

CEA - DMECN
DEPARTEMENT DE METALLURGIE
DE GRENOBLE

1015

25 novembre 1976

COMPTE RENDU DMG n° 116/76

DIE HERSTELLUNG VON H.T.G.R. BRENNELEMENTEN

DURCH EIN GASABSCHIEDUNGSVERFAHREN

J.C. BLIN

J. BERTHIER

J. DEVILLARD

Reactos congress. Mannheim; Germany, F.R., 29 March -
1 April 1977

CEA-CONF--3924

FR 770 8364

DIE HERSTELLUNG VON H.T.G.R. Brennelementen
DURCH EIN GASABSCHIEDUNGSVERFAHREN

BLIN J.C., BERTHIER J., DEVILLARD J.
CENTRE D'ETUDES NUCLEAIRES DE GRENOBLE - DMG

Einführung

Das Prinzip des Verfahrens, schon seit etwa zwanzig Jahren bekannt, besteht in einer Verfestigung von Kohlenstoffteilchen - z.B. Graphitpulver - durch einen Film aus Pyrokohlenstoff. Der Film wird aus der Zersetzung eines gasförmigen Kohlenwasserstoffes erzeugt ; entweder bei einer homogenen Temperatur oder durch einen Temperaturgradienten. Im Falle der HTGR Brennelemente bestehen die Kohlenstoffteilchen aus einer Mischung von Brennstoffteilchen und Graphitpulver. Mit diesem Verfahren stellt man Brennstoffkörper her, die gute mechanische und thermische Eigenschaften besitzen, was aber eine ziemlich lange Dauer verlangt.

In diesem Vortrag beschreiben wir die Ergebnisse, die wir über diesen Brennelementtyp schon erhalten haben, die aber keine vollständige Entwicklung des Verfahrens darstellen. Es geht bis heute ausschliesslich um Brennelemente des Types "Fort-Saint-Vrain".

Die Brennstoffherstellung

Erstens wollen wir darauf hinweisen, dass die Brennelemente, die wir hergestellt haben, nur einen Bruchteil des G.A.-Blockes darstellen (Abb. 1).

Die Fertigung besteht aus drei Stufen. In der ersten Stufe stellt man her, was wir eine "Schale" nennen können. Diese Schale hat die äussere und innere Form des Elements und ist etwa ein oder zwei Millimeter dick. Sie wird aus Graphitpulver und wenig Harz geformt ; sie ist nach dem Verko/
ken
stabil genug, um sie hantieren zu können. Die Struktur dieser Schicht ist sehr porös, damit der Kohlenwasserstoff sie leicht durchdringen kann.

In der zweiten Stufe wird diese Schale mit Brennstoffteilchen und Graphitpulver gefüllt. Die Füllungsmethode hängt vom Verhältnis zwischen Pulver und Teilchen ab. Wenn der Gehalt an Teilchen hoch ist, ist eine homogene Füllung leicht zu verwirklichen. Umgekehrt ist es erforderlich, Pulver und Teilchen ein bisschen zu binden, wenn die Teilchenanzahl in der Grössenordnung von 15 vol% liegt.

Im letzten Schritt wird der ganze Körper in einem Ofen durch eine Glühung in Methan oder Propan, bei einer Temperatur von 800 °C bis 1200 °C verfestigt. Die Verfestigung erfolgt durch die Bildung eines Kohlenstoff-Films von etwa 10 µm Dicke, der alle Flächen bedeckt. Die Dauer dieser Stufe beträgt zwischen 50 und 300 Stunden, je nach Temperatur oder erzielter Dichte der Matrix.

Was wir zur Zeit verwirklichen können, sind komplette Schalen. Dagegen können wir nur Brennstoffkörper von 10 cm Durchschnittsgrösse herstellen. Die Entwicklung eines Ofens mit genügender Kapazität wurde noch nicht begonnen. Unserer Erfahrung nach würde diese Entwicklung ziemlich viel Zeit und Geld beanspruchen. Was die Füllung betrifft, so sind, obwohl wir keine industrielle Verwirklichung gemacht haben, keine erheblichen Probleme zu erkennen.

Die Bestrahlungseigenschaften

Das Verhalten dieser Brennelemente wurde systematisch seit vier Jahren durch Bestrahlungen im Reaktor, die eine wesentliche Verbesserung des Brennstoffes ermöglicht haben, untersucht.

Massgebend erscheint auf den ersten Blick die Verformung des Filmes, dessen Struktur sehr anisotropisch ist. Die Schrumpfung eines freien Filmes in einem schnellen Neutronenfluss ist so hoch, dass man ein schlechtes Schwundverhalten des Elements annehmen kann. Dies ist aber nicht richtig und glücklicherweise gleicht das Kriechen des Filmes unter Bestrahlung ungefähr die Schrumpfung aus. Abbildung 2 zeigt die Verkürzung eines Brennstabes in einem Neutronenfluss, der in Spektrum und Dosis dem Fluss in einem Leistungsreaktor entspricht.

Die Heisslaboruntersuchung hat gezeigt, dass der Film an zahlreichen Stellen gebrochen war. Trotzdem ist die Druckfestigkeit noch grösser als vor der Bestrahlung. Diese Untersuchung hat auch gezeigt, dass unter besonderen - und noch nicht bestimmten - Bedingungen der Film der Pyrokohlenstoffschicht der Teilchen haftet und diese Schichten abreißen kann. Diesen Nachteil kann man vollkommen beseitigen, wenn die Beschichtung der Teilchen mit einer dünnen, etwa 5 bis 10 μ m dicken Pufferschicht beendet wird.

In grossen Zügen darf man sagen, dass die dimensionale Änderung eines solchen Brennstabes die gleiche ist wie die eines fast isotropischen Graphitstabes : nach einer maximalen Volumenschrumpfung von 5 bis 9 %, die einer Neutronendosis von $3 \cdot 10^{21}$ e.d.n. entspricht, findet ein Schwellen statt und das ursprüngliche Volumen wird nach einer Dosis von rund $5 \cdot 10^{21}$ e.d.n. erreicht.

Ohne in die Einzelheiten zu gehen erwähnen wir, dass man die Rolle des Gases (Methan oder Propan) sowie der Teilchenzahl untersucht hat. Es wurde auch beobachtet, dass, je niedriger der Neutronenfluss wird das Verhalten der Probe besser ist (mit der gleichen Gesamtdosis in allen Fällen). Dieses Ergebnis lässt uns hoffen, dass die dimensional Änderungen in einem Leistungsreaktor noch kleiner sein werden als in dem benutzten Versuchsreaktor.

Neue Entwicklungen

Gleichzeitig mit dieser Entwicklungsarbeit wurde eine gründliche Untersuchung der Zersetzung des Gases in sehr feinen Graphitröhrchen vorgenommen. Es hat uns zu wesentlichen Änderungen der Abscheidungsbedingungen geführt, mit dem Ergebnis, dass wir nun einen fast isotropischen Film auftragen können. Auf diese neue Weise hergestellte Brennstäbe sind zur Zeit im Reaktor.

Vorteile und Nachteile dieses Verfahrens

Auf den ersten Blick kann man schon einige Vorteile und Nachteile wahrnehmen :

Vorteile : 1) Die Verfestigung erfolgt ohne Druck, was für die Brennstoffteilchen gut ist. 2) Das Herstellen und Bearbeiten des üblichen Graphitblockes entfällt, was günstig ist. 3) Die Auslegung des Brennelements erlaubt es, ein niedriges Verhältnis zwischen Kohlenstoffatomen und Schwermetallatomen

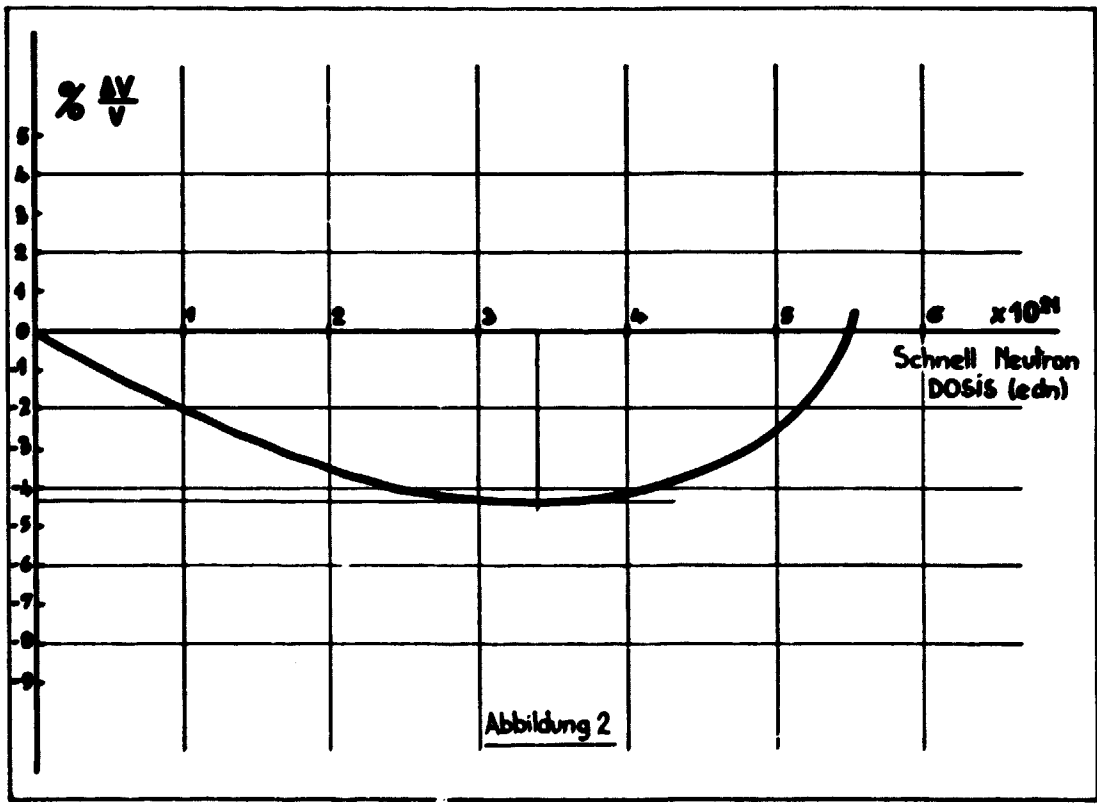


Abbildung 2

zu erzielen. Ein Verhältnis von 110 erreicht man ohne weiteres, was für die Bruterate des Cores günstig ist.

4) Die Temperatur des Brennstoffes ist etwas besser als in den anderen blockförmigen Elementen.

Nachteile : Der Hauptnachteil ist die Dauer der Wärmebehandlung. Darüber hinaus muss man sagen, dass wir keine Blöcke mit vollen Abmessungen hergestellt haben. Deswegen gibt es wahrscheinlich Probleme, auf die wir noch nicht gestossen sind, unter anderem vermutlich die Reinigung und Wiedergewinnung des zersetzten Gases.

Aus einer vorläufigen Kostenuntersuchung ist abzusehen, dass dieses Verfahren nicht teurer ist als die herkömmlichen Herstellungsmethoden. Es wäre trotzdem gewagt zu behaupten, dass das Verfahren billiger ist, da der Kostenunterschied nicht abzuschätzen ist.

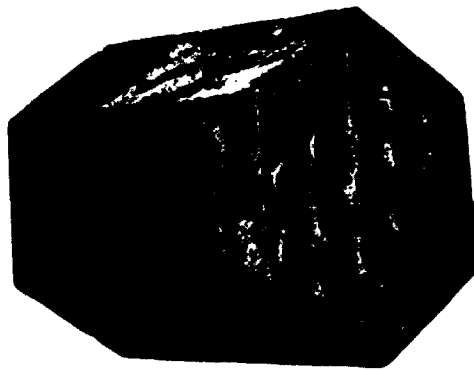


Abbildung 1

