

## **ACTOFAN**

**Sicherheitstechnische  
Entwicklungen und  
Analysen zu  
"Accident-tolerant Fuels"**

## ACTOFAN

### Sicherheitstechnische Entwicklungen und Analysen zu "Accident-tolerant Fuels"

#### Abschlussbericht

Robert Kilger  
Felix Boldt  
Alexander Kolbasseff  
Jonathan Sappl

Juli 2022

#### **Anmerkung:**

Das diesem Bericht zugrunde liegende Forschungsvorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV) unter dem Förderkennzeichen RS1577 durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei der GRS.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung der GRS wieder und muss nicht mit der Meinung des BMUV übereinstimmen.

**Deskriptoren**

Accident-tolerant Fuel, Brennstabverhalten, Chrom-beschichtetes Zircaloy, Eisen-Chrom-Aluminium, FeCrAl, SiC/SiC, Siliziumkarbid, TESP-ROD, TRISO, Uransilizid, Urannitrid

## Kurzfassung

Das vorliegende Vorhaben beschäftigt sich mit den sicherheitstechnisch relevanten Eigenschaften unterschiedlicher Konzepte der sogenannten *Accident-tolerant Fuels* (ATF). Als ATF bezeichnet man alternative Kernbrennstoffe bzw. Brennstoffkonzepte, die im Vergleich zum bisherigen Standardsystem von Uranoxid und Zircaloy das Verhalten des Kerns unter Störfallbedingungen vor allem im Hinblick auf dessen Kühlbarkeit verbessern, oder Karenzzeiten für das Wiederherstellen der Notkühlung verlängern bzw. den Verlust der Kühlung im Kern für einen beträchtlich längeren Zeitraum tolerieren können, ohne eine signifikante Menge Wasserstoff zu erzeugen.

In einem ersten Schritt des Vorhabens wurden durch eine Literaturrecherche die aktuell verfolgten, unterschiedlichen ATF-Konzepte recherchiert, und soweit möglich sicherheitstechnisch bewertet. Während viele dieser Konzepte bislang lediglich im Labormaßstab vorliegen oder erst auf längere Sicht von großtechnischer Bedeutung sein können, zeigte sich, dass Chrom-beschichtete Zircaloy-basierte Hüllrohre sowie Hüllrohre aus einer Eisen-Chrom-Aluminium-Legierung (FeCrAl) sich bereits relativ nahe an der Einsatzreife befinden.

In einem zweiten Schritt wurde der GRS Brennstabcode TESP-ROD erweitert und er-tüchtigt, um diese beiden Hüllrohrmaterialien beschreiben und sicherheitstechnisch bewerten zu können. Insbesondere im Falle des FeCrAl waren dazu umfangreiche, tiefgreifende Eingriffe im Quellcode erforderlich, da es sich hier im Gegensatz zum Chrom-beschichteten Zircaloy um ein komplett unterschiedliches Material gegenüber Zircaloy handelt. Hier mussten zahlreiche zugrunde liegende Modelle und Parameterräume entsprechend angepasst werden. Im Zuge der Erweiterung wurde auch die Benutzeroberfläche von TESP-ROD erweitert und umstrukturiert.

Drittens wurden internationale Aktivitäten auf dem Gebiet der ATF aktiv verfolgt und begleitet. Dazu gehört die Beteiligung an dem *Topical Opinion Paper on Accident-tolerant Fuels* (TOPATF) der OECD-NEA ebenso wie die Teilnahme an verschiedenen Fachkonferenzen und Workshops zum Thema ATF. Eine weitere Beteiligung ist die Teilnahme an dem NEA *Framework for Irradiation Experiments* (FIDES) Joint Experimental Programme *In-pile Creep Studies of ATF Claddings* (INCA). Weiterhin wurde die Grundlage für eine künftige Teilnahme der GRS an dem IAEA Coordinated Research Project ATF-TS gelegt.

## Abstract

The project at hand deals with the safety-relevant properties of different concepts of so-called Accident-tolerant Fuels (ATF). ATF refers to alternative nuclear fuels or fuel concepts which, compared to the previous standard system of uranium dioxide and zircaloy, improve the behavior of the core under accident conditions, especially with regard to its coolability, or extend the grace period for restoring emergency cooling, or tolerate the loss of cooling in the core for a considerably longer period of time without producing a significant amount of hydrogen.

In a first step of the project, the currently pursued, different ATF concepts were researched through a literature review and, as far as possible, evaluated in terms of safety relevance. While many of these concepts have so far only been available on a laboratory scale or can only be of large-scale technical importance in the long term, it has been shown that chromium-coated Zircaloy-based cladding tubes and cladding tubes made of an iron-chromium-aluminium alloy (FeCrAl) are already relatively close to being ready for use.

In a second step, the GRS fuel rod code TESP-ROD was extended and upgraded in order to be able to describe these two cladding materials and evaluate them in terms of safety. Especially in the case of the FeCrAl, this required extensive, in-depth changes in the source code, since in contrast to the chrome coated Zircaloy, this is a completely different material compared to Zircaloy. Here, numerous underlying models and parameter spaces had to be adapted accordingly. In the course of the extension, the user interface of TESP-ROD has also been extended and restructured.

Thirdly, international activities in the field of ATF were actively pursued and accompanied. This includes participation in the OECD-NEA's *Topical Opinion Paper on Accident-tolerant Fuels* (TOPATF) as well as participation in various conferences and workshops on ATF. Another action is the participation in the NEA *Framework for Irradiation Experiments* (FIDES) Joint Experimental Programme *In-pile Creep Studies of ATF Claddings* (INCA). Furthermore, the basis for GRS's future participation in the IAEA Coordinated Research Project ATF-TS has been set.

# Inhaltsverzeichnis

	<b>Kurzfassung</b> .....	<b>I</b>
	<b>Abstract</b> .....	<b>II</b>
	<b>Inhaltsverzeichnis</b> .....	<b>III</b>
<b>1</b>	<b>Einleitung</b> .....	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Zielsetzung des Vorhabens</b> .....	<b>5</b>
2.1	Gesamtziel.....	5
2.2	Wissenschaftlich-technische Einzelziele .....	5
<b>3</b>	<b>Internationaler Stand von Wissenschaft und Technik</b> .....	<b>7</b>
3.1	Fortschrittliche Hüllrohr-Konzepte .....	7
3.1.1	Beschichtete Zirkonium-Legierungen.....	7
3.1.2	Eisen-Chrom-Aluminium (FeCrAl) Legierungen .....	15
3.1.3	Siliziumkarbid-basierte Hüllrohre .....	20
3.1.4	Molybdän-basierte Hüllrohre .....	33
3.2	Fortschrittliche Brennstoff-Konzepte .....	35
3.2.1	Modifiziertes Urandioxid.....	35
3.2.2	Uransilizid .....	44
3.2.3	Urannitrid .....	51
3.2.4	TRISO-Partikel in inerter Matrix .....	54
<b>4</b>	<b>Implementierung ausgewählter ATF in TESP-ROD</b> .....	<b>57</b>
4.1	Code-Erweiterungen für Chrom-beschichtete Hüllrohre .....	57
4.1.1	Eingabe der Chromschichtdicke .....	58
4.1.2	Oxidationsverhalten von Chrom-beschichteten Zirkoniumhüllrohren.....	59
4.1.3	Physikalische Eigenschaften der Chrombeschichtung .....	60
4.2	Code-Erweiterungen für ferritische Stähle (FeCrAl) .....	63
4.2.1	Mechanische Modelle für FeCrAl .....	64
4.2.2	Oxidationsverhalten von FeCrAl-Materialien .....	70

4.2.3	Physikalische Eigenschaften von FeCrAl-Materialien .....	72
4.2.4	Auflistung der in der Code-Erweiterung verwendeten Variablen .....	77
4.3	Überarbeitung des Benutzerinterface von TESPА-ROD .....	78
4.4	Verifizierung des Codes.....	81
<b>5</b>	<b>Begleitung internationaler Forschung .....</b>	<b>85</b>
5.1	TOPATF – Anwendbarkeit bisheriger Sicherheitskriterien für LWR- Brennstoffe .....	85
5.2	Auswertung internationaler Entwicklungen.....	87
5.2.1	GLOBAL/TOPFUEL 2019 .....	87
5.2.2	Quench-Workshop 2019 .....	87
5.2.3	ESCP 2019.....	88
5.2.4	FIDES – JEEP INCA.....	90
5.2.5	ATF-TS.....	91
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung .....</b>	<b>93</b>
6.1	Internationaler Stand von Wissenschaft und Technik.....	94
6.2	Implementierung ausgewählter ATF in TESPА-ROD .....	94
6.3	Begleitung internationaler Forschung.....	95
6.4	Ausblick .....	96
	<b>Literaturverzeichnis.....</b>	<b>97</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis.....</b>	<b>111</b>
	<b>Tabellenverzeichnis.....</b>	<b>113</b>
	<b>Abkürzungsverzeichnis.....</b>	<b>115</b>
	<b>Anhang A: Publikationen .....</b>	<b>117</b>

# 1 Einleitung

Seit über vier Jahrzehnten ist in Leichtwasserreaktoren (LWR) niedrig angereichertes Uran, das chemisch als Dioxid vorliegt und als Pellets in Hüllrohren aus Zirkonium-Legierungen zu Brennstäben und Brennelementen verarbeitet ist, der weltweit etablierte Standard-Kernbrennstoff. Eine entsprechend hohe Betriebserfahrung liegt dafür vor. Insbesondere unter normalen Betriebsbedingungen weist diese Brennstoff-Hüllrohr-Kombination sowohl aus ökonomischer als auch aus sicherheitstechnischer Sicht hervorragende, bewährte Eigenschaften auf /BRA 14a/.

Derzeitige Sicherheitsnachweise für LWR wurden für oxidische Brennstoffe in Hüllrohren aus Zirkonium-Legierungen geführt. Bei auslegungsüberschreitenden Ereignissen zeigen sich einige negative Eigenschaften des heutigen Standard-Kernbrennstoffs: Die Hochtemperaturoxidation der Hüllrohre führt zudem zur Bildung von großen Mengen an Wasserstoff und der Gefahr einer Wasserstoffexplosion. Ferner ist die Wärmeleitfähigkeit der Brennstoff-Form Urandioxid  $UO_2$  (und auch von U-Pu-Mischoxid, MOX) gering, so dass der Energieinhalt aufgrund der Nachzerfallsleistung höher ausfällt, was bei reduzierter Wärmeabfuhr auch zur Kernschmelze führen kann. Um den im Sinne einer verbesserten Unfalltoleranz formulierten, deutlich erhöhten Ansprüchen gerecht werden zu können, werden international seit längerem alternative Hüllrohrmaterialien und Brennstoff-Formen anstelle der Kombination  $UO_2/Zr$  untersucht /IAEA 03/, /IAEA 14/, /BRA 14a/, /BRA 14b/. Entsprechende Forschungsaktivitäten wurden sowohl von Universitäten, Forschungseinrichtungen als auch seitens der Industrie, insbesondere nach dem Unfall in Fukushima Dai-ichi 2011, weltweit stark forciert /IAEA 14/, /BRA 14a/.

Unter dem Oberbegriff der *Accident-tolerant Fuels* (ATF<sup>1</sup>) werden zahlreiche, z. T. deutlich verschiedene Konzepte zusammengefasst /CAR 13/, /BRA 14a/, /IAEA 14/, /ZIN 14/, /NEA 18a/. Hinsichtlich verbesserter Hüllrohrmaterialien werden schützende bzw. passivierende Beschichtungen auf den bekannten Zirkonium-basierten Hüllrohren, v. a. Chrom, /ZIN 14/, /TAN 17/, /UGR 18/ ebenso wie alternative (nicht-Zirkonium-basierte) Hüllrohrmaterialien erforscht. Dazu gehören z. B. ferritische Stähle, Siliziumkarbid-basierte Materialien, oder Mehrschicht-Hüllrohre aus verschiedenen Metallen, Legierungen oder geeigneten chemischen Verbindungen /BRA 14a/, /ZIN 14/, /PIN 15/. Als alternative chemische Brennstoff-Formen sind v. a. modifiziertes Urandioxid, Uransilizide

---

<sup>1</sup> Besonders in den USA wird auch der Begriff *Advanced Technology Fuels* synonym verwendet.

und Urannitrid-Formen zwecks Erhöhung der Spaltmaterialdichte und der Wärmeleitfähigkeit Gegenstand aktueller Forschungen /ZIN 14/, /PIN 15/.

Einen Überblick über die umfangreichen internationalen Aktivitäten zu ATF geben z. B. /BRA 14a/ und /NEA 18a/. Ein wesentlicher Schwerpunkt sind die Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zu den ATF im Rahmen der sog. *Advanced Fuels Campaign* (AFC) in den USA /BRA 14c/. Das Themenfeld der ATF ist ein hochaktuelles, dynamisches Forschungsgebiet, in dem in der jüngeren Vergangenheit große Fortschritte erzielt wurden und auch in näherer Zukunft weiter zu erwarten sind. International werden hier sowohl durch staatliche Förderung als auch seitens der Industrie große Forschungsaufwendungen hin zu Entwicklung, Genehmigung und Einsatz dieser Kernbrennstoffe aufgebracht. Mehrere Konzepte sind bereits weit fortgeschritten, und es ist eine Frage der Zeit bis zumindest einige Kandidaten aus dem weiten Feld der ATF in größerem Umfang zum Einsatz kommen werden. Im Labormaßstab gibt es vielversprechende Ansätze, und erste, unterschiedliche Teststäbe (*lead test rods*) sind in kommerziellen Kernkraftwerken bereits eingesetzt, z. B. in den USA /WNN 18/, /WNN 19a/, Russland /WNN 19b/, China /WNN 19c/ und der Schweiz /BIS 18a/, /BIS 18b/. Erste Hersteller und Betreiber planen darüber hinaus, bis zum Jahr 2027 eine erste vollständige Kernbeladung mit ATF zu realisieren /BRA 14c/, /KRO 17/, /NEA 18a/.

Als ATF bezeichnet man alternative Kernbrennstoffe bzw. Brennstoffkonzepte, die im Vergleich zum bisherigen Standardsystem von Uranoxid und Zircaloy (im Folgenden als  $UO_2/Zr$ -System bezeichnet) die Kühlbarkeit des Kerns unter Störfallbedingungen verbessern oder Karenzzeiten für das Wiederherstellen der Notkühlung verlängern bzw. den Verlust der Kühlung im Kern für einen beträchtlich längeren Zeitraum tolerieren können ohne Wasserstoff zu erzeugen (abhängig vom LWR-System und den Details des Unfallszenarios). Eine Vermeidung bzw. starke Verringerung der Hüllrohroxidation führt zu einer deutlich geringeren Bildung von Wasserstoff, so dass keine Explosionsgefahr entsteht. Die Reduktion der Oxidation verschafft außerdem eine erhöhte Robustheit gegen den thermischen Schock beim Wiederauffüllen des Reaktordruckbehälters mit Notkühlmittel (Quenchen) nach einem Kühlmittelverluststörfall (KMV; engl. *loss-of-coolant accident*, LOCA). Ferner sollen die positiven thermo-mechanischen Eigenschaften der Brennstoffe im Normalbetrieb im Vergleich zum  $UO_2/Zr$ -System durch ATF mindestens erreicht oder sogar übertroffen werden /BRA 14a/, /ZIN 14/. Für den Einsatz von ATF in bereits existierenden oder projektierten Kernkraftwerken ist eine weitgehende Abwärtskompatibilität dieser weiterentwickelten Brennelemente zu den existierenden

Brennelementen erforderlich. Ziel des Einsatzes von ATF ist die verbesserte Störfallbeherrschung im Sinne der Einhaltung der Schutzziele *Kühlbarkeit des Kerns* und *Einschluss der Aktivität*. Die zu betrachtenden bzw. erforderlichen Eigenschaften im Fall des primär zugrunde gelegten KMV-Störfalls sind dabei

- eine reduzierte Reaktionskinetik mit Dampf, v. a. hinsichtlich einer geringeren Oxidationsrate und -wärme,
- eine verringerte Erzeugungsrate von Wasserstoff, d. h. Vermeidung von Gasansammlung und potenzieller Explosionsgefahr,
- verbesserte Brennstoffeigenschaften, u. a. eine verbesserte Wärmeleitung im Brennstoff und damit verknüpft eine verringerte gespeicherte Energie zu Beginn eines Störfalls,
- verbesserte Hüllrohreigenschaften hinsichtlich Kriechverformung als Folge reduzierter Kriechraten bei gleicher Innendruckbelastung,
- eine verringerte Kriechrate als Folge einer verbesserten Spaltgasrückhaltung im Brennstoff,

weitgehender Erhalt einer Restduktilität der Brennstabhülle, die die Belastungen des thermischen Schocks übersteht.

Die Umsetzung dieser Ziele bringt neben der Verbesserung der Störfallbeherrschung weitere sicherheitstechnisch relevante Aspekte mit sich, die auch im Lichte der Einhaltung der wesentlichen Schutzziele Reaktivitätskontrolle und Sicherer Einschluss zu sehen sind. Eine Reihe von weiteren Aspekten muss individuell für jedes Konzept vor dessen großtechnischer Realisierung umfangreich untersucht und bewertet werden, wie z. B.

- verbesserte Rückhaltung von gasförmigen und anderen Spaltprodukten im Brennstoff bzw. durch verbesserte Hüllrohrintegrität,
- Erhöhung der Brennstoffdichte bei gegebener Geometrie und Anreicherung,
- Änderungen der Anreicherung,
- erweiterte Zykluslänge,
- eventuell parallel zum ATF-Einsatz anvisierte optionale Leistungserhöhungen.

Ein wesentliches Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Erfassung und Bewertung der unterschiedlichen, international verfolgten, innovativen und kernschmelzresistenteren Brennstoff- und Hüllrohrkonzepte, die primär das Ziel verfolgen eine erhöhte Standfestigkeit des Brennstabs unter Störfallbedingungen gegen Integritätsverlust bis zur Kernschmelze, sowie der Wasserstofffreisetzung, insbesondere bei auslegungsüberschreitenden Kühlmittelverluststörfällen, zu erreichen. Entsprechende Forschungs- und Entwicklungsarbeiten werden international in allen bedeutenden Nationen verfolgt, die Kernenergie zur kommerziellen Energiegewinnung nutzen. Dies betrifft auch Länder in der unmittelbaren Nachbarschaft von Deutschland. Die volle Einsatzreife erster ATF-Konzepte wird zeitnah, also innerhalb der nächsten Jahre, erwartet.

Kap. 2 beschreibt die Zielsetzung des Vorhabens. Kap. 3 beschreibt die Recherchearbeiten zum Internationalen Stand von Wissenschaft und Technik zu ausgewählten, wichtigen ATF-Konzepten. Kap. 4 erläutert die Arbeiten zur Implementierung essentieller Modelle zu Chrom-beschichteten Zirkoniumlegierungen und Eisen-Chrom-Aluminium als Hüllrohrmaterial in den GRS Brennstabcode TESP-ROD. In Kap. 5 ist die aktive Begleitung internationaler Aktivitäten zu ATF im Rahmen dieses Vorhabens beschrieben. Kap. 6 schließlich bietet eine Zusammenfassung sowie einen kurzen Ausblick auf künftige Arbeiten.

## **2 Zielsetzung des Vorhabens**

### **2.1 Gesamtziel**

Übergeordnetes Ziel des Vorhabens ist die Erfassung und Bewertung der unterschiedlichen, international verfolgten, innovativen und kernschmelzresistenteren Brennstoff- und Hüllrohrkonzepte (sog. *Accident-tolerant Fuels*, ATF). Weiterhin ist das Ziel des Vorhabens die Identifizierung daraus resultierender wichtiger Fragestellungen für die Reaktorsicherheitsforschung und zukünftiger Forschungs- und Entwicklungsvorhaben, sowie des diesbezüglichen Anpassungs- bzw. Erweiterungsbedarfs der in der GRS vorhandenen Rechencodes, speziell des mit BMWi-Mitteln entwickelten Brennstabcodes TESP-ROD zur Berechnung des thermomechanischen Hüllrohrverhaltens. Zusätzlich sind im Rahmen dieses Vorhabens die ersten Schritte zur Implementierung der wichtigsten ATF-Konzepte in TESP-ROD vorgesehen. Dies beinhaltet sowohl die Einführung neuer Materialdaten als auch erweiterter radialer Hüllrohrmodelle. Mit diesen Arbeiten soll die Aussagefähigkeit der GRS in diesem Themenfeld – speziell auf Basis der Entwicklung eigener Methoden und Werkzeugen – sichergestellt werden.

Entsprechende Forschungs- und Entwicklungsarbeiten werden international in allen bedeutenden Nationen verfolgt, die Kernenergie zur kommerziellen Energiegewinnung nutzen. Dies betrifft auch Länder in der unmittelbaren Nachbarschaft von Deutschland. Die volle Einsatzreife erster ATF-Konzepte wird zeitnah, also innerhalb der nächsten Jahre, erwartet. Dies verdeutlicht die Dringlichkeit der hier durchgeführten Arbeiten.

### **2.2 Wissenschaftlich-technische Einzelziele**

Folgende wissenschaftlich-technischen Einzelziele werden in dem Vorhaben verfolgt:

1. Verbessertes Verständnis der spezifischen Eigenschaften der wichtigsten, für ATF vorgeschlagenen Hüllrohrmaterialien und Brennstoffe sowie Identifizierung sicherheitsrelevanter Fragestellungen zur Thermomechanik unter Normal- und Störfallbedingungen, hier v. a. Kühlmittelverluststörfälle (KMV).
2. Ertüchtigung des Brennstabcodes TESP-ROD zu ATF, Entwicklung und Implementierung neuer bzw. erweiterter Modelle zur Berücksichtigung von metallischen und nicht-metallischen Hüllrohrmaterialien unterschiedlicher physikalisch-/chemischer Zusammensetzung (Cr-Beschichtung auf Zr, SiC/SiC-Multi-Layer,

etc.). Der Fokus liegt zunächst auf Materialien, welche bereits vergleichsweise nahe an der großtechnischen Einsatzreife stehen. Implementierung materialspezifischer Kenndaten zu ATF in TESP-ROD auf Basis verfügbarer publizierter Daten.

3. Einbringung der Ergebnisse in das internationale Umfeld durch Teilnahme an Konferenzen (z. B. TopFuel) und Arbeitsgruppen (z. B. OECD-NEA WPRS, WGFS oder EGATFL, IAEA ACTOF, ggf. weitere).

### **3 Internationaler Stand von Wissenschaft und Technik**

In diesem Arbeitspaket sind die wesentlichen Recherche-Ergebnisse der internationalen publizierten Literatur zu fortschrittlichen ATF beschrieben. Fortschrittliche Hüllrohr-Konzepte werden in Kap. 3.1 behandelt, wozu hier beschichtete Zirkonium-Legierungen (Kap. 3.1.1), Eisen-Chrom-Aluminium-Legierungen (Kap. 3.1.2), Siliziumkarbid-basierte Hüllrohre (3.1.3) und Molybdän-basierte Hüllrohre (Kap. 3.1.4) gehören. Fortschrittliche Brennstoff-Konzepte werden in Kap. 3.2 behandelt, wozu hier modifiziertes Uran-dioxid (Kap. 3.2.1), Uransilizid (Kap. 3.2.2), Urannitrid (Kap. 3.2.3) und TRISO-Partikel in inerter Matrix (Kap. 3.2.4) gehören.

#### **3.1 Fortschrittliche Hüllrohr-Konzepte**

##### **3.1.1 Beschichtete Zirkonium-Legierungen**

Eines der betrachteten ATF Hüllrohr-Konzepte besteht in der Weiterentwicklung der aktuellen Hüllrohrtypen durch das Hinzufügen einer externen Beschichtung auf Standard-Hüllrohre (im Folgenden als *Substrat* bezeichnet). Verschiedene Beschichtungen werden untersucht, die unterschiedliche Verbesserungsperspektiven anbieten. Ein wichtiger gemeinsamer Vorteil ist, dass diese neuen Hüllrohrkonzepte viele grundlegende Eigenschaften des Standardsystems  $UO_2/Zr$  beibehalten, sodass die Materialcharakterisierung, die Sicherheitsuntersuchungen und die Lizenzierung vereinfacht sein sollten. Die Beschichtung sollte dünn sein verglichen zum unterliegenden Substrat. Das mechanische Verhalten wird dann hauptsächlich vom Zircaloy bestimmt. Im Fall einer ausreichend dicken Schicht soll die Beschichtung die Verschleißfestigkeit der Stäbe erhöhen, da die betrachteten Beschichtungsmaterialien härter als Zirkonium-Legierungen sind.

Das Konzept der beschichteten Zirkonium-Legierungen bietet eine gewisse Vielfalt von Varianten, die im Folgenden beschrieben werden. Die Beschichtungen können in zwei Gruppen geteilt werden: Metall- und Keramikbeschichtungen. Die Dicke der Beschichtung ist in der Größenordnung von einigen zehn Mikrometern, oder sogar unter  $10\ \mu\text{m}$  für Keramikbeschichtungen. Da die Dicke der Beschichtung gering bleibt, ist die Auswirkung auf das Neutronenverhalten sowie auf die Wärmeausfuhr unerheblich. Die Anwendung dieser Hüllrohre würde deswegen keine großen Änderungen der aktuellen Kernkonfiguration erfordern. Die Beschichtung erfolgt zurzeit hauptsächlich durch physikalische Gasphasenabscheidung (*physical vapor deposition*, PVD). Die University

of Wisconsin-Madison (UW-Madison) hat in Zusammenarbeit mit der Westinghouse Electric Company (im Folgenden: Westinghouse) den sog. Kaltgasspritzen-Beschichtungsprozess (*cold spray coating*, CSC) entwickelt /MAI 18/, /NEA 18a/.

### **3.1.1.1 Metallbeschichtungen**

#### **3.1.1.1.1 Metallisches Chrom**

Bei den aktuellen Konzepten dieser Art besteht die Beschichtung aus reinem metallischem Chrom mit typischen Schichtdicken von 5 bis 20  $\mu\text{m}$ . Diese Art der Beschichtung wird u. a. von Framatome/CEA/EDF, dem *Korea Atomic Energy Research Institute* (KAERI) und der *University of Illinois Urbana-Champaign* (UIUC) erforscht, welche die Beschichtung mittels PVD aufbringen sowie von Westinghouse, die die Beschichtung durch einen CSC-Prozess aufbringen /NEA 18a/. Auch in Russland werden entsprechende Entwicklungen vorangetrieben /UGR 18/. Chrom wird aufgrund seines hohen Schmelzpunkts ( $\sim 1.900\text{ }^{\circ}\text{C}$ ), seiner guten Oxidationsbeständigkeit und seines Wärmeausdehnungskoeffizienten ähnlich dem von Zirkonium als Beschichtungsmaterial ausgewählt. An der Beschichtungsoberfläche bildet sich eine ca. 250 nm dünne Chromoxidschicht  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ , die sehr stabil ist und als Diffusionssperre wirkt /TAN 17/.

Zug-, Kriech- und Berst-Versuche wurden von Framatome/CEA/EDF mit Chrom-beschichtetem M5 /GAR 02/, /FRA 18/, /BIS 18a/, /BIS 18b/, /DUM 18/ und zum Vergleich mit unbeschichtetem M5<sup>©</sup> Hüllrohr bei Raumtemperatur und bei 400  $^{\circ}\text{C}$  durchgeführt. Diese Versuche zeigten ähnliches mechanisches Verhalten für beide Hüllrohrtypen, also mit und ohne Beschichtung. Chrom besitzt eine besonders hohe Verschleißfestigkeit, was die beschichteten Brennstäbe gegen Abrieb schützen soll. Dazu erwies sich die Haftfähigkeit des Chroms als sehr gut, sodass die Beschichtung mit dem Substrat verbunden bleibt /NEA 18a/.

Die Chrom-Beschichtung wirkt als effiziente Schutzschicht zwischen dem Substrat und dem Kühlmittel. Die entstehende  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ -Schicht verhindert das Fortsetzen der Oxidationsreaktion und sorgt dabei für eine deutlich reduzierte Wasserstoffaufnahme im Hüllrohr. Tests im Druckwasserreaktor (DWR) wurden mit Wasser bei 360  $^{\circ}\text{C}$  und mit Dampf bei 415  $^{\circ}\text{C}$  durchgeführt und zeigten eine Korrosionsrate mindestens um den Faktor kleiner 10 als mit unbeschichteten Hüllrohren /NEA 18a/.

Ionenbestrahlungstests wurden vom CEA durchgeführt, um die Stabilität der Cr-Zr Grenzfläche zu überprüfen. Bei 400 °C und mit Bestrahlung bis 10 dpa ist keine Verschlechterung der Grenzfläche festzustellen. Chrom zeigte auch hier eine gute Haftfähigkeit auf, und es zeigte sich keine Diffusion von Chrom im Substrat. Weitere Tests sollen durchgeführt werden, insbesondere nach einer Neutronenbestrahlung /NEA 18a/.

Eine vom EPRI durchgeführte Gap-Analyse /EPRI 18/ weist darauf hin, dass die gesamte große Brennstab-Hüllrohroberfläche im Reaktorkern auch bei einer niedrigen Chrom-Korrosionsrate zu einer bedeutenden Freisetzung des Radioisotops<sup>2</sup> <sup>51</sup>Cr /CHA 11/ führen könnte. Dies führt zu einer zusätzlichen Kühlmittelkontamination im Primärkreis, mit möglichen Konsequenzen auf die Dosisleistung und die Anforderungen an Abschirmungen. Chrom insgesamt kann im Kühlmittel zu einer Veränderung der chemischen Bedingungen von reduzierend zu oxidierend führen, speziell beim Abfahren, bei oder nach einer Stillstandszeit. Dies würde zu einem veränderten Korrosionsverhalten im Bereich des Primärkreises führen. Ein weiterer Aspekt ist die Härte der Korrosionsschicht, die den Kontakt zwischen Abstandhaltern und Brennstäben beeinflusst. Es könnte insbesondere das durch strömungsinduzierte Vibrationen verursachte *Fretting* zwischen Abstandhaltern und Brennstäben verstärken und so zu einem erhöhten Hüllrohrversagen führen. Schließlich sind auch mögliche lokale Risse erwähnt, die zu sog. kalten Stellen im unterliegenden Substrat führen könnten. Diese kalten Stellen würden die Bildung von Hydriden begünstigen, die dann zur Versprödung des Hüllrohrs beitragen können /EPRI 18/.

Chrom-beschichtete Zircaloy-Hüllrohre wurden bereits mehrfach in kommerziellen Kernkraftwerken erprobt. Eine Auswahl speziell US-amerikanischer Entwicklungen wurde auf dem EPRI ESCP Meeting in Charlotte vom 4. - 7. November 2019 in einem Workshop zu ATF vorgestellt. Dies umfasste das Programm EnCore® von Westinghouse /WEC 19/, das Programm PROtect™ /FRA 21/ von Framatome, sowie das ATF-Programm von Global Nuclear Fuel (GNF) namens ARMOR™ /LIN 18/, in welchen dreien u. a. entsprechende beschichtete Hüllrohre entwickeln. Einige Informationen wurden hier proprietär gehalten /KAR 19/, /LEW 19/, /CAN 19/.

---

<sup>2</sup> Spalt- und hier v. a. Aktivierungsprodukt <sup>51</sup>Cr: Halbwertszeit 27,7 Tage, Umwandlung durch Elektroneneinfang bzw. β<sup>+</sup> Zerfall zu 100 % in <sup>51</sup>V, eine scharfe Gamma-Linie der Intensität 9,91 % bei 320,08 keV.

Westinghouse hat im April 2019 sechzehn Brennstäbe mit Chrom-beschichteten Hüllrohren im Kernkraftwerk Byron Unit 2 (DWR) eingesetzt. Von den sechzehn Brennstäben sind vier mit ADOPT™ /WEC 22/ Pellets ausgestattet /WNN 19d/, /KAR 19/. Diese Brennstäbe wurden nach einem Zyklus im Jahr 2021 für Nachbestrahlungsanalysen zum *Oak Ridge National Laboratory* (ORNL) verbracht /NNW 21/.

Framatome hat in mehreren Kernkraftwerken Chrom-beschichtete Brennstäbe eingesetzt bzw. zum Einsatz geplant /LEW 19/:

- in Vogtle Unit 2 (DWR), im Februar 2019: vier Brennelemente mit jeweils vier Chrom-beschichteten Brennstäben (PROtect™), befüllt mit Chrom-dotierten Pellets,
- in Arkansas One Unit 1 (DWR), im Oktober 2019: acht Brennelemente mit zwei PROtect™ Brennstäben, jeweils befüllt mit UO<sub>2</sub> Pellets,
- in Calvert Cliffs Unit 2 (DWR), Anfang 2021: zwei Brennelemente komplett aus PROtect™ Brennstäben, befüllt mit Chrom-dotierten Pellets.

2018 hatte GNF Brennstäbe mit beschichteten Hüllrohren im Kernkraftwerk Edwin I. Hatch Unit 1 (SWR) eingesetzt /WNN 18/. Die Untersuchung der bestrahlten Brennstäbe sollte Anfang 2020 stattfinden /CAN 19/.

### **3.1.1.1.2 Chrom-Legierungen**

In dieser Variante besteht die Beschichtung aus legiertem Chrom. Eine Aluminium-Chrom-Legierung (Al-Cr) wird aktuell vom KAERI und UIUC untersucht. Die Chrom-Legierungen haben verbesserte Eigenschaften im Normalbetrieb aufgewiesen, wie eine sehr niedrige Korrosion und Wasserstoffaufnahme sowie eine erhöhte Festigkeit, Verschleißfestigkeit und Haftfähigkeit. Das Verhalten in Störfällen weist ebenfalls Vorteile auf, wie eine reduzierte Dampfoxidation bei hohen Temperaturen bis zu 1.400 °C, reduziertes Aufblähen (*Ballooning*) und Kriechen sowie eine erhöhte Duktilität nach einem Quenching /NEA 18a/.

Die TVEL Fuel Company (JSC) in Russland hat u. a. Untersuchungen zu ATF-Konzepten für VVER-Reaktoren durchgeführt. Hitzebeständige Beschichtungen für E110 Hüllrohre wurden als die einfache und preiswerte Möglichkeit betrachtet, Brennstäbe herzustellen. Dafür wurden Chrom und die Nickel-Chrom-Legierung 42XHM (korrosionsbeständiger Stahl) als Beschichtungsmaterialien benutzt. Die 42XHM Legierung wurde bereits als

Hüllrohrmaterial für Brennelemente in Schiffantriebsreaktoren sowie für Steuerstäbe in VVER-Reaktoren verwendet /UGR 18/. Die Ergebnisse der erwähnten Tests mit diesen Beschichtungen wurden von TVEL Fuel Company hier nicht näher detailliert.

#### **3.1.1.1.3 FeCrAl und Cr/FeCrAl Mehrschicht-Systeme**

FeCrAl wird zumeist als ATF-Hüllrohrmaterial für die gesamte Hüllrohrdicke betrachtet, vgl. Kap. 3.1.2. Darüber hinaus wird es auch als Beschichtungsmaterial für Zircaloy untersucht. Das Aluminium bildet eine dünne passive  $\text{Al}_2\text{O}_3$  Oxidschicht, die das Hüllrohr vor einer weiteren Oxidation schützt. Dieses Konzept wird vom KAERI und von der UIUC untersucht, sowie von UW-Madison/Westinghouse /MAI 18/, /NEA 18a/. Die Beschichtungsdicke liegt zwischen 40 und 80  $\mu\text{m}$  bei den Prototypen von KAERI und UW-Madison/Westinghouse, und bei etwa 1  $\mu\text{m}$  bei UIUC.

FeCrAl oder generell eisenbasierte Legierungen benötigen eine zusätzliche dünne Schutzschicht an der Grenzfläche zwischen Substrat und Beschichtung. Tatsächlich diffundiert Eisen schnell ins Hüllrohr und bildet mit Zirkonium ein Eutektikum bei rund 900 °C. Im KAERI Konzept wird eine Cr- oder Cr-Al-Schutzschicht vorgesehen. Im UW-Madison/Westinghouse Konzept wurde eine Molybdän-Schutzschicht erprobt /MAI 18/, /NEA 18a/.

Beim UW-Madison/Westinghouse Konzept wurde für 20 Minuten die Umgebungsluft auf 1.200 °C erhitzt. FeCrAl beschichtete Hüllrohre mit und ohne Molybdän-Schicht wurden dadurch verglichen und die Eisen-Diffusion ohne Molybdän-Schicht konnte deutlich nachgewiesen werden. Diese Diffusion geht mit Veränderungen der Mikrostruktur einher, die typisch für ein Eutektikum und die verbundenen Eigenschaften Schmelzen und Erstarren sind. Die Anwendung einer Molybdän-Schichte wies dabei eine minimierte Diffusion zwischen dem FeCrAl und der Zr-Legierung auf /MAI 18/.

Korrosionstests wurden von der UIUC durchgeführt; die Ergebnisse waren nicht so klar wie bei der Chrom-Beschichtung. Die Beschichtung von nur 1  $\mu\text{m}$  war offensichtlich zu dünn, als dass sie eine effiziente Schutzfunktion erfüllen konnte /NEA 18a/. Des Weiteren sind keine Bestrahlungstests bekannt.

## **Keramikbeschichtungen**

Keramikbeschichtungen sind generell deutlich härter und spröder als Metallbeschichtungen. Das soll zum einen eine hohe Verschleißfestigkeit gewährleisten, zum anderen führt dies allerdings zu einer höheren Bruchgefahr /NEA 18a/.

### **3.1.1.2 Nitrid-Beschichtungen**

Hierzu gehören Beschichtungen des Zircaloy mit Chromnitrid CrN, Titannitrid TiN, Titan-Aluminium-Nitrid TiAlN, Chrom-Aluminium-Nitrid CrAlN, oder als Mehrschichtsystem mit verschiedenen Nitriden.

Nitrid-Beschichtungen wurden bzw. werden u. a. von der IFE-Halden/CNL und von der Pennsylvania State University (PSU) untersucht /NEA 18a/. Die Nitrid-Beschichtungen werden aufgrund ihrer Festigkeit und ihrem Verschleißverhaltens häufig im großen Maßstab verwendet. Zum Korrosionsschutz sind Chromnitrid CrN und Titannitrid TiN effizient. Im Gegensatz dazu sind Aluminium-enthaltende Nitride (TiAlN, CrAlN) deutlich empfindlicher, da  $Al_2O_3$  instabil im DWR-Kühlmittel ist und sich nach und nach auflöst. PSU hat mehrschichtige Beschichtungen mit TiAlN und TiN hergestellt, die über 30 Tage ein gutes Korrosionsverhalten aufgewiesen haben; es wurden bisher keine langfristigen Untersuchungen durchgeführt.

Bestrahlungstests wurden von IFE-Halden/CNL auf CrN, TiAlN und CrAlN Beschichtungen durchgeführt. CrN weist eine gute Beständigkeit gegenüber der Bestrahlung auf. Es sind keine Risse oder eine Delamination zu beobachten. Die TiAlN und CrAlN Beschichtungen wurden dagegen während der Bestrahlung komplett entfernt. Die gefertigten Beschichtungen waren mit 1 bis 4  $\mu\text{m}$  Schichtdicke besonders dünn.

Oxidation und mechanische Versuche bei hohen Temperaturen (über 1.000 °C) wurden von IFE-Halden/CNL durchgeführt. CrN Beschichtungen wiesen dabei eine reduzierte Dampfoxidation auf, und nur wenige Risse sind aufgetreten. Die Haftfähigkeit war bei HT-Berstprüfungen sehr hoch. Es sind Risse an der Stelle des *Balloonings* aufgetreten. Die HT-Dampfoxidationstests mit TiAlN und CrAlN haben dagegen zu vermehrten Rissen und zu einer Delamination geführt.

Als Keramik weist CrN eine besonders hohe Verschleißfestigkeit auf, kann aber trotzdem um 1,5 % gedehnt werden. Die Haftfähigkeit ist hoch, sodass die Beschichtung an dem Substrat effizient verbunden bleibt /NEA 18a/.

### 3.1.1.3 Beschichtungen aus MAX-Phasen

Die Anwendung von sog. *MAX Phasen* wird u. a. vom KIT, von Framatome und von UW-Madison/Westinghouse untersucht /MAI 18/, /NEA 18a/. MAX Phase steht für eine  $Mn+1AX_n$  Phase, wobei M ein Übergangsmetall ist, A ein Element der Gruppe 13-16, und X für Kohlenstoff C und/oder Stickstoff N steht. Beispiele sind  $Ti_2AlC$ ,  $Cr_2AlC$ ,  $Zr_2AlC$ ,  $Zr_2SiC$ . MAX Phasen sollen Metall- und Keramikeigenschaften (mechanische und thermische Eigenschaften, Beständigkeit gegen schwere Ionen- und Neutronenbestrahlung) kombinieren. Deren Stöchiometrie ist allerdings bei der Herstellung durch PVD schwierig zu kontrollieren.

Zurzeit sind keine Daten bezüglich des Normalbetriebs vorhanden, und es erscheint möglich, dass das Auflösen von z. B.  $Ti_2AlC$  im Kühlmittel durch Oxidation erhebliche Probleme verursachen kann. Hochtemperatur-Dampfoxidationstests wurden vom KIT und von Framatome durchgeführt. Die Beschichtung mit  $Ti_2AlC$  weist keine Verbesserung verglichen mit einem unbeschichteten Hüllrohr auf. Mit einer  $Cr_2AlC$  Beschichtung wird die HT Dampfoxidation reduziert /NEA 18a/.

Die UW-Madison/Westinghouse Gruppe hat Untersuchungen auf  $Ti_2AlC$  durchgeführt. Bei der Anwendung des Kaltgasspritzen Beschichtungsprozesses konnte sie eine 100  $\mu m$  dicke Schichte frei von Rissen und Poren fertigen. Dieser Prozess scheint das Problem der Stöchiometrie zu lösen, der Verbindungsmechanismus des Pulvers soll aber noch weiter untersucht werden. Erste Oxidationstests wurden bei einer Umgebungsluft von 1.000 °C durchgeführt. Nach sieben Minuten hatte sich eine Oxidschicht (Ti und Al Oxide) von 10  $\mu m$  gebildet, dagegen wurde hier keine Oxidation des Zr-Substrats festgestellt. Unbeschichtete Proben mit den gleichen Bedingungen wiesen eine 25  $\mu m$  dicke Zr-Oxidschicht auf. Es wurde von einer erhöhten Verschleißfestigkeit und hohen Härte dieser Beschichtung berichtet /MAI 18/.

**Tab. 3.1** Zusammenfassung der Eigenschaften der Beschichtungskonzepten nach /NEA 18a/

Institute	Beschichtungssysteme	Herstellung	Normalbetrieb	Störfallverhalten
Framatome -CEA-EDF	Cr (5-20 µm)	PVD (Prototyp in Realgröße in Bearbeitung)	Extrem niedrige Korrosion und Wasserstoffaufnahme. Mechanisches Verhalten ähnlich wie bei unbeschichteten Hüllrohren. Sehr gute Haftfähigkeit. Cr-Zr Grenzfläche stabil unter Ionenbestrahlung. Erhöhte Verschleißfestigkeit	Deutlich reduzierte HT Dampfoxidation.
KAERI	Cr, Cr-Al, FeCrAl (40-80 µm)	PVD (Ionenplattierung) dreidimensionales Laserbeschichten	Extrem niedrige Korrosion und Wasserstoffaufnahme. Erhöhte Festigkeit und reduzierte Duktilität. Sehr gute Haftfähigkeit Erhöhte Verschleißfestigkeit.	Deutlich reduzierte HT Dampfoxidation (bis 1.400 °C). Erhöhte Post-Quenching-Duktilität. Festigkeitssteigernder Effekt of Cr: reduziertes HT Kriechen und Ballooning. Fe-Zr Eutektikum bei etwa 900 °C (Anwendung einer Schutzschichte).
IFE-Halden /CNL	CrN (1-4 µm)	PVD Kommerziell erhältlich (gesamte Länge)	Extrem niedrige Korrosion und Wasserstoffaufnahme. Gute Haftfähigkeit. Erhöhte Verschleißfestigkeit. Kleine Risse in der Beschichtung nach Bestrahlung beobachtet.	Reduzierte HT Dampfoxidation. Einige Risse beobachtet während HT Dampfoxidation. Sehr hohe Haftfähigkeit bei HT Bursttests aber signifikante Risse an der Stelle des Busts/Balloonings.

Institute	Beschichtungssysteme	Herstellung	Normalbetrieb	Störfallverhalten
	TiAlN, CrAlN (1-4 µm)	PVD Kommerziell erhältlich (gesamte Länge)	In Wasser löslich Schlechte Haftfähigkeit	Risse und Delamination beobachtet nach HT Dampfoxidation.
KIT	MAX phases (Ti <sub>2</sub> AlC, Cr <sub>2</sub> AlC) (.5 µm)	PVD Stöchiometrie und Mikrostruktur schwierig zu steuern	Keine Daten. Mögliches Auflösen von Ti <sub>2</sub> AlC in Wasser (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	HT Dampf-Oxidationsbeständigkeit von Ti <sub>2</sub> AlC ähnlich dem unbeschichteten Zircaloy-4 Reduzierte HT Dampfoxidation von Cr <sub>2</sub> AlC
UIUC	Cr-Al (.1 µm) ----- FeCrAl (.1 µm)	PVD	Ergebnisse schwer zu interpretieren. Reduzierte Korrosion aber Masseverlust für FeCrAl (Auflösen von Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ).	Leicht reduzierte HT Dampfoxidation bei 700 °C. Unbedeutende Auswirkung bei 1.200 °C Dampf (zu dünn). Fe-Zr Eutektikum bei 900 °C.
PSU	TiN / TiAlN (.10 µm)	PVD (Mehrschichtige Beschichtung)	Geringe Korrosion und Wasserstoffaufnahme mit TiN Oberfläche.	Keine Daten

### 3.1.2 Eisen-Chrom-Aluminium (FeCrAl) Legierungen

Bei dem sog. Eisen-Chrom-Aluminium (FeCrAl) handelt es sich um eine Gruppe moderner ferritischer Stähle (auch: *advanced steels*) als Hüllrohrmaterial für zumeist oxidische Brennstoff-Pellets auf Uranbasis. Diese Stähle basieren wesentlich auf Eisen, und enthalten Chrom, Aluminium sowie verschiedene Legierungskomponenten und Spurenelemente in unterschiedlichen Konzentrationen.

Durch die Arbeiten zur Begleitung internationaler Forschung (vgl. Kap. 5) konnte eine Bewertung der Anwendbarkeit der bestehenden Sicherheits- und Auslegungskriterien für Brennstoffe auf der Basis von UO<sub>2</sub>-Keramikbrennstoffpellets, die mit einer Hülle aus einer Zirkonium-Basislegierung umhüllt sind, auf FeCrAl-Hüllmaterial durchgeführt werden /NEA 22a/, vgl. insbesondere auch Kap. 5.1. Datenlücken sowie Forschungsarbeiten, die zur Charakterisierung dieses fortschrittlichen Brennstoffdesigns für zukünftige Genehmigungen erforderlich sind, werden in einer Bewertungsmatrix erfasst. Die

Untersuchung von /NEA 22a/ zeigt, dass die Eigenschaften und die erwartete Leistung von FeCrAl einen Einfluss auf die Phänomene im Reaktor und viele wichtige Sicherheits- und Auslegungskriterien haben. Während das volle Ausmaß dieser Auswirkungen noch unbekannt ist, werden im Folgenden einige wichtige Beobachtungen, Datenlücken und Forschungsbedarf diskutiert.

Der OECD-NEA EGATFL *State-of-the-Art-Report* /NEA 18a/ gibt neben generischen Legierungen bzw. Laborproben mit Kanthal® APMT /ORNL 18/, /SAN 21/ auch ein kommerzielles Produkt aus dem nichtnuklearen Bereich als Referenz an.

FeCrAl-Materialien sind grundsätzlich für den Einsatz in SWR und DWR geeignet, und für den Betrieb in beiden Arten von Kühlmittelchemie auslegbar.

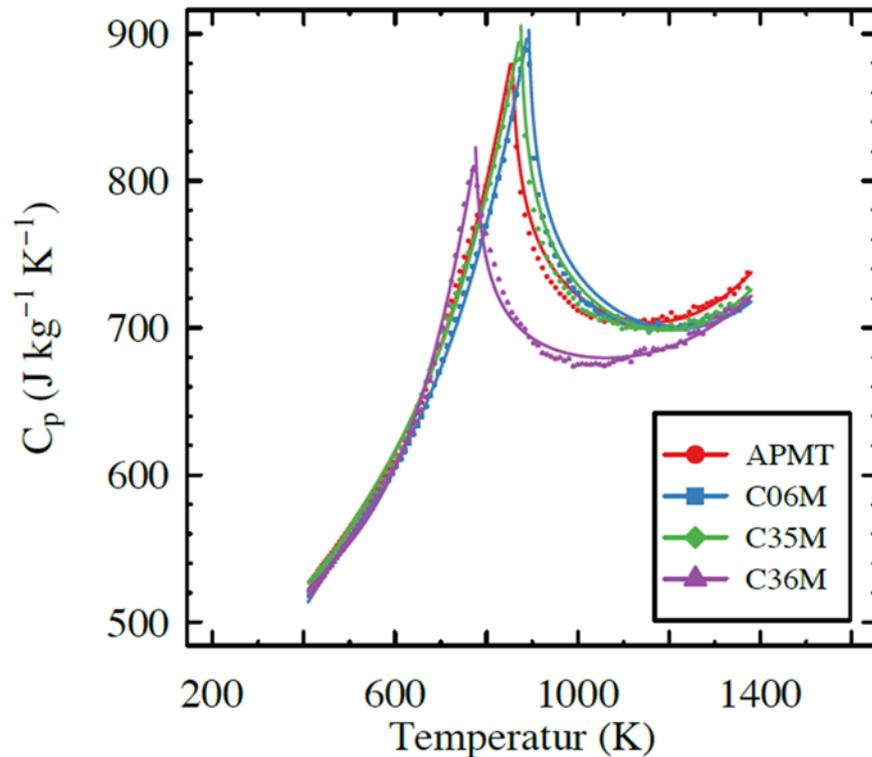
### 3.1.2.1 Physikalische Eigenschaften

Im Folgenden werden einige physikalische Eigenschaften der FeCrAl-Werkstoffe beschrieben. Die Untersuchungen beschränken sich auf Legierungen mit geringen Chromgehalten (< 15 %), sowie dem Vergleichsprodukt Kanthal® APMT mit ca. 21 % Chrom. Neben den normalen Legierungen werden zusätzlich sog. Oxiddispersionsverfestigte (*oxid-dispersed strengthened*, ODS) Hüllrohre betrachtet, wie sie u. a. in Japan von dem Hersteller Nippon Nuclear Fuel Development Co., Ltd. (NFD) entwickelt werden.

**Tab. 3.2** Zusammensetzung verschiedener Typen von ferritischen Stählen in Gewichtsprozent, in Betrachtung als ATF-Hüllrohr (Auswahl)

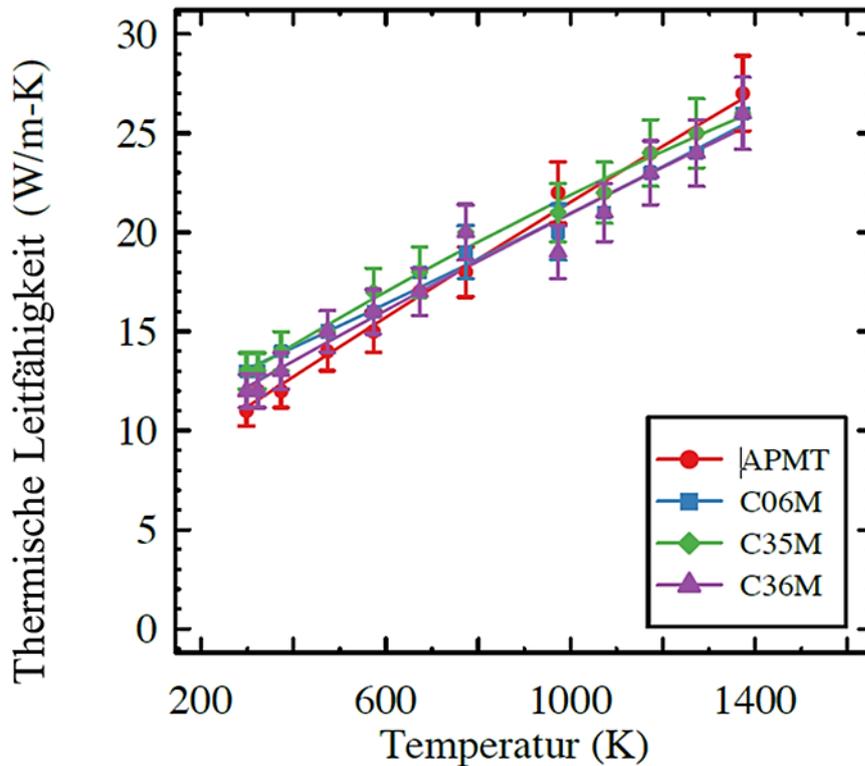
	Cr	Al	Fe	Kommentar
Kanthal® APMT	21	5	Abgleich zu 100 %	Kommerzielles Produkt aus nicht nuklearem Bereich
FeCrAl	10-12	5-6	Abgleich zu 100 %	Hier: Entwicklungen des ORNL (C06M, C26M, C35M, C36M)
ODS FeCrAl	12	6	Abgleich zu 100 %	Entwicklung d. japanischen Herstellers NFD

Die spezifische Wärmekapazität von FeCrAl ist stark von der Temperatur abhängig und besitzt je nach konkreter Zusammensetzung ein lokales Maximum zwischen 770 K und 890 K. Dieser Effekt lässt sich auf einen Übergang vom ferromagnetischen zum paramagnetischen Zustand zurückführen /ORNL 18/.



**Abb. 3.1** Spezifische Wärmekapazität verschiedener Typen von FeCrAl-Legierungen nach /ORNL 18/

Die thermische Leitfähigkeit der betrachteten Legierungen weicht nur geringfügig voneinander ab.



**Abb. 3.2** Thermische Leitfähigkeit verschiedener Typen von FeCrAl-Legierungen nach /ORNL 18/

Die thermische Ausdehnung von FeCrAl ist ungefähr doppelt so hoch wie die von Zircaloy.

### 3.1.2.2 Eigenschaften von FeCrAl im Betrieb

Als nachgelagertes Spaltprodukt entsteht in den Brennstäben Tritium ( $^3\text{H}$ ). Die geringe Rückhaltefähigkeit für Tritium ist eine wesentliche Herausforderung bei der Verwendung von FeCrAl als Hüllrohrmaterial. Die hohe Mobilität des Tritiums führt zu einer hohen Durchlässigkeit vom Brennstoffpellet über den Spalt bis durch die Hülle. Dies ist v. a. für SWR von besonderer Bedeutung, da die Auslegung mit nur einem Kühlkreislauf zu einer Verteilung des freigesetzten Tritiums im gesamten Kühlsystem führt. Die Permeabilität gegenüber Tritium wird durch hohe Chromgehalte reduziert, z. B. 20% - 23% bei Kanthal® APMT /LI 17/. Oxidschichten haben sich als effiziente Barriere gegen Tritium erwiesen. Eine Wärmebehandlung des Hüllrohrs aus entweder reinem FeCrAl-Material oder FeCrAl-Material mit einer zusätzlichen Aluminiumbeschichtung (*Coating*) bildet eine  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Schicht und reduziert dadurch die Permeabilität um etwa eine Größenordnung. Bislang ist das Aufbringen einer Oxidschicht für FeCrAl im kommerziellen

Betrieb im LWR nicht vorgesehen. Es gibt derzeit kein Sicherheitskriterium, das sich direkt auf die Tritium-Rückhaltung bezieht. Permeabilitätsmessungen an bestrahlten Brennstäben sind notwendig, um den Einfluss auf die resultierende Tritiumdosis zu quantifizieren.

FeCrAl ist anfällig für Chromausscheidungen innerhalb des Hüllrohrs, sogenannte  $\alpha'$ -Phasen (*alpha prime*), die zu Versprödung führen können. Anfällig hierfür sind Legierungen mit einem hohen Chrom-Gehalt wie z. B. bei Kanthal® APMT, die das Potential zu Chrom-Ausscheidungen bei bereits niedrigen Temperaturen  $T < 500\text{ °C}$  aufweisen. Die Bildung und die mechanischen Eigenschaften einer Chrom-reichen  $\alpha'$ -Phase innerhalb der  $\alpha$ -Textur müssen in zukünftigen mechanischen Tests an bestrahlten Brennstäben analysiert werden. Umfangreiche Tests mit unterschiedlichen Parametern werden es ermöglichen, das Risiko der Chrom-induzierten Versprödung bei Temperaturen  $T < 500\text{ °C}$  während des Normalbetriebs, bei Transienten, Auslegungsstörfällen oder bei der Lagerung von abgebranntem Brennstoff zu quantifizieren.

#### **Effekte bei Kühlmittelverluststörfall**

Das existierende Kriterium zum Hüllrohrbruch infolge Versprödung steht in Zusammenhang mit der Hochtemperaturoxidation von Zircaloy-Hüllrohrsystemen und wird praktisch mit dem 17 %-ECR-Kriterium kontrolliert. Dieses Kriterium beruht auf dem Maß der oxidierten Schicht, die einem Äquivalent von 17 % der Hüllrohrwandstärke entspricht. Da die Oxidationsprozesse für FeCrAl unterschiedlich sind, ist das hier ECR-Kriterium nicht anwendbar. Außerdem wird die FeCrAl-Beschichtung nicht durch Versprödung durch Wasserstoff und Sauerstoff beeinträchtigt.

Das Verhalten von FeCrAl bei schnellen Transienten und Leistungsexkursionen (RIA), die zu PCMI-induzierten Versagen führen können, ist bisher nicht hinreichend geklärt. Hierzu fehlen in etwa Enthalpiegrenzen in Abhängigkeit von Abbrand und Brennstofftyp für das systematische Versagen von Hüllrohren unter schnellen Transienten. Die Form und Größe der Hüllrohrberstöffnungen im Verhältnis zu Zircaloy-Hüllrohren nach dem PCMI-Versagen ist ebenfalls noch unbekannt.

Die mechanischen Hochtemperatur-Eigenschaften des FeCrAl-Hüllrohrmaterials scheinen denen von Zircaloy überlegen zu sein, jedoch sind detailliertere Studien zum Kühlmittelverluststörfall erforderlich, um die Auswirkungen von PCMI (*Pellet Cladding*

*Mechanical Interaction*) und FFRD (*Fuel Fragmentation Relocation and Dispersal*) auf dieses ATF-Konzept zu bewerten.

### **3.1.3 Siliziumkarbid-basierte Hüllrohre**

Aufgrund guter passiver Sicherheitsmerkmale erscheint die Gruppe der Siliziumkarbid (SiC) basierten Werkstoffe für den Einsatz im Bereich Hüllrohre mit Fokus auf unfalltolerante Brennstoffe (ATF) prinzipiell gut geeignet. Die dabei verwendete SiC-Endlosfaserkeramik hat dabei den Hauptvorteil einer ausgeprägten Widerstandsfähigkeit gegen höhere Brennstofftemperaturen sowie einer hohen Beständigkeit bei Luft- und Dampfangriffen bis in den Temperaturbereich von 1.700 °C. Auch trägt die hohe mechanische Festigkeit im Hochtemperaturbereich zu dem gewünschten verbesserten Unfallverhalten bei.

Als Basisvoraussetzung für einen kerntechnischen Einsatz zeigen Siliziumkarbid basierte Hüllrohre einen nur geringen Neutronenabsorptionsquerschnitt, sowie eine sehr gute Beständigkeit gegen Bestrahlung, bei geringen Bestrahlungswachstum und einer geringen Aktivierbarkeit des Materials. Beim Einsatz dieser Hüllrohrart ist auch von einer dauerhaften Stabilität beim Thema Endlagerung auszugehen. Somit ergeben sich neue Perspektiven für eine verbesserte Sicherheitsfunktion der Schutzbarriere Hüllrohr. Besondere Herausforderungen sind dagegen Themen wie die hydrothermale Korrosion, mögliche Rissbildungen mit Verlust der Spaltgasretention bereits unter normalen Betriebsbedingungen, die druckdichte Verschließbarkeit mittels einer Endkappe, sowie eine noch nicht ausreichende Modellierbarkeit des Werkstoffes. Durch den Einsatz als Verbundwerkstoff können hier weitere Freiheitsgrade und Entwicklungsmöglichkeiten erlangt werden.

Eine spezielle Herausforderung beim Einsatz von Keramik anstelle von Metall liegt in einem völligen Neuanfang in der technologischen Applikation und verlangt daher nach einer kompletten Neuaufstellung der Design-, Produktions- und Lieferketten. Dazu gehört, dass die genauen Materialeigenschaften, mögliche Wechselwirkungen der Materialkonfigurationen innerhalb und außerhalb des Hüllrohrs, sowie die prinzipiellen physikalischen Effekte an sich, ausreichend erforscht und gesichert sind. Bei der Verwendung von Fasermaterialien hängen die Eigenschaften des Endprodukts vom Verhalten der Fasern an sich, aber auch von der Art der Anordnung der Fasern untereinander, als entscheidender Faktor ab. Viele validierte Materialeigenschaften sind bisher nur in der Form einer ebenen Platte bekannt, die sich über weite Parameterbereiche von denen

eines dünnwandigen Rohrs signifikant unterscheiden. Eine wichtige Sammlung von Daten ist das *SiC/SiC Cladding Materials Properties Handbook* /ORNL 17/, das eine wesentliche Grundlage der hier zusammengefassten Informationen bildet, wie auch die Quellen /SAU 13/, /KAT 15/, /SER 19/ und /SUY 19/.

### **3.1.3.1 Konfigurierbarkeit von Siliziumkarbid**

Als vielversprechende Brennstabmaterialkonfigurationen gelten SiC/SiC Verbundwerkstoffe aus Vollkeramik-Verbundhüllen sowie Schichthüllen, die aus beliebigen Kombinationen von SiC-Verbund und monolithischen SiC-Schichten bestehen können. Daneben gibt es unterschiedlichste Varianten von Keramik-Metall-Hybridkonzepten. Hier ist meist der SiC/SiC Verbundwerkstoff das primäre Strukturelement, welches in der Regel durch eine Zwischenschicht aus einem geeigneten Metall als Sperrschicht (*environmental barrier coating*, EBC) zum sicheren Einschluss von Spaltgasen ergänzt wird (SiC/SiC<sub>f</sub>). Schon bei der Gestaltung der SiC/SiC-Verbundhüllrohre sind verschiedene Kombinationen von Fasern, Zwischenphasen, Matrices sowie Architekturen zu unterscheiden bzw. beim Anfangsdesign festzulegen. Bei den Fasern handelt es sich typischerweise um HNS- oder SA3-Fasertypen. Für die Zwischenphase, noch vor möglichen additiven Zwischenschichten zur Erreichung der Gasdichtigkeit, wird fast ausnahmslos pyrolytischer Kohlenstoff verwendet. Als Matrix dient vorzugsweise dampfinfiltriertes (CVI) SiC, durch Nano-Infiltration und transientes Eutektikum (NITE) hergestelltes SiC, sowie Sylramic-iBN Fasern, und auch weitere. Für die Herstellung von SiC/SiC- bzw. SiC/SiC<sub>f</sub>-Röhren kann bislang auf keine Herstellungsspezifikationsstandards zurückgegriffen werden. Der *Standard Guide for Development of Specifications for Fiber Reinforced Carbon-Carbon Composite Structures for Nuclear Applications* (ASTM C1783-15) /ASTM 15/ dient hier als Hilfestellung zur Erstellung von künftigen Materialspezifikationen für SiC/SiC<sub>f</sub> Verbundstrukturen mit Fokus auf diese neue Hüllrohrtechnik.

### 3.1.3.2 Herstellungsverfahren

Die allgemeinen Herstellungsschritte für SiC/SiC-Rohre bzw. Plattierungen sind wie folgt als Übersicht darzustellen:

1. SiC-Fasern werden gemäß einem Design-/Architekturplan als mehrdimensionale Röhren geflochten/gestrickt oder genäht.
2. Mit Hilfe einer chemischen Gasphasenabscheidung (*chemical vapor deposition*, CVD) wird eine Zwischenschichtphase hinzugefügt.
3. Die Matrix kann durch chemische Dampfinfiltration (*chemical vapor infiltration*, CVI) oder durch Sintern der transienten eutektischen Phase durch Nano-Infiltration (*Nano-infiltration and transient eutectic phase*, NITE) mittels Heißpressen hinzugefügt werden.
4. Nachgängig können innere oder äußere Überzugsschichten aufgetragen werden.

Die Qualität von SiC-Fasern der Generation III für kerntechnische Anwendungen wird als stöchiometrisch und hochkristallin angesehen. Hierzu gehören z. B. die unter den kommerziellen Namen bekannten Fasern Hi-Nicalon Typ S<sup>®</sup>, Tyranno SA3<sup>®</sup> und Sylramic<sup>®</sup>. Typische mechanische Eigenschaften sind ein Young-Modul mit ca. 400 GPa und eine Zugfestigkeit bei einer Raumtemperatur von größer 2 GPa. Lediglich deren thermische Eigenschaften können sich im größeren Rahmen unterscheiden. Allgemein hängt aber auch die Eigenschaft des gewobenen Trägerschlauchs essenziell von seiner Faserarchitektur ab.

#### Faserarchitektur

Generell gilt für die Faserarchitektur, dass die raumrichtungsabhängige Festig- und Zähigkeit am effektivsten parallel in Richtung zur Faserachse ist. Durch verschiedene Raumorientierungen der Verwebung können, in weiteren Grenzen, die mechanischen Eigenschaften justiert werden. Beispiele sind hier zweirichtige Lagen als Standardgewebe, das Kreuzgewebe sowie das orthogonale Gewebe. Auch beeinflusst die jeweilige Faserarchitektur den Faservolumenanteil sowie die Verteilung und die Größe der entstehenden Poren. Diese beiden Größen beeinflussen als Hauptparameter die thermo-mechanischen Eigenschaften des Endproduktes. Allgemein ist bei der Zähigkeit von einem besseren Verhalten als bei monolithischer Keramik, jedoch von einem schlechteren Verhalten im Vergleich zu Metallen, auszugehen.

## Zwischenphase

Der Vorteil des SiC/SiC-Verbundwerkstoffes ist durch seine Faser-Matrix-Grenzfläche mit seiner ausreichenden Bindungsstärke und Grenzflächenfestigkeit bedingt. Das primäre zähe Bruchverhalten von Keramikverbundwerkstoffen wird zunächst durch die Auslenkung von Matrixrissen an der Grenzfläche (noch ohne das Brechen von Fasern), gefolgt von einem Reibungsarbeit bedingten Faserauszug, geprägt. Eine systematische Untersuchung der Auswirkung der Zwischenphasendicke auf die mechanischen Eigenschaften, speziell von röhrenförmigen SiC/SiC<sub>f</sub> Materialien, wurden bisher nicht veröffentlicht.

## Matrix

Als Matrix dient vorzugsweise dampfinfiltriertes SiC (*Chemical vapour infiltration*, CVI) oder Nano-Infiltration und transientes Eutektikum – SiC (NITE SiC/SiC). Die erstgenannte CVI- Technologie gilt im Gegensatz zur NITE-Technologie mit begrenzter Anwendungserfahrung als ausgereift. Allerdings ist die Herstellung der benötigten Hüllrohr-längen für beide Technologien noch eine wesentliche Herausforderung.

## CVI Matrix

Die CVI Methode ist die zuverlässigste Methode zu Herstellung einer Matrix aus hochreinem, kristallinem SiC wie sie für kerntechnische Anwendungen benötigt wird. Bei der Produktion langer Röhren ist jedoch eine gleichmäßige Temperaturverteilung sowie ein gleichmäßiger Reaktantenfluss notwendig. Die Abscheiderate ist bei diesem Prozess einer der wichtigsten Verarbeitungsparameter. Eine hohe Abscheiderate führt zu einer schnellen Matrix-Besetzung aber auch zu einer hohen inneren Porosität. Eine geringere Abscheiderate bedingt eine dichtere Matrix, jedoch auch längere Herstellungszeiten. Erstmals gelang es dabei an der *Toshiba-Ibiden-Tohku* Universität in Japan eine Anlage für die erfolgreiche Produktion von vier Meter langen Hüllrohren aufzubauen. Parallel dazu wird an dem Thema der Segmentierung, d. h. einer axialen Stapelung oder ein Zusammensetzen kürzerer Rohre, durch Kleben oder mechanische Fixierung, geforscht.

## **NITE-Matrix**

Das durch Nano-Infiltration und transientes Eutektikum (NITE) erzeugte SiC/SiC Komposit hat den klaren Vorteil eine nahezu vollständige Dichtigkeit zu besitzen. Die Herstellung der NITE SiC/SiC Rohre erfolgt mit einer heiß-isostatischen Presse unter Verwendung eines Ofens entsprechender Dimension. Da die NITE-Matrix auch Sekundärphasen enthält, liegt eine technische Herausforderung darin, eine Matrix zu erzielen, die gegenüber den normalen Betriebsbedingungen sowie Störfallbedingungen einschließlich hydrothermaler Korrosion und Hochtemperaturdampfoxidation beständig ist.

### **3.1.3.3 Beschichtung und Fügetechniken**

Siliziumkarbid besitzt wie zuvor beschrieben bereits unter den normalen Reaktorbedingungen, d. h. bei normaler Kühlmittelkonfiguration, den Nachteil einer hohen hydrothermalen Korrosionsanfälligkeit. Dieser Umstand begünstigt im Korrosionsfall die Bildung von Mikrorissen im Material, wodurch u. a. seine Gasdichtigkeit gefährdet wird. Bei allen Keramikmatrix-Verbundmaterialien können mit einer hohen Wahrscheinlichkeit bereits unter normalen Spannungsbedingungen Mikrorisse im Material entstehen, wodurch das Material seine Gasdichtigkeit verlieren kann. Eine mögliche Abhilfe wäre die Verwendung einer äußeren Schutzschicht (EBC) um eine hydrothermale Korrosion zu vermeiden. Hier gibt es Bestrebungen, eine EBC auf Chrom und Zirkonium-Basis zu entwickeln. Als Beschichtungsprozesse dafür sind elektrochemische Abscheidungen, kathodenbogenphysikalisches Aufdampfen und Vakuumplasmaspritzen möglich. Ähnliches wird bereits bei SiC/SiC-Verbundwerkstoffen im Bereich von Turbinenanwendungen zum Erreichen einer Hochtemperaturkorrosionsbeständigkeit angewendet.

Neben der reinen Hüllrohrproduktion ist nach der Brennstoffbefüllung, das Aufbringen des Endstopfens ein offener Punkt. Wie bei dem Hüllrohr an sich, sind hier die gleichen Anforderungen (Spaltgasdichtigkeit, beständig gegen hydrothermale Korrosion, gegen Neutronenstrahlung, sowie eine ausreichende Hochtemperatur-Dampfoxidationsbeständigkeit) an die Verbindungstechnologie zu stellen. Hier kommen den einzelnen Haftoberflächenschichten eine entscheidende Rolle zu. Neben einer möglichen Verklebung des Endstopfens (mit der Größe der Kontaktfläche steigt deren Belastbarkeit) wurde mit einem schraubbaren Endstopfen aus bearbeitbaren NITE-SiC/SiC Verbundwerkstoff experimentiert. Des Weiteren stehen Methoden wie Festkörperdiffusionsbindung, metallisches Hartlöten, Glaskeramikfügung, Reaktionssintern, Flüssigphasensintern und Dampf infiltration in der Diskussion. Im Folgenden sind einige dieser Optionen beschrieben.

## **Festkörperdiffusionsbindung**

Eine Festkörperdiffusionsbindung erlaubt eine grenzflächenfreie Verbindung mittels thermisch aktivierten Kornwachstum zweier Substrate. Bei SiC zu SiC wurde dieser Effekt bei Heißpressen bei ca. 2.000 °C und einem Druck von über 15 MPa nachgewiesen. Dazu werden glatte, kontrollierbare, passgenaue Oberflächen hoher Präzision benötigt, so dass eine solche Verbindungsart technisch aktuell als kaum machbar einzustufen ist. Eine Option wäre die Einbringung einer Zwischenschicht in Form einer hochschmelzenden Metallfolie. Aktuell geht man davon aus, dass mit einer Titanzwischenschicht und zusätzlichen Siliziumpulver die Probleme gelöst werden können.

## **Metallisches Löten**

Hierunter wird das Hartlöten mit verschiedenen metallischen Füllstoffen zum Fügen von SiC verstanden. Es wurden einige Erprobungen mit Rohrendstopfen durchgeführt. Die originäre, relativ niedrige Verarbeitungstemperatur von ca. 1.000 °C und einem nur geringen Druck beim Fügen, erweisen sich als positiv. Durch das Schmelzen des Hartlots ist ein Aufbringen auch bei komplexen Geometrien möglich.

## **Fügen von Glaskeramiken**

Hierbei verteilt sich die eutektische Flüssigkeit bzw. das erweichte Glas über die Verbindungsflächen. Als positiv ist zu bewerten, dass der Vorgang ohne zusätzliche Belastung während des Fügeprozesses abläuft.

## **Reaktionssintern mit Si-C- und Ti-Si-C-Systemen**

Beim Reaktionssintern wird der Sintervorgang gezielt durch eine chemische Reaktion überlagert, um z. B. eine nachhaltige Verbindung von zwei Flächen zu erreichen. Als Ausgangsbasis dient ein zuvor auf die Verbindungsflächen aufgebracht Pulvermaterial, oder alternativ eine ähnlich vorbereitete Folie. Bei dem Zusammenfügen beider Teile bei einer Reaktionstemperatur von ca. 1.500 °C erfolgt die Verbindung beider Kontaktflächen durch chemisch induziertes Sintern. Ein Vorteil dieser Methode besteht darin, dass dieser Vorgang ohne größeres Zusammenpressen der Einzelteile erfolgt und somit keine größere mechanisch Beanspruchung der Teile erfordert. Dieses Verfahren wird bereits bei SiC-Platten benutzt.

## **Flüssigphasensintern von SiC**

Hier bildet das Additiv beim Erhitzen eine eutektische Flüssigkeit, und die flüssige Phase fördert das Sintern der SiC Pulverpresskörper bei einem Druck von ca. 10 MPa und einer Temperatur von ca. 1.850 °C) durch einen Lösungsfällungsprozess, wie es bei Plattenverbindungen genutzt wird. Speziell der Fügedruck muss künftig für eine großtechnisch praktikable Anwendung noch wesentlich verringert werden.

## **Chemische Gasphasenabscheidung / Infiltration im ausgewählten Bereich**

Das CVD-Verfahren liefert eine sehr reine SiC-Bindungsschicht, die der CVI-Matrix stark ähnelt, aber nur auf Oberflächen beschränkt ist. Daher wird davon ausgegangen, dass eine Hybridverbindungstechnik anzuwenden ist, d. h., dass zunächst ein vorkeramisches Fügen, gefolgt von einem CVD, durchzuführen ist.

### **3.1.3.4 Physikalische Eigenschaften unbestrahlter Materialien**

Die Bestrahlung von Material kann je nach Intensität, Dauer oder auch der Reinheit des Materials an sich (bzw. nach der Art von Störstellen) die Materialeigenschaften verändern. Bedingt durch die sehr unvollständige Datenlage bei bestrahlten SiC-Materialien werden daher zunächst Eigenschaften unbestrahlter Materialien diskutiert.

#### **Dichte, Porosität und Faservolumenanteil**

Allgemein gilt, das NITE SiC/SiC eine höhere Dichte (und somit eine höhere Gasdichtigkeit) als CVI-SiC/SiC besitzt. SiC besitzt eine theoretische Dichte von ca. 3,2 g/cm<sup>3</sup>, während CVI-SiC/SiC Röhren eine Dichte von ca. 2,7 g/cm<sup>3</sup> erreichen, NITE SiC/SiC von ca. 3,0 g/cm<sup>3</sup>.

#### **Wärmeausdehnung**

Zur Wärmeausdehnung von SiC/SiC Rohrmaterialien sind allgemein nur begrenzte Datensätze verfügbar, bzw. nur einzelne Stützstellen über den interessierenden Temperaturbereich. Typische Werte des Wärmeausdehnungskoeffizienten an rohrförmigen Geometrien liegen im Bereich von 3 ppm/°C bei Raumtemperatur und 5 ppm/°C bei 1.000 °C. Generell liegen diese Werte in der Größenordnung von SiC-Platten.

## **Wärmeleitfähigkeit**

Diese Größe spielt hinsichtlich der Wärmeübertragung vom Brennstoff über das Hüllrohr auf das Kühlmittel eine zentrale Rolle, und ist somit auch für die Bemessung der Brennstofftemperatur ein zentraler Parameter. Da die Wärmeleitfähigkeit je nach Faserdesign und Temperatur unterschiedlich sein kann, gibt es dazu ganze Parameterdatensätze und nicht einen einzelnen definierten Grenzwert. Hinzu kommt, dass die Wärmeleitfähigkeit mit der Temperatur unter Bestrahlung bis zur Sättigungsdosis abnimmt und so einen weiteren Parameter darstellt. Somit ist erst beim Vorliegen von umfangreichen und bewerteten Datensätzen eine allgemeingültige Bewertung sinnvoll möglich.

## **Spezifische Wärmekapazität**

Experimentelle Daten für die spezifische Wärmekapazität von SiC/SiC<sub>f</sub> Rohren liegen bisher noch nicht in ausreichender Form vor. Ersatzweise kann z. T. auf den Wert von SiC/SiC-Platten zurückgegriffen werden. Allgemein gilt, dass die spezifische Wärmekapazität mit der Temperatur ansteigt, und dass SiC oberhalb von 2.400 °C zu sublimieren beginnt.

## **Gasdichtheit bzw. Gas-Durchlässigkeit, Gasleckrate**

Eine der Hauptfunktionen der Sicherheitsbarriere Hüllrohr ist, die Freisetzung von Spaltgas zu verhindern, d. h. eine Gasdichtigkeit herzustellen. Auch ist das im Hüllrohr eingefüllte Helium ein wesentlicher Bestandteil für eine verbesserte Wärmeleitung vom Brennstoff an sich zum Hüllrohr hin. Somit sind die Größen Gasdurchlässigkeit von SiC, sowie die Gasleckrate von SiC/SiC-Plattierungssystemen von ausgesprochenem Interesse. Es wurden verschiedene Messungen zur Durchlässigkeit durchgeführt. Viele Arbeiten enthalten bislang keine Angaben zur Materialqualität wie Reinheit und Korngröße, welche hinsichtlich der Permeabilität des Stoffes große Auswirkungen haben. Eine Angabe behaftete Messung berichtet über die Deuterium-Permeation von CVD-SiC Rohren. Hier wurde nach experimentellen Überprüfungen die Reinheit mit größer als 99,9995 % und die durchschnittliche Korngröße mit ca. 5 µm angegeben /ORNL 17/. Die mikrostrukturelle Eigenschaft des Materials zeigt dabei eine nahezu vollständige Dichtheit. Somit konnte gezeigt werden, dass CVD-SiC-Beschichtungen auf SiC-Basis, (unter der Voraussetzung keiner nennenswerten Verarbeitungsfehlern/Störstellen) als gasdicht angesehen werden können. Nach ersten Laborprüfungen erfüllen sowohl CVI- wie auch NITE SiC/SiC-Rohre die aktuellen Anforderungen für die Dichtigkeit von Hüllrohren.

## **Elastizitätsmodul**

Zu den wichtigsten mechanischen Kenngrößen gehören Parameter wie das Elastizitätsmodul aber auch die Spannung für die erste Hauptmatrixrissbildung, die erste durchdringende Rissbildung, sowie der Bereich der fortgesetzten Matrixrisse und des finalen Fasergleitens. Hier ist die Datenlage für Hüllrohre absolut unzureichend. Die typischen Angaben für das Young-Modul, in der Ebene für planare CVI-SiC/SiC-Proben liegt bei ca. 200 bis 280 GPa. Für entsprechendes Rohrmaterial liegen jedoch weitaus weniger Testreihen vor. Das Elastizitätsmodul bei Axialzugversuchen wird mit 200 bis 250 GPa angegeben, eine Studie berichtet von 158 GPa bei einem Reifenzugversuch sowie von 251 GPa bei Kompression. Allgemein wird bei diesen experimentellen Ergebnissen von einer starken Abhängigkeit von der exakten Materialzusammensetzung und -konfiguration, dem Bediener und der verwendeten Testausrüstung ausgegangen.

## **Proportionale Grenzspannung**

Für die proportionale Grenzspannung (*Proportional limit stress*, PLS) für Rohrproben werden typische Werte von 80 bis 100 MPa angegeben, bei einer Standardabweichung im Bereich von 10 MPa oder weniger.

## **Zugfestigkeit**

Zur Zugfestigkeit von Röhrchenproben sind Werte von 230 bis 270 MPa in axialer Richtung und 200 bis 340 MPa in Umfangsrichtung angegeben. Die jeweils größeren Werte gelten für Faserarchitekturen mit inkludierter Reifenrichtung. Allgemein hat die Faserarchitektur einen entscheidenden Einfluss für die Zugfestigkeit.

## **Poisson-Verhältnis**

Für Röhrenmaterial liegen derzeit keine Daten zum Poisson-Verhältnis vor.

## **Allgemeine hydrothermale Korrosion**

Durch die auftretende SiC-Rezession, bedingt durch die Korrosion im Hochtemperaturwasser kommt es einerseits zu Schichtdickenverlusten, in der Konsequenz andererseits aber auch zu Ablagerungen dieser Korrosionsprodukte an anderen (kühleren) Stellen im Primärkreislauf. Typisch relevante Einflussgrößen sind der pH-Wert, das Sauerstoff- sowie das elektrochemische Potential sowie weiterer im Kühlmittel gelöste Stoffe.

### **Korrosion der SiC-Matrix**

Hier ist der Einfluss der Kühlmittelchemie auf das Korrosionsverhalten entscheidend. Speziell trägt im Wasser gelöster Sauerstoff hochgradig zur SiC-Rezession bei, wobei auch die Materialeigenschaften wie Korngröße und Kornstruktur die Korrosionsbeständigkeit des Hüllrohrmaterials beeinflussen. Je nach Kinetik des SiC-Anrisses und der Dicke der Materialmatrix kann die Faser-Zwischenphase freigelegt werden. In der Folge kann die Integrität der Fasern oder der Interphase gefährdet und somit die mechanischen Eigenschaften verschlechtert werden. Die Kinetik der SiC-Rezession im heißen Wasser wird durch eine Oberflächenoxidationsreaktion bedingt. Ein Betrieb in gesättigter Lösung würde zwar den Prozess stoppen aber an anderen, kühleren Bereichen eine entsprechende Ablagerung bedingen. Untersuchungen des hydrothermalen Korrosionsverhalten liegen nur für monolithische SiC-Keramiken, nicht aber für NITE SiC/SiC-Verbundwerkstoffe vor. Abhilfe gegen diesen äußeren Korrosionsangriffen könnte eine Oberflächenplattierung schaffen.

### **Korrosion der SiC-Verbindungsstellen zu den Endkappen unter Einsatzbedingungen**

Speziell die zu den Hüllrohren gehörigen Verbindungsstellen zu den Endkappen bedürfen neben der mechanischen Festigkeit eine ausreichende Beständigkeit gegen eine mögliche hydrothermale Korrosion. Bisherige Versuche zeigten lediglich bei der Anwendung von SiC-Nanopulver-Sinterfugen-Technik ein akzeptables Verhalten hinsichtlich der zeitlichen Stabilität der Verbindungsstellen.

### **Optionale Beschichtungsmaterialien**

Die bisherigen Bemühungen, SiC durch veränderte Materialkonfigurationen beständiger gegen hydrothermale Korrosion zu gestalten, zeigten keine ausreichenden Ergebnisse. Sollten hier die aktuellen Untersuchungen keine neuen Ansätze liefern, wird der Einsatz einer zusätzlichen äußeren Schutzschicht in Form einer Ummantelung unausweichlich werden. Als mögliche Kandidaten werden Materialien auf Zirkonium-, Chrom-, Titan- oder Eisen-Basis angesehen. Hier sind noch weitere Daten zu erheben.

## **Chemische Wechselwirkung mit dem Brennstoff**

Neben dem äußeren Einfluss durch das Kühlmittel kommt der Wechselwirkung des Hüllrohrmaterials bzw. einer optionalen inneren Plattierung mit dem Brennstoff hohe Bedeutung zu, da je nach Anfangsspalt und dem weiteren Brennstoff-Quellverhalten von Kontaktstellen auszugehen ist. Neben dem direkten Festkörperkontakt sind auch die Kontaktatmosphäre bzw. ihre Konfiguration mit den darin enthaltenen Spaltprodukten zu betrachten. Bei SiC und  $UO_{2\pm x}$  Systemen finden bis  $1.241\text{ °C}$  begrenzt chemische Reaktionen statt. Im Temperaturbereich zwischen  $1.577\text{ °C}$  und  $1.677\text{ °C}$  findet dabei die Ausbildung einer flüssigen Phase statt. Ab diesem Temperaturbereich fängt SiC zunehmend an mit verschiedenen Spaltprodukten, einschließlich Spaltgasen, metallischen Ausscheidungen und Oxidphasen chemisch zu reagieren. Im Normalbetrieb wird jedoch die benötigte Temperatur für das Einsetzen einer Reaktionskinetik nicht erreicht. Für einzelne Stör- und Unfallszenarien sind hierzu jedoch entsprechende Betrachtungen durchzuführen.

## **Dampfoxidationsbeständigkeit und Verhalten bei Quenchen**

Das Hüllrohr ist die erste Barriere bei einem Dampfangriff im Rahmen eines Kühlmittelverluststörfalls. Die Oxidation von SiC in einer Hochtemperaturdampfumgebung erfolgt durch eine parabolische Oxidation unter Bildung von Siliciumdioxid auf SiC und linearer Verflüchtigung des Siliciumdioxids. Die beeinflussenden Parameter umfassen Temperatur, Einwirkzeit, Dampfdurchsatz und Dampfdruck. Im Vergleich mit Zircaloy-4 besitzt CVD-SiC eine außergewöhnlich niedrigere Rezessionsrate. Ebenfalls zeigt monolithisches SiC bis zu  $1.200\text{ °C}$  eine signifikant höhere Dampfoxidationsbeständigkeit im Vergleich zu Zircaloy-4. Ein Versuch zeigte das die Integrität und Geometrie der Probe auch nach einer 110-stündigen Exposition bei  $1.400\text{ °C}$  vollständig erhalten blieb.

Ebenso zeigt dieser Werkstoff beim Quenchen, d. h. beim Temperaturschock beim Wiederauffüllen des Reaktordruckbehälters mit Notkühlmittel nach einem Kühlmittelverlustfall, eine im Vergleich zu den bisher eingesetzten Werkstoffen hohe Rissbeständigkeit und je nach Konfiguration, eine um ca. vierzigfach niedrigere Menge an erzeugtem Wasserstoffgas.

### **3.1.3.5 Physikalische Eigenschaften bestrahlter Materialien**

Bedingt durch die sehr unvollständige Datenlage bei bestrahlten SiC-Materialien, wird hier nur auf verfügbare Informationen zu den Eigenschaften von bestrahlten SiC-Materialien, auch wenn diese nur sehr rudimentär sind, eingegangen.

#### **Dichte**

Die Dichte an sich ist eine Funktion des Volumens, das wiederum durch strahlungsbedingtes Volumenquellen beeinflusst wird. Für die multiphysikalische Modellierung des Hüllrohrs bzw. Plattierungen sind temperatur- und dosisabhängige Werte der Quellung des SiC/SiC Materials notwendig. Die in der Vergangenheit unter Neutronenbestrahlung mit verbesserter Genauigkeit durchgeführten Messungen zeigten, dass CVD-SiC und CVI-SiC/SiC Komponenten in Längsrichtung bei Platten- wie auch bei Röhrenproben, nahezu identisch sind. Weiterhin wurde auch festgestellt, dass bei CVI-SiC/SiC-Platten eine Volumenquellenanisotropie zu berücksichtigen ist.

#### **Faservolumenanteil und Porosität**

Bei SiC/SiC kann von einer vernachlässigbaren Veränderung am Faservolumenanteil sowie damit auch an der Porosität des Materials ausgegangen werden /ORNL 17/, /KIM 15/.

#### **Wärmeausdehnung in Abhängigkeit der Bestrahlung**

Da die Datenlage für SiC-Rohrmaterial auch aufgrund der hohen Anzahl von spezifischen SiC-Materialkonfigurationen oft noch ungenügend ist, wird in einem ersten Näherungsschritt oft auf Plattenmaterial Bezug genommen. Hier wurde festgestellt, dass sich der Wärmeausdehnungskoeffizient von unbestrahlten und bestrahlten Proben, (d.h. unter LWR-relevanten Temperatur- und Neutronenflussbedingungen) im Wesentlichen entsprechen. Auch wurde festgestellt, dass die Wärmeausdehnung oberhalb der typischen LWR Temperatur- und Dosisbedingungen offenbar, durch die Wiederherstellung eines sich zuvor ausbildenden Strukturdefektes, geringer war.

## **Wärmediffusion und Wärmeleitfähigkeit**

Für entsprechende SiC-Rohre liegen noch keine Wärmediffusionsdaten vor. Allgemein wurde bei Plattenmaterial, der Einfluss von Bestrahlung auf die Wärmeleitfähigkeit von Keramiken durch den Wärmewiderstand (als Kehrwert der Wärmeleitfähigkeit) beschrieben und als Differenz zwischen den Zuständen mit und ohne Bestrahlung ermittelt. Auch hier ist das Fehlen von klar definierten Materialstandards ein Problem.

## **Änderung der spezifischen Wärme**

Bedingt durch die begrenzte Dichteänderung nach Bestrahlung (s. o.) ist auch die Änderung der spezifischen Wärme vernachlässigbar.

## **Permeabilität**

Aktuell sind keine Datensätze über die Permeabilität von SiC/SiC-Verbundwerkstoffen bei Röhren, die einer Neutronenstrahlung ausgesetzt waren, bekannt. Man geht jedoch davon aus, dass ein mit CVD-SiC beschichteter SiC/SiC-Hülle zumindest nach moderater Neutronenbestrahlung hermetisch dicht ist.

## **Mechanische Eigenschaften**

Auch bei den mechanischen Eigenschaften bestrahlter SiC/SiC-Röhren ist der Datenfundus extrem begrenzt. Ersatzweise wird auf Werte von bestrahlten SiC/SiC-Verbundplatten zurückgegriffen. Hier zeigen die vorhandenen Daten, dass bei moderater Bestrahlung kaum eine strahlungsbedingte Verschlechterung der mechanischen Eigenschaften auftritt. Allgemein wird jedoch von der Möglichkeit einer Veränderung bei hohen Dosen ausgegangen. Die Komplexität des Themas wird am folgenden Beispiel der Scherfestigkeit verdeutlicht. In den Nicht-SiC-Bindungsschichten wurden durch eine erfolgte Bestrahlung in der Bindungsschicht induzierte Risse festgestellt. Trotz hoher Festigkeit der gerissenen Verbindungen könnten diese Risse die Gasdichtigkeit des Materials gefährden. Somit sind weitere Arbeiten auf diesem Thema von Nöten.

## **Hydrothermale Korrosion im Einsatz**

Speziell bei der hydrothermalen Korrosion ist die Neutronenstrahlung ein wichtiger Einflussfaktor, da Radiolyse von leichtem Wasser die Konzentration oxidierender Stoffe erhöht. Auch kann sich durch strahlungsinduzierte Defekte die Reaktivität des Materials verändern. Einen signifikant höheren Gewichtsverlust eines Prüflings durch Strahlungseinwirkung konnte experimentell nachgewiesen werden. Ebenfalls konnte mittels eines Autoklaven Tests bei ionenbestrahlten CVD-SiC-Proben eine beschleunigte Korrosion festgestellt werden. Auch hier herrscht weiterhin hoher Forschungsbedarf.

### **3.1.3.6 Zukünftiger Klärungsbedarf und mögliche Erprobungsszenarien**

Neben einer breiten Evaluierung des Gesamthemas an sich, herrscht besonders bei den Themen der Wärmeleitfähigkeit in Rohrgeometrien, der hydrothermalen Korrosion unter verschiedensten Konfigurationsbedingungen, sowie der chemischen und physikalischen möglichen Wechselwirkungen zwischen Brennstoff und bestrahltem Hüllmaterial weiterer Klärungs- bzw. Forschungsbedarf. Die zuverlässige Aufbringung von Hüllrohrkappen auf die Hüllrohre stellt weiterhin eine wesentliche Herausforderung dar.

Generell scheinen Hüllrohre aus Siliziumkarbid mittelfristig ein potentiell geeignetes Material für ATF-LWR zu sein. Nach Lösung der zuvor angesprochenen Punkte, bietet sich dabei ein zweistufiges Konzept, d. h. zunächst mit einem Einsatz in den Kanalboxen von Siedewasserreaktoren und den Einsatz in den Führungsrohren von Druckwasserreaktoren, und dann in einem zweiten Schritt für die hermetische Ummantelung von Brennstoff, d. h. für den Einsatz als klassischer Brennstab an.

### **3.1.4 Molybdän-basierte Hüllrohre**

Ein Vertreter weiterer Hüllrohrkonzepte sind Molybdän-basierte Hüllrohre. Ein Vorteil von Molybdän ist die hohe Festigkeit bei erhöhten Temperaturen, um die Integrität des Brennstabs bei Unfällen zu gewährleisten. Ein potentieller Nachteil von Molybdän ist sein vergleichsweise hoher Neutroneneinfangsquerschnitt, speziell des Isotops  $^{95}\text{Mo}$ .

Für die Kühlbarkeit des Kerns wird die äußere Oberfläche der Hüllrohre aus Molybdän mit einer metallurgisch gebundenen Schicht aus Zirkonium-Legierung oder Aluminiumhaltigem Stahl (FeCrAl) überzogen, um die Korrosionsbeständigkeit zu gewährleisten sowie die Dampfoxidationsbeständigkeit durch Bildung einer schützenden Oxidschicht

aus  $ZrO_2$  oder  $(Al,Cr)_2O_3$  unter Stör- und Unfallbedingungen zu verbessern. Erste Experimente zeigen, dass eine Integrität für Hochdampftemperaturen bis  $1.200\text{ }^\circ\text{C}$  für zwölf bis 24 Stunden erreichbar scheint. Durch Hinzufügen einer Niob-Zwischenschicht kann bei isostatischen Heißpressen die Haftfestigkeit einer Triplex-Plattierung verbessert werden. Bei gleicher Außenkonfiguration zu aktuellen Brennstäben besitzen Duplex- wie Triplex ausgekleidete Mo-Hüllrohre eine dünnere Wandstärke und können somit größere  $UO_2$ -Brennstoffpellets aufnehmen. Dadurch sind bei einer gleichbleibenden Anreicherung bis  $5\%$   $^{235}\text{U}$  Zykluslängen von bis zu 18 Monaten erreichbar. Allerdings sind diese dünnwandigen Mo-Legierungsrohre bislang nur labormäßige Sonderanfertigungen. Für einen industriellen Herstellungsprozess bedarf es noch weiterer Anstrengungen. Die axiale und diametrale Duktilität von Mo-Rohren kann durch teilweises Rekristallisationsglühen verbessert werden. Die diametrale Duktilität von ca.  $1,3\%$  kann auf ca.  $15\%$ , jedoch bei einer gleichzeitigen Verringerung der diametralen Festigkeit, durch eine Induktionswärmebehandlung erreicht werden.

Ein weiterer technologischer Ansatz ist in /CHE 15/ beschrieben. Berichtet wird über Versuche, in denen lange, dünnwandige Rohre aus oxiddispersionsverstärktem Molybdän unter Verwendung der Fest-Fest-Misch-Dotierungsmethode mit Lanthanoxid  $La_2O_3$  eingesetzt wurden. Durch die Zugabe von  $La_2O_3$ -Partikeln verfeinern sich dabei die Körner effektiv, und erhöhen so die Rekristallisationstemperatur von Mo-Legierungen. Im Labor konnten Zugfestigkeiten von  $455\text{ MPa}$  bei  $400\text{ }^\circ\text{C}$  bzw.  $174\text{ MPa}$  bei  $1.200\text{ }^\circ\text{C}$  nachgewiesen werden. Der Gesamtdehnungsfaktor betrug  $25\%$  bei  $400\text{ }^\circ\text{C}$ . Auch konnte mittels Elektronenstrahlschweißen das Molybdän-Rohr mit einer Molybdän-Endkappe in ausreichender Qualität, d. h. speziell für die benötigte Festigkeit auch bei hohen Stabinnendruckverhältnissen, verschweißt werden /NEA 18a/.

## 3.2 Fortschrittliche Brennstoff-Konzepte

### 3.2.1 Modifiziertes Urandioxid

Urandioxid wird aufgrund seiner chemischen Stabilität, seiner guten Beständigkeit gegen hohe Temperaturen und Strahlung, einer geringen Absorption von Neutronen und einer guten Rückhaltung von Spaltgasen in den Oxidkristallen seit langer Zeit als Brennstoff genutzt. Urandioxid ist ein relativ dichter Polykristall (ungefähr 95% der theoretischen Dichte). Brennstoffpellets werden aus einem Urandioxid ( $\text{UO}_2$ ) Pulver durch Sintern für etwa vier Stunden bei ca.  $1.700^\circ\text{C}$  hergestellt /GUE 20/.

Aufgrund der langjährigen Erfahrung mit Urandioxid und der guten Kenntnisse über diesen Brennstoff wurden ATF Konzepte entwickelt, die auf diesem Standardbrennstoff basieren. So werden im Folgenden die zwei Hauptvarianten dieses modifizierten, sog. „verbesserten“ Urandioxids vorgestellt: dotierte  $\text{UO}_2$ -Pellets und Mikrozellen- $\text{UO}_2$ -Pellets.

Dotierte Pellets sind übliche  $\text{UO}_2$ -Pellets, denen vor der Sinterung ein Zusatzstoff (Chromoxid  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  oder Aluminiumoxid-Chromoxid  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cr}_2\text{O}_3$ ) in geringer Menge in das  $\text{UO}_2$ -Pulver hinzugefügt wird. Dadurch werden mechanische und chemische Eigenschaften verbessert (höhere Korngröße, reduzierte Oxidation, reduzierte Spannungen), während das allgemeine Materialverhalten ähnlich zum Standardbrennstoff bleibt, mit dem man gute Erfahrungen gemacht hat. Aufgrund bestehender z. T. langjähriger Erfahrungen (s. u.) fallen sie nicht in allen Varianten unter das heutige Verständnis von ATF, gehören aber im Sinne des US-Sprachgebrauchs *Advanced Technology Fuel* prinzipiell mit in diese Kategorie.

Mikrozellen- $\text{UO}_2$ -Pellets wurden vor allem von dem *Korea Atomic Energy Research Institute* (KAERI) untersucht und entwickelt. Es handelt sich dabei um  $\text{UO}_2$ -Pellets, die kleine sog. Mikrozellen in der Größenordnung von einigen Hunderten von Mikrometern haben. Eine Mikrozelle besteht aus einem  $\text{UO}_2$ -Korn, die in einer keramischen oder metallischen Hülle eingeschlossen ist. Diese Struktur wirkt hauptsächlich auf die Rückhaltung der Spaltprodukte, sowie auf die thermische Leitfähigkeit des Pellets und dementsprechend auf die Temperatur.

### 3.2.1.1 Dotierte UO<sub>2</sub>-Pellets

Dieses Konzept stellt eine Weiterentwicklung des aktuellen Standard UO<sub>2</sub>-Brennstoffes dar. Durch die lange Erfahrung mit UO<sub>2</sub>-Brennstoff sollen die Materialcharakterisierung, die Sicherheitsuntersuchungen und die Lizenzierung des dotierten UO<sub>2</sub> verglichen zu ganz neuen Konzepten, deutlich vereinfacht sein. Beim Sintern werden Chrom- und/oder Aluminiumoxide in geringen Maßen (einige Hunderte ppm) zum UO<sub>2</sub>-Pulver hinzugefügt. Das Konzept ist in einem fortgeschrittenen Stadium, da solche Pellets z. T. seit Jahrzehnten untersucht und weiterentwickelt werden und bereits in kommerziellen Reaktoren eingesetzt wurden /ARB 06/, /DEL 10/, /KAR 19/. Aus diesem Grund wurde dieses Verfahren von der OECD-NEA, innerhalb der neunstufigen Skala zur Bewertung eines Technologie-Reifegrades (*Technological Readiness Level*, TRL) mit einer 8 eingestuft, basierend auf dem bereits durchgeführten vereinzelt Betrieb in einem Reaktor /NEA 18a/.

Durch die Dotierung wird es ermöglicht, nach dem Sintern eine höhere Dichte als bei Standard-UO<sub>2</sub> zu erreichen (10,67 g/cm<sup>3</sup> nach /SHA 18/), größere Körner im Pellet zu bilden und eine reduzierte Brennstoff-Hüllrohr-Wechselwirkung (*pellet-cladding-interaction*, PCI) aufzuweisen. So weisen die Körner der dotierten Pellets eine Größe von etwa 50 µm auf, während die Korngröße des Standard-UO<sub>2</sub> bei 10 µm liegt /ARB 06/. Diese Eigenschaften sollen Sicherheitsmargen unter Stör- und Unfallbedingungen verbessern:

Die größeren Körner sorgen für eine bessere intragranulare Rückhaltung der Spaltgase. Dadurch ist der interne Druck in den Brennstäben reduziert, was bei Unfallbedingungen das Aufblähen (*Ballooning*) des Hüllrohres reduzieren soll, sowie die Freisetzung von Brennstoff im Fall eines Berstens.

Durch die bessere Rückhaltung der Spaltgase sammelt sich weniger Gas an den Korngrenzen. Die Fragmentierung des Pellets soll dadurch reduziert werden, da sie hauptsächlich wegen des Drucks von Spaltgasblasen an den Korngrenzen angetrieben wird.

Die Dotierung ist von der Löslichkeit der Dotierungselemente begrenzt, so wie von der Neutronenabsorption (insbesondere von Chrom).

## Dotierung mit Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Die Entwicklung eines dotierten Brennstoffes durch Framatome (damals AREVA) wurde bereits 1990 mit dem Ziel gestartet, Brennstoff mit einer höheren Robustheit und Effizienz sowie verbesserten Sicherheitsmargen auszulegen. Hierzu sind im Detail auch eine verbesserte Spaltgasretention sowie eine höhere Beständigkeit gegen Spannungsrisse aufgrund von Pellet-Clad-Wechselwirkungen (PCI) zu nennen /DEL 10/.

Framatome hat unterschiedliche Dotierungen erprobt und dadurch identifizieren können, dass Titan-, Chrom- und Niob-Oxide besonders effizient sind, um die Korngrößen in der UO<sub>2</sub>-Keramik zu erhöhen. Niob soll demnach allerdings negative Auswirkungen auf den Diffusionskoeffizienten und Titan auf die mechanischen Eigenschaften haben. Chromoxid (Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) soll dagegen vorteilig wirken, indem es zu größeren Körnern führt und die Bildung von Mikrorissen am Rand des Pellets reduziert, was Spannungen im Hüllrohr durch eine verbesserte Kriechverformung reduziert /DEL 18/ In der Publikation /DEL 10/ hatte AREVA eine Konzentration von 0,16 wt% (1600 wppm) Chromoxidgehalt als Optimum für die Korngröße und Viskoplastizität von (U-Gd)O<sub>2</sub> Brennstoffen vorgestellt.

Framatome hat einige Vorteile von dem dotierten Brennstoff, sowohl für den Normalbetrieb als auch für die Betriebsstörungen, identifiziert. Im Normalbetrieb soll die verbesserte Spaltgasrückhaltung, verglichen mit Standard-UO<sub>2</sub>, eine Reduzierung des Innendrucks bei hohen Abbränden von bis zu 20 bar (in heißem Zustand) ermöglichen. Eine bessere Beständigkeit gegen die Wechselwirkung zwischen Pellet und Hüllrohr soll die Sicherheitsmargen bei Leistungstransienten vergrößern und eine bessere Flexibilität des Reaktorbetriebs ermöglichen. Dazu soll die höhere Dichte des dotierten Brennstoffes aus wirtschaftlicher Sicht vorteilig sein. Bei Betriebsstörungen ist der reduzierte Innendruck von Vorteil, indem er das *Ballooning* und Bersten des Hüllrohres verhindern soll und beim Hüllrohrversagen die Aktivitätsfreisetzung reduzieren würde. Die bessere Spaltgasrückhaltung in den Körnern wirkt auch positiv auf die Pelletfragmentierung und sollte die Brennstoffverlagerung bei *Ballooning* verhindern. Bei Hüllrohrversagen soll das Auswaschen des Brennstoffes durch Oxidation mit dem Wasser des Primärkreislaufes um den Faktor 5, im Vergleich zu Standard UO<sub>2</sub>, reduziert werden /DEL 10/, /DEL 18/. Bei Betriebsstörungen ist der reduzierte Innendruck von Vorteil, indem er das *Ballooning* und Bersten des Hüllrohres verhindern soll und beim Hüllrohrversagen die Aktivitätsfreisetzung reduzieren würde. Die bessere Spaltgasrückhaltung in den Körnern wirkt auch positiv auf die Pelletfragmentierung und sollte die Brennstoffverlagerung im *Ballooning* verhindern. Bei Hüllrohrversagen soll das Auswaschen des Brennstoffes durch

Oxidation mit dem Wasser des Primärkreislaufes um den Faktor 5, im Vergleich zu Standard  $\text{UO}_2$ , reduziert werden /DEL 10/, /DEL 18/.

Im Februar 2019 wurden vier Brennelemente von Framatome mit jeweils vier Brennstäben, die aus Cr-beschichteten Hüllrohren und Cr-dotiertem  $\text{UO}_2$  bestehen, im Kernkraftwerk Vogtle Unit 2 eingesetzt. Dazu plant Framatome für Anfang 2021 den Einsatz von zwei Brennelementen, die komplett aus ATF-Brennstäben bestehen werden, im Kernkraftwerk Calvert Cliffs Unit 2 /LEW 19/.

### **Dotierung mit $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\text{Cr}_2\text{O}_3$**

Westinghouse hat ein dotiertes Pellet entwickelt, ADOPT™ (*Advanced Doped Pellet Technology*), in dem das Urandioxid mit Aluminiumoxid ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) und Chromoxid ( $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ) dotiert ist. Mit der Entwicklung dieses Brennstoffes wurde schon in den 90er Jahren begonnen. Westinghouse berichtete, dass dieses Pellet eine höhere Dichte als der Standard-Brennstoff, eine bessere Rückhaltung von Spaltgasen und eine verbesserte mechanische Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Hüllrohr (PCMI) sowie einer bis zum Faktor 5 niedrigere Auswaschrates an den mit Chromoxid dotierten Pellets, im Vergleich zu nicht dotierten Brennstoff, aufweist /WRI 18/, /SHA 18/, /KAR 19/. Bei den Brennstoffpellets ist Kriechen stark von der Temperatur abhängig. Bei hohen Temperaturen (über  $1.300\text{ °C}$ ) haben ADOPT™ Pellets ein stärkeres Kriechen als Standardpellets aufgewiesen, während bei Temperaturen unter  $1.300\text{ °C}$  keine deutlichen Unterschiede festgestellt wurden. Die hohe Kriechverformbarkeit des Materials bei hohen Temperaturen ist für die mechanische Wechselwirkung zwischen Hüllrohr und Pellet mit einer daraus reduzierten Spannung im Hüllrohr von Vorteil. Aufgrund des starken Temperaturgradienten und der schlechten Viskoplastizität im Standard- $\text{UO}_2$ , bilden sich in der Mitte des Pellets große Risse während des Betriebs. Mit den dotierten Pellets sind deutlich weniger Risse im mittleren Bereich zu beobachten, dafür aber mehr kleine radiale Risse am Rand des Pellets /WRI 18/.

Dotierungselemente können die Verdichtung und das Körnerwachstum fördern. So wurde beobachtet, dass die Korngröße mit der Konzentration an Chromoxid zunimmt. Aluminiumoxid trägt zum maximalen Kornwachstum bei, in diesem Fall mit einer Konzentration von etwa 200 ppm. Die Konzentration der Dotierungselemente wurde aufgrund der parasitären Neutronenabsorption, insbesondere durch Chrom, relativ niedrig gehalten; in /ARB 06/ ist eine Obergrenze von 1 000 ppm aufgeführt. Während die Korngröße im Standard  $\text{UO}_2$  Brennstoff bei etwa  $10\text{ }\mu\text{m}$  liegt, liegt die Korngröße bei den

dotierten Brennstoffen bei etwa 50 µm. Durch die längeren Diffusionswege in den Kornbereichen können vorhandene Spaltprodukte mit einer verbesserten Spaltgasrückhaltung von 30 % bis 50 % weniger Freisetzung gehalten werden und sind somit deutlich effizienter als Standardmaterial /ARB 06/, /SHA 18/.

Experimentelle Versuche wurden am KIT in Karlsruhe, Deutschland, und der Königlichen Technischen Hochschule KTH in Stockholm, Schweden, durchgeführt, um die vier wichtigen physikalischen Parameter spezifische Wärmekapazität, thermischer Ausdehnungskoeffizient, Schmelztemperatur, und Temperaturleitfähigkeit, zu untersuchen /ARB 06/. Durch diese Versuche wurden der dotierte UO<sub>2</sub>- und der Standardbrennstoff verglichen. Es wurde diesbezüglich kein erheblicher Unterschied festgestellt. /ARB 06/, /SHA 18/.

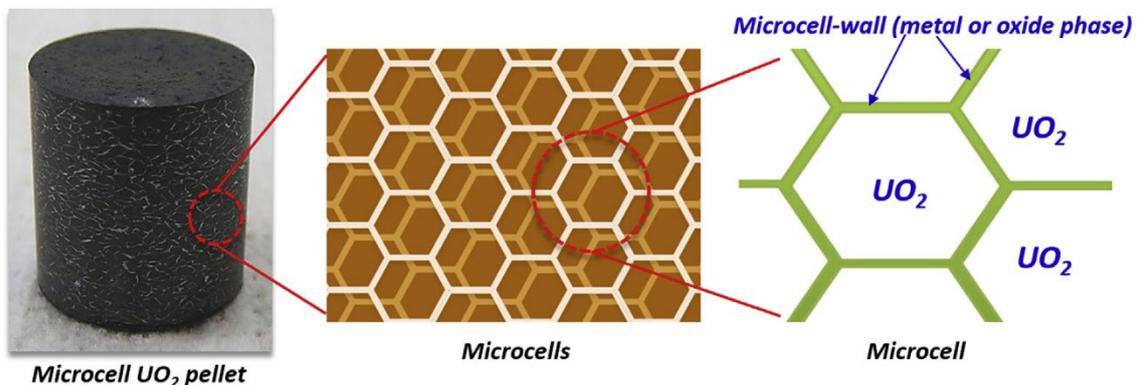
Die ersten ADOPT™ Brennstäbe wurden 1999 in einem Kernkraftwerk eingesetzt, gefolgt von mehreren weiteren Testbrennstäben im Jahr 2000 /SHA 18/. In jüngerer Zeit haben Exelon und Westinghouse zusammen Brennelemente mit teilweiser ADOPT™ Pellet-Bestückung im Betrieb getestet. So wurden im April 2019 vier Brennstäbe mit ADOPT™ Pellets im Kraftwerk Byron Unit 2 eingesetzt /KAR 19/, /NNW 21/. Weiterhin wird in einem europäischen Siedewasserreaktor ein Testprogramm durchgeführt, um Daten bei hohen Abbränden > 70 MWd/kgU zu gewinnen und das Verhalten der ADOPT™ Pellets zu überprüfen /SHA 18/.

### **3.2.1.2 Mikrozellen-UO<sub>2</sub>-Pellet**

Das Konzept der Mikrozellen-UO<sub>2</sub>-Pellets bezeichnet einen modifizierten Standard des UO<sub>2</sub>-Pellets, bei dem UO<sub>2</sub>-Körnchen in dünnen Zellwänden (*microcell-wall*) eingehüllt sind, was die sogenannten UO<sub>2</sub>-Mikrozellen (*microcells*) bildet. Diese Mikrozellwände sind durch das ganze Pellet miteinander verbunden. In Abb. 3.3 ist das Konzept schematisch dargestellt. Die Mikrozellstruktur soll hauptsächlich für eine reduzierte Freisetzung von hochradioaktiven und korrosiven Spaltprodukten (Caesium und Iod) sorgen und die Temperatur im Pellet durch eine bessere thermische Leitfähigkeit reduzieren, um somit über größere Margen zu verfügen. Am *Korea Atomic Energy Research Institute* (KAERI) wurden zwei Varianten dieses Konzeptes untersucht: eine mit Mikrozellwänden aus Metall (Chrom oder Molybdän) und eine mit Mikrozellwänden aus Keramik (SiO<sub>2</sub>-basierte Mischoxide) /YAN 13/, /KIM 16/.

Die Umsetzbarkeit der Herstellung solcher Mikrozellen-UO<sub>2</sub> Pellets wurde im Labormaßstab nachgewiesen. Für eine großtechnische Herstellung sind noch spezifische Prozessabläufe und nötige Qualitätskontrollen zu definieren /NEA 18a/.

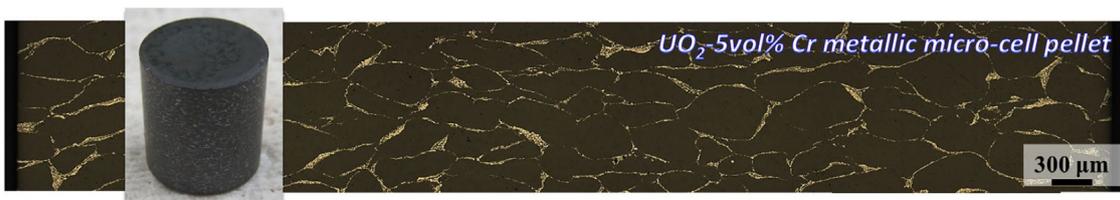
In Abb. 3.3 ist das Konzept schematisch dargestellt. Die Mikrozellstruktur soll hauptsächlich für eine reduzierte Freisetzung von hochradioaktiven und korrosiven Spaltprodukten (Caesium und Iod) sorgen und die Temperatur im Pellet durch eine bessere thermische Leitfähigkeit reduzieren, um somit über größere Margen zu verfügen. Am *Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI)* wurden zwei Varianten dieses Konzeptes untersucht: eine mit Mikrozellwänden aus Metall (Chrom oder Molybdän) und eine mit Mikrozellwänden aus Keramik (SiO<sub>2</sub>-basierte Mischoxide) /YAN 13/, /KIM 16/, /KIM 18/.



**Abb. 3.3** Darstellung des Konzeptes des Mikrozellen-UO<sub>2</sub> Pellets nach /KIM 18/

### Metallische Mikrozellwände

Die Herstellung dieser Mikrozellen-UO<sub>2</sub>-Pellets erfolgt in mehreren Schritten. Metallbeschichtete UO<sub>2</sub>-Körnchen (zukünftige Zellen) werden vorbereitet, indem diese Körnchen mit Metallpulver gemischt werden. Sie werden danach zu Grünpellets gepresst und dann in Wasserstoffatmosphäre gesintert. 5 Vol.-% Chrom-Mikrozellen-UO<sub>2</sub>-Pellet vom KAERI weisen eine Dichte von 97,0 % der theoretische Dichte und Zellen mit einem Durchmesser von etwa 290 µm auf. Ein solches Pellet wird in Abb. 3.4 dargestellt.



**Abb. 3.4** Mikrostruktur eines Chrom-Mikrozellen-UO<sub>2</sub> Pellets – Panoramabild des Pellets entlang der radialen Richtung nach /KIM 18/

Die Haupteigenschaft der metallischen Mikrozellwände ist ihre deutlich bessere thermische Leitfähigkeit, welche zu niedrigeren Temperaturen im Pellet führt. Molybdän und Chrom wurden vom KAERI als bevorzugte Metalle für die Mikrozellwände aufgrund ihrer hohen Schmelzpunkte, hohen Wärmeleitfähigkeiten und mäßigen Neutroneneinfangquerschnitte, sowie aus Gründen ihrer Kompatibilität mit  $\text{UO}_2$  unter den Bedingungen des Sinterns bei der Pellet-Herstellung betrachtet. Die niedrigeren Temperaturen verhindern zusammen mit den Mikrozellwänden selbst die Diffusion der Spaltgase und deren Freisetzung. Der kleinere Temperaturgradient reduziert auch die Verlagerung und die Pellet-Hüllrohr mechanischen Wechselwirkungen während Transienten dank niedrigerer thermischer Spannungen im Pellet. Dazu bieten Mikrozellen  $\text{UO}_2$ -Pellets mit einer hohen thermischen Leitfähigkeit wesentlich größere Sicherheitsmargen unter Störfallbedingungen sowie im Normalbetrieb /KIM 16/, /KIM 18/.

Einige Tests außerhalb des Kerns (*out-of-pile*) wurden durchgeführt, um die Eigenschaften dieser Pellets zu prüfen. Wie erwartet haben sie eine deutlich verbesserte Wärmeleitfähigkeit aufgewiesen: 5 Vol.-% Molybdän-Mikrozellen-Pellets haben eine Leitfähigkeit, die 1,75-mal höher bei 200 °C ist, als Standard- $\text{UO}_2$  und bis 2,2-mal höher bei 1.200 °C. 5 Vol.-% Cr Mikrozellen-Pellets weisen eine Leitfähigkeit von 1,6 × bei 300 °C bis 1,75 × bei 1.200 °C höher als Standard- $\text{UO}_2$ . Der lineare Wärmeausdehnungskoeffizient der Molybdän-Mikrozellen Pellets nimmt ab, wenn der Molybdängehalt zunimmt. Dieser Koeffizient liegt für Molybdän bei  $4,8 \cdot 10^{-6}/\text{K}$  bei 25 °C, während er zweimal höher für  $\text{UO}_2$  ist. Die eingeschränkte Ausdehnung des Pellets unter transienten Bedingungen soll die mechanische Belastung des Hüllrohres reduzieren.

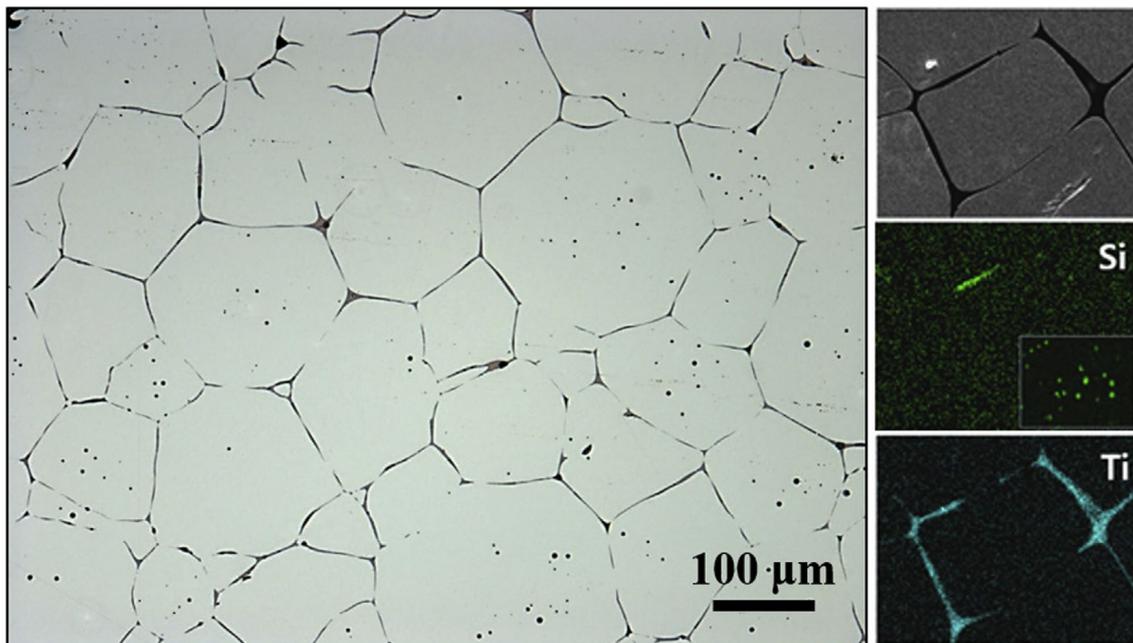
Das Verhalten der Molybdän-Mikrozellen-Pellets wurde auch unter Dampfoxidationsbedingungen bei Temperaturen von 500 °C bis 800 °C untersucht. Mikrozellen-Pellets haben einen deutlich besseren Zustand, ohne bedeutende Schäden an der Oberfläche, im Gegensatz zu den Standard  $\text{UO}_2$ -Pellets, beim Abschluss der Untersuchungen gezeigt. Eine der wichtigsten Eigenschaften mit Chrom- und Molybdän-Mikrozellen- $\text{UO}_2$ -Pellets sind die relativ niedrigen Schmelztemperaturen (1.907 °C bei Chrom und 2.623 °C bei Molybdän) verglichen zu  $\text{UO}_2$  (2.865 °C). Diese Eigenschaften werfen die Frage der Strukturintegrität bei Temperatur Transienten über die Schmelzpunkte von Chrom oder Mo auf. So wurden thermische Transient-Tests durchgeführt, wo die Pellets bei Temperaturen höher als die Schmelzpunkte der Mikrozellwände gegläht wurden. Die Mikrozellen-Pellets zeigten nach diesem Vorgang immer noch eine ausreichend gut erhaltene Struktur /KIM 18/.

Weitere Tests wurden im Halden Reaktor (Norwegen) auch mit Chrom-Mikrozellen UO<sub>2</sub>-Pellets durchgeführt. Diese Tests haben gezeigt, dass die Temperatur des Mikrozellen Pellets etwa 20 % niedriger als mit dem Standard UO<sub>2</sub>-Pellet liegt /KIM 18/.

### **Keramische Mikrozellwände**

In dieser Variante bestehen die Mikrozellwände aus Oxidphasen mit einer hohen chemischen Affinität zu flüchtigen Spaltprodukten (Caesium, Iod), um diese verbessert zurückzuhalten. Die chemische Affinität zu Caesium (etwa zehnmals häufiger als Iod als Spaltprodukt) und die Unlösbarkeit in UO<sub>2</sub>-Matrix (Erhaltung der Mikrozellstruktur) sind wichtige Kriterien zur Bestimmung des Mikrozellwandmaterials. Aus diesen Gründen hat KAERI SiO<sub>2</sub>-basierte Mischoxide als Wandmaterial bevorzugt /YAN 13/, /KIM 16/, /KIM 18/.

Die Herstellung der Mikrozellen-UO<sub>2</sub>-Pellets mit Keramikzellwänden erfolgt durch herkömmliche Flüssigphasen-Sintertechnik. Ein gemischtes Pulver aus UO<sub>2</sub> und Zusatzstoffen wird gepresst und dann bei einer Temperatur gesintert, bei der die Zusatzstoffe flüssig werden. So dringen die Zusatzstoffe zwischen die UO<sub>2</sub>-Körner durch, um die Zellstrukturen zu bilden. So hat KAERI Pellets mit 0,6 wt% SiO<sub>2</sub>-TiO<sub>2</sub> Oxid nach 4 Stunden bei 1.720 °C Sintern in Wasserstoffatmosphäre hergestellt. Die gebildeten Pellets weisen eine durchschnittliche Zellgröße von 80 µm auf und die Dichte liegt bei 97,9 % der theoretischen Dichte zeigt die Mikrostruktur eines solchen Pellets mit Spektroskopie Bildern, um die Zusatzstoffe an den Mikrozellwänden identifizieren zu können /KIM 16/, /KIM 18/.



**Abb. 3.5** Mikrostruktur eines keramischen ( $\text{SiO}_2\text{-TiO}_2$ ) Mikrozellen  $\text{UO}_2$  Pellets. Silizium und Titan sind durch energiedispersive Spektroskopie zu sehen nach /KIM 18/

Die Rückhaltung der Spaltprodukte soll die Korrosion und Rissbildung unter Spannung (*stress corrosion cracking*) an der Innenseite des Hüllrohres sowie den Innendruck im Brennstab reduzieren. Die Keramikwände sind relativ weich, wodurch schnelle Kriechen-Verformungen ermöglicht und dadurch die mechanische Spannung im Hüllrohr bei Transienten reduziert werden. Die relativ großen Körner sollen zusammen mit den Wandstrukturen die massive Fragmentierung in Störfallbedingungen verhindern und dadurch die Freisetzung von Spaltprodukten reduzieren /KIM 18/.

Zu den Erprobungen unter LWR-Einsatzbedingungen wurden auch direkte Untersuchungen an den Keramik-Mikrozellen-Pellets zur Klärung ihres physikalischen Verhaltens durchgeführt. Es wurde festgestellt, dass die thermischen Eigenschaften (Leitfähigkeit und Ausdehnungskoeffizient) vergleichbar mit den des  $\text{UO}_2$  sind (die Mikrozellwände bestehen aus Keramik, wie das Standardpellet). Druckkriechverformung bei hohen Temperaturen ist schneller als bei den Standardpellets. Das soll ermöglichen, die mechanische Spannung im Hüllrohr während Transienten oder Störfälle sowie im Normalbetrieb zu reduzieren.

Keramisches Mikrozellwandmaterial zeigt eine gute Stabilität in Dampfoxidationsbedingungen. Versuche haben eine verglichen zum Standard-UO<sub>2</sub> höhere Oxidationsbeständigkeit gezeigt, was sich durch die Größe der Körner des keramischen Mikrozellen-UO<sub>2</sub>-Pellets erklären lässt.

Die Integrität des keramischen Mikrozellen Pellets bei Temperaturtransienten über den Schmelzpunkt der Mikrozellwand wurde geprüft. Ein thermischer Transiententest wurde durchgeführt, bei dem die Pellets bei Temperaturen höher als der Schmelzpunkt der keramischen Wand, geglüht wurden und die Strukturintegrität gut erhalten blieb /KIM 18/.

### **Unfallbedingungen und Entsorgung von Mikrozellen-UO<sub>2</sub>-Pellets**

Bisher wurden keine Experimente durchgeführt, um das Verhalten der Mikrozellen UO<sub>2</sub>-Pellets unter Unfallbedingungen zu untersuchen. Es ist davon auszugehen, dass die bessere Rückhaltung der Spaltgase und der entsprechende niedrigere Innendruck eine positive Wirkung auf das Hüllrohrverhalten bei Unfallbedingungen haben. Es wird erwartet, dass das *Ballooning* und das Versagensrisiko durch Bersten reduziert ist. Dazu sollte die reduzierte Menge an freien Spaltgasen an den Korngrenzen und Mikrozellwänden die Fragmentierung des Pellets einschränken, sowie die Verbreitung im Fall eines Brennstabberstens /NEA 18a/.

Im Hinblick auf die Entsorgung wäre ein niedrigerer Innendruck dank der besseren Rückhaltung der Spaltprodukte vorteilig, da das Hüllrohr eine reduzierte mechanische Belastung erleben würde /NEA 18a/.

### **3.2.2 Uransilizid**

Als ein wichtiger Punkt auf der Anforderungsliste für unfalltolerante Brennstoffe gilt eine verbesserte Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffs, um so durch eine verbesserte Wärmeableitung, eine geringere Brennstofftemperatur zu erreichen. Dadurch wird auch eine reduzierte Wärmemenge im Pellet erreicht, was zu einem verbesserten Verhalten unter Unfallbedingungen (z. B. Kühlmittelverluststörfall) führt. Als besonders vielversprechend gilt dabei, basierend auf ihren physikalischen Eckdaten und Voruntersuchungen, die Gruppe der Uransilizide. Hier ist besonders U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub> sowie auch noch teilweise U<sub>3</sub>Si<sub>5</sub> zu nennen. Als ebenfalls wichtiger Punkt ist die im Vergleich zum herkömmlichen UO<sub>2</sub>-

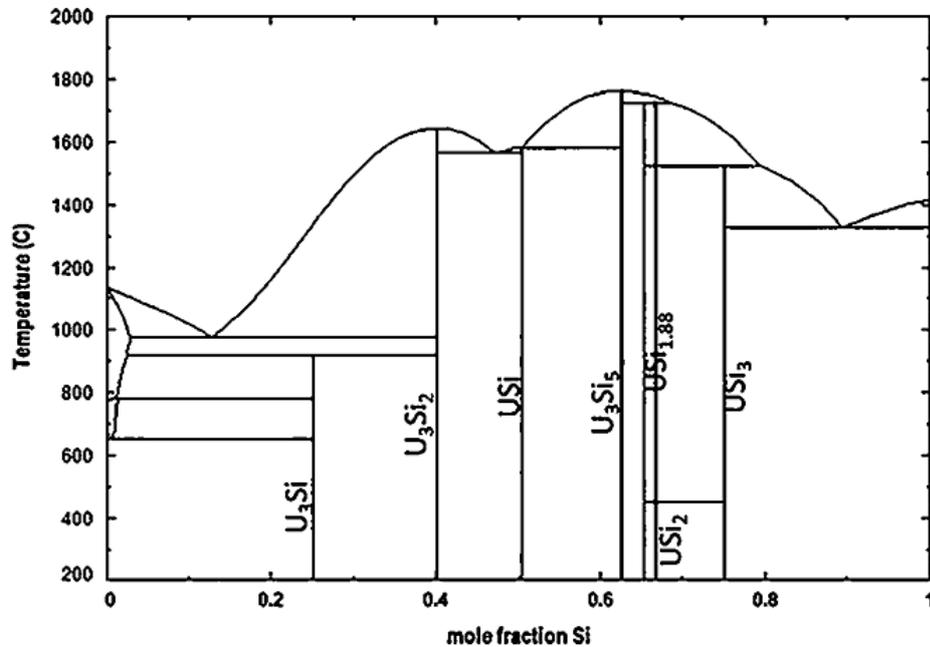
Brennstoff höhere Urandichte in diesen Siliziden, die dadurch verlängerte Betriebszyklen für diesen Brennstoff ermöglichen können.

Bei dem Design des neuen Brennstoffs soll aber auch der Fokus auf die Verträglichkeit mit potentiell neuen Hüllrohrmaterialien gesetzt sein. Damit soll sichergestellt werden, dass bei einem künftigen Ersatz der Zirkonium-Hüllrohre mit ihrer ungünstigen Oxidationskinetik (d.h. ihrer hohen Freisetzung von Wasserstoff unter Unfallbedingungen) dann auch andere, z.B. keramische Verbundwerkstoff als Hüllrohrmaterial eingesetzt werden können, bzw. eine Verträglichkeit dieser Materialpaarungen besteht.

### **Physikalische und chemische Eigenschaften**

Beim Einsatz von Silizid-Brennstoff kommt dem Verhältnis von Silizium zu Uran hinsichtlich des notwendigen Phasengleichgewichtes und des thermochemischen Verhaltens eine entscheidende Rolle zu, da Uran durch Spaltung verlorenght und dabei möglichst viele seiner Spaltprodukte über das vorhandene Silizid gebunden werden sollen. Die Darstellung der Temperatureigenschaften der verschiedenen Silizide erfolgt dabei typisch über ein U-Si-Phasendiagramm mit dem Molenbruch von Silizium (also der physikalisch-chemischen Größe zur quantitativen Beschreibung der Zusammensetzung des Stoffgemisches / der Mischphasen) als Abszisse und der Temperatur als Ordinate.

Insgesamt beschreiben dabei sieben, identifizierte intermetallische Verbindungen ( $USi_3$ ,  $USi_2$ ,  $USi_{1.88}$ ,  $U_3Si_5$ ,  $USi$ ,  $U_3Si_2$  und  $U_3Si$ ) das U-Si-Binärsystem. Abb. 3.6 zeigt ein berechnetes Phasendiagramm für den Molenbruch von 0 bis 1 sowie der Temperatur von 200 bis 2.000 °C /WIL 18/.



**Abb. 3.6** Berechnetes Phasendiagramm für den Molenbruch Silizium von 0 bis 1 und den Temperaturbereich 200 bis 2.000 °C nach /WIL 18/

$U_3Si_5$  zeigt im Phasendiagramm bei einem Molenbruch von ca. 0,66 eine korrespondierende maximale Temperatur für Silizide von knapp über 1.750 °C.

Neben dem reinen Phasenverhalten sind auch die weiteren physikalischen Eigenschaften der Verbindungen von Relevanz. Silizide höherer Dichte besitzen ein ausgeprägtes Schwellverhalten bei dann gleichzeitig abnehmendem Schmelzpunkt, so dass in den Untersuchungen als ATF in der Regel nur  $U_3Si_2$  Berücksichtigung findet.

Von weiterem Interesse sind auch daraus ableitbare Verbundwerkstoffe wie Uransilizid/-nitride wie UN- $U_3Si_2$  sowie UN- $U_3Si_5$  hinsichtlich einer weiteren Erhöhung der Urandichte, sowie einer möglichen Verringerung des Materialschwellens /NEA 18a/.

## **Herstellung**

Die Ausgangsmaterialien für die Herstellung von Uransiliziden sind Uranhexafluorid sowie Silizium. Diese Stoffe stellen auch bei größeren Mengenbedarf keine außergewöhnlichen Anforderungen an die bestehenden Ressourcen dar.

Aktuelle Arbeiten zeigen, dass die Technik der Herstellung der ersten Pellets über Lichtbogenschmelzen, verschiedene Wärmebehandlungen, Pulverisieren, Pressen und Sintern noch prozessoptimiert werden kann. Die Herstellung des feinen Uransilicid-Pulver beinhaltet einige Herausforderungen u. a., da es in Sauerstoff hochreaktiv ist und somit eine Verarbeitung unter inerter Atmosphäre erfordert. Die höchsten Pellet-Enddichten traten beim Sintern von Material mit einer Ausgangsdichte von 60 bis 65 % der theoretischen Enddichte auf. Auch müssen zuvor Mahlschmierstoffe aus dem Pulver entfernt, sowie circa 0,1 Gewichtsprozent Polyox als Bindemittel während des Pressens zugesetzt werden. Das Sintern der Pellets erfolgt über eine Dauer von ca. vier Stunden in einem speziellen Tantaltiegel bei ca. 1.500 °C unter Argon-Atmosphäre. Bei diesen Pellets konnte eine durchschnittliche theoretische Dichte von 94,7 % erreicht werden /HAR 15/.

Insgesamt wird seitens der Industrie für eine ökonomische Optimierung und zur Verbesserung der Produktqualität eine direkte Synthese von  $U_3Si_2$  aus  $UF_6$  und Silizium unter Vermeidung eines metallischen Zwischenprodukts angestrebt.

Bei der Herstellung von Brennelementen oder Brennstoffbaugruppen werden keine tiefergehenden Probleme erwartet. Die Kontrollmechanismen von Pulver und Endprodukt werden im Wesentlichen, denen der Herstellung von  $UO_2$ -Pellets entsprechen.

## **Betriebseinsatz und erwartete Betriebsereignisse**

Erfahrungen haben bei einem Abbrand von 20 MWd/kgU ein Schwellen von 0 %,  $\pm 1$  % sowie eine Spaltgasfreisetzung von ca. 0,3 % bei linearen Wärmeerzeugungsraten von 433 bis 500 W/cm gezeigt, was unter dem  $UO_2$ -Wert liegt. Bedingt durch die 5- bis 10-mal gegenüber  $UO_2$  höhere Wärmeleitfähigkeit von  $U_3Si_2$  ist die im Brennstoff gespeicherte Wärmemenge erheblich reduziert.

Auch ergeben sich im Bereich der Neutronenökonomie neue Freiheitsgrade für moderne Hüllrohrkonzepte (wie z. B. aus SiC-SiC Verbundwerkstoffen) und Einsparungspotential für den Bereich der Brennstoffkreislaufkosten, im Vergleich zu den bisherigen Techniken.

Die höhere Dichte und insbesondere Urandichte von  $U_3Si_2$  gegenüber  $UO_2$  zeigt eine Verringerung der Neutronenmoderation bei gleicher geometrischer Brennstoffgröße bzw. Anordnung, so dass im Brennstoffspektrum von  $U_3Si_2$  ein etwas härteres Neutronenspektrum vorliegt. Dies ergibt zwei gegenläufige Reaktivitätseffekte. Auf der einen Seite sind zunächst die thermischen Spaltungen und die augenblickliche Reaktivität gegenüber  $UO_2$  verringert, auf der anderen Seite wird durch eine erhöhte Zahl an epithermischen Neutroneneinfängen durch  $^{238}U$  die Umwandlung zu Plutonium erhöht, was den Reaktivitätsverlust bei zunehmendem Abbrand verlangsamt. Die Reaktivität von 5 %  $^{235}U$  angereicherten  $U_3Si_2$ -Brennstoff in einem  $17 \times 17$  Standardgitter ist gegenüber  $UO_2$ , bei gleicher Konfiguration somit anfangs geringer. Ab einem Abbrand von 50 MWd/kgU zeigt  $U_3Si_2$  eine zunehmend höhere Reaktivität.

Bei Wasser-/Dampfkontakt infolge eines Hüllrohrdefekts wird bei  $U_3Si_2$ -Brennstoff von einer etwas höheren, exothermeren Reaktion unter Wasserstofferzeugung als bei  $UO_2$  ausgegangen.

Da von möglichen Wechselwirkungen von  $U_3Si_2$  mit den Metallen Cr, Fe und Zr berichtet wird, muss je nach eingesetzten Hüllrohrmaterial eine passivierende Schicht zwischen Pellet und Hüllrohr aufgebracht werden. Bei einem Einsatz mit keramischen SiC/SiC<sub>f</sub> Hüllrohren ist diese zusätzliche Schicht nach momentanem Kenntnisstand nicht erforderlich.

Bedingt durch die im Vergleich zum herkömmlichen  $UO_2$ -Brennstoff höhere Urandichte bei diesen Silizidbrennstoffen kann hier von längeren Betriebszyklen und ggf. höheren Abbränden als bei  $UO_2$ -Brennstoff ausgegangen werden.

### **Auslegungsbestimmende und auslegungsüberschreitende Störfälle**

Bei Auslegungsstörfällen (*design-basis accident*, DBA) sowie auslegungsüberschreitenden Störfällen (*design extension conditions*, DEC) stellt sich in Verbindung mit der wesentlich höheren Wärmeleitfähigkeit von  $U_3Si_2$  gegenüber  $UO_2$  durch die dadurch bedingte höhere Wärmeabfuhr eine signifikant niedrigere Brennstoff-Temperatur ein. Damit

ist der Vorteil von  $\text{UO}_2$  mit seinem höheren Schmelzpunkt von  $2.878\text{ °C}$  gegenüber  $\text{U}_3\text{Si}_2$  mit einem Schmelzpunkt von  $1.665\text{ °C}$  durch die höhere Wärmeabfuhr des  $\text{U}_3\text{Si}_2$ -Materials nicht die mehr die einzige maßgebliche Größe. Für eine konkrete Betrachtung heißt dies, dass bei Pellets mit  $0,82\text{ cm}$  Durchmesser und einer Oberflächentemperatur von  $673\text{ K}$  bei  $\text{UO}_2$  die lineare Wärmeerzeugungsrate vor dem Schmelzen der Pelletmitte bei  $\text{UO}_2$  bei ungefähr  $750\text{ W/cm}$  liegt, wohingegen beim  $\text{U}_3\text{Si}_2$ -Pellet erst bei einer linearen Wärmeerzeugungsrate von ca.  $2.300\text{ W/cm}$  ein Schmelzen der Pelletmitte eintritt. Zudem weist  $\text{U}_3\text{Si}_2$  eine mit zunehmender Temperatur höhere Wärmeleitfähigkeit auf, was bei einer Temperatur-/Leistungsexkursion zusätzliche Konservativitäten schafft.

Allgemein wird auch im Vergleich zu  $\text{UO}_2$  eine weniger harte mechanische Wechselwirkung zwischen Pellets und Hüllrohren z. B. bei Leistungsrampen, aber jedoch eine etwas höhere exothermere Brennstoffoxidation bei Hüllrohrversagen erwartet.

### **Ergebnisse von Nachbestrahlungsuntersuchungen von $\text{U}_3\text{Si}_2$ -Brennstoff mit geringem Abbrand**

Untersuchungen von  $\text{U}_3\text{Si}_2$ -Pellets nach Bestrahlung bis zu einem geringen Abbrand  $<20\text{ GWd/tHM}$  zeigen im Vergleich zum erwarteten Verhalten von Standard- $\text{UO}_2$  bei gleichem Leistungsniveau begrenzte Rissbildungen. Gammaskpektrometriedaten zeigen keine Migration von Spaltprodukten. Entlang des Pelletradius kann eine geringfügige homogene Aushärtung aufgrund der Ansammlung von Spaltprodukten und Strahlenschäden gemessen werden. Freisetzung des Spaltgases und Schwellen bleiben gering. Die Bildung von Spaltgasblasen, die durch optische Mikroskopie auflösbar sind, erfolgt von der Pelletmitte nach außen bis zu ungefähr  $60\%$  des Brennstoffpelletradius. Die Gesamtdaten deuten auf ein gutes Leistungsbild von  $\text{U}_3\text{Si}_2$  bei geringem Abbrand hin.

### **Entsorgung, Wiederaufarbeitung von bestrahltem Uransilizid-Brennstoff**

Im Ausland wird basierend auf früheren Erfahrungen mit bestrahlten  $\text{U}_3\text{Si}_2$ -Proben aus Materialtestreaktoren eine Wiederaufbereitung, z. B. durch Oxidation in Salzlösungen, anstelle der direkten Entsorgung in Erwägung gezogen. Beispielsweise hat AREVA (heute ORANO) die industrielle Qualifizierung und Sicherheitsbewertung der Wiederaufbereitung von Silizid-Brennstoffen für Forschungsreaktor-Brennstoffe in La Hague abgeschlossen, und besitzt seit 2017 eine entsprechende Genehmigung zur Wiederaufarbeitung /VAL 15/, /LAV 17/.

## Stand der Entwicklung

Für den Einsatz von  $U_3Si_2$ -Brennstoffpellets als unfalltoleranter Brennstoff in LWR sind noch weitere F&E arbeiten notwendig. Dies betrifft besonders weitere Untersuchungen der einzelnen Silizide zum Schwell- und Kriechverhalten, der Wärmeleitfähigkeit, des Verhaltens der Spaltgasfreisetzung sowie einer Verbesserung der Oxidationsbeständigkeit der Pellets.

## Uransilizid-Brennstoff mit Hüllrohren aus Siliziumkarbid

Aufgrund seiner guten Oxidationsbeständigkeit und seines geringen parasitären Neutronenadsorptionsquerschnittes wird als Brennstoff die intermetallische  $U_3Si_2$  Verbindung mit guter Wärmeleitfähigkeit, relativ hohem Schmelzpunkt, einem geringen strahlungsinduzierten Quellen und Amorphisieren und mäßiger Oxidationsbeständigkeit favorisiert. Dies erfolgt in den anvisierten Konzepten in Verbindung mit SiC/SiC-Hüllrohren, vgl. Kap. 3.1.3. Um diese beiden Materialien,  $U_3Si_2$  und SiC, in Kombination einsetzen zu können, ist die Kompatibilität beider Werkstoffe, d. h. ihr Verhalten an den zugewandten Grenzflächen von hoher Bedeutung und daher entsprechend zu betrachten.

Basierend auf den berechenbaren Reaktionsenergien an den  $U_3Si_2$ /SiC-Grenzflächen wurden die möglichen Phasenbildungen ermittelt und ihre Wechselwirkungen, basierend auf Interdiffusionsmechanismen betrachtet, bzw. Modelle entwickelt, um ihr Verhalten auch weit über den eintretenden Betriebstemperaturen, wie bei schweren Unfallbedingungen, vorherzusagen.

Parallel dazu wurden zu den theoretischen Arbeiten experimentell die Phasen der  $U_3Si_2$ /SiC-Grenzflächen bei hohen Temperaturen überprüft. Als weitere Phasen zu den Ausgangsmaterialien stehen hier die Bildung von UC oder  $U_{20}Si_{16}C_3$  und dann im weiteren  $U_3Si_2$  an.

Wenn sich  $U_3Si_2$  und SiC durch die Phasen nicht mehr im Gleichgewicht befinden, gibt es mit der Ausnahme einer gewissen Bildung von  $U_3Si_5$  nur eine geringe Wechselwirkung zwischen Brennstoff und Ummantelung. Basierend auf Betrachtungen von selektiven Temperaturbereichen heißt dies, dass nach anfänglichen Reaktionen zwischen dem Brennstoff  $U_3Si_2$  und der SiC Ummantelung, sich Grenzphasen ausbilden aber in deren Folge alle weiteren Wechselwirkungen gestoppt werden /HAR 15/.

Somit versprochen diese Erkenntnisse zunächst ein stabiles  $U_3Si_2$ -Brennstoff/SiC-Hüllrohr-System. Mittlerweile hat Westinghouse, ein Hauptentwickler dieses Brennstoffs im Rahmen seines EnCore®-Programms /SHA 18/, /WEC 19/, jedoch nach Angaben der U.S. NRC aufgrund von Problemen, welche bei der Untersuchung bestrahlter *Lead Test Assemblies* aufgetaucht sind, die Forschung an diesem Brennstoff eingestellt. Stattdessen richtet sich der Fokus dieses Herstellers nun auf die Erforschung und Qualifizierung von Urannitrid bzw. Urannitrid/-silizid /ORT 16/ (siehe auch Kap. 3.2.3) als Brennstoff mit erhöhter Urandichte /NRC 21/.

### 3.2.3 Urannitrid

Als weitere potentielle Brennstoffvariante wird der Einsatz von Urannitrid (UN, speziell  $U^{15}N$ ) angesehen, und speziell von Westinghouse verfolgt. Es besitzt im Vergleich zu  $UO_2$  eine um 41 % höhere Dichte, und somit eine ebenso höhere  $^{235}U$ -Beladung bei gleicher Anreicherung. Parallel dazu verfügt  $U^{15}N$  um eine ca. fünffach bessere Wärmeleitfähigkeit, bei einem mit zu Standard- $UO_2$  vergleichbaren Schmelzpunkt. Diese bessere Wärmeleitfähigkeit reduziert zum einen die Brennstofftemperatur an sich, und hat durch diesen geringeren Wert der Wärmespeicherung zudem einen positiven Effekt beim Auftreten jeglicher Arten von Leistungstransienten /SCH 21/.

Hintergrund für den Einsatz des Isotops  $^{15}N$  ist seine Stabilität im Neutronenstrahlungsfeld bei nur geringer Reaktivität mit einfallenden Neutronen. An das eingesetzte Stickstoff-Isotop  $^{15}N$  werden dabei hohe Reinheitsanforderungen gestellt, da andere Isotope und v. a. Elemente eine Störung der stöchiometrischen Verbindung bewirken und in der Folge andere Phasen oder Verbindungen entstehen. Natürlicher Stickstoff besteht allerdings lediglich zu 0,4 % aus  $^{15}N$ . Das weit überwiegende  $^{14}N$  geht unter Bestrahlung in signifikanter Menge durch (n, p)-Reaktion in das Kohlenstoff-Isotop  $^{14}C$  über, das eine hohe biologisch-/radiologische Wirksamkeit aufweist. Die Anreicherung von  $^{15}N$  ist sehr prozessintensiv. Sie erfolgt heutzutage durch ein Zentrifugalverfahren mit nachgelagertem kryogenen  $NH_3$ -Verfahren. Auf diese Weise können Anreicherungs-niveaus von bis zu 99,9 % erreicht werden /NEA 18a/. Parallel dazu wird an einer Laserisotopentrennung für eine Herstellung von  $^{15}N$ -Isotopen im industriellen Maßstab gearbeitet.

Die Spaltgasfreisetzung bei Urannitrid-Brennstoff ist im Vergleich zu Standard-UO<sub>2</sub>-Brennstoff geringer, was im Wesentlichen durch die geringere Brennstofftemperatur bedingt ist. Bei UN-Brennstofftabletten muss auch deren höhere Quellrate beachtet, bzw. durch Einstellen der Porosität der Pellets und Festlegung der Größe des Spaltes zwischen Brennstoff und Hüllrohr berücksichtigt werden. Die wärme- und bestrahlungsbedingten Kriechraten besitzen günstigere Werte als die des Standardbrennstoffes.

Als problematisch zeigt sich die hohe Korrosionsrate von U<sup>15</sup>N bei Kontakt mit Kühlmittel und das noch nicht ausreichend untersuchte Quellverhalten des Brennstoffes unter entsprechenden Bestrahlungsbedingungen. Ebenfalls ist das technisch industrielle Verfahren, um U<sup>15</sup>N zu hochdichten monolithischen Brennstofftabletten zu pressen, noch Gegenstand aktueller Arbeiten /NEA 18a/.

Zur Vermeidung der genannten Korrosion, bzw. der Oxidation unter Unfallbedingungen wird die Ummantelung der Tabletten als eine mögliche Lösung gesehen. Als mögliche Ummantelungsmaterialien wäre eine Zr-Legierung oder eine SiC-Ummantelung denkbar. Auch wird untersucht, ob durch die Hinzugabe von U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub> als Additiv die U<sup>15</sup>N-Körner vor dem Angriff von Kühlmittel geschützt werden können (z. B. Flüssigphasen-Sintern bei ca. 1.700 °C). Den Wert der Silizidfraction für ein optimales Ergebnis ist noch Gegenstand weiterer Versuche, ebenfalls die dabei zu verwendende Sinteratmosphäre. Die verbesserte Korrosionsfestigkeit durch Zugabe des Additiven führt zu einer verringerten Urandichte und verringert die Wärmeleitfähigkeit, wobei letztere dann immer noch oberhalb der von UO<sub>2</sub> liegt.

Die Oxidation von U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub> und UN zu U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> erfolgt unter höherer Massenzunahme wie auch Volumenausdehnung im Vergleich zu der von UO<sub>2</sub>, sowohl unter Luft als auch unter Wasserdampf-Atmosphäre. Für die Staffelung der Oxidationstemperaturen unter Luft gilt die Temperatur-Reihenfolge UO<sub>2</sub> < UN < U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub> und unter Dampf-Atmosphäre UN < U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub> bei jeweils pulverförmiger Materialkonsistenz. Somit ist U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub> mit seiner höheren Oxidationstemperatur, zumindest vom Temperaturverhalten, das günstigere Material.

Die industrielle Produktion des Brennstoffs auf Basis des standardmäßigen Ausgangsmaterial  $\text{UF}_6$  ist durch ein chemisches Synthetisieren zu  $\text{U}^{15}\text{N}$ -Pulver vorgesehen. Hierbei gilt es zwingend, die notwendigen hohen Reinheitsforderungen in der Prozesskette einzuhalten. Anschließend soll das Pulver unter Verwendung von zum Teil herkömmlicher Presstechnik mit geschlossener Düse und Sintern innerhalb einer kontrollierten Atmosphäre, zu Brennstoffpellets verarbeitet werden.

Ein Vorteil des  $\text{U}^{15}\text{N}$  Brennstoff ist, dass die bestehende 5 %  $^{235}\text{U}$  Anreicherungsgrenze aufgrund der hohen Urandichte nicht verändert werden muss, um eine höhere Brennstoffdichte zu erreichen, so dass bei allen Fragen der Anreicherung, Herstellung, Transport und des Betriebseinsatzes von  $\text{U}^{15}\text{N}$  größtenteils auf bestehende Regelwerke z. B. im Hinblick auf Kritikalitätssicherheit zurückgegriffen werden kann.

Hinsichtlich der Modellierung von Nitridbrennstoff in einem Brennstabcode wurden von der französischen Kommission für alternative Energien und Atomenergie (CEA) die zugrunde liegenden Datenbankeinträge einer Version des Programmsystems METEOR/TRANSURANUS adaptiert, um Eigenschaften und Verhaltensgesetze von Nitridbrennstoff berücksichtigen zu können.

Als mögliche Einsatzpaarung Brennstoff-/Hüllrohrkombination verfolgt z. B. Westinghouse mit EnCore® /WEC 19/ u. a. eine Kombination von  $\text{U}^{15}\text{N}$ -Brennstoff /ORT 16/ mittels einer kühlmittelresistenten SiC-Ummantelung, bzw. mittels Einsatzes eines geeignet behandelten Zircaloy-Hüllrohrs. Neben Kostenschätzungen bis zur Erreichung der Marktreife wurden auch Zeitpläne für einen kompletten Übergang der Westinghouse Brennelementproduktion auf ATF-Technologie im Jahre 2032 erstellt. Nach Aussage von Westinghouse sind keine unüberwindlichen Hindernisse für die Lizenzierung der unfalltoleranten Brennstofftechnologien ATF bei der amerikanischen NRC bekannt /SCH 21/.

Das Potential von Nitrid-Brennstoffen zeigt auch eine russische Untersuchungen über dessen Gebrauchstauglichkeit in einer Uran-Plutonium-Nitrid-Konfiguration, die als Grundlage für die Brennelemente des bleigekühlten schnellen Neutronenreaktors BREST-OD-300 gilt /NEIM 20/.

### 3.2.4 TRISO-Partikel in inerter Matrix

Der TRISO-Brennstoff (*tri-struktureller isotroper Partikelbrennstoff*, TRISO) kommt ursprünglich aus dem Bereich der gasgekühlten Hochtemperatur-Reaktortechnik (*High-temperature gas-cooled reactor*, HTGR) und besteht aus kleinen Partikeln von spaltbarem Material, die mit mehreren Schichten aus porösem oder dichtem Kohlenstoff und Siliziumkarbid (SiC) beschichtet werden und so ihre eigene Schutzhülle besitzen. Diese umhüllten Partikel wurden für den Einsatz im HTGR ihrerseits in eine Graphitmatrix eingebettet. Die ersten Schritte der Herstellung eines solchen kugelförmigen Brennstoffs erfolgen, indem Uranylнитrat-Lösung mit weiteren Zusätzen mittels einer vibrierenden Düse zu Tröpfchen dispergiert und nach weiteren Prozessschritten zu Karbid (UC), Nitrid (UN), Karbonitrid U(C,N) oder Oxid (UO<sub>2</sub>) ausgehärtet werden, vgl. z. B. die Patentschrift /HEI 79/. Durch die Verwendung von UC oder UN bzw. U(C,N) anstelle von UO<sub>2</sub> kann eine Erhöhung der Dichte um bis zu 40 % im Spaltstoffbereich der Partikel erreicht werden.

Diese Art der Brennstoffkonfigurierung soll für den Einsatz im Leichtwasserreaktoren einsetzbar gemacht werden. Dies soll mittels des TRISO-SiC-Komposit-Konzeptes, d. h. der Einbettung von TRISO-Partikeln in eine SiC-Matrix und diese wiederum von einer Metall- oder Keramikverkleidung umgeben, an die Notwendigkeiten hinsichtlich der LWR Betriebsbedingungen, Form- und Umgebungsstabilität angepasst werden. Dieses Konzept wird auch als vollkeramischer mikroverkapselter Brennstoff (*Fully ceramic microencapsulated*, FCM) bezeichnet. Die Vorteile dieser Technik werden durch einen effektiven Einschluss von gasförmigen Spaltprodukten durch die Mehrfachummantelung, einer hohen mechanischen und chemischen Stabilität des Konstruktes auch im Hochtemperaturbereich und eine gute Wärmeleitfähigkeit gesehen. Die nach wie vor größte Herausforderung ist die niedrige Beladungsdichte mit spaltbarem Material, bzw. die sich daraus ergebenden Randbedingungen. Hierzu wird an mehreren Variationsparametern, z. B. der Verwendung einer höheren Urananreicherung bis hin zu 20 %, hohe Packungsanteile von TRISO-Partikeln in der Brennstoffmatrix, große Korn-zu-Partikel-Volumenverhältnisse und Körner höherer Dichte, bis hin zu einer Vergrößerung des Brennstabdurchmessers an sich geforscht.

Insgesamt wird diese Art als ein vielversprechendes mittelfristiges Brennstoffkonzept bezeichnet, wobei die für die Einsatzreife neutronische und thermohydraulische Kompatibilität noch verifiziert werden müssen. Speziell in USA und Korea werden hierzu umfangreiche Forschungs- und Testanstrengungen unternommen, um langfristig die Marktreife

zu erreichen. Für den Einsatz von TRISO-SiC Brennelementen in dem ursprünglichen koreanischen Standardreaktor OPR-1000 /LEE 13/ sind erste Randbedingungen bekannt. Hierzu gehören die Verwendung von Urankarbonitrid U(C,N) bei einer erhöhten Anreicherung von ca. 15%  $^{235}\text{U}$ , ein grösserer Brennstabdurchmesser und eine geringere Hüllrohrdicke. Um dies zu erreichen, wird hier anstelle von Zirkonium-Legierungen das FeCrAl als Hüllrohrmaterial vorgesehen.

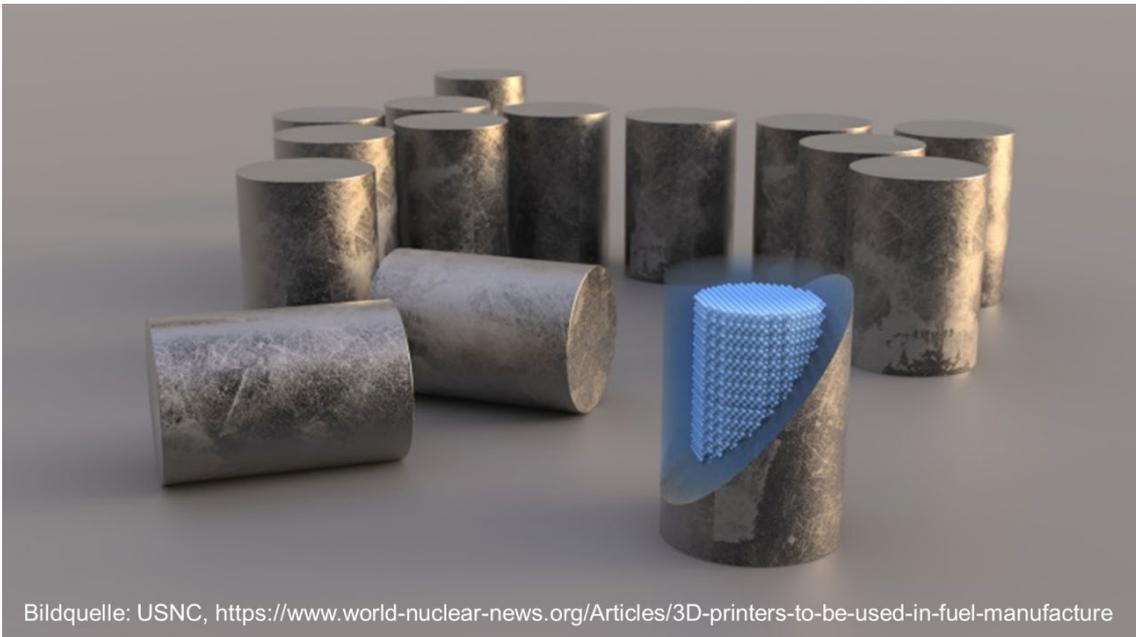
Für die Produktion von U(C,N)-Körnern kann auf eine bereits bestehende Methodik zurückgegriffen werden, indem nur der letzte Produktionsschritt als karbothermische Reduktion, um das Zweiphasengenisch in U(C,N) umzuwandeln, ergänzt wird. Die nackten Brennstoffpartikel werden anschließend durch chemische Dampfablagerung (*Chemical Vapor Deposition*, CVD) im Fließbettverfahren mit den verschiedenen Beschichtungen belegt, um die finalen TRISO-Brennstoffpartikel zu erhalten. Im darauffolgenden Produktionsschritt werden diese in eine dichte SiC-Matrix eingekapselt und mit einem Überzug aus SiC mit besonderen Oxidadditiven ergänzt, um den FCM-Brennstoff zu erhalten.

In China wird eine eigene Technologie entwickelt, um ein spezielles Pellet, das sog. Inerte Matrix Dispersions-Pellet (*Inert matrix dispersion pellets*, IMDP) als Mischung aus TRISO und inerten Materialien herzustellen. Somit besteht das IMDP aus einer Brennstoffzone und einer Nicht-Brennstoff-Pufferschicht an der Oberfläche.

Zur Überprüfung des Betriebsverhaltens wurden in den USA im Rahmen der *Advanced Fuels Campaign* (AFC) am *High Flux Isotope Reactor* (HFIR) des *Oak Ridge National Laboratory* (ORNL) erste Bestrahlungstests von FCM-Brennstoff mit Ersatz-TRISO-Partikeln in einer SiC-Matrix durchgeführt /SNE 14/. Insgesamt wurden dabei keine größeren Probleme erkannt. Besonders das Quellverhalten der SiC-Matrix war wesentlich geringer als bei  $\text{UO}_2$ . Wie erwartet verschlechterte sich zwar die Wärmeleitfähigkeit von SiC unter Neutronenbestrahlung bis zu einer unteren Sättigungsgrenze, besitzt aber im Vergleich zu  $\text{UO}_2$ -Brennstoff noch höhere Werte.

Noch nicht abschließend geklärt ist das Problem der Korrosion des Brennstoffes in LWR-Kühlmittelumgebung und die sich daraus bedingenden Anforderungen an das den Brennstoff umgebende Hüllrohr. Aktuell wird jedoch vom Einsatz von FeCrAl-Hüllrohren beim koreanischen OPR-1000 ausgegangen, bzw. werden Betrachtungen des Verhaltens bei möglichen Unfallszenarien, zur Absicherung des weiteren Vorgehens, vorangetrieben.

Eine besondere Neuentwicklung ist die geplante mittels 3D-Drucker unterstützte Herstellung von vollkeramischen mikroverkapselten FCM-Kernbrennstoff durch den Hersteller *Ultra Safe Nuclear Corporation (USNC)* [WNN 22]. Der Aufbau von TRISO-Kernbrennstoff soll hierbei durch die lagenweise Einbringung der TRISO-Brennstoffpartikel mittels 3D-Drucktechnik in die aufzubauende Siliziumkarbidmatrix erfolgen.



Bildquelle: USNC, <https://www.world-nuclear-news.org/Articles/3D-printers-to-be-used-in-fuel-manufacture>

**Abb. 3.7** FCM-Kernbrennstoff des Herstellers USNC nach [WNN 22/

Anfang 2022 erhielt die USNC die Lizenz für ein solches 3D-Druckverfahren zur Herstellung feuerfester Keramikkarbide in Kombination mit einer chemischen Dampfinfiltration. Geplant ist der Einsatz dieser Brennstoffe jedoch nicht in LWR, sondern in dem *Modular Micro Reactor (MMR)* Design der USNC.

Der Prozess benötigt nach Herstellerangaben in dieser Form weder die sonst üblichen hohen Temperaturen zur Verbindung der Materialien noch die entsprechenden Methoden zur Verarbeitung technischer Keramik. Die Herstellung des Materials erfolgt durch Drucken, direkt aus digitalen Designdateien, ohne der Notwendigkeit zur Herstellung von Form-Werkzeugen und ermöglicht so eine schnelle Iteration von Design bis hin zur Erstellung einzigartiger Geometrien. Erste Bestrahlungstests sollen am NRG in Petten, Niederlande, durchgeführt werden. Nähere Informationen liegen derzeit nicht vor.

## 4 Implementierung ausgewählter ATF in TESPА-ROD

Der von der GRS entwickelte und gepflegte Störfallsimulationscode TESPА-ROD wurde im Verlauf des Vorhabens RS1577 um ausgewählte ATF (*Accident-Tolerant Fuels* / Störfallresistente Brennstoffe) erweitert und damit zukunftsfähig gemacht, da davon auszugehen ist, dass diese künftig international eine immer größere Rolle in der Kerntechnik spielen werden. Am weitesten entwickelt sind derzeit Chrom-beschichtete, Zircaloy-basierte Hüllrohre sowie Hüllrohre aus ferritischen Eisen-Chrom-Aluminium-Stählen (FeCrAl). Deshalb wird deren Implementierung in TESPА-ROD bevorzugt durchgeführt, und im Folgenden beschrieben. Die verwendeten physikalischen Größen werden dabei mit den Variablen bezeichnet, die jeweils dafür im Quellcode von TESPА-ROD verwendet werden. Eine Auflistung aller verwendeten Variablen und Parameter sowie deren Bedeutung ist in Kap. 4.2.4 gezeigt.

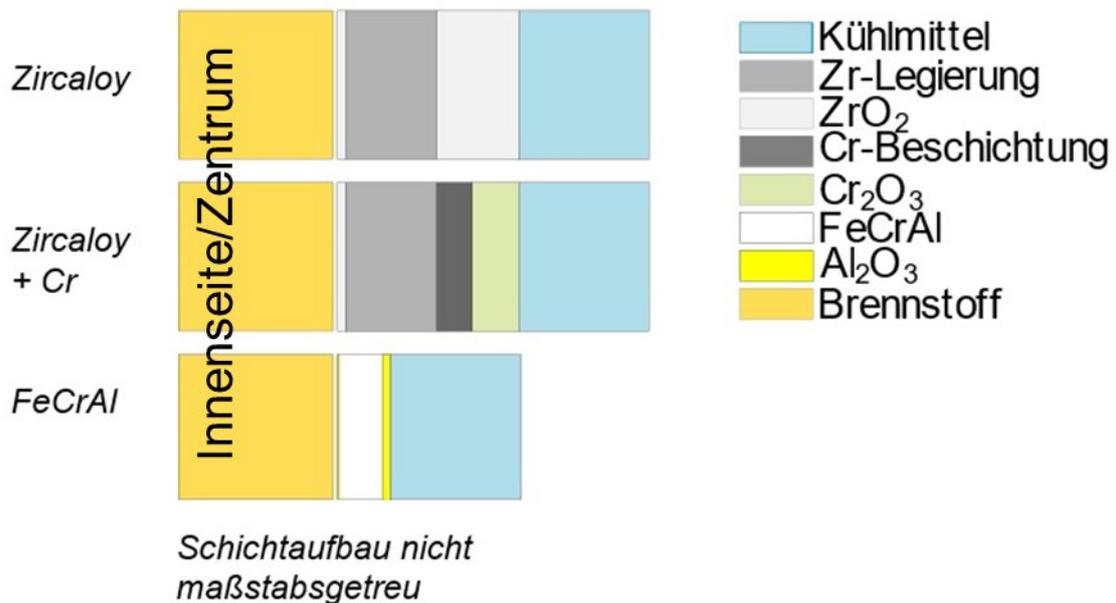
### 4.1 Code-Erweiterungen für Chrom-beschichtete Hüllrohre

Chrom-beschichtete Hüllrohre scheinen diejenigen ATF zu sein, die am frühesten marktreife erreichen werden. Sie verbinden das gut erforschte und verstandene System der Zircaloy-Hüllrohre mit den gegenüber Zirkonium vorteilhafteren oxidativen Eigenschaften des Chroms. Da die Beschichtung nur einige wenige Mikrometer Dicke aufweist, wird davon ausgegangen, dass sie die mechanischen Eigenschaften des Trägermaterials nicht verändert. Aus diesem Grund musste in dem Fall der beschichteten Hüllrohre weniger tief in den bestehenden Code eingegriffen werden, wie dies ein Material mit anderen mechanischen Eigenschaften erfordert, und in Kap. 4.2 für FeCrAl beschrieben ist.

Dennoch treten auch hier Besonderheiten im Vergleich zu einem Zircaloy-Hüllrohr auf, welche beachtet werden müssen. So passiert der Wärmestrom auf seinem Weg vom Pellet zur Hüllrohraußenseite mehr Schichten (Chrom Cr und Chromoxid  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ) als bisher, welche wiederum mit ihrer stoffspezifischen Wärmeleitfähigkeit beschrieben werden müssen. Der Schichtaufbau verschiedener Varianten ist als Übersicht in Abb. 4.1 grafisch dargestellt, hier zu Vergleichszwecken einschließlich FeCrAl welches in Kap. 4.2 näher beschrieben ist.

Des Weiteren kommt es im Falle eines Hüllrohrbruchs zu einer Oxidation der Hüllrohrinnenseite, welche nicht beschichtet ist. Somit muss der Code sowohl um die Oxidation des Chroms an der Außenseite erweitert als auch das bestehende Modell zur Oxidation

des Zirkoniums so eingebunden werden, dass es nur die Innenseite beschreibt. Ein Abplatzen der Beschichtung wurde in Experimenten bisher nicht beobachtet /STE 22/, weshalb an dieser Stelle nicht davon ausgegangen wird, sodass eine entsprechende Funktionalität nicht in den Code implementiert.



**Abb. 4.1** Schematischer Aufbau von Brennstäben mit Hüllrohren aus Zircaloy, Chrom-beschichtetem Zircaloy und FeCrAl

#### 4.1.1 Eingabe der Chromschichtdicke

Dem Nutzer ermöglicht es TESP-ROD, die Schichtdicke der aufgetragenen Chrombeschichtung anzugeben. Standardmäßig ist hier ein Wert von 25 µm voreingestellt. Obwohl eine Schichtdicke von bis zu 25 µm die mechanischen Eigenschaften nicht verändert, verarbeitet TESP-ROD die Dicke dennoch bei anderen Modellen wie etwa bei der Wärmeleitung. Eine Eingabe von über 25 µm ist zu Testzwecken technisch möglich, obwohl hierfür keine mechanischen Modelle integriert wurden. Dies sollte in der Praxis nach heutigem Ermessen auch nicht vorkommen, da moderne Beschichtungsmethoden deutlich unter 25 µm bleiben /NEA 18b/. Sobald die Daten einsatzreifer Chrombeschichteter Hüllrohre bekannt werden, wird der Standardwert an diese Vorgaben angepasst werden, und zusätzlich eine Warnmeldung bei willkürlichem Überschreiten der 25 µm Grenze ausgegeben.

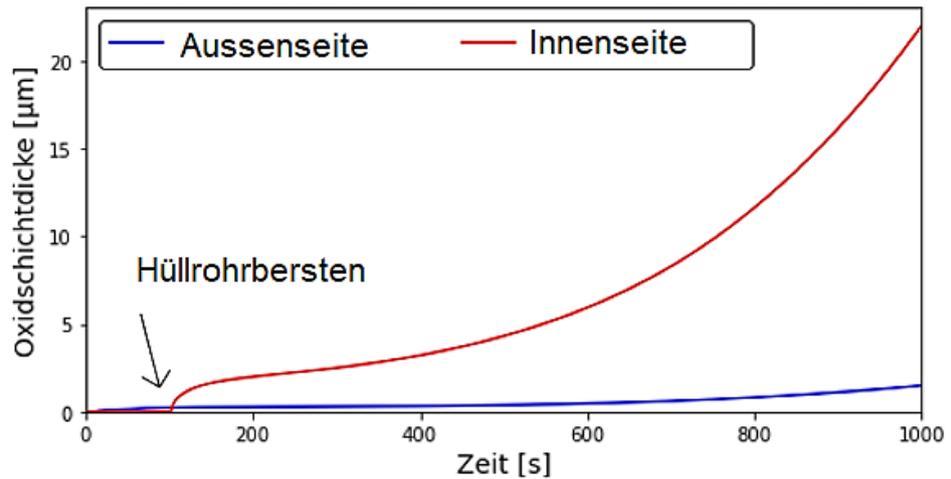
#### 4.1.2 Oxidationsverhalten von Chrom-beschichteten Zirkoniumhüllrohren

Obwohl ein Abplatzen einer Chrom-Beschichtung von einem Zircaloy-basierten Hüllrohr, wie in Kap. 4.1 besprochen, derzeit nicht betrachtet wird /STE 22/, muss der Code dennoch zwei verschiedene Oxidationsmodelle verarbeiten: Ein neu implementiertes Modell fokussiert sich auf die dem Kühlmittel zugewandte Außenseite des Hüllrohrs, welche durch Chrom geschützt und dadurch die Oxidation von Chrom zu Chrom(III)-oxid ( $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ) zum Gegenstand hat. Kommt es zu einem Hüllrohrbruch, so wird an der Hüllrohrinnenseite spontan das ungeschützte Zirkonium oxidiert, weswegen das andere, bisher vorhandene Oxidationsmodell von TESP-ROD Anwendung findet. Die entsprechenden Parameter wurden so angepasst, dass der Code zwei unterschiedliche Oxidationsprozesse simulieren kann.

Hierbei ist zu beachten, dass das Oxidationsmodell von Chrom derzeit nur in einer vereinfachten Weise implementiert ist. Die Oxidation von Chrom ist nach Angaben von /WAG 18/ 15-20-mal geringer als die von Zirkonium. Aus diesem Grund wurde das bisher vorhandene Modell mit 1/15 multipliziert, um so einen ungefähren Wert zu erhalten. Eine verbesserte Datenlage kann es künftig ermöglichen, ein besser angepasstes Modell zu erarbeiten. Die Reaktionswärme der Oxidation wurde an  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  angepasst und entspricht damit ca 7,432 kJ/kg. Ebenfalls wurden Variablen für die Dichte von  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ , die Dichte von Chrom und der Massenanteil von Sauerstoff in  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  eingefügt.

In Abb. 4.2 ist die berechnete Oxidschichtdicke während eines unterstellten Kühlmittelverlust-Störfalls (KMV) dargestellt. Es wird von abfallender Wärmeleistung und Kühlmitteldruck, sowie ein postulierter Kühlmittel-Temperaturanstieg von 400 °C (673 K) mit linearer Aufheizrate von 0,4 K/s ausgegangen. Die Berechnung erfolgte für ein generisches Chrom-beschichtetes Zircaloy-Hüllrohr mit 25 µm Chrombeschichtung.

Hierbei lässt sich die stark verringerte Oxidation der Chrom-geschützten Hüllrohräußenseite (blau) erkennen. Etwa 100 s nach Einsetzen des KMV, im Diagramm gekennzeichnet durch einen Pfeil, kommt es zum Hüllrohrbersten, wonach dann auch die ungeschützte Innenseite oxidiert wird (rot). Man erkennt die deutlich geringere Oxidschichtdicke des  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  (blau) im Vergleich zu  $\text{ZrO}_2$  (rot).



**Abb. 4.2** Oxidschichtdicke eines chrombeschichteten Zircaloy-Hüllrohrs bei postuliertem KMV mit Hüllrohrbersten

#### 4.1.3 Physikalische Eigenschaften der Chrombeschichtung

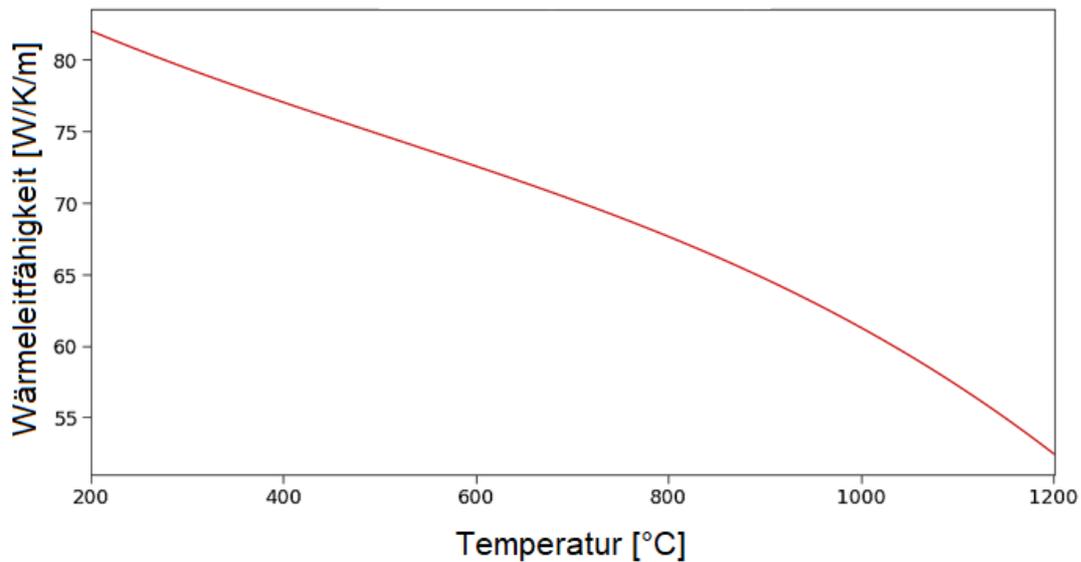
##### 4.1.3.1 Wärmeleitfähigkeit

Die Wärmeleitfähigkeit  $wlf$  von Chrom wird – wie in Gleichung (4.1) beschrieben – berechnet /WAG 18/. Der Verlauf dieser Gleichung ist in Abb. 4.3 grafisch dargestellt. Wie zu erwarten, nimmt die Wärmeleitfähigkeit mit der Temperatur  $TinK$  ab.

$$wlf = -2,07 * 10^{-8} * TinK^3 + 4,85 * 10^{-5} * TinK^2 - 0,06 * TinK + 101,75 \quad (4.1)$$

$wlf$  = Wärmeleitfähigkeit in W / (K×m)

$TinK$  = Temperatur in Kelvin



**Abb. 4.3** Grafische Darstellung der Wärmeleitfähigkeit der Chrombeschichtung in Abhängigkeit der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.200 °C (1.473 K)

Für die Berechnung der Wärmeleitfähigkeit von  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  konnte in der Literatur bisher keine temperaturabhängige Beschreibung gefunden werden, weswegen der von Groc et al. verwendete Wert von  $3,86 \text{ W}/(\text{K} \times \text{m})$  als Konstante verwendet wurde /GRO 96/.

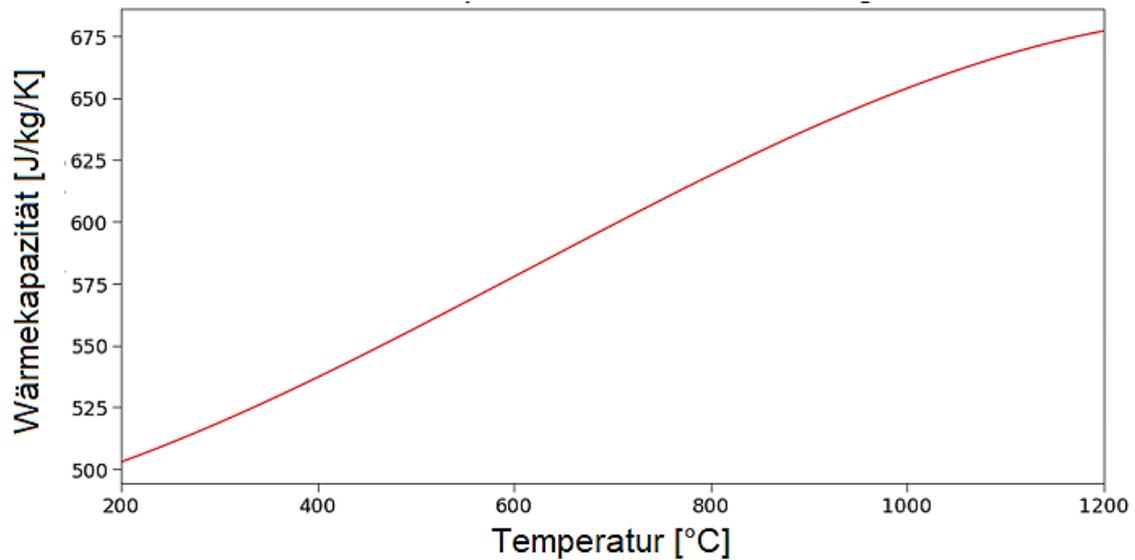
#### 4.1.3.2 Spezifische Wärmekapazität

Der TESP-ROD Code wurde um die spezifische Wärmekapazität von Chrom und Chromoxid  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  erweitert. Die spezifische Wärmekapazität  $C_p$  wird wie durch Gleichung (4.2) beschrieben berechnet /WAG 18/. Die spezifische Wärmekapazität in Abhängigkeit von der Temperatur  $T_{inK}$  ist in Abb. 4.4 dargestellt.

$$C_p = -1,28 * 10^{-7} * T_{inK}^3 + 3,39 * 10^{-4} * T_{inK}^2 - 0,09 * T_{inK} + 483,2 \quad (4.2)$$

$C_p$  = spezifische Wärmekapazität in  $\text{J}/(\text{kg} \times \text{K})$

$T_{inK}$  = Temperatur in K

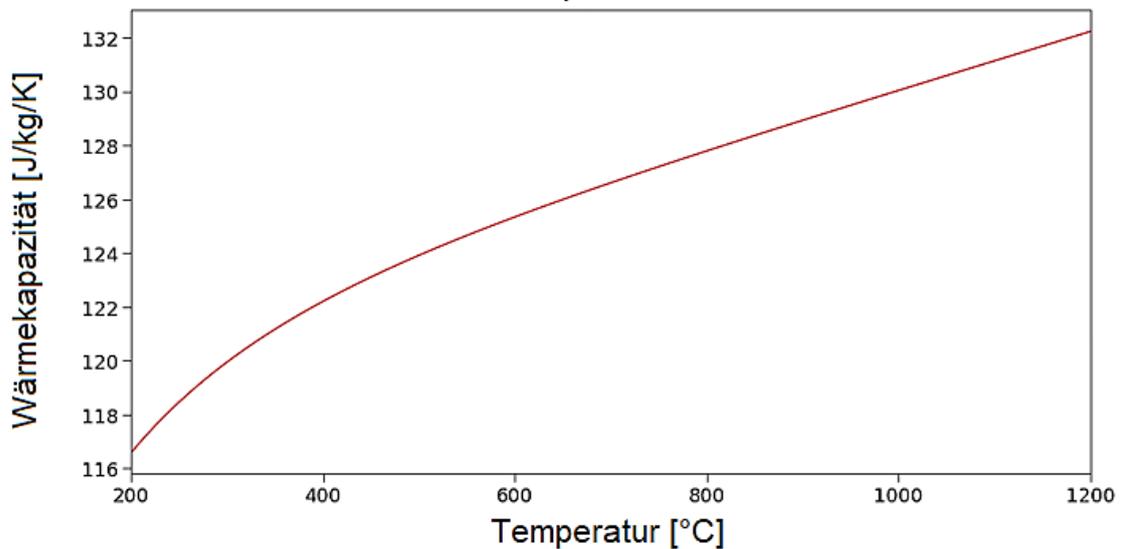


**Abb. 4.4** Spezifische Wärmekapazität von Chrom in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.200 °C (1.473 K)

Die spezifische Wärmekapazität  $C_p$  von  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  wird nach Gleichung (4.3) berechnet /CHA 98/. Für die Berechnung wird die Temperatur  $T_{inKCr2O3}$  in K/1000 verwendet. Der temperaturabhängige Verlauf der spezifischen Wärmekapazität ist in Abb. 4.5 dargestellt.

$$C_p = 124,655 - 0,337045 * T_{inKCr2O3} + 5,70501 * T_{inKCr2O3}^2 - 1,05347 * T_{inKCr2O3}^3 - 2,030501/T_{inKCr2O3}^2 \quad (4.3)$$

$C_p$  = spezifische Wärmekapazität in J/(kg × K)  
 $T_{inKCr2O3}$  = Temperatur in K / 1000



**Abb. 4.5** Spezifische Wärmekapazität von Chromoxid in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.200 °C (1.473 K)

#### 4.2 Code-Erweiterungen für ferritische Stähle (FeCrAl)

Der bestehende TESP-ROD Code wurde um Stoffdaten erweitert und entsprechend überarbeitet. Der bisherige Code war auf die Verwendung von sechs verschiedenen Hüllrohrtypen basierend auf Zirkonium ausgelegt. Nun wurde zusätzlich eine Funktionalität eingeführt, die eine schnelle und einfache Erweiterung um weitere Hüllrohrtypen/Hüllrohrmaterialien ermöglicht. Bei den neu implementierten Modellen handelt es sich primär um Modelle, die das FeCrAl-Material C35M /YAM 14/, /YAM 15/ betreffen, da zu diesem Material bereits viele Untersuchungen durchgeführt wurden was zu einer vergleichsweise guten Datenlage führt. Dennoch musste teilweise auf Daten des Materials Sandvik Kanthal® APMT /SAN 21/, einem kommerziellen ferritischen Stahl, zurückgegriffen werden welcher als Werkstoff für Temperaturen von bis zu 1.250 °C (1.523 K) eingesetzt wird, wenn diese Daten nicht für C35M verfügbar waren. Die in den folgenden auftretenden Gleichungen beinhalten Variablen, die unter denselben Bezeichnungen im TESP-ROD Code vorkommen. Diese werden anschließend erläutert.

#### 4.2.1 Mechanische Modelle für FeCrAl

Die mechanischen Modelle, die in TESPА-ROD verwendet werden und die im Falle eines neuen Hüllrohrmaterials angepasst werden müssen, erfordern folgende Daten:

- die Poissonzahl
- das Elastizitätsmodul
- das Kriechverhalten
- die Berstkriterien
- die Wärmedehnung

##### 4.2.1.1 Poissonzahl

Die Poissonzahl für Zircaloy-artige Materialien ist in TESPА-ROD ein temperaturunabhängiger Skalar. Im Falle des FeCrAl wurde eine temperaturabhängige Variable eingeführt, die die Poissonzahl  $n_y$  für C35M, wie in Gleichung (4.4) beschrieben und allgemein für ferritische Stähle angibt, siehe Gleichung (4.5) /GAM 17/. Der berechnete Wert ist abhängig von der Temperatur  $THA$ .

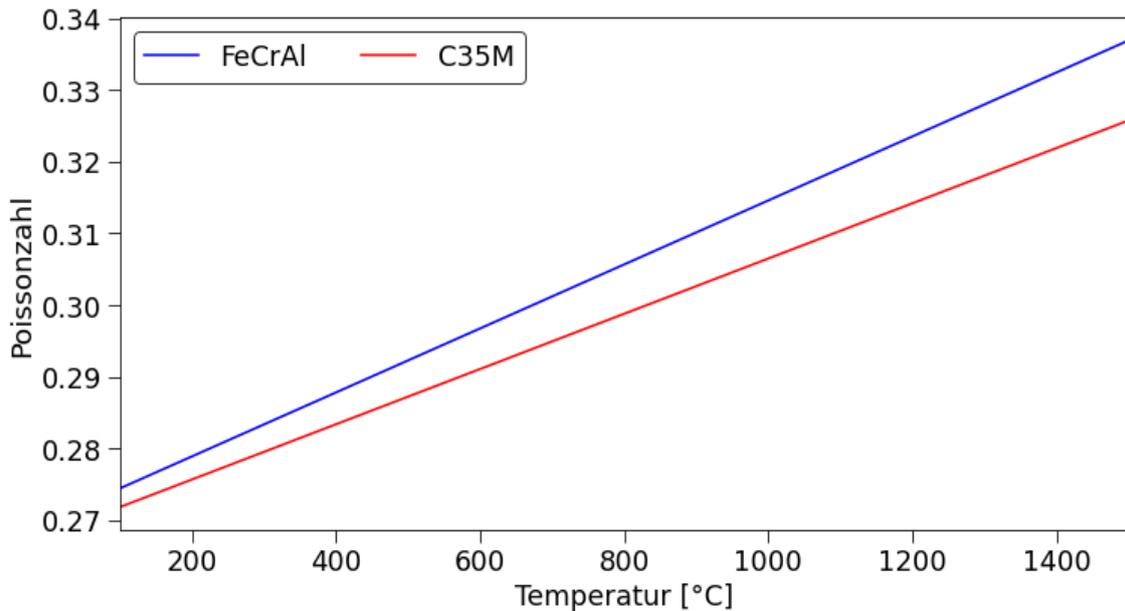
$$n_y = 3,85 * 10^{-5} * (THA - 273,15) + 0,268 \quad (4.4)$$

Falls es sich bei dem zu betrachtenden FeCrAl-Hüllrohrmaterial nicht explizit um C35M sondern um ein anderes FeCrAl-Material handelt, wurde die allgemeine Poissonzahl  $n_y$ , wie sie im *Handbook on the Material Properties of FeCrAl Alloys for Nuclear Power Production Applications* /FIE 18/ beschrieben ist, implementiert. Der Wert ist abhängig von der Temperatur  $THA$  und wird hier gemäß Gleichung (4.5) berechnet.

$$n_y = 4,46 * 10^{-5} * (THA - 273,15) + 0,27 \quad (4.5)$$

$n_y$  = Poissonzahl  
 $THA$  = Temperatur Hüllrohr in K

Zur visuellen Verdeutlichung der Funktionen wurden diese für einen Temperaturbereich von 100 °C (373 K) bis 1.500 °C (1.773 K) in Abb. 4.6 grafisch dargestellt. Es handelt sich in beiden Fällen um eine lineare Funktion, die mit der Temperatur ansteigt.



**Abb. 4.6** Poissonzahl für C35M und andere FeCrAl-Materialien in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 100 °C (373 K) bis 1.500 °C (1.773 K)

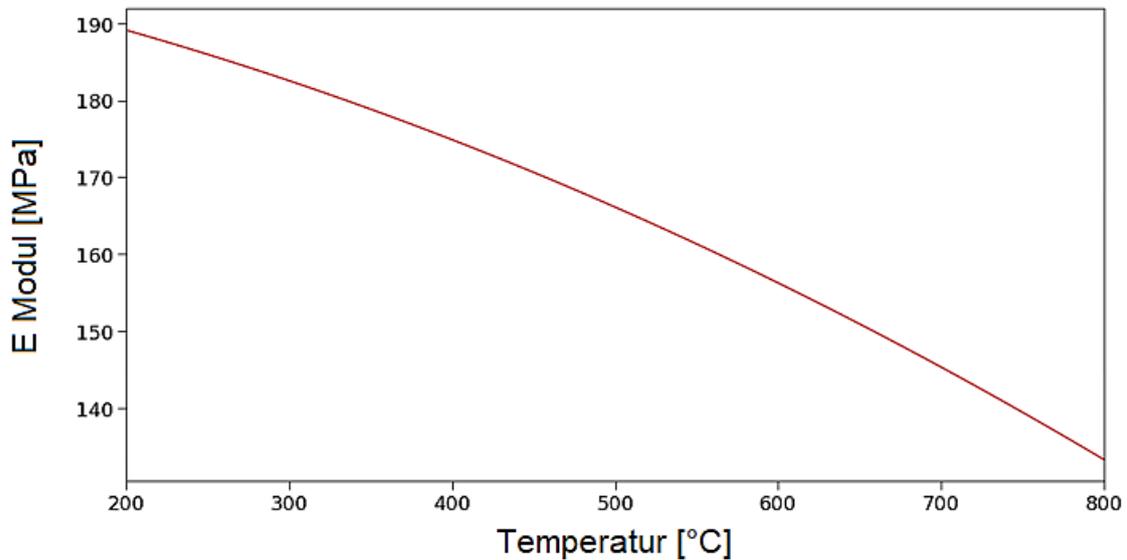
Blau: generisches FeCrAl (nach /FIE 18/, s. o.); rot: C35M

#### 4.2.1.2 Elastizitätsmodul

Der Elastizitätsmodul *E<sub>modul</sub>* von FeCrAl wird gemäß Gleichung (4.6) berechnet /FIE 18/. Da es sich bei dem hierbei ausgegebenen Wert um die Einheit GPa handelt, TESPAS-ROD jedoch eine Eingabe in Pa voraussetzt, wird die Funktion mit  $10^9$  multipliziert, dem Faktor zur Umrechnung von GPa zu Pa. Als Eingabeparameter wird die Hüllrohräußentemperatur *TH2* in Kelvin benötigt, die praktisch der Kühlmitteltemperatur entspricht. Bei der Gleichung handelt es sich um eine abfallende Funktion, die sich annähernd linear verhält, siehe Abb. 4.7.

$$E_{\text{modul}} = (-5,46 * 10^{-5} * (TH2 - 273,15)^2 - 3,85 * 10^{-2} * (TH2 - 273,15) + 199) * 10^9 \quad (4.6)$$

*E<sub>modul</sub>* = E-Modul in Pa  
*TH2* = Temperatur in Kelvin



**Abb. 4.7** Elastizitätsmodul von FeCrAl im Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 800 °C (1.073 K)

#### 4.2.1.3 Kriechverhalten

Bei einer konstanten Last neigen FeCrAl-Materialien zu einer plastischen Verformung (Kriechen). Dieser Vorgang kann mathematisch beschrieben werden, jedoch ist hierbei eine Einteilung notwendig. Zum einen wird zwischen normalem Kriechen  $dedt$  und strahlungsindiziertem Kriechen  $dedtIrr$  wie in Gleichung (4.7) /GAM 17/ unterschieden. Entsprechend wie von Gamble et al. /GAM 17/ beschrieben, wurde die Gleichung (4.8) für einen Temperaturbereich von  $\leq 600$  °C verwendet, und oberhalb dieser Temperatur die Gleichung (4.9) /SAU 97/. Als weitere Eingabeparameter werden die Spannung  $SIG$  durch Gas- und Festkörperdruck am Hüllrohr (Umgangsspannung) in Pa und der schnelle Neutronenfluss  $NfluxFast$  benötigt.

$$dedtIrr = 4,5 * 10^{-31} * \left( \frac{SIG}{1000000} \right) * NfluxFast \quad (4.7)$$

$$dedt = 2,89 * 10^{-36} * SIG^{5,5} * e^{-29709/Tinp}, \quad T \leq 600 \text{ °C} \quad (4.8)$$

$$dedt = 5,96 * 10^{-27} * SIG^{5,5} * e^{-47136/Tinp}, \quad T > 600 \text{ °C} \quad (4.9)$$

$d_{edtIrr}$ =	Kriechrate des strahlungsinduzierten Kriechens in 1/s
$d_{edt}$ =	Kriechrate in 1/s
$SIG$ =	Spannung in Pa
$N_{fluxFast}$ =	Schneller Neutronenfluss in Neutronen/(m <sup>2</sup> × s)
$T_{inp}$ =	Temperatur in Kelvin

#### 4.2.1.4 Berstkriterien

Die Berstkriterien für FeCrAl können nicht von Zircaloy übernommen werden, und müssen deshalb in TESPА-ROD neu definiert werden. Es wurde ein Vorschlag von Gamble et al. /GAM 17/ verwendet, welcher die Zugfestigkeit (*Ultimate Tensile Strength*) als Berstkriterium  $SG\_Bruch$  für eine Temperatur  $TH2$  von unter 523,8 °C (796,8 K) verwendet. Oberhalb dieser Temperatur wird die Exponentialfunktion in Gleichung (4.13) dargestellt. Dieser Ansatz wurde um den Schmelzpunkt von C35M (1.500 °C/1.773 K) erweitert /PAS 17/. Bei dieser Temperatur hat das Material keinerlei Integrität mehr, weswegen der Wert hier auf Null gesetzt wird. Die verwendeten Gleichungen ((4.10), (4.11), (4.12), (4.13)) werden jeweils mit 10<sup>6</sup> multipliziert, um die Einheit Pascal anstelle von Megapascal zu erhalten. In Abb. 4.8 ist der Verlauf der Zugfestigkeit in MPa in Abhängigkeit der Temperatur gezeigt. Der Knick bei etwa 527 °C (800 K) zeigt den Übergang von der Zugfestigkeit zur Exponentialfunktion an.

Temperatur ≤ 278 °C (551 K)

$$SG\_Bruch = (-0,52157 * TH2 + 598,78) * 1000000 \quad (4.10)$$

Temperatur ≤ 371 °C (644 K)

$$SG\_Bruch = (-0,17204 * TH2 + 637,79) * 1000000 \quad (4.11)$$

Temperatur ≤ 523,8 °C (796,8 K)

$$SG\_Bruch = (-1,27957 * TH2 + 1318,33) * 1000000 \quad (4.12)$$

Temperatur < 1.500 °C (1.773 K)

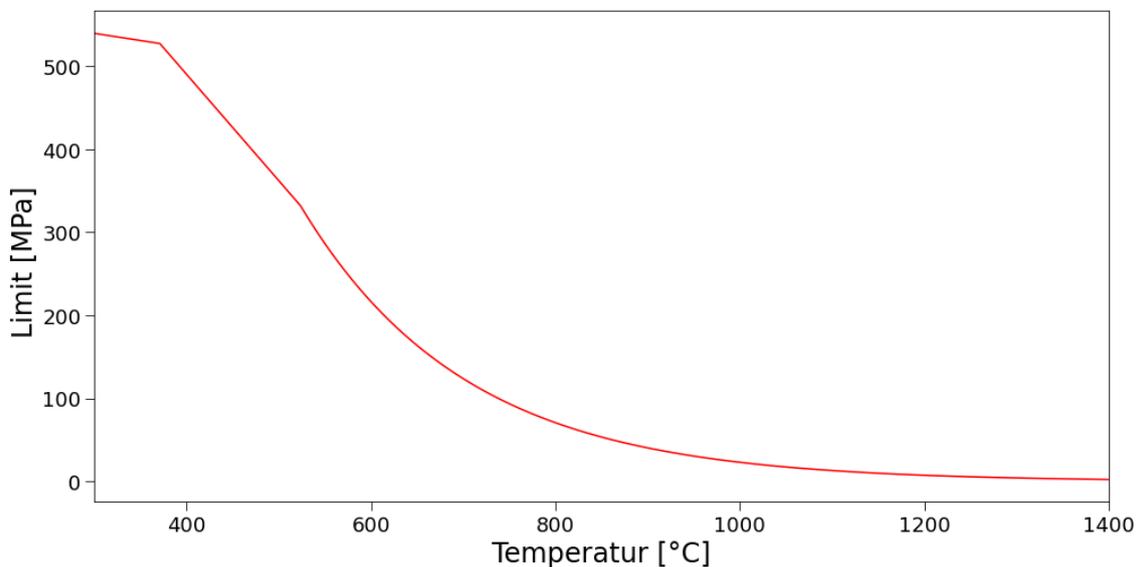
$$SG\_Bruch = (28440,98 * e^{-0,005588*TH2}) * 1000000 \quad (4.13)$$

Temperatur ≥ 1.500 °C (1.773 K)

$$SG\_Bruch = 0 \quad (4.14)$$

$SG\_Bruch =$  Zugfestigkeit in Pa

$TH2 =$  Temperatur in Kelvin



**Abb. 4.8** In TESPА-ROD implementierter temperaturabhängiger Verlauf der Zugfestigkeit von C35M für einen Temperaturbereich von 300 °C (573 K) bis 1.400 °C (1.673 K)

#### 4.2.1.5 Wärmeausdehnung

Der Wärmeausdehnungskoeffizient von C35M, für einen Temperaturbereich von 27 °C (300 K) bis 1.327 °C (1.600 K), wird mit nach der Funktion aus dem *Handbook /FIE 18/* berechnet, siehe Gleichung (4.16). Für eine Temperatur unterhalb von 27 °C (300 K) wird von keiner signifikanten Wärmeausdehnung ausgegangen, weswegen sie in Gleichung (4.15) mit 0 angegeben ist. Um die tatsächliche Wärmdehnung zu erhalten, wird der Wärmeausdehnungskoeffizient  $\alpha$ , dargestellt in Abb. 4.9, mit der ursprünglichen Länge und der Temperaturdifferenz  $T - 300$  multipliziert. Da im TESPА-ROD Code die

Multiplikation mit der ursprünglichen Länge an anderer Stelle erfolgt, wird hier lediglich mit der Temperaturdifferenz multipliziert, wie in Gleichung (4.16) beschrieben.

Temperatur  $\leq 27 \text{ }^\circ\text{C}$  (300 K)

$$dl = 0 \tag{4.15}$$

Temperatur  $> 27 \text{ }^\circ\text{C}$  (300 K)

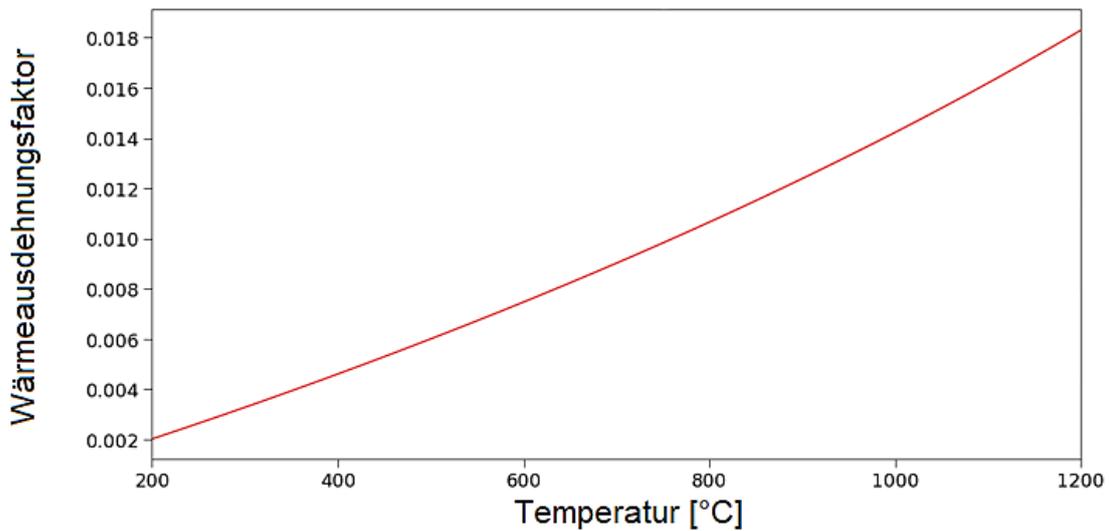
$$\alpha = (9.095 * 10^{-10} * T^3 - 17.46 * 10^{-7} * T^2 + 4.53 * 10^{-3} * T + 9.81) * 10^{-6} \tag{4.16}$$

$$dl = \alpha * (T - 300) \tag{4.17}$$

$\alpha$  = Wärmeausdehnungskoeffizient

$T$  = Temperatur in K

$dl$  = „Wärmeausdehnungsfaktor“ (wird mit der ursprünglichen Länge multipliziert)



**Abb. 4.9** Wärmeausdehnungsfaktor von C35M in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.200 °C (1.473 K)

#### 4.2.2 Oxidationsverhalten von FeCrAl-Materialien

Das bisherige Oxidationsmodell für Zirkonium kann aufgrund der unterschiedlichen elementaren Zusammensetzung nicht für FeCrAl-Hüllrohre übernommen werden. Obwohl sich das Oxidationsverhalten der beiden Materialien teils erheblich unterscheidet, können manche Modelle dennoch übernommen werden. So ist es möglich, die Vergrößerung der Angriffsfläche bei maximaler lokaler Dehnung weiterhin zu verwenden.

Da die Oxidation eines Werkstoffes mit mehreren chemischen Elementen deutlich komplexer ist als ein elementarer Werkstoff, muss an dieser Stelle ein komplexer Vorgang beschrieben werden, bei dem mehrere Systeme ineinandergreifen. Da aufgrund der Komplexität der Oxidation eine vollständige Beschreibung im Zeitrahmen dieses Vorhabens nicht möglich war, wurde an dieser Stelle zunächst auf die Oxidation des Aluminiums fokussiert, welche bei Temperaturen über 1.050 °C (1.323 K) primär auftritt und damit besonders für Störfälle interessant ist.

Die Bildung von Aluminiumoxid  $\text{Al}_2\text{O}_3$  kann durch die Verwendung der parabolischen Geschwindigkeitskonstante beschrieben werden, welche die Geschwindigkeit angibt, mit der sich ein Oxid bildet. Hierzu wird die parabolische Geschwindigkeitskonstante von Sandvik Kanthal® APMT verwendet. Diese entspricht vermutlich nicht genau der von C35M welche derzeit nicht bekannt ist, dürfte sich aber in derselben Größenordnung befinden, und wurde aufgrund der gegebenen Datenlage verwendet. Die Geschwindigkeitskonstante *pararateconst* ist in einem Bereich zwischen 1.050 °C (1.323 K) und 1.475 °C gültig und lässt sich über die Gleichung (4.18) bestimmen /FIE 18/. Da TESPA-ROD jedoch eine Schichtdicke des Oxides berechnen soll, wird anschließend durch Wurzelbildung der Geschwindigkeitskonstante der Massenzuwachs *massgain* berechnet wie in Gleichung (4.19) gezeigt. Der Massenzuwachs wiederum wird durch Dividieren durch die Dichte von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (3,95 g/cm<sup>3</sup>) zu einem Wert mit der Einheit  $\frac{m}{\sqrt{s}}$ , welcher in dieser Einheit für die weitere Verarbeitung von TESPA-ROD benötigt wird und als parabolische Schichtdicke *Dex* bezeichnet werden kann. Dies ist in Gleichung (4.20) beschrieben. Eine graphische Darstellung der parabolischen Schichtdicke *Dex* ist in Abb. 4.10 gezeigt, sie zeigt sowohl die Abhängigkeit von der Temperatur *THA*, als auch von der Zeit.

$$pararateconst = 7,84 * e^{\frac{-344000}{8,314462 * THA}} \quad (4.18)$$

$$massgain = \sqrt{pararateconst} \quad (4.19)$$

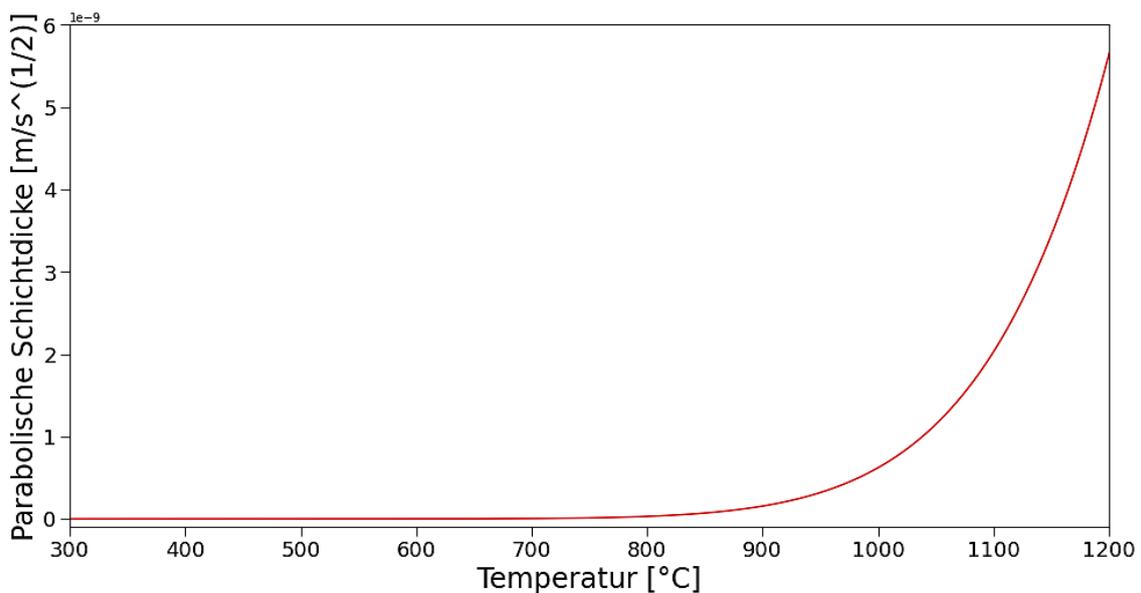
$$Dex = \frac{massgain}{3,95 * 100} \quad (4.20)$$

*pararateconst* = parabolische Geschwindigkeitskonstante in  $\frac{g^2}{cm^4s}$

*THA* = Temperatur Hüllrohr in K

*Massgain* = Massenzuwachs in  $\frac{g}{cm^2\sqrt{s}}$

*Dex* = parabolische Schichtdicke in  $\frac{m}{\sqrt{s}}$



**Abb. 4.10** Temperatur- und zeitabhängiges Wachstum des Aluminiumoxids für einen Temperaturbereich von 300 °C (573 K) bis 1.200 °C (1.473 K)

Da bei FeCrAl-Materialien nicht von einer Aufnahme von Sauerstoff und Wasserstoff ausgegangen wird, wurden die dafür vorgesehenen Modelle in TESPА-ROD für diesen Fall deaktiviert.

Da dieses Modell nur einen kleinen Teil der komplexen Oxidation von FeCrAl beschreibt und diesen auch nur jenseits von 1.050 °C (1.323 K), wird künftig ein detailliertes Modell erarbeitet, welches sowohl die Oxidation der anderen Komponenten Eisen und Chrom betrachtet als auch die betriebliche Oxidation abbildet.

### 4.2.3 Physikalische Eigenschaften von FeCrAl-Materialien

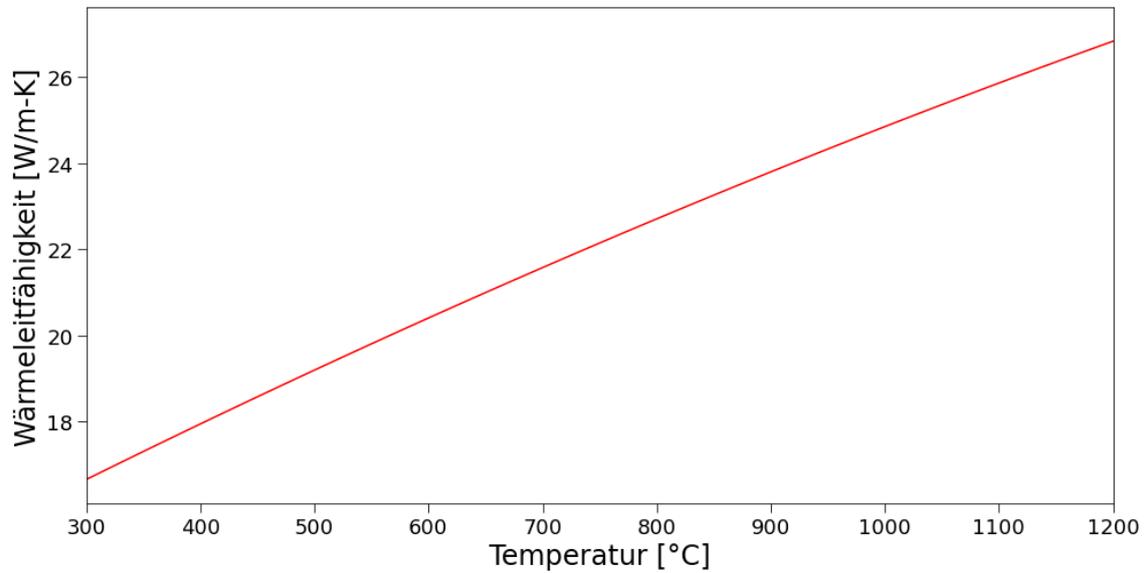
Neben den bisher diskutierten mechanischen Eigenschaften des FeCrAl-Hüllrohrmaterials benötigt TESPА-ROD weitere physikalische Größen, um das Hüllrohrverhalten möglichst genau abbilden zu können. So spielen sowohl die Wärmeleitfähigkeit als auch die spezifische Wärmekapazität eine wichtige Rolle, da sie maßgeblich zur Temperatur des Hüllrohrs beitragen. Hierbei werden auch die Oxide berücksichtigt, um die Genauigkeit der Simulation weiter zu erhöhen.

#### 4.2.3.1 Wärmeleitfähigkeit

Die Berechnung der Wärmeleitfähigkeit  $wlf$  für C35M wurde aus /FIE 18/ entnommen und ist in Gleichung (4.21) beschrieben sowie in Abb. 4.11 grafisch dargestellt. Die Wärmeleitfähigkeit für Aluminiumoxid ( $Al_2O_3$ ) wird in Abb. 4.12 gezeigt und ist in einem Bereich von 20 °C (292 K) bis 1.400 °C (1.673 K) gültig. Es handelt sich hierbei um eine eigens angefertigte Funktion, welche aus mehreren Werten /SHA 01/ zusammengesetzt wurde, wie in den Gleichungen (4.22), (4.23), (4.24) beschrieben. Da die Wärmeleitfähigkeit bei 1.200 °C (1.473 K) und 1.400 °C (1.673 K) den gleichen Wert annimmt /SHA 01/, wird die Funktion ab dieser Temperatur auf einen konstanten Wert gesetzt, wie Gleichung (4.24) zeigt. Die Eingabe der Temperatur erfolgt über die Variable  $T$  in K, bzw.  $temp$  in °C.

$$wlf = -19,86 * 10^{-7} * T^2 + 1,537 * 10^{-2} * T + 8,502 \quad (4.21)$$

$wlf$  = Wärmeleitfähigkeit Hüllrohr in  $W/(m \times K)$   
 $T$  = Temperatur in K



**Abb. 4.11** Wärmeleitfähigkeit von C35M in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 300 °C (573 K) bis 1.200 °C (1.473 K)

Temperatur > 20 °C und ≤ 1.000 °C

$$wlf = 4,29677 * 10^{-6} * temp^2 - 0,0240052 * temp + 25,5584 \quad (4.22)$$

Temperatur > 1.000 °C und ≤ 1.200 °C

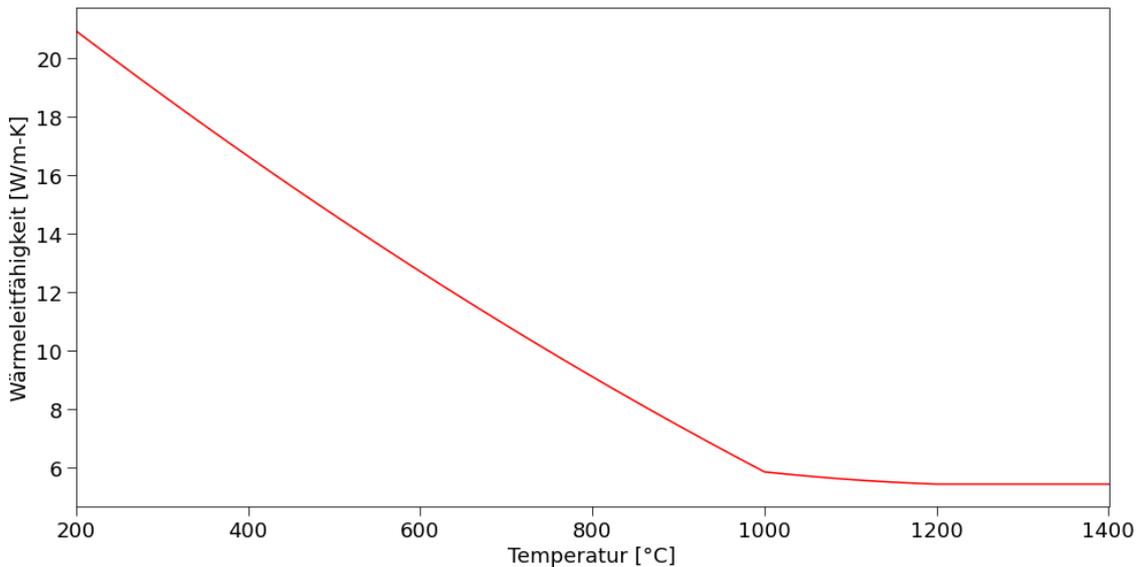
$$wlf = 5,25 * 10^{-6} * temp^2 - 0,01365 * temp + 14,25 \quad (4.23)$$

Temperatur > 1.200 °C

$$wlf = 5,43 \quad (4.24)$$

$wlf$  = Wärmeleitfähigkeit von  $Al_2O_3$  in  $W/(m \times K)$

$temp$  = Temperatur in °C



**Abb. 4.12** Wärmeleitfähigkeit von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.400 °C (1.673 K)

#### 4.2.3.2 Spezifische Wärmekapazität

Die spezifische Wärmekapazität für C35M wurde ebenfalls aus dem *Handbook /FIE 18/* entnommen. Diese spezifische Wärmekapazität ist von der Curie-Temperatur abhängig, also von der stoffspezifischen Temperatur, bei der ein Stoff seine magnetischen Eigenschaften von ferromagnetisch zu paramagnetisch wechselt, und ist deswegen in die zwei Gleichungen (4.25) und (4.26) aufgeteilt. Der Einfluss der Curie-Temperatur auf den Verlauf der Wärmekapazität ist in Abb. 4.6 dargestellt. Die temperaturabhängige spezifische Wärmekapazität  $C_p$  von Aluminiumoxid ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), welches bei der Oxidation von FeCrAl entsteht, wird anhand der Gleichung (4.27) berechnet */MCM 87/*. Der Verlauf ist in Abb. 4.14 dargestellt. Die Eingabe der Temperatur erfolgt über die Variable  $T_{inK}$  in Kelvin.

Für eine Temperatur  $\leq 597$  °C (870 K) gilt für C35M

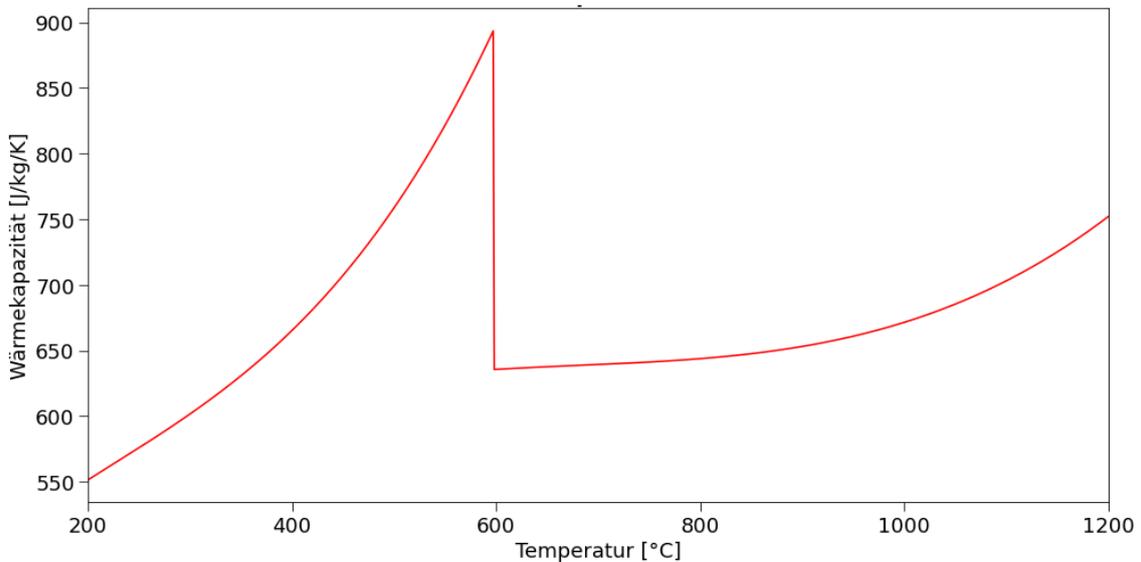
$$C_p = 2,45 * T_{inK} - 4,002 * 10^{-3} * T_{inK}^2 + 2,72 * 10^{-6} * T_{inK}^3 \quad (4.25)$$

Für eine Temperatur > 597 °C (870 K) gilt für C35M

$$C_p = 1,946 * TinK - 2,002 * 10^{-3} * TinK^2 + 0,698 * 10^{-6} * TinK^3 + \left( \frac{-1,652 * 10^3}{TinK} \right) - (53,93 * \log(TinK - 870) / 870) \quad (4.26)$$

$C_p$  = spezifische Wärmekapazität des C35M Hüllrohrs in J/(kg × K)

$TinK$  = Temperatur in Kelvin



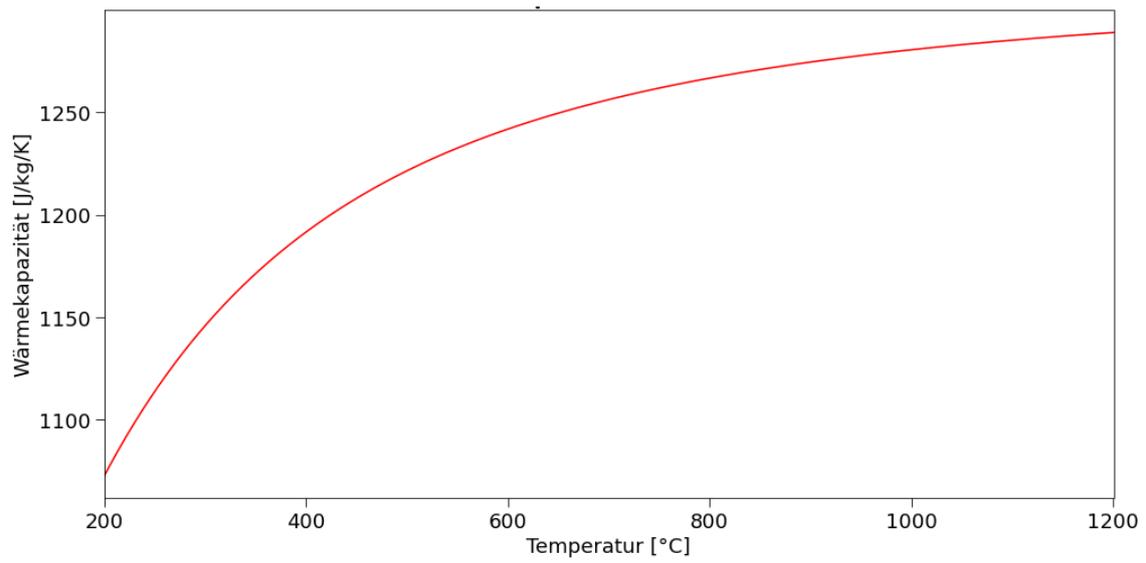
**Abb. 4.13** Spezifische Wärmekapazität von C35M in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.200 °C (1.473 K)

Über den gesamten Temperaturbereich gilt für  $Al_2O_3$

$$C_p = (133,6878 + (-2,726627 - 133,6878)/(1 + (TinK/240,1914)^{2,253278}))/0,101969 \quad (4.27)$$

$C_p$  = spezifische Wärmekapazität von  $Al_2O_3$  in J/(kg × K)

$TinK$  = Temperatur in Kelvin



**Abb. 4.14** Spezifische Wärmekapazität von Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.200 °C (1.473 K)

#### 4.2.4 Auflistung der in der Code-Erweiterung verwendeten Variablen

Im Folgenden sind die Variablen sowie deren Bedeutung aufgelistet, welche zur Berechnung der oben genannten Parameter verwendet werden.

**Tab. 4.1** Auflistung der in TESPА-ROD im Zusammenhang mit ATF verwendeten Variablen sowie deren Bedeutung

<b>Variable</b>	<b>Bedeutung</b>
<i>wlf</i>	Wärmeleitfähigkeit in W/(K × m)
<i>Cp</i>	Spezifische Wärmekapazität in J/(kg × K)
<i>TinK</i>	Temperatur in K
<i>TinKCr2O3</i>	Temperatur des Chromoxids Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> in K/ 1000
<i>ny</i>	Poissonzahl
<i>THA</i>	Temperatur im Hüllrohr in K
<i>Emodul</i>	E-Modul von FeCrAl in Pa
<i>dedtIrr</i>	Kriechrate des strahlungsinduzierten Kriechens von FeCrAl in 1/s
<i>dedt</i>	Kriechrate von FeCrAl in 1/s
<i>SIG</i>	Spannung durch Gas- und Festkörperdruck am Hüllrohr (Umgangsspannung) in Pa
<i>NfluxFast</i>	Schneller Neutronenfluss in Neutronen/(m <sup>2</sup> × s)
<i>SG_Bruch</i>	Zugfestigkeit in Pa
<i>TH2</i>	Temperatur des Hüllrohrs, Außenseite, in K
<i>Alpha</i>	Wärmeausdehnungskoeffizient in 1/K

### 4.3 Überarbeitung des Benutzerinterface von TESPА-ROD

Durch die neu implementierten Hüllrohrmaterialien wurde es notwendig, die alte Eingabemaske, die in Abb. 4.15 gezeigt ist, zu überarbeiten, da die graphische Benutzeroberfläche von TESPА-ROD rein flächenmäßig keinen komfortablen, übersichtlichen Platz für weitere Materialien mehr bot. Dies lässt sich im linken oberen Eck, der Abb. 4.15 unter den Punkten *Pellet Material* und *Cladding Material* erkennen. Die neue Eingabemaske bietet nun neben einem neuen Design, welches in Abb. 4.16 zu sehen ist, auch die Möglichkeit über eine Schnellauswahl auf der linken Seite, die neuen ATF-Materialien auszuwählen. Ein exemplarisches ausgeklapptes Schnellauswahlmenü ist in Abb. 4.17 gezeigt. Dadurch wird es dem Benutzer erleichtert schnell zwischen den verschiedenen Hüllrohrtypen zu wechseln, wodurch ein direkter Vergleich zwischen ATF und bisherigen Hüllrohrtypen vereinfacht wird. Das Schnellauswahlmenü ersetzt die bisherigen *radio buttons*, der alten Eingabemaske und zeigt nur noch den ausgewählten Brennstoff oder das ausgewählte Hüllrohrmaterial an. Dies ist exemplarisch in der Abb. 4.17 unter den Punkten *Pellet Material* und *Cladding Material* zu sehen. Desweiteren wurde bereits die Möglichkeit für eine Erweiterung der Brennstoffe berücksichtigt, da sich ATF-Konzepte häufig auch auf diese erstrecken.

Die bereits zuvor bestehende Funktionalität wurde in bedienungstechnisch veränderter Form beibehalten.

TESPA-ROD\_20.3.1.29935

Load Input File ... Plot... Model Parameter... FRAPCON... EXCEL Interface Level 1 Exit

GRS

Power Development  
 Table  
 ANS + Kinetic  
 DIN + Kinetic  
 DIN 25463 short

Pellet Material  
 UO2  
 MOX  
 Gadolinium

Cladding Material  
 Zry-2  
 Zry-4  
 M5  
 Duplex  
 Zirlo  
 E110

Phase Kinetic  
 Temperature  
 Time/Temperature  
 Corrosion Model  
 activated

Oxidation  
 Baker/Just  
 Cathcart  
 Leistikov  
 None

Operational Behaviour  
 Simplified  
 FRAPCON-3  
 FRAPCON-4  
 Evaluate

HTC to Fluid  
 internal model  
 external input

He release  
 conservative

Pellet Parameter  
 Pellet Design Outer Diameter [ ] mm  
 Pellet Design Inner Diameter [ ] mm  
 Density of Fuel [ ] kg/m<sup>3</sup>  
 Burn-up of Pellet [ ] MWd/kg  
 Pu Content of Pellet [ ] wt. %  
 Gd Content of Pellet [ ] wt. %

Cladding Parameter  
 Outer Cladding Diameter [ ] mm  
 Thickness of Cladding [ ] mm  
 Corrosion Thickness [ ] μm  
 Corrosion at Inner Side [ ] μm  
 O Content of Cladding [ ] wt. %  
 H Content of Cladding [ ] ppm  
 Roughness Cladding/Pellet [ ] μm  
 Eccentricity [ ] 0 ... 1

Power  
 Thickness of Rim [ ] μm  
 Power Shift to Pellet Rim [ ] %  
 Rod Averaged Linear Power [ ] W/cm  
 Rod Power Shape Factor [ ] -  
 Time Shift in Power Develop. [ ] s

Fuel Rod Design Parameter  
 Fuel Rod Active Length [ ] m  
 Fuel Rod Inactive Length [ ] m  
 Dishing Volume [ ] %  
 Volume of Open Pores [ ] %  
 Pressure of He at 300 K [ ] bar

Fission Gas Model  
 Rod Internal Gas Pressure [ ] bar  
 Gap Conductivity [ ] W/m<sup>2</sup>/K  
 FGR to Rod [ ] %  
 Activation Energy [ ] kJ/mol  
 Pellet Grain Size [ ] μm

Input/Output Files:  
 Basic Input File [ ] ..  
 Output Dataset [ ] ..

Input Data Files with Time Tables for:  
 Coolant Pressure [ ] .. P  
 Coolant Temp. [ ] .. P  
 HTC to Fluid [ ] .. P  
 Thermal Power [ ] .. P  
 Reactivity [ ] .. P

Time Step Control  
 Expected End of Transient [ ] s  
 Time Shift in Time Tables [ ] s  
 Max. Time Step [ ] s  
 Sampling rate for plots [ 1 ] by 1

Send Protocol to Editor Clear Protocol

Failure Criterion  
 Rod Burst  
 Ductility  
 Threshold  
 Terminate  
 rod set to burst  
 Run  
 Stop  
 Resume

Abb. 4.15 Frühere Eingabemaske von TESPA-ROD

TESPA-ROD\_20.3.1.20227

Load Input File ... Fuel Properties Plot... Model Parameter... FRAPCON... EXCEL Interface Level 1 Exit

Table  
 ANS + Kinetic  
 DIN + Kinetic  
 DIN 25463 short

Pellet Material   
 Cladding Material

Phase Kinetic  
 Temperature  
 Time/Temperature  
 Corrosion Model  
 activated

Oxidation  
 Baker/Just  
 Cathcart  
 Leistikov  
 None

Operational Behaviour  
 Simplified  FRAPCON-3  FRAPCON-4  
 Evaluate

HTC to Fluid  
 internal model  
 external input  
 He release  
 conservative

Pellet Parameter  
 Pellet Design Outer Diameter  mm  
 Pellet Design Inner Diameter  mm  
 Density of Fuel  kg/m<sup>3</sup>  
 Burn-up of Pellet  MWd/kg  
 Pu Content of Pellet  wt.%  
 Gd Content of Pellet  wt.%

Cladding Parameter  
 Outer Cladding Diameter  mm  
 Thickness of Cladding  mm  
 Corrosion Thickness  µm  
 Corrosion at Inner Side  µm  
 O Content of Cladding  wt.%  
 H Content of Cladding  ppm  
 Roughness Cladding/Pellet  µm  
 Eccentricity  0 ... 1

Fuel Rod Design Parameter  
 Fuel Rod Active Length  m  
 Fuel Rod Inactive Length  m  
 Dishing Volume  %  
 Volume of Open Pores  %  
 Pressure of He at 300 K  bar

Power  
 Thickness of Rim  µm  
 Power Shift to Pellet Rim  %  
 Rod Averaged Linear Power  W/cm  
 Rod Power Shape Factor  -  
 Time Shift in Power Develop.  s

Fission Gas Model  
 Rod Internal Gas Pressure  bar  
 Gap Conductivity  W/m<sup>2</sup>/K  
 FGR to Rod  %  
 Activation Energy  kJ/mol  
 Pellet Grain Size  µm

Time Step Control  
 Expected End of Transient  s  
 Time Shift in Time Tables  s  
 Max. Time Step  s  
 Sampling rate for plots  1 by 1

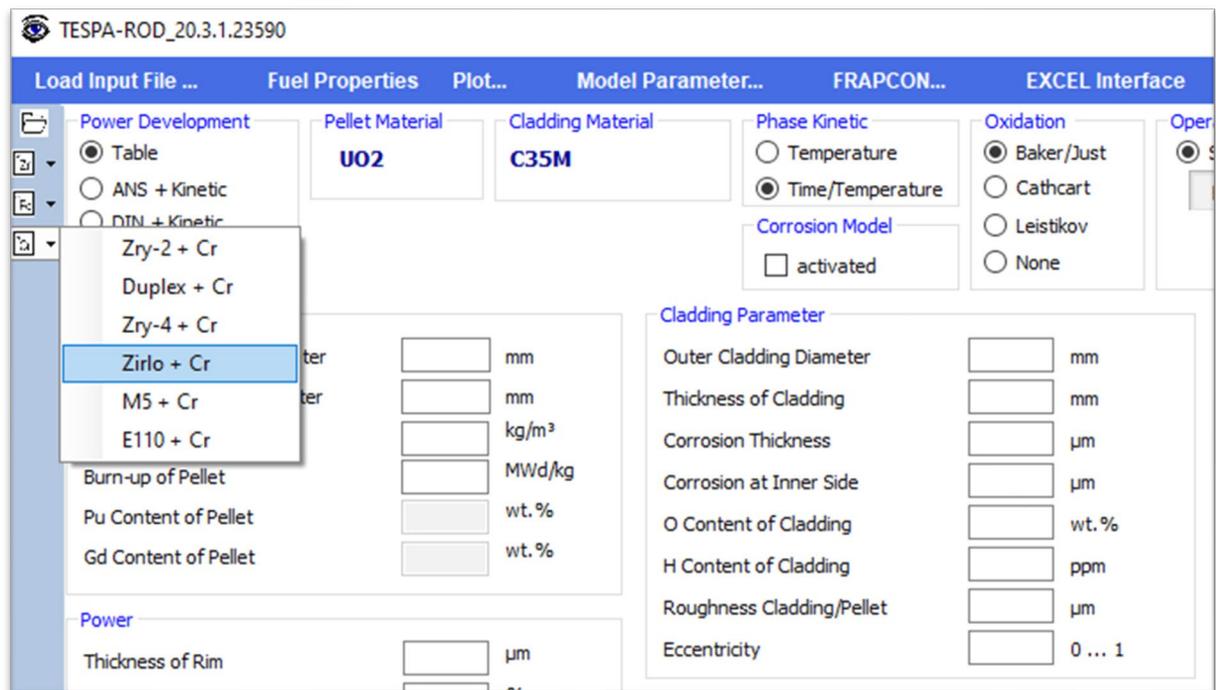
Input/Output Files:  
 Basic Input File  ..  
 Output Dataset  ..

Input Data Files with Time Tables for:  
 Coolant Pressure  .. P  
 Coolant Temp.  .. P  
 HTC to Fluid  .. P  
 Thermal Power  .. P  
 Reactivity  .. P

Failure Criterion  
 Rod Burst  
 Ductility  
 Threshold  
 Terminate  
 rod set to burst  
 Run  
 Stop  
 Resume

Send Protocol to Editor  
 Clear Protocol

Abb. 4.16 Überarbeitete Eingabemaske von TESPA-ROD



**Abb. 4.17** Schnellauswahl für ATF-Hüllrohrtypen

#### 4.4 Verifizierung des Codes

Um die eingefügten Modelle zu prüfen, wurden entsprechende Simulationen durchgeführt. Da bislang keine belastbare Datenlage zu Betrieb und zu Störfällen vorliegt, konnte im Falle der Chrombeschichtung kein geeigneter Benchmark auf Basis experimenteller Daten gefunden werden. Es wurden bestehende Zircaloy-Simulationen unter denselben Bedingungen mit Chrombeschichtung simuliert, um die Funktionsfähigkeit des Codes weiterhin zu gewährleisten. Folglich können an dieser Stelle keine belastbaren Aussagen über die Korrektheit der Ergebnisse getroffen werden. Jedoch sind die ersten Ergebnisse, wie etwa die Dicke der Oxidationsschicht, plausibel.

Im Falle des FeCrAl konnte auf den ACTOF Benchmark /IAEA 20a/ zurückgegriffen werden. In diesem wird das Verhalten eines Zry-4 Hüllrohrs über einen betrieblichen Zeitraum von vier Jahren mit einem hypothetischen Hüllrohr aus C35M verglichen. Zwischen einer An- und Abschaltzeit von drei Stunden wird eine Leistung von 25 kW/m für 35 037 h angenommen. Weitere Kenngrößen sind in Tab. 4.2 aufgelistet. Die Ergebnisse sowie der Vergleich mit den anderen Teilnehmern sind in Abb. 4.18 und Abb. 4.19 dargestellt.

**Tab. 4.2** Spezifikationen des Zry-4 und C35M Hüllrohrs des ACTOF-Benchmarks für den betrieblichen Fall nach /PAS 17/

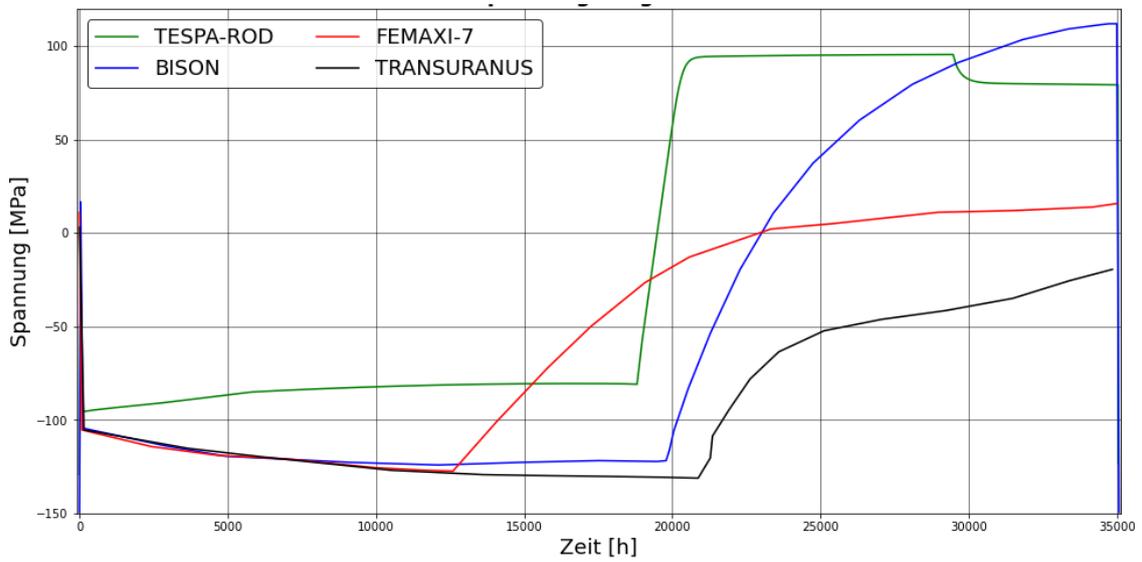
	<b>UO<sub>2</sub>/Zircaloy-4 Brennstab</b>	<b>UO<sub>2</sub>/FeCrAl Brennstab</b>
Anzahl der Brennstoffpellets	10	10
Pellethöhe (mm)	11,86	11,86
Pellet Innendurchmesser (mm)	0	0
Pellet Außendurchmesser (mm)	8,19	8,57
Anfängliche Brennstoffdichte (% der theoretischen Dichte)	95	95
Anfängliche Brennstoffdichte (kg/m <sup>3</sup> )	10431	10431
Anreicherung (% <sup>235</sup> U)	5	5
Anfänglicher Kornradius, 3D (µm)	5	5
Radiale Spaltweite (µm)	80	80
Füllgas	He	He
Anfänglicher Füllgasdruck (MPa)	2	2
Hüllrohr Innendurchmesser (mm)	8,35	8,73
Hüllrohrwandstärke (mm)	0,575	0,385
Hüllrohr Außendurchmesser (mm)	9,5	9,5
Oberes Plenum (mm)	26	26
Unteres Plenum (mm)	1	1
Freies Gesamtvolumen (cm <sup>3</sup> )	1,725	1,874
Gesamte Brennstablänge (mm)	150	150
Kühlmittel Massenstromdichte (kg/m <sup>2</sup> s)	3800	3800
Kühlmittel Einlasstemperatur (K)	580	580
Kühlmitteldruck (MPa)	15,5	15,5
Abstand Brennstabgitter (mm)	12,6	12,6

Nach einem anfänglichen, starken Dehnen, bedingt durch eine Volumenzunahme des Pellets, nimmt die Dehnung des Hüllrohrs über einen Zeitraum bis etwa 19 000 h stetig ab. Dies lässt sich dadurch erklären, dass sich das Pellet nach einem anfänglichen Schwellen zunächst wieder verdichtet (z. B. durch Sintern). Dadurch ist der Außendruck höher, was zu einer negativen Spannung (siehe Abb. 4.18) und einer Verringerung der Dehnung führt. Bei etwa 19 000 h kommt es zum Spaltschluss, dies bedeutet, dass das Schwellen des Pellets, den Effekt der Verdichtung übertrifft und so weit angeschwollen ist, dass es wieder auf das Hüllrohr trifft. Hierbei fällt auf, dass sich der Spaltschluss zwar in der Nähe der anderen Teilnehmer bei etwa 19 000 h im Falle von TESP-ROD befindet, sich aber gerade der Verlauf der Dehnung deutlich unterscheidet. Da in TESP-ROD für das Pellet ein starres Modell sowie ein stetiges Anschwellen implementiert sind, drückt das Pellet immer weiter auf das Hüllrohr, weswegen ab diesem Zeitpunkt die Dehnung und die Spannung wieder zunehmen.

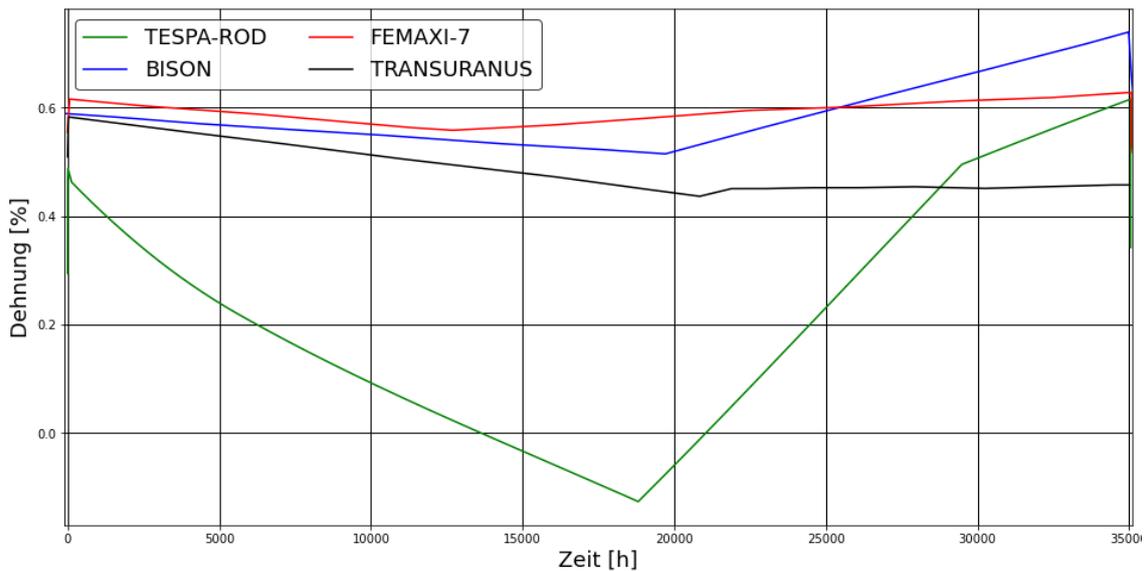
Ab etwa 21 000 h entlastet das thermische Kriechen das Hüllrohr, was zu einer konstanten Spannung wie in Abb. 4.18 dargestellt führt. Bei etwa 29 000 h wechselt der TESP-ROD Code das interne Modell zur Berechnung des Pelletschwellens. Bei Abbränden oberhalb von ca. 51 MWd/kg SM ändert sich die Rate mit denen sich die Kristallgitterversetzungen durch die fortschreitenden Spaltungen im Brennstoff auf eine Volumenänderung auswirken /SON 02/. Aus diesem Grund kommt es an diesem Punkt zu einem Knick im Diagramm, da sich bedingt durch das verminderte Schwellen auch eine verminderte Dehnung im Hüllrohr ergibt. Das Schwellen des Brennstoffs wird ab ca. 21 000 h durchgehend vom Kriechen des Hüllrohrs begleitet. Durch die verminderte Schwellrate hat das Hüllrohr mehr Zeit, die elastische Dehnung in eine irreversible Kriechdehnung umzuwandeln und so Spannungen abzubauen. Dieser Effekt zeigt sich in dem leichten Abfall der Spannung ab 29 000 h. Die Codes der anderen Teilnehmer zeigen qualitativ einen weitgehend ähnlichen Verlauf, auch wenn sich gerade im Fall der Dehnung die Werte quantitativ stark unterscheiden.

Die Ursache hierfür ist noch nicht abschließend geklärt, da im Zuge der Integration von FeCrAl in TESP-ROD der Code an mehreren Stellen verändert wurde. Auch kann die Verwendung von anderen Modellen wie etwa ein nicht starres Pelletschwellen oder ein visko-elastisches Pelletmodell durch die anderen Teilnehmer nicht ausgeschlossen werden. Da es sich jedoch um ein fiktives Szenario handelt, kann nicht evaluiert werden, welcher Code sich näher an der Realität befindet. Aus diesem Grunde wird TESP-ROD

anhand von Experimenten so bald verfügbar weiter validiert werden, um eine möglichst reale Beschreibung von ATF sowohl im Betrieb als auch im Störfall abbilden zu können.



**Abb. 4.18** Berechnetes Spannungsdiagramm des FeCrAl Hüllrohrs im Vergleich mit teilnehmenden Codes des ACTOF Benchmarks



**Abb. 4.19** Berechnetes Dehnungsdiagramm des FeCrAl Hüllrohrs im Vergleich mit teilnehmenden Codes des ACTOF Benchmarks

## 5 Begleitung internationaler Forschung

### 5.1 TOPATF – Anwendbarkeit bisheriger Sicherheitskriterien für LWR-Brennstoffe

Im Rahmen der Beteiligung an der OECD/NEA *Working Group for Fuel Safety* (WGFS) wurde der Technische Bericht *Technical Opinion Papers on Accident-Tolerant Fuel* (TOPATF) zur Anwendbarkeit bestehender Sicherheitskriterien auf verschiedene Accident-Tolerant Fuels erstellt /NEA 22a/. Das Dokument behandelt fünf verschiedene ATF-Konzepte:

- Chrom-beschichtete Zircaloy-Hüllrohre,
- FeCrAl-Hüllrohre,
- Siliziumkarbid-Hüllrohre,
- dotierte Urndioxid-Brennstoffe und
- Uransilizid-Brennstoffe.

Für die Bewertung über die Anwendbarkeit von Sicherheitskriterien wurde eine Auswertetabelle erstellt, anhand derer Sicherheitskriterien für den Normalbetrieb, Transienten, sowie für Stör- und Unfälle aufgeführt sind. Die bestehenden Sicherheitskriterien wurden im Bezug auf das Brennstoffkonzept aus Urndioxid-Brennstoffen und Hüllrohren aus Zirkoniumlegierungen (UO<sub>2</sub>-Zircaloy-Konzept) entwickelt, und werden in der Tabelle den einzelnen ATF-Konzepten gegenübergestellt. Neben der Zuordnung zu Betriebsweisen werden die einzelnen Sicherheitskriterien auf drei Ebenen bewertet:

- Qualitative Anwendbarkeit  
beschreibt, ob dasselbe physikalische Phänomen bei dem untersuchten ATF-Konzept denselben Einfluss hat wie das UO<sub>2</sub>-Zircaloy-Konzept.
- Anwendbarkeit bestehender Metriken  
beschreibt, dass dieselbe Metrik im Sinne der Messbarkeit bzw. der Messweise eines Grenzwertes verwendet wird.

- Einfluss auf das Akzeptanzkriterium  
beschreibt, inwieweit der anzuwendende Grenzwert durch das ATF-Konzept erfüllbar ist, oder ggf. durch neue, andere physikalisch-technische Parameter beeinflusst wird.

Die GRS war hierbei federführend bei dem Kapitel für FeCrAl-Hüllrohre und beteiligte sich an den Diskussionen zur Gestaltung dieses Berichts. Die Bearbeitung des TOPATF ergab wichtige Rückschlüsse zu dem Themengebiet FeCrAl. Durch die intensive Diskussion des Themas ergab sich die Erkenntnis, dass die Vielfalt an FeCrAl-Legierungen nicht durch ein einzelnes Modell in TESP-ROD repräsentiert werden kann. Die mechanischen Eigenschaften von den bisher untersuchten Legierungen der Entwickler ORNL und GE Hitachi unterscheiden sich von den Oxid-dispersionsgehärteten (*oxide dispersed strengthened*, ODS) Legierungen in Japan vor allem des Herstellers NFD in vielen Eigenschaften. Der vorläufige Entwicklungsstopp in den USA und die stetigen Fortschritte in Japan machen künftig eine vertiefte Betrachtung von ODS-FeCrAl notwendig so weit Daten und Informationen veröffentlicht werden.

Insgesamt sind die Ergebnisse für die weiter entwickelten ATF-Konzepte, Chrom-beschichtete Zirkaloyhüllrohre und FeCrAl-Hüllrohre, umfangreicher und präziser als die der langfristigen Konzepte wie Siliziumkarbid-Hüllrohre oder Uransilizid-Brennstoffe. Das liegt zum einen an dem größeren bisher angesammelten Wissensumfang und zum anderen an der bereits bestehenden praktischen Erfahrung auf dem Weg zur industriellen Umsetzung. Hier werden z. B. die Eigenschaften von Chrom-beschichteten Hüllrohren je nach Beschichtungsverfahren unterschiedlich bewertet, da hier Forschungsinstitute und Hersteller bereits Erfahrungen eingebracht haben. Im Gegensatz dazu liefern die langfristigen ATF-Konzepte allgemeinere Ergebnisse, entsprechend dem Stand der Forschung und Entwicklung.

Zusammenfassend bietet der TOPATF-Bericht mitsamt der Evaluierungstabellen eine wertvolle Ergänzung bei der Sicherheitsbetrachtung verschiedener ATF-Konzepte. Die Erkenntnisse zum Thema Chrom-beschichtete Hüllrohre und FeCrAl-Hüllrohre sind in die Implementierung ausgewählter ATF in TESP-ROD (vgl. Kap. 4) mit eingeflossen. Die Bearbeitung des OECD/NEA-Berichts *Technical Opinion Papers on Accident-Tolerant Fuel* (TOPATF) wurde innerhalb des Vorhabens abgeschlossen.

## **5.2 Auswertung internationaler Entwicklungen**

### **5.2.1 GLOBAL/TOPFUEL 2019**

Vom 22. bis 27. September 2019 fand die Konferenz GLOBAL/TOPFUEL in Seattle, Washington, USA statt. Hierbei wurde unter anderem in mehreren Vorträgen der Fortschritt in der industriellen Herstellung von Chrom-beschichteten Hüllrohren der Hersteller Westinghouse und Framatome vorgestellt. Tschechische und amerikanische Arbeitsgruppen berichteten über spezifische Verfahren, die zum Chrombeschichten benutzt werden, wie z. B. Kaltgasspritzen, physikalische Gasphasenabscheidung, sowie deren Anwendungserfahrung und den anschließenden Materialtests. Die hierbei präsentierten Ergebnisse sind oftmals detaillierter als die veröffentlichten Daten der Hersteller selbst. Eine Schwierigkeit ergibt sich dabei, dass die Hersteller dieser Produkte die dargestellten Ergebnisse dieser Arbeitsgruppen weder bestätigen noch widerlegen. Gründe hierfür sind die Betriebsgeheimnisse über spezifische Beschichtungsverfahren, da der hier angewendete Prozess des tschechischen Konsortiums nur nachgebildet ist und nicht das Originalverfahren eins zu eins abbilden kann.

Der Beitrag des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT) zeigte unter anderem die Möglichkeit für eutektische Reaktionen bei der Verwendung von Eisen-Chrom-Aluminium (FeCrAl) Brennstabhüllrohren in Verbindung mit den Materialien der Thermoelemente. Zwar sind die hier dargestellten Effekte der Thermoelemente ein Teil des experimentellen Aufbaus der QUENCH-Anlage, jedoch zeigt es die Herausforderungen der Einführung neuer Hüllrohre auf Stahlbasis. Die Verwendung der hier beschriebenen FeCrAl-Werkstoffe wird zurzeit in den USA, in Japan und in Korea verfolgt.

### **5.2.2 Quench-Workshop 2019**

Vom 22. bis zum 24. Oktober 2019 wurde der 25. Quench-Workshop in Karlsruhe besucht /KIT 19/. Neben der detaillierten Beschreibung der Quench-Experimente wurde unter anderem von der CEA eine Methode vorgestellt, dass die Verwendung der herkömmlichen Methoden, um einen ECR-Wert zu berechnen auch bei Chrombeschichtungen möglich ist, und konservative Ergebnisse liefert.

### 5.2.3 ESCP 2019

Vom 4. bis 7. November 2019 fand das *Extended Storage Collaboration Program* (ESCP) Meeting in Charlotte, North Carolina, USA statt. Diese Veranstaltung ist vom *Electric Power Research Institute* (EPRI) organisiert und bringt Forschungsinstitute, Behörden und Industrievertreter zusammen. Im Rahmen dieses Meetings wurde ein gezielter Workshop über die ATF und deren Auswirkungen auf die Entsorgung organisiert. Mehrere Brennstoffhersteller haben ihre Fortschritte bezüglich der Entwicklung von ATF vorgestellt. Festzustellen war, dass manche Konzepte schon relativ weit ausgereift sind. Dagegen wurde aber auch deutlich, dass einige Aspekte der Entsorgung bis jetzt nicht ausreichend berücksichtigt wurden, wie zum Beispiel die Eignung der aktuellen Transport-/Lagerbehälter für zukünftige Brennelemente, die Anpassung der Beladungsanlagen, und das Brennstabverhalten der ATF (Hüllrohr-Versprödung) während der Lagerungsphase, insbesondere bei verlängerter Zwischenlagerung.

#### 5.2.3.1 Wasserstoffgehalt und Hydride

Die meisten hier vorgestellten ATF Konzepte zeigen eine deutlich reduzierte Korrosionsrate und Wasserstoffaufnahme im Hüllrohr. Diese Eigenschaften reduzieren die Menge an Wasserstoffhydriden im Hüllrohr, welche ein wichtiger Aspekt bei der – insbesondere verlängerten – Zwischenlagerung bestrahlter Brennelemente sowie der Endlagerung sind. Speziell in beschichteten Zirkonium-basierten Hüllrohren ist diese Überlegung von sicherheitsrelevantem Interesse.

Wasserstofflöslichkeit in Zirkonium-Legierungen ist stark temperaturabhängig: von etwa 300 Gewichts-ppm bei 400 °C sinkt die Wasserstofflöslichkeit bei Raumtemperatur quasi auf null. Deswegen ist eine Erhöhung der Menge an Zirkoniumhydriden in den Hüllrohren während der Lagerung zu erwarten, da die Nachzerfallswärmeleistung und dementsprechend die Hüllrohrtemperatur, abnimmt. Diese Hydride können eine Versprödung des Hüllrohrs bewirken und je nach ihrer Ausrichtung (Radial- oder Umfangsrichtung) die Hüllrohrintegrität gefährden. Mit radialen Hydriden ist die Ausbreitung von Rissen durch die Hüllrohrdicke deutlich begünstigt. Die Ausrichtung der Hydride hängt von den Spannungsbedingungen im Hüllrohr ab. Weitere Einflussparameter können auch eine wichtige Rolle spielen, z. B. die Geschwindigkeit der Temperaturentwicklung (Aufwärm- bzw. Abkühlrate) oder die Menge und Ausrichtung bereits vorhandener Hydride. Das Ausfallen von Wasserstoff kann bei Vorhandensein oder Fehlen von Hydriden unterschiedlich verlaufen. Vorhandene Hydride könnten die Ausrichtung von weiteren Hydriden

beeinflussen, indem das Ausfallen vom gelösten Wasserstoff sich auf diesen schon vorhandenen Hydriden fortsetzen würde /KAU 18/, /LAC 18/, /LEE 18/.

In diesem Sinne könnte eine vergleichsweise geringe Wasserstoffmenge im Hüllrohr, welche im Betrieb vorteilhaft ist, nun bei der Zwischenlagerung Probleme verursachen, denn im Fall einer völligen Auflösung der Hydride z. B. beim Trocknungsprozess zwischen Nass- und Trockenlagerung im Behälter, könnten sich bevorzugt radiale Hydride bei der langsamen Temperaturabnahme während der Lagerphase bilden. Wenn eine größere Menge an Hydriden beim Trocknungsprozess in Umfangsrichtung ausgefallen geblieben wären, dann würde sich vermutlich der aufgelöste Wasserstoff auf diesen Hydriden abscheiden und nochmals in tangentialer Orientierung ausfällen, sodass keine oder nur wenige radiale Hydride gebildet würden. Praktische Erfahrungen insbesondere im Langzeitbereich liegen bei beschichteten Zirkonium-basierten Hüllrohren derzeit noch nicht vor.

Bei Hüllrohrvarianten ohne Zirkonium spielt die Bildung von Zirkoniumhydriden folgerichtig keine Rolle. Andere Materialien wie z. B. FeCrAl oder SiC/SiC<sub>r</sub> zeigen keine oder kaum Hydrierungserscheinungen. Dagegen können hier im Langzeitbereich der Lagerung andere, bisher nicht berücksichtigte Phänomene auftauchen. Tiefere Betrachtungen hierzu sind derzeit nicht bekannt.

### **5.2.3.2 Anpassung von Behältern und Handhabungseinrichtungen**

Verschiedene ATF-Brennstoffkonzepte werden z. T. mit höheren Uranbeladungen, Anreicherungen und Abbränden entwickelt. Das hat auch sicherheitstechnisch relevante Auswirkungen auf die Schutzziele Sicherstellung der Unterkritikalität, Zerfallswärmeabfuhr sowie Abschirmung der ionisierenden Strahlung, sowohl bei der Nasslagerung im Abklingbecken als auch einer trockenen Zwischenlagerung in Behältern. Je nach tatsächlich gewählten Parametern ist es möglich, dass diese durch die bestehenden genehmigten Systeme und Komponenten nicht abgedeckt werden können. Dies dürfte es ggf. erforderlich machen, neue Behälter-Auslegungen zu entwickeln die gewisse Anpassungen erfordern, wie zum Beispiel die Korbstrukturen im Behälterinneren. Das Design (bzw. die Anpassung) der Behälter, das Zulassungsverfahren und die Herstellung werden einige Zeit erfordern. Sobald ATF-Brennelemente in Reaktoren geladen werden, dauert es einige Jahren, bis sie in der Lagerungsphase ankommen. Sie werden am Anfang nassgelagert, so dass Lagerbehälter erst zeitlich verzögert erforderlich werden.

Speziell bei Brennstoffen mit erhöhter Urandichte ist mit einem höheren Gewicht der einzelnen Brennelemente zu rechnen, und damit auch der beladenen Behälter. Bei Handhabungsvorgängen und den zugehörigen Handhabungseinrichtungen muss dies berücksichtigt werden. Da einige ATF-Brennelemente voraussichtlich auch höhere Abbrände als bisher ermöglichen, ist zu erwarten, dass die Wärmeleistung der abgebrannten Brennelemente ebenfalls höher sein wird als gegenwärtig. Die aktuellen Behälter werden dafür möglicherweise nicht ausgelegt sein. Eine mögliche spekulative Konsequenz könnte in beiden Fällen zunächst sein, dass weniger Brennelemente pro Behälter eingeladen werden können, was dann zu einer erhöhten Anzahl an zu beladenden Behältern führen würde.

#### **5.2.4 FIDES – JEEP INCA**

In der OECD/NEA wurde das *Framework for Irradiation Experiments* (FIDES) gegründet /NEA 19/, /NEA 22b/. Innerhalb dieses Rahmenprogramms beteiligt sich die GRS an verschiedenen Experimenten zum Materialverhalten unter Bestrahlung, und behandelt sowohl Standardmaterialien als auch ATF. Im Rahmen des FIDES fanden mehrere Workshops zu den einzelnen *Joint Experimental Programmes* (JEEPs) statt, die seit Beginn von der GRS fachlich betreut worden sind /NEA 19/.

Im Rahmen des vorliegenden Vorhabens ist insbesondere das JEEP *In-pile Creep Studies of ATF Claddings* (INCA) von besonderem Interesse. Es behandelt das Kriechverhalten von ATF-Hüllrohren im Reaktor-Einsatz, experimentell untersucht im tschechischen Forschungsreaktor LVR-15 /CVR 20/, /NEA 22c/. Es werden je zwei Hüllrohrarten, Optimized ZIRLO und E110, mit zwei verschiedenen Chrom-Beschichtungen kombiniert sowie unbeschichtete Referenzproben eingesetzt, die jeweils mit zwei verschiedenen Drücken getestet werden sollen. In der ersten Phase wird der Probenhalter *OKaPRig* vorgestellt. Dieser Probenhalter enthält 16 Hüllrohrproben, verteilt auf vier Ebenen, die durch das Reaktorkühlmittel gekühlt werden. Durch die vorhandene Gammastrahlung werden die unter Druck gesetzten Hüllrohrproben zusätzlich erhitzt. Die Proben werden vor dem Versuch mit Druck beaufschlagt und versiegelt, so dass unter dem Einfluss von Wärme und Neutronenstrahlung Kriechvorgänge in Gang gesetzt werden.

Auf dem INCA-Workshop wurde die geplante Materialenauswahl intensiv diskutiert. Einige Teilnehmer bevorzugten Zircaloy-4 anstelle von Optimized ZIRLO, da es eine deutlich breitere öffentlich verfügbare Datenlage zu dem Material gibt. Der bisher involvierte

Hersteller Westinghouse stellt jedoch kein Zircaloy-4 her. Eine Entscheidung wurde auf dem Workshop noch nicht getroffen. In einer zukünftigen zweiten Phase soll neben dem Probenhalter *OKaPRig* der Probenhalter *MELODIE-II* verwendet werden, welcher nur eine Probe fasst, jedoch deutlich umfangreicher instrumentiert ist und eine dynamische Messung von Umfangsdehnung und Längenwachstum ermöglicht. Der bisherige Plan für die zweite Phase sieht vor, dass das *MELODIE-II* eine beschichtete Zr-Nb-Legierung, fassen wird und im *OKaP Rig* FeCrAl- und SiC-Hüllrohre getestet werden sollen.

### **5.2.5 ATF-TS**

Im Rahmen des Vorhabens RS1580 *Validierung der AC<sup>2</sup>-Programme ATHLET und ATHLET-CD* zusammen mit dem vorliegenden Vorhaben hat sich die GRS auf das koordinierte Forschungsprojekt (*Coordinated Research Project, CRP*) der IAEA mit dem Titel *Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident-Tolerant Fuels (ATF-TS)* erfolgreich beworben. ATF-TS soll künftig eine umfangreiche Datenbasis für verschiedene Experimente an Materialien (beschichtete Hüllrohre, FeCrAl, SiC etc.), sowie Integraltests ganzer Hüllrohrbündel liefern /IAEA 20b/. Die Integraltests behandeln u. a. das Verhalten im Auslegungsstörfall (*Design basis accident, DBA*) als auch auslegungsüberschreitende Unfälle (*Design extension conditions, DEC*). Hierbei ist die Teilnahme an einem Code-Benchmark über den Versuch QUENCH-19 des KIT geplant. Hierbei werden die entwickelten Modelle zum thermo-mechanischen Verhalten von Fe-CrAl-Hüllrohren im Hochtemperaturbereich validiert. Das Projekt ATF-TS wird von der GRS in einem Folgevorhaben wissenschaftlich begleitet werden.



## 6 Zusammenfassung

Als *Accident-tolerant Fuel* (ATF) bezeichnet man alternative, verbesserte Kernbrennstoffe bzw. Brennstoffkonzepte, die im Vergleich zum bisherigen Standardsystem von Uranoxid und Zircaloy verbesserte Eigenschaften unter Störfallbedingungen aufweisen. Dazu gehören eine verbesserte Kühlbarkeit des Kerns unter Störfallbedingungen, oder verlängerte Karenzzeiten für das Wiederherstellen der Notkühlung, bzw. eine beträchtlich verlängerte Toleranz gegenüber dem Verlust der Kühlung im Kern ohne signifikante Wasserstoffproduktion. Eine Vermeidung bzw. starke Verringerung der Hüllrohroxidation führt zu einer deutlich geringeren Bildung von Wasserstoff, so dass keine Explosionsgefahr entsteht. Die verringerte Oxidation verschafft außerdem eine erhöhte Robustheit gegen den thermischen Schock beim Wiederauffüllen des Reaktordruckbehälters mit Notkühlmittel nach einem Kühlmittelverluststörfall (Quenchen). Ferner sollen die positiven thermo-mechanischen Eigenschaften der Brennstoffe im Normal- und anormalen Betrieb im Vergleich zum  $\text{UO}_2/\text{Zr}$ -System durch ATF mindestens erreicht oder sogar übertroffen werden.

Ein wesentliches Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Erfassung und Bewertung der unterschiedlichen, international verfolgten, innovativen und kernschmelzresistenteren Brennstoff- und Hüllrohrkonzepte unter dem Oberbegriff ATF. Diese verfolgen primär das Ziel, eine erhöhte Standfestigkeit des Brennstabs unter Störfallbedingungen gegen Integritätsverlust bis zur Kernschmelze zu erreichen, sowie der Wasserstofffreisetzung, insbesondere bei auslegungsüberschreitenden Kühlmittelverluststörfällen. Der GRS Brennstabcode TESP-ROD wird dazu um die Fähigkeit erweitert, die beiden Hüllrohrkonzepte Chrom-beschichtetes Zircaloy sowie Eisen-Chrom-Aluminium-Legierungen (FeCrAl) zu beschreiben, welche am nächsten der ATF an der großtechnischen Reife sind. Die internationale Forschung und Entwicklung auf diesem Gebiet wird aktiv verfolgt und begleitet.

Insgesamt konnten alle Vorhabensziele erreicht werden. Diese werden im Folgenden kurz zusammengefasst.

## 6.1 Internationaler Stand von Wissenschaft und Technik

Auf Basis einer umfangreichen Literaturrecherche sowie der Auswertung von Konferenzen und der Teilnahme an verschiedenen internationalen Arbeitsgruppen wurden die aktuell verfolgten Konzepte an ATF zusammengestellt und beschrieben. Dies umfasst sowohl Konzepte, welche von der Industrie kurz- oder langfristig verfolgt werden als auch Konzepte, die bislang nur im Labormaßstab untersucht wurden.

Als aussichtsreichste Kandidaten für den kurz- bis mittelfristigen Einsatz in Kernkraftwerken zur kommerziellen Elektrizitätsgewinnung wurden Chrom-beschichtete Hüllrohre auf Basis bekannter Zirkonium-basierter Legierungen identifiziert und bestätigt, sowie Hüllrohre aus ferritischen Eisen-Chrom-Aluminium-Legierungen (FeCrAl). Bei Letzteren zeigt es sich, dass es eine Reihe von unterschiedlichen FeCrAl-Zusammensetzungen gibt, die sich in ihrem Verhalten als ATF signifikant unterscheiden können. Die meisten frei verfügbaren Daten konnten hier für die Variante C35M des US-amerikanischen *Oak Ridge National Laboratory* (ORNL) recherchiert werden. Langfristig erscheint Hüllrohrmaterial auf Basis von Siliziumkarbid als vielversprechender Kandidat, der gegenwärtig von der Industrie mit Nachdruck erforscht wird.

Im Bereich der Brennstoffmatrix sind unterschiedliche Dotierungen des bekannten Urandioxid bereits im Einsatz. Weitere Kandidaten sind Uransilizid und insbesondere Urannitrid, sowie Urandioxid in Form von beschichteten TRISO-Partikeln in einer neutronenphysikalisch und chemisch inerten Matrix.

## 6.2 Implementierung ausgewählter ATF in TESPА-ROD

Auf Basis der Erkenntnisse des Arbeitspakets 1 wurden Chrom-beschichtete Zircaloy-Hüllrohre sowie Hüllrohre aus FeCrAl, hier insbesondere die Variante C35M, zur Implementierung in den GRS Brennstabcode TESPА-Rod ausgewählt.

Bei Chrom-beschichteten Zircaloy-Hüllrohren bleibt das zugrunde liegende Zircaloy-Modell von TESPА-ROD erhalten, und wird i. W. durch das Oxidationsverhalten von Chrom sowie erweiterte physikalische Eigenschaften wie Wärmeleitfähigkeit und spezifische Wärmekapazität ergänzt. Bei Kühlmittelkontakt an der unbeschichteten Innenseite des Hüllrohrs nach einem Bersten greift weiterhin das Zircaloy-Modell. Die mechanischen Eigenschaften des Hüllrohrs werden durch die dünne Chrom-Beschichtung nicht verändert.

Dagegen wurden zur Implementierung der FeCrAl-Variante C35M mehrere, tiefer greifende Erweiterungen im Quellcode von TESPAS-ROD erforderlich. Gegenüber Zircaloy musste ein neues mechanisches Modell implementiert werden, mit den entsprechenden, meist temperaturabhängigen Parametern: Poissonzahl, Elastizitätsmodul, Kriechverhalten, Berstkriterien und Wärmeausdehnung. Auch das von Zircaloy deutlich verschiedene Oxidationsverhalten des FeCrAl musste im Modell angepasst werden, wohingegen die Interaktion dieses Materials mit Wasserstoff dem gegenüber, eine untergeordnete Rolle spielt. Weiterhin wurden die temperaturabhängigen physikalischen Eigenschaften Wärmeleitfähigkeit und spezifische Wärmekapazität implementiert. Soweit dies auf Basis der verfügbaren Literatur möglich war, wurden zu Test- und Verifikationszwecken Vergleichsrechnungen mit den Ergebnissen anderer Arbeitsgruppen insbesondere in dem sog. ACTOF-Benchmark durchgeführt. Während hier qualitativ vergleichbare Ergebnisse erzielt wurden, gibt es noch z. T. erhebliche quantitative Unterschiede zu den Benchmark-Teilnehmern, allerdings auch unter diesen selbst. Da diesem Benchmark keine experimentellen Daten zugrunde liegen ist eine abschließende Bewertung derzeit noch nicht sinnvoll möglich.

Die Benutzeroberfläche von TESPAS-ROD wurde für den Aufruf der neu implementierten Materialien und Parameter entsprechend überarbeitet, erweitert und gleichzeitig übersichtlicher gestaltet.

### **6.3 Begleitung internationaler Forschung**

Im Rahmen der Beteiligung an der OECD/NEA *Working Group for Fuel Safety* (WGFS) wurde der Technische Bericht *Technical Opinion Papers on Accident-Tolerant Fuel* (TOPATF) zur Anwendbarkeit bestehender Sicherheitskriterien auf verschiedene Accident-Tolerant Fuels erstellt. Die GRS war hierbei federführend bei dem Kapitel für FeCrAl-Hüllrohre, und beteiligte sich an den Diskussionen zur Gestaltung dieses Berichts. Die Bearbeitung des TOPATF ergab wichtige Rückschlüsse zu dem Themengebiet FeCrAl. Durch die intensive Diskussion des Themas ergab sich die Erkenntnis, dass die Vielfalt an FeCrAl-Legierungen nicht durch ein einzelnes Modell in TESPAS-ROD repräsentiert werden kann.

Weiterhin wurde aktiv an den Veranstaltungen GLOBAL/TOPFUEL 2019, KIT QUECH-Workshop 2019 und dem ATF-Workshop des EPRI ESCP Meetings 2019 teilgenommen. Darüber hinaus beteiligte und beteiligt sich die GRS an dem experimentellen FIDES-

Programm, und hier insbesondere an dem für ATF relevanten JEEP INCA. Für die Zukunft konnte eine Beteiligung der GRS an dem IAEA *Coordinated Research Project* ATF-TS erreicht werden.

#### **6.4 Ausblick**

In einem nächsten Entwicklungsschritt werden FeCrAl-Modelle über C35M hinaus, sowie verbesserte Oxidationsmodelle für beschichtete Zirkoniumlegierungen recherchiert und in TESP-ROD implementiert. Ein Ablösen bzw. Abplatzen der Chrombeschichtung wird berücksichtigt werden, was ebenfalls eine Erweiterung der bestehenden Oxidationsmodelle erfordert.

Die bestehenden Modelle sollen künftig anhand von Nachrechnungen von dann voraussichtlich zur Verfügung stehenden Experimenten sowie durch die Teilnahme an Benchmarks validiert werden. Die Überprüfung der neu implementierten bzw. erweiterten Modelle in TESP-ROD für die Simulation der Phänomene sollen anhand von QUENCH- und FIDES-Experimenten erfolgen.

Auch wenn davon auszugehen ist, dass Chrom-Beschichtungen bei Zirkonium-basierten Hüllrohren bald den Standard darstellen, sind auch keramische Beschichtungen von Interesse, wie etwa Nitride oder MAX-Phasen. Ferner werden die generischen Studien für SiC/SiC Hüllrohren aus diesem Vorhaben fortgeführt, und eine Machbarkeitsstudie für die Weiterentwicklung von TESP-ROD für anisotrope Materialien durchgeführt.

Neben den neuen Hüllrohrkonzepten sollen neuartige ATF-Brennstoffkonzepte, d. h. Pellets, untersucht werden. Es sollen zunächst die Modelle für das thermische Verhalten von Uransilizid erstellt werden. Hierfür werden die Wärmekapazität und Leitfähigkeit in Abhängigkeit von Temperatur und Abbrand als Funktion implementiert. Die Modelle für betriebliche Phänomene, wie das betriebliche Schwellen, das Nachverdichten sowie das Fragmentieren der Pellets im Betrieb werden im Vergleich zu UO<sub>2</sub>-Brennstoffen untersucht und in der Literatur verglichen und auf Uransilizid angepasst.

Die aktive Teilnahme an nationalen und internationalen Arbeitsgruppen wird fortgeführt.

## Literaturverzeichnis

- /ARB 06/ Arborelius, J., Backman, K., Hallstadius, L., Limbäck, M., Nilsson, J., Rebensdorff, B., Zhou, G., Kitano, K., Löfström, R., Rönnerberg, G.: Advanced Doped UO<sub>2</sub> Pellets in LWR Applications. *Journal of Nuclear Science and Technology*, Bd. 43, Nr. 9, S. 967–976, DOI 10.1080/18811248.2006.9711184, 2006.
- /ASTM 15/ American Society for Testing and Materials (ASTM): Standard Guide for Development of Specifications for Fiber Reinforced Carbon-Carbon Composite Structures for Nuclear Applications. 2015-09, 2015.
- /BIS 18a/ Bischoff, J., Delafoy, C., Vauglin, C., Barberis, P., Roubeyrie, C., Perche, D., Duthoo, D., Schuster, F., Brachet, J.-C., Schweitzer, E. W., Nimishakavi, K.: AREVA NP's enhanced accident-tolerant fuel developments: Focus on Cr-coated M5 cladding. *Nuclear Engineering and Technology*, Bd. 50, Nr. 2, S. 223–228, DOI 10.1016/j.net.2017.12.004, 2018.
- /BIS 18b/ Bischoff, J., Delafoy, C., Chaari, N., Vauglin, C., Buchanan, K., Barberis, P., Monsifrot, E., Schuster, F., Brachet, J.-C., Nimishakavi, K.: Cr-coated Cladding Development at Framatome. In: European Nuclear Society (ENS) (Hrsg.): *Reactor Fuel Performance 2018. TOPFUEL 2018*, Prague, Czech Republic, 30. September - 4. Oktober 2018, 2018.
- /BRA 14a/ Bragg-Sitton, S.: Overview of International Activities in Accident Tolerant Fuel Development for Light Water Reactors. Präsentation, Idaho National Laboratory (INL), IAEA Technical Working Group on Fuel Performance and Technology: Idaho Falls, 24. April 2014.
- /BRA 14b/ Bragg-Sitton, S.: Development of advanced accident-tolerant fuels for commercial LWRs. *Nuclear News*, March 2014, S. 83–91, 2014.

- /BRA 14c/ Bragg-Sitton, S., Merrill, B., Teague, M., Ott, L. J., Robb, K., Farmer, M., Billone, M., Montgomery, R., Stanek, C., Todosow, M., Brown, N.: Advanced Fuels Campaign Light Water Reactor Accident Tolerant Fuel Performance Metrics, Fuel Cycle Research & Development. Hrsg.: U.S. Department of Energy Advance Fuels Campaign (DOE), Idaho National Laboratory (INL), 109 S.: Idaho Falls, Februar 2014.
- /CAN 19/ Cantonwine, P. E.: GE/GNF Advanced Fuel Designs. In: Electric Power Research Institute (EPRI) (Hrsg.): Extended Storage Collaboration Program (ESCP). Workshop on Impact of Advanced Fuels on Back-end Operations, Charlotte NC, USA, 4. - 7. November 2019, 2019.
- /CAR 13/ Carmack, J., Goldner, F., Bragg-Sitton, S., Snead, L.: Overview of the U.S. DOE Accident Tolerant Fuel Development Program. Hrsg.: Idaho National Laboratory (INL), 10 S., September 2013.
- /CHA 98/ Chase, M. W.: NIST-JANAF Thermochemical Tables, 4th Edition. American Institute of Physics, -1, 1998.
- /CHA 11/ Chadwick, M. B., Herman, M., Obložinský, P., Dunn, M. E., Danon, Y., Kahler, A. C., Smith, D. L., Pritychenko, B., Arbanas, G., Arcilla, R., Brewer, R., Brown, D. A., Capote, R., Carlson, A. D., et al.: ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data. Nuclear Data Sheets, Bd. 112, Nr. 12, S. 2887–2996, DOI 10.1016/j.nds.2011.11.002, 2011.
- /CHE 15/ Cheng, B.: Program on Technology Innovation: Characterization of Coated Molybdenum-Alloy Cladding for Accident-Tolerant Fuel: Progress Report, Final Report. Hrsg.: Electric Power Research Institute (EPRI), 342 S., August 2015.
- /CVR 20/ Centrum výzkumu Řež (CVŘ): In-pile Creep Studies of ATF Claddings, Joint project proposal for OECD/NEA Framework, Projejt Acronym INCA. CVR, UJV, VTT, CEA, Alvel, 12 S., Februar 2020.

- /DEL 10/ Delafoy, C., Zemek, M.: Washout behaviour of chromia-doped UO<sub>2</sub> and gadolinia fuels in LWR environments. In: International Atomic Energy Agency (IAEA) (Hrsg.): Advanced Fuel Pellet Materials and Fuel Rod Design for Water Cooled Reactors, Proceedings of a Technical Committee Meeting held in Villigen, 23–26 November 2009, IAEA-TECDOC-1654. ISBN 978-92-0-108910-6: Vienna, Austria, 2010.
- /DEL 18/ Delafoy, C., Arimescu I.: Developments in fuel design and manufacturing in order to enhance the PCI performance of AREVA NP's fuel. In: OECD Nuclear Energy Agency (NEA) (Hrsg.): Pellet-Clad Interaction (PCI) in Water-Cooled Reactors, Workshop Proceedings. NEA Working Group on Fuel Safety (WGFS), Lucca, Italy, 22. - 24. Juni 2016, NEA/CSNI/R(2018)9, Oktober 2018.
- /DUM 18/ Dumerval, M., Houmaire, Q., Brachet, J.-C., Palancher, H., Bischoff, J., Pouillier, E.: Behavior of Chromium coated M5 Claddings upon thermal tests under internal pressure (loss-of-coolant accident conditions). In: European Nuclear Society (ENS) (Hrsg.): Reactor Fuel Performance 2018. TOPFUEL 2018, Prague, Czech Republic, 30. September - 4. Oktober 2018, 2018.
- /EPRI 18/ Electric Power Research Institute (EPRI): Coated Cladding Gap Analysis, Technical Report 3002014603. 93 S., 2018.
- /FIE 18/ Field, K. G., Snead, M. A., Yamamoto, Y., Terrani, K. A.: Handbook on the Material Properties of FeCrAl Alloys for Nuclear Power Production Applications (FY18 Version: Revision 1). DOI 10.2172/1474581, 2018.
- /FRA 18/ Framatome Inc.: M5 Advanced Cladding, Information Sheet. Erreichbar unter [https://www.framatome.com/solutions-portfolio/docs/default-source/default-document-library/product-sheets/a0532-p-us-g-en-037-05-18-m5.pdf?Status=Master&sfvrsn=83b096b\\_2](https://www.framatome.com/solutions-portfolio/docs/default-source/default-document-library/product-sheets/a0532-p-us-g-en-037-05-18-m5.pdf?Status=Master&sfvrsn=83b096b_2), abgerufen am 18. März 2022.

- /FRA 21/ Framatome Inc.: PROtect: The leading Enhanced Accident Tolerant Fuel Program, Reference Data Sheet Number: B-G-A519-ENG-092021. Erreichbar unter [https://www.framatome.com/solutions-portfolio/docs/default-source/default-document-library/product-sheets/fra\\_fuel\\_protect\\_altara5\\_update\\_v9.pdf?Status=Master&sfvrsn=14e955e2\\_4](https://www.framatome.com/solutions-portfolio/docs/default-source/default-document-library/product-sheets/fra_fuel_protect_altara5_update_v9.pdf?Status=Master&sfvrsn=14e955e2_4), abgerufen am 14. April 2022.
- /GAM 17/ Gamble, K. A., Barani, T., Pizzocri, D., Hales, J. D., Terrani, K. A., Pastore, G.: An investigation of FeCrAl cladding behavior under normal operating and loss of coolant conditions. *Journal of Nuclear Materials*, Bd. 491, S. 55–66, DOI 10.1016/j.jnucmat.2017.04.039, 2017.
- /GAR 02/ Garner, G. L., Mardon, J. P.: Alloy M5 in action. Hrsg.: *Nuclear Engineering International Magazine (NEIM)*, erreichbar unter <https://www.neimagazine.com/features/featurealloy-m5-in-action/>, abgerufen am 18. März 2022.
- /GRO 96/ Groc, M., Pawlowski, L., Smurov, I., Clinton, G., Pitt, R.: Modeling of the Laser Engraving at Plasma Sprayed Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Coatings on Anilox Rolls. In: Berndt, C. C. (Hrsg.): *Thermal Spray 1996: Proceedings from the National Thermal Spray Conference. ITSC 1996, Cincinnati, Ohio, USA, 01.01.1996 00:00:00*, International Thermal Spray Conference, S. 603–613, DOI 10.31399/asm.cp.itsc1996p0603, ASM International, 1996.
- /GUE 20/ Guérin Y., Bonin B.: *Fabrication des combustibles pour les réacteurs à eau - À quoi ressemble le combustible des réacteurs à eau ?* Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA), 81 S., 2020.
- /HAR 15/ Harp, J. M., Lessing, P. A., Hoggan, R. E.: Uranium silicide pellet fabrication by powder metallurgy for accident tolerant fuel evaluation and irradiation. *Journal of Nuclear Materials*, Bd. 466, S. 728–738, DOI 10.1016/j.jnucmat.2015.06.027, 2015.
- /HEI 79/ Hein, K., Zimmer, E.: Gießlösung enthaltend Uranyl Nitrat zur Herstellung kugelförmiger Kernbrennstoffpartikeln und Verfahren zu ihrer Herstellung. Hrsg.: *Kernforschungsanlage Jülich GmbH (KFA), DE 29 22 686 C2*, 2. Juni 1979.

- /IAEA 03/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Development status of metallic, dispersion and non-oxide advanced and alternative fuels for power and research reactors. IAEA-TECDOC-1374, ISBN 92-0-110303-4: Vienna, 2003.
- /IAEA 14/ International Atomic Energy Agency (IAEA) (Hrsg.): Accident Tolerant Fuel Concepts for Light Water Reactors. Technical Meeting, Oak Ridge National Laboratory (ORNL), USA, 13. - 16. Oktober 2014, IAEA-TECDOC-1797, 388 S., ISBN 978-92-0-105216-2, 2014.
- /IAEA 20a/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Analysis of Options and Experimental Examination of Fuels for Water cooled Reactors with increased Accident Tolerance (ACTOF), Final Report of a Coordinated Research Project. IAEA-TECDOC-, Bd. 1921, 180 S., ISBN 978-92-0-114120-0, IAEA, 2020.
- /IAEA 20b/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels (ATF-TS), Coordinated Research Project. CRP T12032, Stand vom April 2020, erreichbar unter <https://nucleus.iaea.org/sites/connect/NFEpublic/Pages/ATF-TS.aspx>, abgerufen am 22. Februar 2022.
- /KAR 19/ Karoutas, Z. E., Metzger, K.: Westinghouse Advanced Fuel Designs. In: Electric Power Research Institute (EPRI) (Hrsg.): Extended Storage Collaboration Program (ESCP). Workshop on Impact of Advanced Fuels on Back-end Operations, Charlotte NC, USA, 4. - 7. November 2019, 2019.
- /KAT 15/ Katoh, Y., Terrani, K. A.: Systematic Technology Evaluation Program for SiC/SiC Composite-based Accident-Tolerant LWR Fuel Cladding and Core Structures: Revision 2015. ORNL/TM-2015/454, 51 S.: Oak Ridge, TN, USA, August 2015.
- /KAU 18/ Kaufholz, P., Stuke, M., Boldt, F., Péridis, M.: Influence of kinetic Effects on Terminal Solid Solubility of Hydrogen in Zirconium Alloys. Journal of Nuclear Materials, Bd. 510, S. 277–281, DOI 10.1016/j.jnucmat.2018.08.011, 2018.

- /KIM 15/ Kim, D.: Fabrication and measurement of hoop strength of SiC triplex tube for nuclear fuel cladding applications. *Journal of Nuclear Materials*, Nr. 458, S. 29–36, 2015.
- /KIM 16/ Kim, H.-G., Yang, J., Kim, W.-J., KOO, Y.-H.: Development Status of Accident-tolerant Fuel for Light Water Reactors in Korea. *Nuclear Engineering and Technology*, Bd. 48, Nr. 1, S. 1–15, DOI 10.1016/j.net.2015.11.011, 2016.
- /KIM 18/ Kim, D.-J., Kim, K. S., Kim, D. S., Oh, J. S., Kim, J. H., Yang, J. H., KOO, Y.-H.: Development status of microcell UO<sub>2</sub> pellet for accident-tolerant fuel. *Nuclear Engineering and Technology*, Bd. 50, Nr. 2, S. 253–258, DOI 10.1016/j.net.2017.12.008, 2018.
- /KIT 19/ Steinbrück, M. (Hrsg.): 25th International QUENCH Workshop. Institut für Angewandte Materialien – Angewandte Werkstoffphysik (IAM-AWP), Karlsruhe Institute of Technology (KIT), Karlsruhe, Germany, 22. - 24. Oktober 2019, DOI 10.5445/IR/1000100298, 2019.
- /KRO 17/ Kropaczek, D., Karoutas, Z. E.: Accident Tolerant Fuel Strategy. Hrsg.: U.S. Department of Energy (DOE), 9 S.: Charleston, 4. April 2017.
- /LAC 18/ Lacroix, E., Motta, Arthur, T., Almer, J. D.: Experimental Determination of Zirconium Hydride Precipitation and Dissolution in Zirconium Alloy. *Journal of Nuclear Materials*, Nr. 509, S. 162–167, 2018.
- /LAV 17/ Lavalette, C., Valery, J.-F., Vo Van, V., Talbi, A., Halle, L., Pechard, C., Renault, X.: Research Reactor Silicide Fuel Reprocessing at La Hague Plant. In: Argonne National Laboratory (ANL) (Hrsg.): RERTR-2017 - 38th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Proceedings. November 2017.
- /LEE 13/ Lee, K.-H., Park, S.-Y., Lee, C.-C., Cho, J.-Y., Lee, W.-J.: Neutronic Evaluation of an OPR-1000 Core with Accident Tolerant Fuel and Cladding. KAERI, Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting, Gyeongju, Korea, 24. Oktober 2013.

- /LEE 18/ Lee, J.-M., Kim, H.-A., Kook, D.-H., Kim, Y.-S.: A study on the effects of hydrogen content and peak temperature on threshold stress for hydride reorientation in Zircaloy-4 cladding. *Journal of Nuclear Materials*, Bd. 509, S. 285–294, DOI 10.1016/j.jnucmat.2018.07.005, 2018.
- /LEW 19/ Lewis, C.: Framatome Advanced Fuel Designs. In: Electric Power Research Institute (EPRI) (Hrsg.): Extended Storage Collaboration Program (ESCP). Workshop on Impact of Advanced Fuels on Back-end Operations, Charlotte NC, USA, 4. - 7. November 2019, 2019.
- /LI 17/ Li, N., Parker, S., Wood, E.: Oxide Morphology of a FeCrAl Alloy, Kanthal APMT, following Extended Aging at 300-600C. Hrsg.: U.S. Department of Energy (DOE), Los Alamos National Laboratory (LANL), NTRD-M3FT-17LA020202042, 35 S., 15. September 2017.
- /LIN 18/ Lin, Y. P., Fawcett, R. M., DeSilva, S. S., Lutz, D. R., Yilmaz, M. O., Davis, P., Rand, R. A., Cantonwine, P. E., Rebak, R. B., Dunavant, R., Satterlee, N.: Path towards Industrialization of Enhanced Accident Tolerant Fuel. In: European Nuclear Society (ENS) (Hrsg.): Reactor Fuel Performance 2018. TOPFUEL 2018, Prague, Czech Republic, 30. September - 4. Oktober 2018, 2018.
- /MAI 18/ Maier, B., Yeom, H., Johnson, G., Dabney, T., Walters, J., Romero, J., Shah, H., Xu, P., Sridharan, K.: Development of Cold Spray Coatings for Accident-Tolerant Fuel Cladding in Light Water Reactors. *JOM*, Bd. 70, Nr. 2, S. 198–202, DOI 10.1007/s11837-017-2643-9, 2018.
- /MCM 87/ McMillan, P. F., Ross, N. L.: Heat capacity calculations for Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> corundum and MgSiO<sub>3</sub> ilmenite. *Physics and Chemistry of Minerals*, Bd. 14, Nr. 3, S. 225–234, DOI 10.1007/BF00307986, 1987.
- /NEA 18a/ OECD Nuclear Energy Agency (NEA): State-of-the-Art Report on Light Water Reactor Accident-Tolerant Fuels. Nuclear Science, NEA No. 7317, 372 S., ISBN 9789264308343, DOI 10.1787/9789264308343-en, OECD Publishing: Paris, 2018.

- /NEA 18b/ NEA Nuclear Science: State-of-the-art Report on the Progress of Nuclear Fuel Cycle Chemistry. OECD, NEA No. 7267, 304 S., DOI 10.1787/9789264298545-en, OECD Publishing: Boulogne-Billancourt, France, 2018.
- /NEA 19/ OECD Nuclear Energy Agency (NEA): Preparing the Kick-off of FIDES Joint Experimental Programmes. OECD Conference Centre, 3.-5. September 2019, erreichbar unter <https://www.oecd-nea.org/download/science/workshops/fides/>, abgerufen am 20. Januar 2020.
- /NEA 22a/ OECD Nuclear Energy Agency (NEA): Applicability of Nuclear Fuel Safety Criteria to Accident-Tolerant Fuel Designs, CSNI Technical Opinion Paper No. 19, TOPATF. NEA Report, Nr. 7576: Paris, Frankreich, 2022.
- /NEA 22b/ OECD Nuclear Energy Agency (NEA): Framework for Irradiation Experiments (FIDES), Joint Project. Paris, Frankreich, erreichbar unter [https://www.oecd-nea.org/jcms/pl\\_70867/framework-for-irradiation-experiments-fides](https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_70867/framework-for-irradiation-experiments-fides), abgerufen am 8. Juli 2022.
- /NEA 22c/ OECD Nuclear Energy Agency (NEA): In-pile Creep Studies of ATF Cladding (INCA), FIDES Joint Experimental Programme (JEEP), Joint Project. Paris, Frankreich, erreichbar unter [https://www.oecd-nea.org/jcms/pl\\_70363/in-pile-creep-studies-of-atf-cladding-inca-fides-joint-experimental-programme-jeep](https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_70363/in-pile-creep-studies-of-atf-cladding-inca-fides-joint-experimental-programme-jeep), Stand von 2022.
- /NEIM 20/ Nuclear Engineering International Magazine (NEIM): SCC says tests confirm serviceability of uranium-plutonium nitride fuel. Erreichbar unter <https://www.neimagazine.com/news/newssc-says-tests-confirm-serviceability-of-uranium-plutonium-nitride-fuel-8368311>, abgerufen am 17. März 2022.
- /NNW 21/ Nuclear Newswire (NNW): ORNL to test accident tolerant fuel irradiated at Byron-2, Aug. 4, 2021. Erreichbar unter <https://www.ans.org/news/article-3130/ornl-to-test-accident-tolerant-fuel-irradiated-at-byron2/>, abgerufen am 2. September 2021.

- /NRC 21/ U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC): Longer Term Accident Tolerant Fuel Technologies. Stand vom 12. Januar 2021, erreichbar unter <https://www.nrc.gov/reactors/atf/longer-term.html>, abgerufen am 23. März 2022.
- /ORNL 17/ Oak Ridge National Laboratory (ORNL): SiC/SiC Cladding Materials Properties Handbook. U.S. Department of Energy (DOE), ORNL/TM-2017/385, 55 S., August 2017.
- /ORNL 18/ Oak Ridge National Laboratory (ORNL): Handbook on the Material Properties of FeCrAl Alloys for Nuclear Applications, ORNL/SPR-2018/905. U.S. Department of Energy (DOE), 18. Aufl., 68 S., 2018.
- /ORT 16/ Ortega, L. H., Blamer, B. J., Evans, J. A., McDeavitt, S. M.: Development of an accident-tolerant fuel composite from uranium mononitride (UN) and uranium sesquisilicide (U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>) with increased uranium loading. *Journal of Nuclear Materials*, Bd. 471, S. 116–121, DOI 10.1016/j.jnucmat.2016.01.014, 2016.
- /PAS 17/ Pastore, G., Gamble, K. A., Hales, J. D.: Modeling Benchmark for FeCrAl Cladding in the IAEA CRP ACTOF: FeCrAl-C35M Material Models and Benchmark Cases Specifications. DOI 10.2172/1468589, 2017.
- /PIN 15/ Pint, B. A., Terrani, K. A., Yamamoto, Y., Snead, L. L.: Material Selection for Accident Tolerant Fuel Cladding. *Metallurgical and Materials Transactions E*, Bd. 2, Nr. 3, S. 190–196, DOI 10.1007/s40553-015-0056-7, 2015.
- /SAN 21/ Sandvik AB: Kanthal® APMT, Material Data Sheet, 2021-02-04. Erreichbar unter <https://www.kanthal.com/en/products/material-datasheets/tube/kanthal-apmt/>, abgerufen am 18. März 2022.
- /SAU 97/ Saunders, S. R. J., Evans, H. E., Li, M., Gohil, D. D., Osgerby, S.: Oxidation growth stresses in an alumina-forming ferritic steel measured by creep deflection. *Oxidation of Metals*, Bd. 48, Nr. 3-4, S. 189–200, DOI 10.1007/BF01670498, 1997.

- /SAU 13/ Sauder, C., Michaux, A., Loupiau, G., Billaud, P., Braun, J.: Assessment of SiC/SiC Cladding for LWRs, 15-19 September 2013, Charlotte NC, USA. Proc. LWR Fuel Performance Meeting TopFuel 2013, 2013.
- /SCH 21/ Schoedel, A.: 2021 Westinghouse Fuel Performance Update Meeting, Enclosure 3: Slide Package (Non-Proprietary). Westinghouse Electric Company LLC (WEC), LTR-NRC-21-26, 215 S., September 2021.
- /SER 19/ Serizawa, H., Nakazato, N., Sato, Y., Tsukamoto, M., Park, J.-S., Kishimoto, H.: Experimental studies on joinability of zircaloy and SiC/SiC composite with titanium powder. Int J Ceramic Eng Sci., Bd. 1, S. 57–63, 2019.
- /SHA 01/ Shackelford, J. F., Alexander, W. (Hrsg.): CRC materials science and engineering handbook. Chemical Rubber Company, 3. Aufl., 1949 S., ISBN 0-8493-2696-6, DOI 48567, CRC Press: Boca Raton, Fla., 2001.
- /SHA 18/ Shah, H., Romero, J., Xu, P., Oelrich, R., Walters, J., Wright, J.: Westinghouse-Exelon EnCore® Fuel Lead Test Rod (LTR) Program including Coated cladding Development and Advanced Pellets. In: European Nuclear Society (ENS) (Hrsg.): Reactor Fuel Performance 2018. TOPFUEL 2018, Prague, Czech Republic, 30. September - 4. Oktober 2018, 2018.
- /SNE 14/ Snead, L. L., Terrani K.A., Katoh, Y., Silva, C., Leonard, K. J., Perez-Bergquist, A. G.: Stability of SiC-matrix microencapsulated fuel constituents at relevant LWR conditions. Journal of Nuclear Materials, Bd. 2014, Nr. 448, S. 389–398, 2014.
- /SON 02/ Sonnenburg, H.-G., Hofer, E., Kloos, M.: Methodenentwicklung zur Analyse des Brennstabverhaltens bei erhöhtem Abbrand. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH (GRS), GRS-A-, Nr. 3079, 76 S., November 2002.

- /STE 22/ Steinbrück, M., Stegmaier, U., Große, M., Czerniak, L., Lahoda, E., Daum, R., Yueh, K.: High-temperature oxidation and quenching of chromium-coated zirconium alloy ATF cladding tubes with and w/o pre-damage. *Journal of Nuclear Materials*, Bd. 559, S. 153470, DOI 10.1016/j.jnucmat.2021.153470, 2022.
- /SUY 19/ Suyama, S., Ukai, M., Akimoto, M., Nishimura, T., Tajima, S.: Hydrothermal Corrosion Behaviors of Constituent Materials of SiC/SiC Composites for LWR Applications. *Ceramics*, Bd. 2, Nr. 4, S. 602–611, DOI 10.3390/ceramics2040047, 2019.
- /TAN 17/ Tang, C., Stueber, M., Seifert, H. J., Steinbrück, M.: Protective coatings on zirconium-based alloys as accident-tolerant fuel (ATF) claddings. *Corrosion Reviews*, Bd. 35, Nr. 3, S. 10, DOI 10.1515/corrrev-2017-0010, 2017.
- /UGR 18/ Ugryumov, A., Dolgov, A., Shishkin, A., Kukushkin, Y.: Strategy for Development of Nuclear Fuel for VVER NPPs. Präsentation, 28ht Symposium of AER on VVER Reactor Physics and Reactor Safety: Olomouc, Czech Republic, 8. Oktober 2018.
- /VAL 15/ Valery, J.-F., Domingo, X., Landau, P., Alameda-Angulo, C., Pechard, C., Laloy, V.: Status on Silicide Fuel Reprocessing at AREVA La Hague. In: *European Nuclear Society (ENS) (Hrsg.): RRFM 2015, European Research Reactor Conference, Bucharest, Romania, 19-23 April 2015: Conference Proceedings*. European Nuclear Society, Internationale Atomenergie-Organisation, Asociația Română Energia Nucleară: Brussels, Belgium, 2015.
- /WAG 18/ Wagih, M., Spencer, B., Hales, J., Shirvan, K.: Fuel performance of chromium-coated zirconium alloy and silicon carbide accident tolerant fuel claddings. *Annals of Nuclear Energy*, Bd. 120, S. 304–318, DOI 10.1016/j.anucene.2018.06.001, 2018.
- /WEC 19/ Westinghouse Electric Company LLC (WEC): EnCore® Fuel. Erreichbar unter [https://www.westinghousenuclear.com/Portals/0/about/stories/2017/Encore\\_fuel\\_brochure\\_8\\_pager\\_062819.pdf?ver=2019-07-09-192913-707](https://www.westinghousenuclear.com/Portals/0/about/stories/2017/Encore_fuel_brochure_8_pager_062819.pdf?ver=2019-07-09-192913-707), abgerufen am 18. März 2022.

- /WEC 22/ Westinghouse Electric Company LLC (WEC): ADOPT-Flysheed. Erreichbar unter <https://www.westinghousenuclear.com/Portals/0/operating%20plant%20services/fuel/ADOPT-Flysheed.pdf>, abgerufen am 14. April 2022.
- /WIL 18/ Wilson, T. L., Moore, E. E., Adorno Lopes, D., Kocevski, V., Sooby Wood, E., White, J. T., Nelson, A. T., McMurray, J. W., Middleburg, S. C., Xu, P., Besmann, T. M.: Uranium nitride-silicide advanced nuclear fuel: higher efficiency and greater safety. *Advances in Applied Ceramics*, Bd. 117, sup1, S. s76-s81, DOI 10.1080/17436753.2018.1521607, 2018.
- /WNN 18/ World Nuclear News (WNN): Hatch unit restarts with accident-tolerant fuel. Stand vom 7. März 2018, erreichbar unter <http://www.world-nuclear-news.org/UF-Hatch-unit-restarts-with-accident-tolerant-fuel-0703184.html>, abgerufen am 16. Juli 2019.
- /WNN 19a/ World Nuclear News (WNN): Further US grant for Framatome EATF development. Stand vom 16. Januar 2019, erreichbar unter <https://www.world-nuclear-news.org/Articles/Further-US-grant-for-Framatome-EATF-development>, abgerufen am 9. Juni 2021.
- /WNN 19b/ World Nuclear News (WNN): Rosatom starts testing Accident-tolerant Fuel for LWRs. Stand vom 29. Januar 2019, erreichbar unter <https://www.world-nuclear-news.org/Articles/Rosatom-starts-testing-accident-tolerant-fuel-for>, abgerufen am 9. Juni 2021.
- /WNN 19c/ World Nuclear News (WNN): Chinese-developed ATF undergoing irradiation tests. Stand vom 24. Januar 2019, erreichbar unter <https://www.world-nuclear-news.org/Articles/Chinese-developed-ATF-undergoing-irradiation-tests>, abgerufen am 9. Juni 2021.
- /WNN 19d/ World Nuclear News (WNN): DOE funding for Westinghouse accident-tolerant fuel development. Stand vom 21. Januar 2019, erreichbar unter <https://www.world-nuclear-news.org/Articles/DOE-funding-for-Westinghouse-ATF-development>, abgerufen am 9. Juni 2021.

- /WNN 22/ World Nuclear News (WNN): 3D printers to be used in Fuel Manufacture. Stand vom 10. März 2022, erreichbar unter <https://www.world-nuclear-news.org/Articles/3D-printers-to-be-used-in-fuel-manufacture>, abgerufen am 7. April 2022.
- /WRI 18/ Wright, J., Anghel, C., Middleburg, S. C., Limbäck, M.: Towards an Increased Understanding of Fuel Pellet and Cladding Features Enhancing the PCI Resistance of LWR Fuel. In: OECD Nuclear Energy Agency (NEA) (Hrsg.): Pellet-Clad Interaction (PCI) in Water-Cooled Reactors, Workshop Proceedings. NEA Working Group on Fuel Safety (WGFS), Lucca, Italy, 22. - 24. Juni 2016, NEA/CSNI/R(2018)9, Oktober 2018.
- /YAM 14/ Yamamoto, Y., Yang, Y., Field, K. G., Terrani, K., Pint, B. A., Snead, L. L.: Letter Report Documenting Progress of Second Generation ATF FeCrAl Alloy Fabrication. ORNL/LTR-2014/219, DOI 10.2172/1134712, 2014.
- /YAM 15/ Yamamoto, Y., Pint, B. A., Terrani, K. A., Field, K. G., Yang, Y., Snead, L. L.: Development and property evaluation of nuclear grade wrought FeCrAl fuel cladding for light water reactors. Journal of Nuclear Materials, Bd. 467, S. 703–716, DOI 10.1016/j.jnucmat.2015.10.019, 2015.
- /YAN 13/ Yang, J. H., Kim, K. S., Kim, D.-J., Kim, J. H., Oh, J. S., Rhee, Young Woo, Koo, Yang-Hyun: Micro-Cell UO<sub>2</sub> Pellets for Enhanced Accident Tolerant Fuel. In: American Nuclear Society (ANS) (Hrsg.): Proc. LWR Fuel Performance Meeting TopFuel. LWR Fuel Performance Meeting TopFuel, Charlotte NC, USA, 15. - 19. September 2013, 2013.
- /ZIN 14/ Zinkle, S. J., Terrani, K. A., Gehin, J. C., Ott, L. J., Snead, L. L.: Accident tolerant fuels for LWRs: A perspective. Journal of Nuclear Materials, Nr. 448, S. 374–379, 2014.



## Abbildungsverzeichnis

Abb. 3.1	Spezifische Wärmekapazität verschiedener Typen von FeCrAl-Legierungen nach /ORNL 18/ .....	17
Abb. 3.2	Thermische Leitfähigkeit verschiedener Typen von FeCrAl-Legierungen nach /ORNL 18/ .....	18
Abb. 3.3	Darstellung des Konzeptes des Mikrozellen-UO <sub>2</sub> Pellets nach /KIM 18/ .....	40
Abb. 3.4	Mikrostruktur eines Chrom-Mikrozellen-UO <sub>2</sub> Pellets – Panoramabild des Pellets entlang der radialen Richtung nach /KIM 18/ .....	40
Abb. 3.5	Mikrostruktur eines keramischen (SiO <sub>2</sub> -TiO <sub>2</sub> ) Mikrozellen UO <sub>2</sub> Pellets. Silizium und Titan sind durch energiedispersive Spektroskopie zu sehen nach /KIM 18/ .....	43
Abb. 3.6	Berechnetes Phasendiagramm für den Molenbruch Silizium von 0 bis 1 und den Temperaturbereich 200 bis 2.000 °C nach /WIL 18/ .....	46
Abb. 3.7	FCM-Kernbrennstoff des Herstellers USNC nach /WNN 22/ .....	56
Abb. 4.1	Schematischer Aufbau von Brennstäben mit Hüllrohren aus Zircaloy, Chrom-beschichtetem Zircaloy und FeCrAl.....	58
Abb. 4.2	Oxidschichtdicke eines chrombeschichteten Zircaloy-Hüllrohrs bei postuliertem KMV mit Hüllrohrbersten.....	60
Abb. 4.3	Grafische Darstellung der Wärmeleitfähigkeit der Chrombeschichtung in Abhängigkeit der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.200 °C (1.473 K).....	61
Abb. 4.4	Spezifische Wärmekapazität von Chrom in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.200 °C (1.473 K).....	62
Abb. 4.5	Spezifische Wärmekapazität von Chromoxid in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.200 °C (1.473 K).....	63
Abb. 4.6	Poissonzahl für C35M und andere FeCrAl-Materialien in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 100 °C (373 K) bis 1.500 °C (1.773 K).....	65
Abb. 4.7	Elastizitätsmodul von FeCrAl im Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 800 °C (1.073 K).....	66

Abb. 4.8	In TESPA-ROD implementierter temperaturabhängiger Verlauf der Zugfestigkeit von C35M für einen Temperaturbereich von 300 °C (573 K) bis 1.400 °C (1.673 K).....	68
Abb. 4.9	Wärmeausdehnungsfaktor von C35M in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.200 °C (1.473 K).....	69
Abb. 4.10	Temperatur- und zeitabhängiges Wachstum des Aluminiumoxids für einen Temperaturbereich von 300 °C (573 K) bis 1.200 °C (1.473 K).....	71
Abb. 4.11	Wärmeleitfähigkeit von C35M in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 300 °C (573 K) bis 1.200 °C (1.473 K).....	73
Abb. 4.12	Wärmeleitfähigkeit von Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.400 °C (1.673 K).....	74
Abb. 4.13	Spezifische Wärmekapazität von C35M in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.200 °C (1.473 K).....	75
Abb. 4.14	Spezifische Wärmekapazität von Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> in Abhängigkeit von der Temperatur für einen Temperaturbereich von 200 °C (473 K) bis 1.200 °C (1.473 K).....	76
Abb. 4.15	Frühere Eingabemaske von TESPA-ROD .....	79
Abb. 4.16	Überarbeitete Eingabemaske von TESPA-ROD .....	80
Abb. 4.17	Schnellauswahl für ATF-Hüllrohrtypen.....	81
Abb. 4.18	Berechnetes Spannungsdiagramm des FeCrAl Hüllrohrs im Vergleich mit teilnehmenden Codes des ACTOF Benchmarks .....	84
Abb. 4.19	Berechnetes Dehnungsdiagramm des FeCrAl Hüllrohrs im Vergleich mit teilnehmenden Codes des ACTOF Benchmarks .....	84

## Tabellenverzeichnis

Tab. 3.1	Zusammenfassung der Eigenschaften der Beschichtungskonzepten nach /NEA 18a/ .....	14
Tab. 3.2	Zusammensetzung verschiedener Typen von ferritischen Stählen in Gewichtsprozent, in Betrachtung als ATF-Hüllrohr (Auswahl).....	16
Tab. 4.1	Auflistung der in TESPAS-ROD im Zusammenhang mit ATF verwendeten Variablen sowie deren Bedeutung .....	77
Tab. 4.2	Spezifikationen des Zry-4 und C35M Hüllrohrs des ACTOF-Benchmarks für den betrieblichen Fall nach /PAS 17/ .....	82



## Abkürzungsverzeichnis

ACTOF	IAEA CRP "Analysis of Options and Experimental Examination of Fuels for Water Cooled Reactors with Increased Accident Tolerance (ACTOF)"
ADOPT™	Advanced Doped Pellet Technology (Westinghouse)
AFC	Advanced Fuels Campaign
ARMOR™	ATF-Technologie von GNF
ASTM	American Society of Testing and Materials
ATF	Accident-tolerant Fuel (alternativ, v. a. in USA: Advanced Technology Fuel)
ATF-TS	IAEA CRP "Testing and Simulation for Advanced Technology and Accident Tolerant Fuels"
CEA	Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives
CNL	Canadian Nuclear Laboratories
CRP	Coordinated Research Project
CSC	Cold Spray Coating
CVD	Chemical Vapor Deposition
CVI	Chemical Vapor Infiltration
DBA	Design-Basis Accident
DEC	Design Extension Conditions
DWR	Druckwasserreaktor
EBC	Environmental Barrier Coating
ECR	Equivalent Cladding Reacted
EGATFL	Expert Group on Accident-tolerant Fuels for Light Water Reactors
EnCore®	ATF-Technologie von Westinghouse
EPRI	Electric Power Research Institute, Inc.
ESCP	Extended Storage Collaboration Program
FeCrAl	Eisen-Chrom-Aluminium Legierung
FFRD	Fuel Fragmentation, Relocation and Dispersal
FIDES	Framework for Irradiation Experiments
GNF	Global Nuclear Fuel
GRS	Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit gGmbH
HTGR	High-Temperature Gas-cooled Reactor
HNS	Siliziumkarbid-Fasertyp
IAEA	International Atomic Energy Agency
IFE-Halden	Institutt for energiteknikk (Institut für Energietechnik) Halden, Norwegen
IMDP	Inert Matrix Dispersion Pellet
INCA	In-pile Creep Studies of ATF Claddings (JEEP in FIDES)
JEEP	Joint Experimental Programme (im Rahmen des FIDES)
KAERI	Korea Atomic Energy Research Institute
KIT	Karlsruhe Institut für Technologie

KMV	Kühlmittelverluststörfall
KTH	Königliche Technische Hochschule in Stockholm, Schweden
LWR	Leichtwasserreaktor
LOCA	Loss-of-Coolant Accident (Kühlmittelverluststörfall)
MMR	Modular Micro Reactor
NFD	Nippon Nuclear Fuel Development Co., Ltd.
NITE	Nano-Infiltration und transientes Eutektikum
NRG	Nuclear Research and Consultancy Group; Forschungsinstitut in den Niederlanden
ODS	Oxid-Dispersed Strengthened
OECD-NEA	Nuclear Energy Agency (of OECD)
OKaP Rig	Probenhalter im JEEP INCA Experiment
ORNL	Oak Ridge National Laboratory
OPR-1000	Optimized Pressurized Reactor 1000 Von KHNP und KEPCO entwickelter, südkoreanischer Druck- wasserreaktor mit 1000 MW <sub>el</sub> Leistung
PCI	Pellet Cladding Interaction
PCMI	Pellet Cladding Mechanical Interaction
PLS	Proportional Limit stress
PROtect™	ATF-Technologie von Framatome
PSU	Pennsylvania State University
PVD	Physical Vapor Deposition
RIA	Reactivity Initiated Accident
SA3	Siliziumkarbid-Fasertyp
SiC	Siliziumkarbid
SWR	Siedewasserreaktor
TESPA-ROD	Temperature and Strain Probabilistic Analysis – Rod-wise GRS-Brennstabcode
TOPATF	Topical Opinion Paper on Accident-tolerant Fuels
TopFuel	Light Water Reactor Fuel Performance Conference
TRISO	Tri-struktureller isotroper Partikelbrennstoff
TRL	Technological Readiness Level
TVEL	Russ. <i>Teplovydelyayushchiy Element</i> (heat-releasing element, Brennstab) Hier: Name der Firma TVEL Fuel Company (JSC)
UIUC	University of Illinois Urbana-Champaign
USNC	Ultra Safe Nuclear Corporation
UW-Madison	University of Wisconsin-Madison
VVER	Russ. <i>Vodo-vodjanoj énergetičeskij reaktor</i> (Wasser-Wasser-Energie-Reaktor)
WGFS	Working Group for Fuel Safety
WPRS	Working Party on Scientific Issues of Reactor Systems

## Anhang A: Publikationen

- Boldt, F., Sakamoto, K.: Chapter 3. Iron-chromium-aluminium (FeCrAl) fuel rod cladding, in: OECD Nuclear Energy Agency (NEA): *Applicability of Nuclear Fuel Safety Criteria to Accident-Tolerant Fuel Designs*, CSNI Technical Opinion Paper No. 19. Report, Nr. 7576: Paris, Frankreich, 2022.
- Eisenstecken, T., Aures, A.; Henry, R.; Kilger, R.: *Application of the GRS core simulator KMACS on Accident Tolerant Fuels*. International Nuclear Atlantic Conference – INAC 2021; November 29 – December 2, 2021, Brazil (virtual meeting).
- Sappl J., Boldt F., Kilger R.: *Implementation of FeCrAl Cladding Models in Fuel Rod Code TESP-ROD*. Kerntechnik 2022; wird im Laufe des Jahres 2022 veröffentlicht.

**Gesellschaft für Anlagen-  
und Reaktorsicherheit  
(GRS) gGmbH**

Schwertnergasse 1  
**50667 Köln**

Telefon +49 221 2068-0

Telefax +49 221 2068-888

Boltzmannstraße 14

**85748 Garching b. München**

Telefon +49 89 32004-0

Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200

**10719 Berlin**

Telefon +49 30 88589-0

Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4

**38122 Braunschweig**

Telefon +49 531 8012-0

Telefax +49 531 8012-200

[www.grs.de](http://www.grs.de)