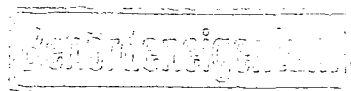


51

Int. Cl. 2:

G 21 C 3/28

19 **BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**



DT 26 09 476 B 1

11

Auslegeschrift 26 09 476

21

Aktenzeichen: P 26 09 476.8-33

22

Anmeldetag: 8. 3. 76

43

Offenlegungstag: —

44

Bekanntmachungstag: 12. 5. 77

30

Unionspriorität:

32 33 31

54

Bezeichnung: Verfahren zur Herstellung von Blockbrennelementen für Hochtemperaturreaktoren

71

Anmelder: HOBEG Hochtemperaturreaktor-Brennelement GmbH, 6450 Hanau

72

Erfinder: Hrovat, Milan, Dipl.-Ing. Dr., 6451 Rodenbach; Rachor, Lothar, 6450 Hanau

56

Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht gezogene Druckschriften:
Nichts ermittelt

DT 26 09 476 B 1

Patentansprüche:

1. Verfahren zur Herstellung von Blockbrennelementen für gasgekühlte Hochtemperaturreaktoren durch mehrstufiges Pressen eines granulierten Preßpulvers, bestehend aus einer Mischung von Naturgraphitpulver, Kunstgraphitpulver und Binderharz, zusammen mit beschichteten Brenn- und Brutstoffteilchen unter Verwendung eines Gleitmittels und eines Kohlenwasserstoffes als Luftverdrängungsmittel, wobei die äußere Form und die Kühlgaskanäle durch Gesenkpresen hergestellt werden und die Preßtemperatur im letzten Preßschritt über dem Erweichungspunkt des Binderharzes liegt, sowie anschließende Wärmebehandlung des Preßlings, dadurch gekennzeichnet, daß ein Binderharz verwendet wird, das einen Erweichungspunkt aufweist, der mindestens 15°C über dem Schmelzpunkt des verwendeten Gleitmittels liegt, und daß der Block im Temperaturintervall zwischen dem Schmelzpunkt des Gleitmittels und dem Erweichungspunkt des Binderharzes aus dem Gesenk ausgestoßen wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das gewählte Binderharz einen Erweichungspunkt aufweist, der 25 bis 40°C über dem Schmelzpunkt des verwendeten Gleitmittels liegt.

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Blockbrennelementen für gasgekühlte Hochtemperaturreaktoren gemäß dem Oberbegriff des Anspruchs 1.

Das gepreßte Blockbrennelement für Hochtemperaturreaktoren, auch kurz Monolith genannt, ist im allgemeinen ein 700 bis 1000 mm hohes Sechskantprisma mit einer Schlüsselweite von beispielsweise 360 mm und einem Gewicht von etwa 150 kg. Der Monolith besteht aus einer einheitlichen feinkristallinen Graphitmatrix hoher Wärmeleitfähigkeit. In achsenparallelen Zonen dieser Matrix ist Brenn- und Brutstoff in Form von beschichteten Teilchen eingebettet. Dazwischen sind Kühlkanäle angeordnet. Je nach Brennelementausführung beträgt die Anzahl der Brennstoffzonen üblicherweise 138 bis 216 und die entsprechende Zahl der Kühlkanäle 72 bis 108. Im Gegensatz zu einem gebohrten Block und zu mechanisch bearbeiteten Graphitbrennelementen mit lose eingefüllten Brennstoffeinsätzen gehen die Brennstoffzonen des Monolithen spaltfrei in die materialgleiche Elementstruktur des Blocks über und bilden mit ihr zusammen eine tragende Blockeinheit mit gutem Wärmeübergang. Damit wird bei niedriger Brennstofftemperatur eine hohe Kühlgas-temperatur erreicht. Die weiteren Vorteile des Monolithen sind in der deutschen Patentschrift 19 02 994 beschrieben.

Der Monolith wird im allgemeinen aus einem binderharzhaltigen, granulierten Graphitpulver und beschichteten Teilchen durch Pressen hergestellt. Das Herstellungsprinzip ist in den deutschen Patentschriften 21 04 431 und 22 34 587 beschrieben. An die Blockbrennelemente wird eine Reihe von Anforderungen gestellt. Außer hohen Festigkeits- und Leitfähigkeitseigenschaften der Blockmatrix werden enge Dimensions-

toleranzen gefordert. Die äußeren Abmessungen des Sechskantprismas sowie die Durchmesser und die Positionen der Vielzahl durch Pressen hergestellter Kühlkanäle und Brennstoffzonen dürfen nur um einige Zehntelmillimeter untereinander und zur Blocklängsachse von den Sollwerten abweichen. Da die Beschichtung der Brenn- und Brutstoffteilchen bei der Brennelementherstellung unbeschädigt bleiben muß, ist der Druck beim Pressen und beim Ausstoßen der Blöcke aus der Preßform begrenzt.

Nach den bisher bekannten Preßverfahren lassen sich die Blockbrennelemente trotz Verwendung eines Gleitmittels wegen preßtechnisch ungünstiger Blockform, bedingt durch viele Einbauten (72—108 Kühlkanäle pro Block), aus dem Preßwerkzeug nicht formstabil ausstoßen. Die im plastischen Bereich des Binderharzes ausgestoßenen Blöcke neigen zur Rißbildung und Verformung. Unterhalb des plastischen Bereichs beginnt sich das Gleitmittel ebenfalls zu verfestigen, wodurch die Reibung so stark ansteigt, daß beim Ausstoßen die zulässige Belastung der beschichteten Teilchen überschritten wird.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es daher, bei der Herstellung von Blockbrennelementen für Hochtemperaturreaktoren die geschilderten technologischen Schwierigkeiten zu umgehen und die fertiggepreßten Blockbrennelemente unversehrt aus dem Werkzeug bei einem so geringen Druck ausstoßen zu können, daß die mechanische Integrität der beschichteten Teilchen nicht gefährdet wird.

Diese Aufgabe wird bei dem eingangs genannten Verfahren erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß ein Binderharz verwendet wird, das einen Erweichungspunkt aufweist, der mindestens 15°C über dem Schmelzpunkt des verwendeten Gleitmittels liegt, und daß der Block im Temperaturintervall zwischen dem Schmelzpunkt des Gleitmittels und dem Erweichungspunkt des Binderharzes aus dem Gesenk ausgestoßen wird.

Vorzugsweise wird ein Binderharz gewählt, dessen Erweichungspunkt um 25—40°C über dem Schmelzpunkt des Gleitmittels liegt. Der fertig gepreßte Block wird somit in allen seinen Bereichen auf eine Temperatur abgekühlt, bei der sich das Binderharz vollständig verfestigt, wogegen das Gleitmittel noch flüssig und dadurch voll wirksam bleibt. Mit der relativ weiten Temperaturspanne von etwa 30°C können lokale Temperaturunterschiede aufgefangen werden, die bei wirtschaftlich bedingter rascher Abkühlung unvermeidbar sind. Als Gleitmittel werden vorzugsweise Stearinsäure, Hartparaffine mit Schmelzpunkten zwischen 50 und 70°C und Octodecanol verwendet.

Folgendes Beispiel soll das Verfahren gemäß der Erfindung näher erläutern:

Aus einem Gemisch von 64 Gew.-% Naturgraphitpulver, 16 Gew.-% graphitiertem Petrolkokspulver und 20 Gew.-% in Methanol gelöstem Phenol-Formaldehyd-Binderharz wurde durch Kneten, Trocknen und Mahlen das Preßpulver hergestellt. Als Naturgraphitpulver diente ein nuklearreiner Naturgraphit mit einem Aschegehalt von 150 ppm, einem mittleren Korndurchmesser von 15 µm und hoher Kristallinität (Kristallitgröße $L_c = 1000$ Å), als graphitiertes Petrolkokspulver ein bei 3000°C graphitierter Nadelkoks mit extrem niedrigem Aschegehalt (Asche < 10 ppm), einem mittleren Korndurchmesser von 25 µm und einer Kristallitgröße L_c von 600 Å und als Binderharz ein Phenolformaldehyd-Kunstharz. Das Binderharz mit einem Moleku-

largewicht von 740, einem pH-Wert von 6, einem Aschegehalt von 160 ppm, einer Viskosität der 50%igen Methanollösung von 174 cP bei Raumtemperatur hatte einen Erweichungspunkt von 105°C. Dem Preßpulver wurden 1 Gew.-% Stearinsäure mit einem Schmelzpunkt von 69,3°C als Gleitmittel und 0,4 Gew.-% Octanol-(1) mit einer Dichte von 0,815 g/cm³ und einem Siedepunkt von 195,2°C als Luftverdrängungsmittel beigemischt. Zur Herstellung einer homogenen Mischung wurde die Stearinsäure geschmolzen, Octanol zugegeben und 10 Gew.-% des verwendeten Preßpulvers in die Schmelze eingerührt und erkalten lassen. Das nunmehr mahlfähige Gut wurde nach Zerkleinerung auf eine Korngröße $d < 1$ mm in die restliche Pulvercharge trocken eingemischt und daraus Granulat mit einer Körnung $0,314 < d < 3,14$ mm hergestellt.

Zunächst wurden 96 kg Granulat in einem Sechskantgesenk bei Raumtemperatur und bei 50 bar zum brennstofffreien Blockgerüst mit einer relativ geringen Dichte von 1,2 g/cm³ vorgepreßt. Das Gesenk enthielt 210 polierte Metallstäbe zur Formung von Kanälen (72 mit 21 mm Durchmesser zur Kühlung und 138 mit 17 mm Durchmesser zur Brennstoffaufnahme). Nach Entfernung der Formstäbe aus den Brennstoffpositionen wurde der Block mit einem homogenen Gemisch, bestehend aus 21 kg Preßpulvergranulat, 28 kg Brutpartikeln (enthaltend 17 kg Th) und 5 kg Abbrandpartikeln (enthaltend 1 kg Uran) beladen. Die Methode zur Herstellung eines solchen homogenen Gemisches ist in

der DT-OS 23 33 094 beschrieben. Der fertig beladene Block wurde mit dem Sechskantgesenk auf 180°C erwärmt und bei einem Druck von 120 bar auf eine Matrixdichte von 1,92 g/cm³ gepreßt. Nach Abkühlen auf eine Oberflächentemperatur von 80°C wurde der Block aus dem Gesenk bei einem Druck ausgestoßen, der beträchtlich unterhalb des Preßdruckes lag und nur 90 bar betrug. In einer zweistufigen Wärmebehandlung wurde zunächst der Block auf 800°C erhitzt und dabei der Binder karbonisiert. Abschließend wurde der Block in Vakuum bei 10⁻³ Torr und einer max. Temperatur von 1950°C ausgeglüht.

Nach dem Ausstoßen und nach der Wärmebehandlung wurden keine Risse oder Verformungen beobachtet. Die Blockabmessungen nach dem Ausstoßen und nach der Wärmebehandlung sind in der nachstehenden Tabelle zusammengestellt. Der Sollwert für die Schlüsselweite des wärmebehandelten Blockes betrug 360 mm.

	Nach dem Ausstoßen	Nach der Wärmebehandlung
Schlüsselweite (mm)		
oben	365,8	360,1
mitte	365,8	360,2
unten	365,8	360,0
Länge (mm)	781	792,6