

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

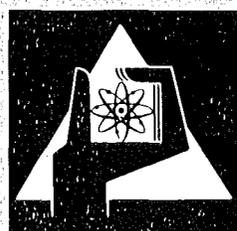
November 1974

KFK 2110

Projekt Schneller Brüter

Stand und weitere Ziele der SNR Brennelemententwicklung

G. Karsten



**GESELLSCHAFT  
FÜR  
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

**KARLSRUHE**

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

---

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARSLRUHE

KFK 2110

Projekt Schneller Brüter

Stand und weitere Ziele der SNR Brennelemententwicklung

von

G.Karsten

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe



## KURZFASSUNG

Im Rahmen des Brennelemententwicklungsprogrammes für den Schnellen Brutreaktor SNR 300 sind seit 1964 insgesamt 500 Brennstäbe bestrahlt worden, davon etwa 250 im schnellen Fluß. Das Ergebnis ist, daß der maximale nominelle Zielabbrand von 90.000 MWd/t des SNR 300 Mk Ia möglicherweise erreicht werden kann. Den Hauptproblemen, die durch das Hüllmaterialschwellen und die Innenkorrosion erzeugt werden, kann bis zu diesem Abbrand durch geeignete Vorbehandlung des austenitischen Stahls 1.4970 und eine Brennstoffstöchiometrie von 1,97 begegnet werden. Über diese Zielsetzung hinaus müssen entweder Materialverbesserungen erzielt oder Abbrandverringern in Kauf genommen werden. Diese noch offenen Fragen können durch Nutzung des SNR 300 als Testreaktor beantwortet werden. In einer weiteren Zielsetzung wird ein karbidisches Brennelement entwickelt. Dieses wird in einem Hochleistungsreaktor wegen des geringen Spaltstoffinventars und hohen Brutgewinns besonders wirksam im Hinblick auf die künftige Schonung der Uranreserven sein. Auch dieses Entwicklungsprogramm wird durch den SNR 300 zum abschließenden Ergebnis gebracht werden können.

## ABSTRACT

### Status and further development targets of the SNR fuel element development

Within the scope of the fuel element development program for the fast breeder reactor SNR 300 500 fuel pins have been irradiated since 1964, 250 out of them in the fast flux. The result is, that the maximum nominal target burnup of 90.000 MWd/t of the SNR 300 Mk Ia possibly can be reached. The main problems, which arise from the clad swelling and internal corrosion, can be met by special pretreatments of the austenitic stainless steel 1.4970 and a fuel stoichiometry of 1,97. Beyond this target either material property improvements have to be made or burnup reductions have to be accepted. These remaining questions can be answered by the use of the SNR 300 as a test reactor. A further target is the development of a carbide fuel element. This will be very effective in a high power breeder reactor because of its low fissile inventory and high breeding gain under the aspects of saving uranium resources in the future. This development program will also be finalized in the SNR 300.

Stand und weitere Ziele der SNR Brennelemententwicklung

G. Karsten, GfK

A. Einführung

Aus Gründen der Optimierung der Ökonomie des Coremanagements und der Brennelementfabrikationskosten ist der ursprüngliche Mk I-Kern in den Mk Ia-Kern umgewandelt worden. Die spezifische Leistung der Brennelemente ist dabei herabgesetzt worden, indem bei gleicher Reaktorleistung die Anzahl der Brennelemente auf 205 erhöht wurde (Abb. 1). Im Rahmen des Brennelemententwicklungsprogrammes sind seit 1964 insgesamt 500 Brennstäbe bestrahlt worden, 250 davon im schnellen Fluß. Das Ziel der Bestrahlungen im schnellen Fluß war die Erprobung unter Nominalbedingungen und die Ermittlung von Grenzbedingungen bei Überlast für den Brennstoff und die Hülle. Außerdem sollte das Verhalten von Brennelementen mit defekten Stäben untersucht werden. Das Ergebnis war, daß der SNR 300 Brennstab, dargestellt durch das Rapsodie I Experiment, Abb. 2, zuverlässig betrieben werden kann. Ein Abweichen jedoch z.B. auf 600 oder gar 700 W/cm oder 700°C für die Hülle im Dauerbetrieb würde zu Schäden führen, wie bei Mol 7A, 7B. Ein Betrieb mit defekten Brennstäben über längere Zeit führt zur Erhöhung der Defektzahl und ist daher nicht sinnvoll, (DFR 455).

B. Wesentliche Einzelergebnisse

1. Hüllmaterial

Das Hüll- und Strukturmaterialschwellen ist nach wie vor das Hauptproblem. Bekanntlich führt die Neutronenbestrahlung zur Erzeugung von Leerstellen, welche durch Helium stabilisiert ( $\text{Fe} \xrightarrow{n, \alpha} \text{Ni}$ ) als Poren wachsen und das Material zum Schwellen bringen.

Dieser Vorgang ist durch eine Volumenzunahme in Abb. 3 beispielhaft dargestellt.<sup>1)</sup> Die auf mehrfache Weise erklärbare Differenz zwischen Gesamtzunahme ( $3\frac{\Delta d}{d}$ ) und der Zunahme durch Schwellen ( $\frac{\Delta \rho}{\rho}$ ) ist in Abb. 4 ebenfalls sichtbar, hier auf Längenänderung bezogen: Der Anteil des Schwellens  $\Delta L$  an der gesamten Längenänderung  $\Delta L^*$  scheint, wie auch für diametrale Änderung, relativ unabhängig vom Schwellbetrag verschiedener Stähle zu sein. Beim geringer schwellenden Material mit dem engeren Kontakt zum Brennstoff erscheint noch eine überlagernde Deformation der Hülle, bei abnehmendem Kontakt mit stärker schwellender Hülle nicht mehr. Das ist in Abb. 4 durch die entsprechend abnehmende Streuung der Werte erkennbar. Der relativ konstante Verhältniswert kann sich mit dem Abbrand verändern. Dieser Sachverhalt kann entweder durch große Spannungen oder ein zusätzliches schwellinduziertes Kriechen verursacht werden. Mechanische Wechselwirkungen können ebenfalls eine Rolle spielen. Die Folge wäre, daß die geometrische Verformung von Brennelementen außer durch Schwellen zusätzlich noch durch schwellinduziertes Kriechen erhöht wird. Der Gesamtbetrag ist nach Abb. 3 und 4 deutlich größer als bei reinem Schwellen, was bei der Auslegung von Brennelementen berücksichtigt werden muß.

Aus den internationalen Forschungsergebnissen kristallisiert sich eine Grundcharakteristik des Schwellens heraus, die mit Abb. 5 für lösungsgeglühtes Material dargestellt ist. Verfolgt man die neueren Berichte zum Schwellproblem aufmerksam<sup>2-6)</sup>, so mehren sich die Hinweise, daß der Schwellexponent auch bei kaltverformtem Material dosisabhängig sein kann. Das würde bedeuten, daß man grundsätzlich mit einem nichtlinearen Ansteigen des Schwellbetrages bei höheren Dosen rechnen sollte.

Gewißheit über die Eigenschaften der gegenwärtigen Referenzstähle bei hohen Neutronendosen im Bereich von  $1.5 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2 > 0.1 \text{ MeV}$  wird sich erst nach hinreichendem Betrieb der Prototypreaktoren, also zwischen 1978 und 1982 einstellen.

Insgesamt also wird damit in vereinfachter Form verständlich, daß das Schwellen nur verzögert aber nicht verhindert werden kann. Es gilt nun, die Kurve der Abb. 5 möglichst weit nach rechts zu hohen Dosen zu verschieben oder in anderen Worten, den nahezu linearen Bereich mit dosisunabhängigem Schwellexponenten möglichst so groß zu machen, daß er die Betriebsdauer der Brennelemente umfaßt. Dazu werden im wesentlichen zwei Maßnahmen untersucht:

- a) die Kaltverformung zur Erzeugung von Versetzungen. Sie führt zu einer erhöhten Inkubationsdosis des Schwellens.

b) die Verwendung stabilisierter Werkstoffe, bei denen Niob- bzw. Titankarbide in möglichst feinverteilter Form als neutrale Senken gelten und indirekt eine Stabilisierung der Mikrostruktur bewirken können.

Der heutige Stand ist, daß die SNR-Hüll- und Strukturmaterialien bis  $7 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$  erprobt sind und dabei im kaltverformten Zustand 1% Schwellen zeigen. Das ist jedoch erst die Hälfte der SNR-Dosis von  $1,4 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ . Es bleibt zunächst offen, ob die Charakteristik der Abb. 5 durch die angewendeten Maßnahmen, also über  $7 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$  hinaus, mindestens bis  $1,4 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ , verschoben worden ist. Aus der Summe der bisherigen Forschung könnte man eine obere Grenze von  $1,5 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2 > 0,1 \text{ MeV}$  abschätzen. Tut man das, so ergibt sich für die bestehenden, im Bau befindlichen oder geplanten Reaktoren für die Verwendung von austenitischem Stahl als Hüll- und Strukturmaterialien von Brennelementen bis zu Maximalabbränden von etwa 10% ungefähr folgendes Bild:

	Möglich	Bedingt möglich	nicht möglich
Dosis > 0,1 MeV	$7 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$	$\sim 1,5 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$	$\sim 2,5 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$
Testreaktoren $\leq 300 \text{ MW}_{\text{el}}$	DFR, Rapsodie KNK II, EBR II	SNR 300 PFR	
Leistungsreaktoren $> 1000 \text{ MW}_{\text{el}}$		CFR, Gasbrüter (auch als Prototyp) Fortgeschr. Oxid- und Karbidbrüter	Superphenix SNR 2

Der Phenixreaktor wird mit seinem lösungsgeglühten Hüllmaterial auf einen maximalen Abbrand von etwa 5% begrenzt sein.

Es ist zu beachten, daß eine Verringerung des Brennstabdurchmessers bei Erhöhung der spezifischen Leistung ( $\text{MW/kgPu}_{\text{fiss}}$ ) in den meisten Fällen zu einer Verringerung der Hülldosis bei gleichem Abbrand bis zu etwa 20% führt. Das hängt im Einzelfall

jedoch von den spezifischen physikalischen Reaktordaten ab (Fluß und Anreicherung).

Die Situation läßt sich wie folgt darstellen. Wegen des erheblich geringeren Fluß/Abbrandverhältnisses der Prototypreaktoren gegenüber den Leistungsreaktoren können selbst in den Prototypen bei nominellen Maximalabbränden von ca. 12% nur solche Dosiswerte der Leistungsreaktoren erreicht werden, die einem mittleren Entladeabbrand von ca. 50.000 MWd/t entsprechen. Das Ziel hoher ökonomischer Abbrände für Leistungsreaktoren kann daher nur in ihnen selbst schrittweise erreicht werden. Den Prototypen bleibt es vorbehalten, in den nächsten 10 Jahren Hüllmaterialoptimierungen und Neuentwicklungen, z.B. ferritische oder Ni-Basislegierungen, zu erproben.

## 2. Brennstoff

Das technologisch relevanteste Problem ist die Innenkorrosion des Hüllmaterials durch oxidischen Brennstoff. Nach statistischer Auswertung von Stabexperimenten ergibt sich das Ergebnis der Abb. 6. Die maximal anzunehmende Schwächung der Hüllwandstärke ist 120 µm, zuzüglich 20 µm durch Natriumkorrosion von außen. Die derzeit wirksamste Gegenmaßnahme ist ein streng kontrolliertes Sauerstoff/Metallverhältnis von 1.97. Dennoch wäre die Innenkorrosion nicht völlig zu vermeiden. Eine Abbrand- oder Standzeitverkürzung würde das Versagensrisiko erheblich vermindern. Zur Vermeidung der Innenkorrosion wird auch an einer Niobinnenbeschichtung gearbeitet, welche den beim Abbrand freiwerdenden Sauerstoff abbundet.

Die Entmischungserscheinungen in einem unterstöchiometrischen Oxid-Brennstoff durch den radialen Temperaturgradienten sind in Abb. 7 angegeben. Der Einfluß der Thermodiffusion auf die Pu-Anreicherung und somit auf die Zentraltemperatur-Erhöhung ist nicht stark O/M-abhängig und beträgt bei einer Stabileistung von 450 W/cm etwa 50°C. Bei nur schwach unterstöchiometrischem Brennstoff tritt noch eine zusätzliche Zentraltemperatur-Erhöhung durch Verdampfungseffekte von nochmals etwa 50°C auf.

Die Studien zur mechanischen Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hülle haben gezeigt (Abb. 8)<sup>2)</sup>, daß Spalte oder Brennstoffrisse, die aufgrund von Temperaturänderungen bei Lastwechseln zurückbleiben, nach etwa 200 h anschließender Bestrahlung weitgehend ausgeheilt bzw. stabilisiert sein können. Sie können zu einer plastischen Hüldehnung führen.

Die Brennstoffherstellung hat durch die soeben abgeschlossene Fertigung von 1400 Stäben für KNK II ihre erste größere Probe erfahren. Es ist die Erfahrung gewonnen worden, daß z.B. die Herstellung der rund 35 000 Stäbe der SNR-Erstbeladung mit gestraffter Kontrolle der Prozesse, insbesondere im Hinblick auf die Stöchiometrie,

Dichte und Dimensionen der Tabletten durchzuführen sein wird.

### C. Weitere Ziele

Zunächst wird der Mk II-Kern zu entwickeln sein, der als Konsequenz der eingangs erwähnten Umwandlung des Mk I in das Mk Ia Konzept anzusehen ist (Abb. 9). Dieser Kern kann dann als Vorläufer des SNR 2 Konzeptes dienen. Der SNR 2 Leistungsreaktor ergibt sich konsequent gewissermaßen als O-Serie von großen Brüterkraftwerken. Er dient unter diesem Aspekt der Systemerprobung und der Einführung.

Als endgültiges Ziel gilt der Brüter mit kleinem Inventar an spaltbarem Plutonium und letztlich auch hoher Brutrate. Die charakteristischen Daten zeigt Abb. 10. Die Hochleistungsbrüter bieten im Hinblick auf die diskutierten Materialprobleme die Möglichkeit etwas geringerer Hüllmaterialdosen. Beim Karbid kommt noch die Möglichkeit hinzu, ohne ökonomische Einbußen den Abbrand zu verringern, Abb. 11.<sup>8)</sup>

Unter der Forderung nach kürzester Verdopplungszeit bietet der Karbidbrüter wegen seiner hohen Brutrate die effektivste Möglichkeit einer Brüterkonzeption. Das wird auch aus Abb. 12 ersichtlich, in der gemäß der UNIPEDE-Studie<sup>x)</sup> eine erhebliche Einsparung von  $U_3O_8$  aufgezeigt wird, über 30 Jahre für die EG akkumuliert, ca. 2 Mio t  $U_3O_8$ . Das Diagramm zeigt auch - wobei die Zeitskala hier um 10 Jahre verschoben wurde - daß die frühest mögliche Einführung des Karbidbrüters den korrespondierenden Jahresverbrauchswerten an  $U_3O_8$  einen Vorlauf von ca. 25 Jahren gibt. Die Entwicklung des karbidischen Brennelementes wird derart durchgeführt, daß in etwa 10 Jahren die Entscheidung über das endgültige Konzept gefällt werden kann. Die Entwicklungsarbeiten, welche neben dem Karbid auch das Karbonitrid und das Nitrid betreffen, werden in einem komplementären Gemeinschaftsprogramm, dem Koordinierten Karbidprogramm, durchgeführt. Ihm gehören außer der GfK, das CEN in Mol, Alkem und Nukem in Hanau, das Europäische Institut für Transurane in Karlsruhe, das Eidgenössische Institut für Reaktorforschung EIR in Würenlingen an. Bei erfolgreicher Entwicklung und Erprobung im SNR 300 käme dann das in Abb. 13 gezeigte Konzept für das Brennelement eines Leistungsreaktors zum Einsatz.

### D. Zusammenfassung

Das Brennelement mit Oxid für den SNR 300 Mk Ia ist konzipiert. Es erscheint möglich, seine Zieldaten zu erreichen. Das Hüllmaterialschwellen und die Innenkorrosion begrenzen beim Brutreaktor die Einsatzfähigkeit jedoch auf Betriebszeiten, die dem

x) Prospects of the long-term development of fast breeder reactors in the European Community of the Nine, March 1974

großen Leistungsreaktor in der gegenwärtig angestrebten Konzeption offenbar nicht genügen. Nach Optimierungen oder neuen Lösungen wird unter Nutzung des SNR 300 selbst als Testreaktor längerfristig zu suchen sein. Im Hinblick auf Materialprobleme wären der Oxid- bzw. Karbidbrüter mit kleinem Durchmesser etwas weniger problematisch. Daher und besonders auch in Bezug auf kleine Brennstoffinventare werden diese Reaktortypen als Alternativen angesehen. Die Entscheidung, ob endgültig Karbid eingesetzt wird, kann bei erfolgreicher Entwicklung erst in etwa 10 Jahren gefällt werden. Karbid gewinnt besonderes Interesse durch seine kurzen Verdopplungszeiten. Insgesamt also werden noch etwa 10 Jahre an Entwicklungszeit für die Brennelemente von Brüterkraftwerken benötigt, verursacht durch die Hüll- und Strukturmaterialprobleme und die Entwicklung von wirksameren Brennstoffen.

Anmerkung:

Die Ergebnisse dieses Berichtes wurden im Gemeinschaftsprogramm der deutschen und belgischen Forschungszentren und Industriegruppen erarbeitet. Der Bericht enthält außerdem spezielle Beiträge von H.Mayer, INTERATOM.

Literaturverzeichnis

- 1) K.Ehrlich, K.Herschbach, W.Schneider  
Schwellen und Kriechen von Hüllwerkstoffen unter Bestrahlung  
KfK-Bericht 1999, S. 149-172
- 2) W.Dienst, K.Ehrlich  
Material problems in oxide fuel pins for fast breeder reactors.  
To be published during the European Nuclear Conference  
April 21-25, 1975, Paris
- 3) J.M.Dupouy et al.  
Propriétés des matériaux après irradiation dans Rapsodie  
Proc. Symp. Brüssel, July 1973  
IAEA/SM/173/15 p. 253-276
- 4) J.M.Dupouy, M.Weisz  
Quelques aspects actuels du gonflement des aciers  
European Conference on irradiation behaviour of fuel cladding and core  
component materials  
Dec 3-5, 1974, Karlsruhe
- 5) Persönl. Mitteilung von J.K.Butler, UKAEA
- 6) H.J.Busboom, G.C.McClellan, W.L.Bell  
Swelling in types 304 and 316 S.S. irradiated to high neutron fluences  
Trans. ANS, Winter-meeting, Washington D.C., Oct 1974  
Vol. 19, p. 148-149
- 7) M.Bober, G.Schumacher  
Erhöhung der Zentraltemperatur durch U-Pu-Entmischung in Mischoxid-Brennstäben  
schneller Reaktoren  
KfK-Bericht 1904
- 8) J.Board, J.R.P.Eaton, R.E.Haigh  
The optimization and analysis of factors influencing the performance of  
carbide fuels  
IAEA/SM-173/56, p.95-112, Proc. Symp. Brüssel, July 1973

SNR-300 CORE Mk Ia	
REACTOR POWER	762 MW
NUMBER OF FUEL ELEMENTS	205
NUMBER OF BLANKET ELEMENTS	96
NUMBER OF CONTROL AND SAFETY ELEMENTS	12
LENGTH OF THE ELEMENTS	3700MM
ACTIVE HEIGHT OF THE CORE	950 MM
MAX. NEUTRON FLUX	$6.4 \cdot 10^{15}$ n/cm <sup>2</sup> sec
COOLANT INLET TEMPERATURE	377°C
COOLANT OUTLET TEMPERATURE	546°C
NUMBER OF FUEL PINS/SA	166
PIN DIAMETER	6 MM
RESIDENCE TIME	441 EFPD
MAX. LINEAR POWER	354 W/cm
MAX. FLUENCE (E>. 1MeV)	$1.3 \cdot 10^{23}$ NV T
EXTREME CLADDING MIDWALL TEMPERATURE	685°C

Abb. 1

TAB. 1: SNR MK IA TYPE IRRADIATION EXPERIMENTS:

EXPERIMENT	NO. PINS	MAX. RATING (W/CM)	MAX. CLAD TEMP. (°C)	MAX. BURN UP (10 <sup>2</sup> MW/D/M)	NO. DEFECT BURN UP PINS	PIN FAILURE RT
MOL 7A	7	590	630	35	1	30
MOL 7B	18	400 - 480	690	81	(1)	40
MFBS - 4	3	700	585	27		
MFBS - 6	2 x 7	570	650	84	5	63
DFR - 304	3	450	670	56		
DFR - 324	3	450	610	56	1	56
DFR - 350	39	450	660	52	-	
DFR - 435	(11)	390 - 410	640	56	2	56
(8 TREFOIL-ASSEMBLIES OUT OF 12 PINS)	(7)			68		
RAPSODIE I	(6)			80	5	80
DFR - 455	68	400	620	96	-	
	60	450	650	55	4	0,5

Abb. 2

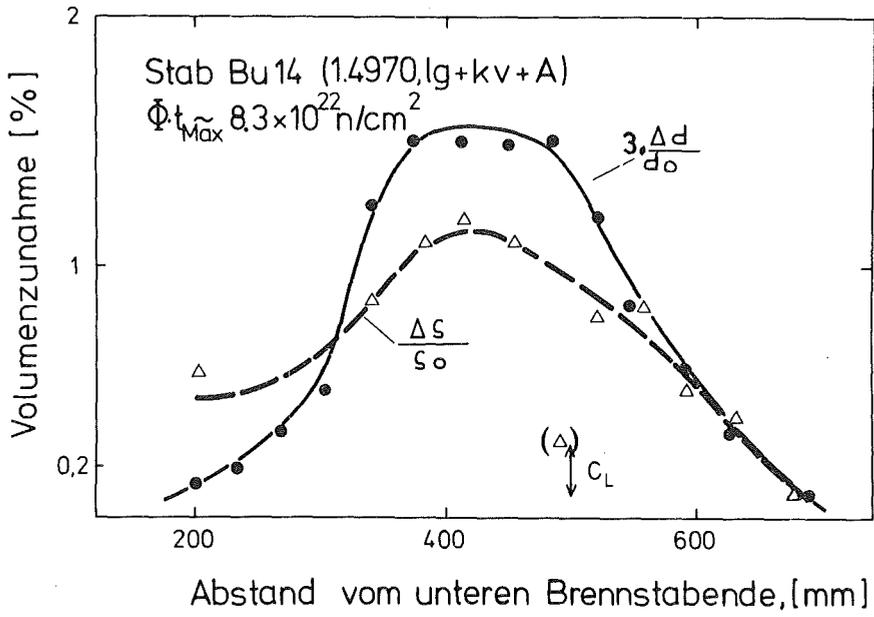


Abb. 3

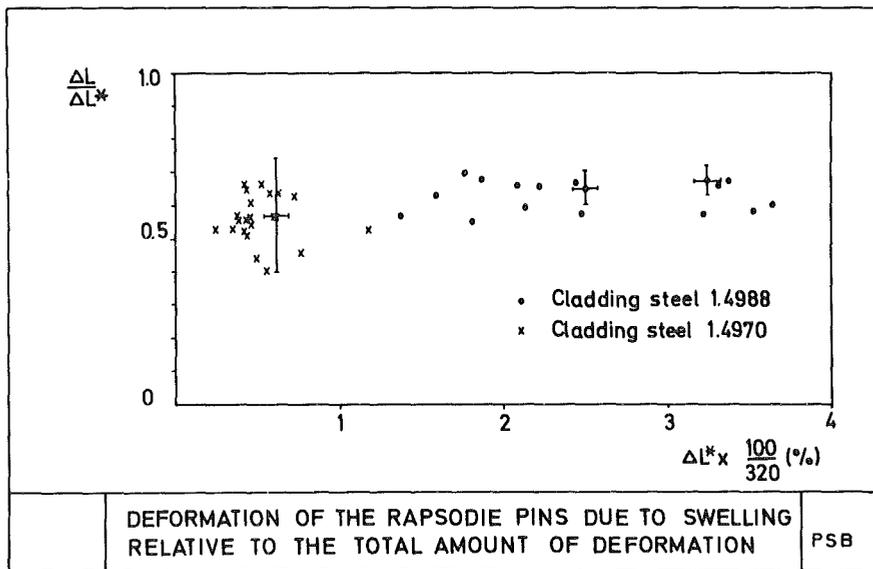


Abb. 4

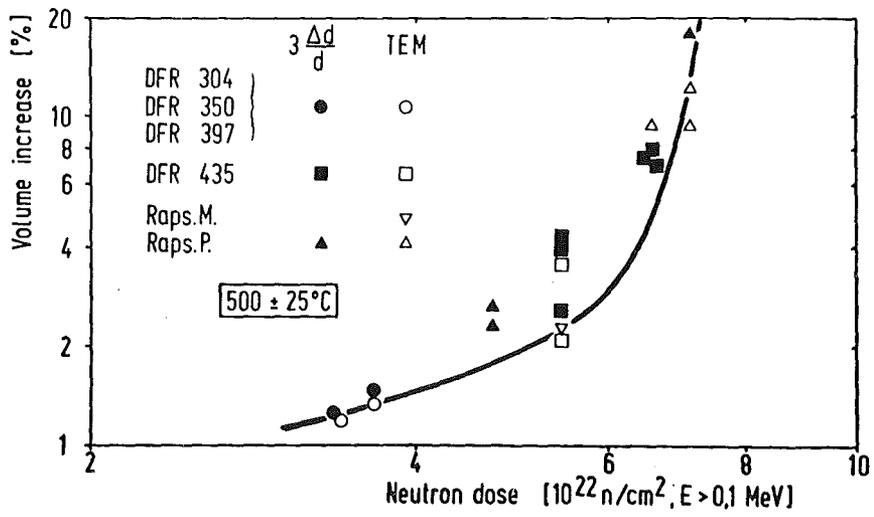


Abb. 5

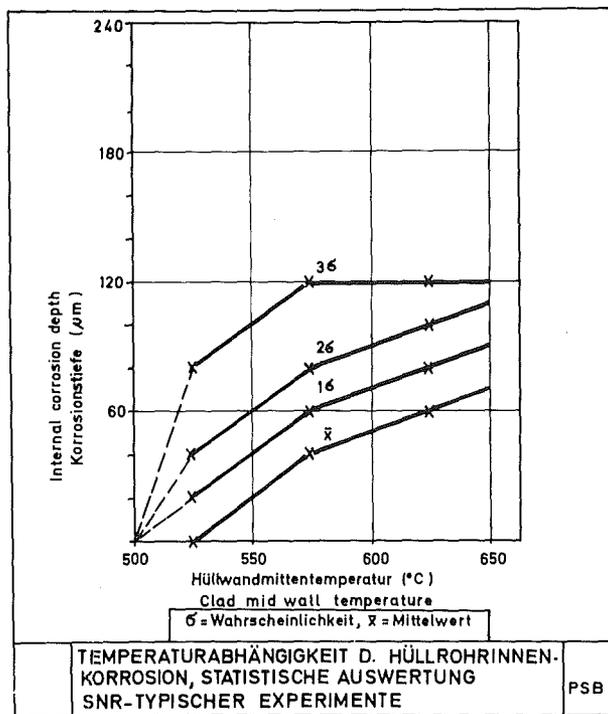


Abb. 6

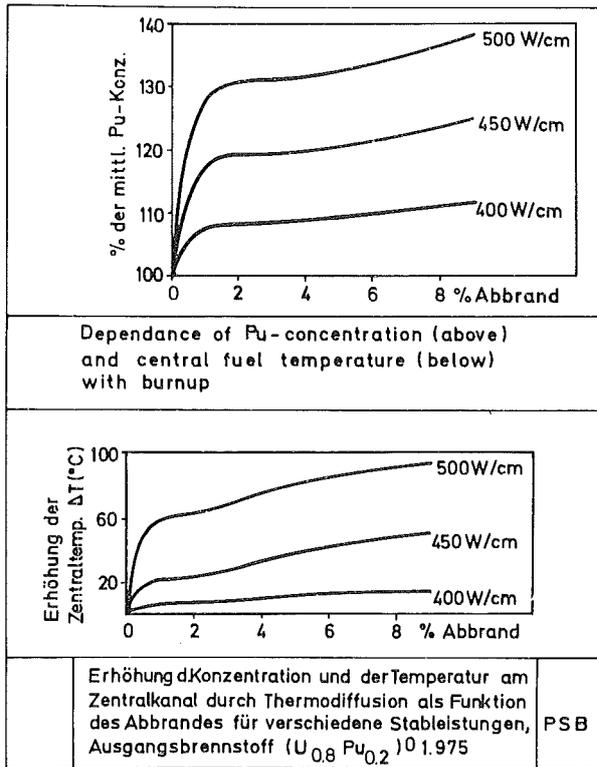


Abb. 7

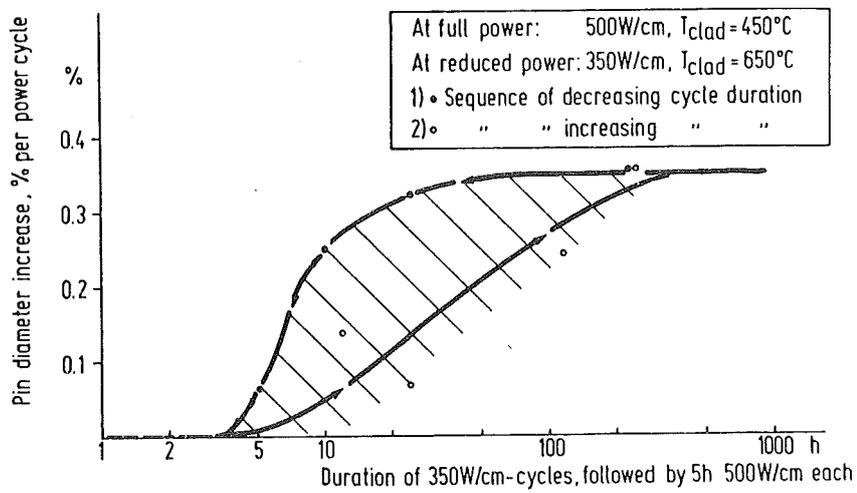


Abb. 8

SNR 300 core types (preliminary data)

	Mark Ia	Mark II
Number of subassemblies	205	205
Number of pins	166	127
Pin diameter (mm)	6	7,6
Total <sub>2</sub> neutron flux (n/cm <sup>2</sup> sec)	← 7-8 x 10 <sup>15</sup> →	
Wall thickness	0,38	0,5
Spacer	grid	grid (spiral wire)
Clad midwall temperature (max. °C)	620	620
Linear rating (max. W/cm)	355	450
Burnup (nom.max. MWd/t)	90.000	90.000

Abb.9

	Rating W/g <sub>m</sub> +) - 50	Pin Diam. mm	Breeding Ratio	Syst. Doubl.t years	Neutron Dosis >0.1 MeV Discharge burnup, average		
					10%	7%	5%
x10 <sup>23</sup> n/cm <sup>2</sup>							
Oxide	170	7.5	1.15	40	3.0	2.0	1.5
Adv. Oxide	300 <sup>+</sup> )	6	1.25	20	2.0	1.5	1.1
Carbide	300 <sup>+</sup> )	7.5	1.35	15	2.0	1.5	1.1
LMFBR CHARACTERISTICS, approx. values					PSB		

Abb.10

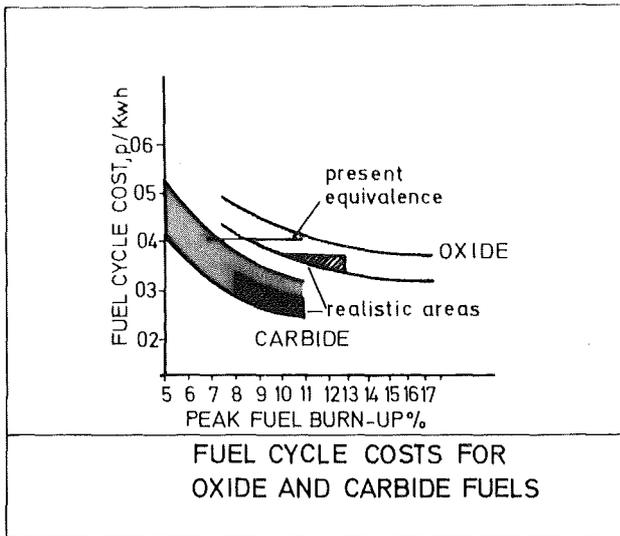
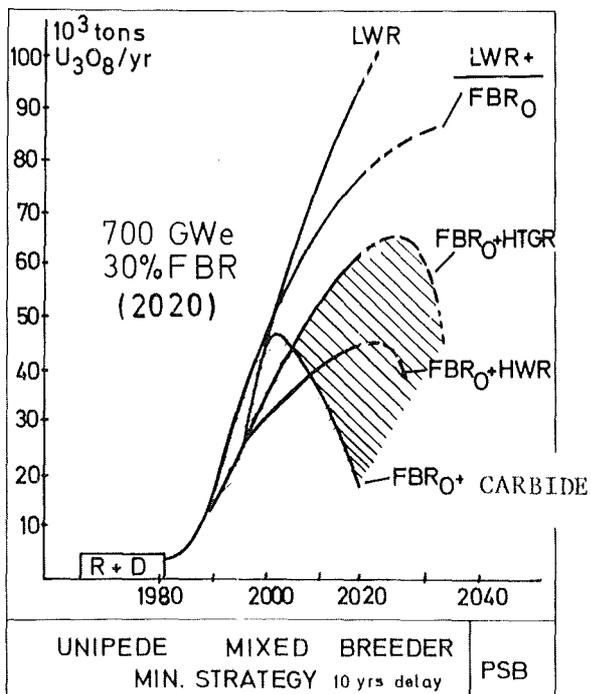


Abb. 11



FBRO = Na-cooled oxide breeder

Abb. 12

<b>1. Fuel</b>		
Type	(U Pu )C	
Smear density	75- 80% th.D	
Bonding	Helium	
<b>2. Cladding</b>		
Type	Coldworked, stabilized austenitic stainless steel	
Diameter	7.5 - 85 mm	
Wall thickness	0.5 - 0.55mm	
<b>3. Operational condition</b>		
Linear rating	1100 - 800 W/cm	
Specific power	300 ± 50 W/g	
Average discharge	50-70 000 MWd/t burnup	
Abb.	Reference Data for the SNR Carbide Fuel Element	PSB

Abb. 13