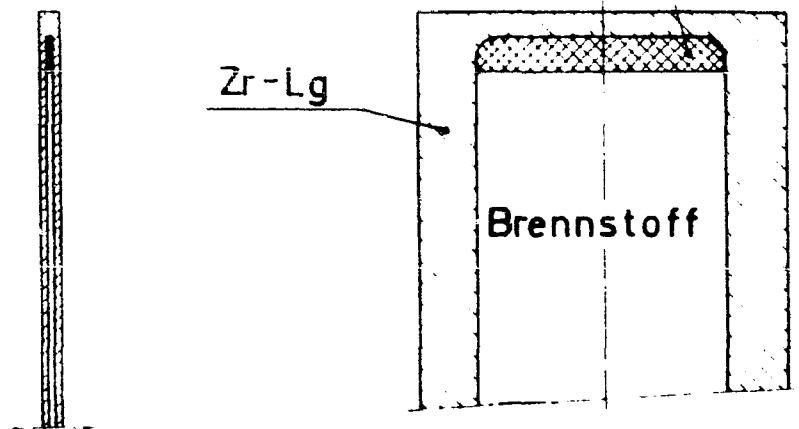


Abb. 9

