

EUR 116.d

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT - EURATOM

HERSTELLUNG VON UO_2 - UND UO_2 - BeO -
MISCHPELLETS

1962



Schlussbericht abgefasst vom
BATTELLE - INSTITUT E. V. - FRANKFURT AM MAIN
in Rahmen des Euratom Vertrages Nr 015/60/9 RDD

HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist mit Unterstützung und Förderung der Kommission der Europäischen Atomgemeinschaft (Euratom) ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, das die Euratomkommission, ihre Vertragspartner und alle in ihrem Namen handelnden Personen

- 1° — keine Gewähr dafür übernehmen, dass die in diesem Dokument enthaltenen Informationen richtig und vollständig sind oder dass die Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden und Verfahren nicht gewerbliche Schutzrechte verletzt ;
- 2° — keine Haftung für Schäden übernehmen, die infolge der Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen oder der in diesem Dokument bekanntgegebenen technischen Anordnungen, Methoden oder Verfahren entstehen könnten.

Dieser Bericht wird zum Preise von 30 bfrs. verkauft. Bestellungen sind zu richten an : PRESSES ACADEMIQUES EUROPEENNES, 98, chaussée de Charleroi, Brüssel 6, Belgien.

Die Zahlung ist zu leisten durch Überweisung :

- an die BANQUE DE LA SOCIETE GENERALE (Agence Ma Campagne) - Konto Nr. 964.558 ;
- an die BELGIAN AMERICAN BANK and TRUST COMPANY - New York - Konto Nr. 121.86 ;
- an die LLOYDS BANK (Foreign) Ltd. - 10 Moor-gate - London E.C.2 ;

als Bezug ist anzugeben : « EUR 116.d — Herstellung von UO_2 - und UO_2 - BeO - Mischpellets ».

E U R 1 1 6 . d

HERSTELLUNG VON UO_2 - UND UO_2 -BeO MISCHPELLETS.

Europäische Atomgemeinschaft - Euratom.

Battelle - Institut E.V. - Frankfurt am Main

Schlussbericht des Euratom Vertrages Nr 015-60-9RDD.

Brüssel, Oktober 1962 - 21 Seiten + 4 Bilder.

Ziel der nachstehend beschriebenen Forschungsarbeiten war es, Sinterkörper aus UO_2 sowie aus UO_2 mit Zusätzen von BeO herzustellen, die Herstellungsbedingungen zu erarbeiten und die thermische Ausdehnung der Sinterkörper bis $1100^\circ C$ sowie ihre Wärmeleitfähigkeit bis $800^\circ C$ und wenn möglich bis $1000^\circ C$ zu messen.

Zur gefahrlosen Handhabung des radioaktiven UO_2 und des toxischen BeO wurde ein Speziallaboratorium eingerichtet.

Die zur Verfügung stehenden Ausgangspulver wurden durch Bestimmung ihrer spezifischen Oberfläche nach der BET-Methode und ihres Uran-Sauerstoffverhältnisses nach der Oxydationsmethode charakterisiert.

Durch Press- und Sinterversuche wurden die UO_2 -Pulver auf ihr Sinterverhalten untersucht.

Neben reinen UO_2 -Prüfkörpern wurden Prüfkörper mit Zusätzen von 5, 10, 15 und 20 Vol.-% BeO durch Kaltpressen der Pulvermischungen mit anschließender Sinterung bei Temperaturen von maximal $1600^\circ C$ in Wasserstoffatmosphäre hergestellt. Die Dichte der gesinterten Prüfkörper betrug 95 % der theoretischen Dichte

E U R 1 1 6 . d

MANUFACTURE OF UO_2 -BeO - RO MIXED PELLETS.

European Atomic Energy Community - Euratom Frankfurt am Main Battelle -

Institut E.V. - Final Report on Euratom Contract N° 015-60-9RDD.

Brussels, October 1962 - pages - 21 + figures 4.

The investigations were aimed at preparing sintered of UO_2 as well as of UO_2 with additions BeO, studying the manufacturing conditions, and determining the thermal expansion of the sintered bodies up to a temperature of $1,100^\circ C$ and their thermal conductivity up to a temperature of $1,000^\circ C$ as a function of the BeO addition.

Powders of different origin were characterized by determination of their specific surface by the BET method and their uranium-oxygen ratio by the oxydation method; the UO_2 powders were in addition examined for their sintering behaviour by pressing and sintering experiments.

The test specimens of UO_2 and those of UO_2 with additions of 5, 10, 15, and 20 per cent BeO by volume were prepared by cold-pressing, without using binders or lubricants, and subsequent sintering in hydrogen atmosphere at a maximum

E U R 1 1 6 . d

MANUFACTURE OF UO_2 -BeO - RO MIXED PELLETS.

European Atomic Energy Community - Euratom Frankfurt am Main Battelle -

Institut E.V. - Final Report on Euratom Contract N° 015-60-9RDD.

Brussels, October 1962 - pages - 21 + figures 4.

The investigations were aimed at preparing sintered of UO_2 as well as of UO_2 with additions BeO, studying the manufacturing conditions, and determining the thermal expansion of the sintered bodies up to a temperature of $1,100^\circ C$ and their thermal conductivity up to a temperature of $1,000^\circ C$ as a function of the BeO addition.

Powders of different origin were characterized by determination of their specific surface by the BET method and their uranium-oxygen ratio by the oxydation method; the UO_2 powders were in addition examined for their sintering behaviour by pressing and sintering experiments.

The test specimens of UO_2 and those of UO_2 with additions of 5, 10, 15, and 20 per cent BeO by volume were prepared by cold-pressing, without using binders or lubricants, and subsequent sintering in hydrogen atmosphere at a maximum

E U R 1 1 6 . d

MANUFACTURE OF UO_2 -BeO - RO MIXED PELLETS.

European Atomic Energy Community - Euratom Frankfurt am Main Battelle -

Institut E.V. - Final Report on Euratom Contract N° 015-60-9RDD.

Brussels, October 1962 - pages - 21 + figures 4.

The investigations were aimed at preparing sintered of UO_2 as well as of UO_2 with additions BeO, studying the manufacturing conditions, and determining the thermal expansion of the sintered bodies up to a temperature of $1,100^\circ C$ and their thermal conductivity up to a temperature of $1,000^\circ C$ as a function of the BeO addition.

Powders of different origin were characterized by determination of their specific surface by the BET method and their uranium-oxygen ratio by the oxydation method; the UO_2 powders were in addition examined for their sintering behaviour by pressing and sintering experiments.

The test specimens of UO_2 and those of UO_2 with additions of 5, 10, 15, and 20 per cent BeO by volume were prepared by cold-pressing, without using binders or lubricants, and subsequent sintering in hydrogen atmosphere at a maximum

der jeweiligen Mischung. Sie differierte bei den Mischkörpern verschiedener Zusammensetzung um maximal $\pm 0.4\%$ der theoretischen Dichte.

Die Wärmeleitfähigkeit der Sinterkörper wurde in einer zylindrischen Anordnung, bei der mehrere Pellets aneinander gereiht wurden, durch Bestimmung der zugeführten Wärmemenge und des radialen Wärmeflusses gemessen. Die Ergebnisse zeigen eine Zunahme der Wärmeleitfähigkeit mit steigendem BeO-Gehalt.

Ein Zusatz von 20 Vol.-% BeO ergab gegenüber reinem UO_2 eine Verdoppelung der Wärmeleitfähigkeit. Der mittlere relative Fehler bei der Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit betrug

$$\frac{\delta \lambda}{\lambda} = \pm 8 \%$$

Zur Messung der thermischen Ausdehnung wurde eine vertikale Versuchsanordnung gewählt. Die Ergebnisse lassen keine eindeutige Abhängigkeit der Wärmeausdehnung vom BeO-Gehalt erkennen. Geringe Schwankungen der gemessenen Werte liegen im Bereich der Messgenauigkeit von $\pm 0.2 \text{ cm} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$.

Zur Klärung der Frage, ob eventuell geringe Mengen BeO in das UO_2 -Kristallgitter eingelagert werden, wurden Röntgenfeinstrukturuntersuchungen durchgeführt. Hierzu wurde die Gitterkonstante des UO_2 einer Probe der Zusammensetzung 80 Vol.-% UO_2 und 20 Vol.-% BeO mit der von reinen UO_2 verglichen. Eine geringe Differenz der Gitterkonstanten wurde festgestellt, die jedoch innerhalb der Messgenauigkeit von 0,000.05 Å liegt.

Das Gefüge der verschiedenen zusammengesetzten Sinterkörper wurde an Anschliffen mikroskopisch untersucht.

temperature of 1,600°C. The density of the sintered bodies amounted to 95 per cent of the theoretical density of the corresponding mixture. It differed by a maximum of ± 0.4 per cent.

The thermal conductivity was measured by determination of the amount of heat supplied and of the radial heat flow. The results show an increase in the thermal conductivity with increasing BeO content. The addition of 20 per cent BeO by volume caused duplication of the thermal conductivity related to that of pure UO_2 . The mean relative error amounted to

$$\frac{\delta \lambda}{\lambda} = \pm 8 \text{ per cent.}$$

The thermal expansion was measured in a vertical experimental arrangement. The results do not show a welldefined dependence of the thermal expansion on the BeO content. Small fluctuations of the measured values are within the range of accuracy of measurement of $\pm 0.2 \cdot 10^{-6} \text{ cm} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$.

Determinations of the lattice constants of UO_2 on a specimen of pure UO_2 as well as on a specimen of UO_2 with addition of 20 per cent BeO by volume showed a small difference which, however, is within the accuracy of measurement of 0.000.05 Å.

The structure of the individual sintered bodies was examined by microscopic inspection of polished sections.

temperature of 1,600°C. The density of the sintered bodies amounted to 95 per cent of the theoretical density of the corresponding mixture. It differed by a maximum of ± 0.4 per cent.

The thermal conductivity was measured by determination of the amount of heat supplied and of the radial heat flow. The results show an increase in the thermal conductivity with increasing BeO content. The addition of 20 per cent BeO by volume caused duplication of the thermal conductivity related to that of pure UO_2 . The mean relative error amounted to

$$\frac{\delta \lambda}{\lambda} = \pm 8 \text{ per cent.}$$

The thermal expansion was measured in a vertical experimental arrangement. The results do not show a welldefined dependence of the thermal expansion on the BeO content. Small fluctuations of the measured values are within the range of accuracy of measurement of $\pm 0.2 \cdot 10^{-6} \text{ cm} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$.

Determinations of the lattice constants of UO_2 on a specimen of pure UO_2 as well as on a specimen of UO_2 with addition of 20 per cent BeO by volume showed a small difference which, however, is within the accuracy of measurement of 0.000.05 Å.

The structure of the individual sintered bodies was examined by microscopic inspection of polished sections.

temperature of 1,600°C. The density of the sintered bodies amounted to 95 per cent of the theoretical density of the corresponding mixture. It differed by a maximum of ± 0.4 per cent.

The thermal conductivity was measured by determination of the amount of heat supplied and of the radial heat flow. The results show an increase in the thermal conductivity with increasing BeO content. The addition of 20 per cent BeO by volume caused duplication of the thermal conductivity related to that of pure UO_2 . The mean relative error amounted to

$$\frac{\delta \lambda}{\lambda} = \pm 8 \text{ per cent.}$$

The thermal expansion was measured in a vertical experimental arrangement. The results do not show a welldefined dependence of the thermal expansion on the BeO content. Small fluctuations of the measured values are within the range of accuracy of measurement of $\pm 0.2 \cdot 10^{-6} \text{ cm} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$.

Determinations of the lattice constants of UO_2 on a specimen of pure UO_2 as well as on a specimen of UO_2 with addition of 20 per cent BeO by volume showed a small difference which, however, is within the accuracy of measurement of 0.000.05 Å.

The structure of the individual sintered bodies was examined by microscopic inspection of polished sections.

EUR 116.d

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT - EURATOM

HERSTELLUNG VON UO_2 - UND UO_2 - BeO -
MISCHPELLETS

1962



Schlussbericht abgefasst vom
BATTELLE - INSTITUT E. V. - FRANKFURT AM MAIN
in Rahmen des Euratom Vertrages Nr 015/60/9 RDD

I N H A L T

	<u>Seite</u>
1. Zusammenfassung	1
2. Einleitung	2
3. Einrichtung des Berylliumlaboratoriums	5
4. Charakterisierung der Ausgangsstoffe	6
5. Preß- und Sinterversuche	8
6. Herstellung der Prüfkörper	11
7. Wärmeleitfähigkeitsmessungen	13
8. Messung der Wärmeausdehnung	16
9. Röntgenfeinstrukturuntersuchungen	17
10. Mikroskopische Untersuchungen	19
Literatur	21

HERSTELLUNG VON UO_2 - UND UO_2 -BeO - MISCHPELLETS

ZUSAMMENFASSUNG

Ziel der nachstehend beschriebenen Forschungsarbeiten war es, Sinterkörper aus UO_2 sowie aus UO_2 mit Zusätzen von BeO herzustellen, die Herstellungsbedingungen zu erarbeiten und die thermische Ausdehnung der Sinterkörper bis $1100^\circ C$ sowie ihre Wärmeleitfähigkeit bis $800^\circ C$ und wenn möglich bis $1000^\circ C$ zu messen.

Zur gefahrlosen Handhabung des radioaktiven UO_2 und des toxischen BeO wurde ein Spezlaboratorium eingerichtet.

Die zur Verfügung stehenden Ausgangspulver wurden durch Bestimmung ihrer spezifischen Oberfläche nach der BET-Methode und ihres Uran-Sauerstoffverhältnisses nach der Oxydationsmethode charakterisiert.

Durch Press- und Sinterversuche wurden die UO_2 -Pulver auf ihr Sinterverhalten untersucht.

Neben reinen UO_2 -Prüfkörpern wurden Prüfkörper mit Zusätzen von 5, 10, 15 und 20 Vol.-% BeO durch Kaltpressen der Pulvermischungen mit anschließender Sinterung bei Temperaturen von maximal $1600^\circ C$ in Wasserstoffatmosphäre hergestellt. Die Dichte der gesinterten Prüfkörper betrug 95 % der theoretischen Dichte der jeweiligen Mischung. Sie differierte bei den Mischkörpern verschiedener Zusammensetzung um maximal $\pm 0,4$ % der theoretischen Dichte.

Die Wärmeleitfähigkeit der Sinterkörper wurde in einer zylindrischen Anordnung, bei der mehrere Pellets aneinander gereiht wurden, durch Bestimmung der zugeführten Wärmemenge und des radialen Wärmeflusses gemessen. Die Ergebnisse zeigen eine Zunahme der Wärmeleitfähigkeit mit steigendem BeO-Gehalt.

Ein Zusatz von 20 Vol.-% BeO ergab gegenüber reinem UO_2 eine Verdoppelung der Wärmeleitfähigkeit. Der mittlere relative Fehler bei der Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit betrug

$$\frac{\Delta \lambda}{\lambda} = \pm 8 \%$$

Zur Messung der thermischen Ausdehnung wurde eine vertikale Versuchsanordnung gewählt. Die Ergebnisse lassen keine eindeutige Abhängigkeit der Wärmeausdehnung vom BeO-Gehalt erkennen. Geringe Schwankungen der gemessenen Werte liegen im Bereich der Messgenauigkeit von $\pm 0,2$ $cm \cdot cm^{-1} \cdot ^\circ C^{-1}$.

Zur Klärung der Frage, ob eventuell geringe Mengen BeO in das UO_2 -Kristallgitter eingelagert werden, wurden Röntgenfeinstrukturuntersuchungen durchgeführt. Hierzu wurde die Gitterkonstante des UO_2 einer Probe der Zusammensetzung 80 Vol.-% UO_2 und 20 Vol.-% BeO mit der von reinem UO_2 verglichen. Eine geringe Differenz der Gitterkonstanten wurde festgestellt, die jedoch innerhalb der Messgenauigkeit von $0,000.05 \text{ \AA}$ liegt.

Das Gefüge der verschiedenen zusammengesetzten Sinterkörper wurde an Anschliffen mikroskopisch untersucht.

SUMMARY

The investigations were aimed at preparing sintered bodies of UO_2 as well as of UO_2 with additions of BeO, studying the manufacturing conditions, and determining the thermal expansion of the sintered bodies up to a temperature of 1,100°C and their thermal conductivity up to a temperature of 1,000°C as a function of the BeO addition.

Powders of different origin were characterized by determination of their specific surface by the BET method and their uranium-oxygen ratio by the oxydation method; the UO_2 powders were in addition examined for their sintering behaviour by pressing and sintering experiments.

The test specimens of UO_2 and those of UO_2 with additions of 5, 10, 15, and 20 per cent BeO by volume were prepared by cold-pressing, without using binders or lubricants, and subsequent sintering in hydrogen atmosphere at a maximum temperature of 1,600°C. The density of the sintered bodies amounted to 95 per cent of the theoretical density of the corresponding mixture. It differed by a maximum of $\pm 0,4$ per cent.

The thermal conductivity was measured by determination of the amount of heat supplied and of the radial heat flow. The results show an increase in the thermal conductivity with increasing BeO content. The addition of 20 per cent BeO by volume caused duplication of the thermal conductivity related to that of pure UO_2 . The mean relative error amounted to $\frac{\Delta \lambda}{\lambda} = \pm 8$ per cent.

The thermal expansion was measured in a vertical experimental arrangement. The results do not show a welldefined dependence of the thermal expansion on the BeO content. Small fluctuations of the measured values are within the range of accuracy of measurement of $\pm 0,2 \cdot 10^{-6} \text{ cm} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{°C}^{-1}$.

Determinations of the lattice constants of UO_2 on a specimen of pure UO_2 as well as on a specimen of UO_2 with addition of 20 per cent BeO by volume showed a small difference which, however, is within the accuracy of measurement of 0,000,05 Å.

The structure of the individual sintered bodies was examined by microscopic inspection of polished sections.

2. Einleitung

Die Entwicklung von Leistungsreaktoren zur wirtschaftlichen Erzeugung elektrischer Energie aus Kernenergie ist durch das Bestreben gekennzeichnet, bessere Wirkungsgrade durch höhere Betriebstemperaturen zu erzielen. Erhöhte Betriebstemperaturen erfordern jedoch Kernbrennstoffe, die die gewünschten Temperaturen aushalten.

Aus diesem Grunde wird in Siedewasserreaktoren als Kernbrennstoff teilweise bereits Urandioxyd verwendet, das einen Schmelzpunkt von 2870°C hat und bis zu dieser Temperatur keine Modifikationsänderungen erfährt. Gegenüber Uranmetall ist die Wärmeleitfähigkeit von Urandioxyd jedoch wesentlich geringer. Die geringere Wärmeleitfähigkeit bedingt aber neben anderen Werkstoffeigenschaften eine ungenügende Beständigkeit gegenüber Temperaturwechseln. Die beim An- und Abschalten des Reaktors auftretenden Temperaturänderungen können daher zu einer vorzeitigen Zerstörung der UO_2 -Sinterkörper führen.

Ein weiterer in der Reaktortechnik verwendeter Werkstoff ist Berylliumoxyd, das gleichfalls einen hohen Schmelzpunkt von 2550°C und keine Modifikationsänderungen aufweist. Das Berylliumoxyd zeichnet sich vor allem durch seinen geringen Einfangsquerschnitt für thermische Neutronen aus und übertrifft im Hinblick auf seine Wärmeleitfähigkeit alle anderen oxydischen Werkstoffe. Bei Raumtemperatur erreicht die Wärmeleitfähigkeit von BeO nahezu die der Metalle (z. B. Nickel, Eisen, Tantal, Molybdän).

Aus vorstehend genannten Gründen erschien es daher sinnvoll zu untersuchen, ob und in welchem Maße sich die Wärmeleitfähigkeit von UO_2 -Sinterkörpern durch Zusätze von BeO erhöhen läßt und welchen Einfluß diese Zusätze auf die thermische Ausdehnung der Sinterkörper haben. Das Temperaturwechselverhalten keramischer Werkstoffe hängt in gewissem Umfang von diesen Eigenschaften ab.

Ziel der Forschungsarbeiten war daher, Prüfkörper verschiedener Zusammensetzung herzustellen, die Herstellungsbedingungen zu erarbeiten und die Wärmeleitfähigkeit der Prüfkörper bis 800°C und wenn möglich bis 1000°C sowie ihre thermische Ausdehnung bis 1100°C zu messen.

Die Prüfkörper sollten Zusätze an BeO bis maximal 20 Vol.-% und an Erdalkalioxyden, z. B. CaO, MgO und BaO bis maximal 2 Gew.-% enthalten, wobei der UO_2 -Gehalt des Fertigproduktes 80 Vol.-% oder mehr betragen sollte. Als Ausgangsstoffe standen drei UO_2 - und zwei BeO-Pulver verschiedener Herkunft und verschiedener Eigenschaften zur Verfügung. Die Mischungen sollten - gegebenenfalls unter Verwendung von Binde- und/oder Gleitmitteln - kaltgepreßt und die Formlinge in Wasserstoff oder gespaltenem Ammoniak bei Temperaturen bis maximal $1600^{\circ}C$ gesintert werden. Die Dichte der gesinterten Prüfkörper sollte zwischen 92 und 96 % der theoretischen Dichte des jeweiligen Gemisches liegen. Zum Vergleich der thermischen Eigenschaften der Mischkörper gegenüber UO_2 -Sinterkörpern ohne Zusätze waren Kontrollkörper aus reinem UO_2 herzustellen.

Ursprünglich war ein Zusatz von Erdalkalioxyden vorgesehen, um die Sinterung zu fördern und um die verlangte Dichte bei einer maximalen Sintertemperatur von $1600^{\circ}C$ zu erreichen. Im Verlauf der Arbeiten stellte sich jedoch heraus, daß diese Forderung durch die Verwendung einer UO_2 -Qualität von hoher Feinheit und einem günstigen U/O-Verhältnis ohne derartige Zusätze erfüllt werden kann. Im Einvernehmen mit dem Auftraggeber wurde deshalb auf die Verwendung dieser Zusätze verzichtet.

Weiterhin wurden Röntgenfeinstrukturuntersuchungen sowie mikroskopische Untersuchungen durchgeführt. Während die Röntgenfeinstrukturuntersuchungen Aufschluß darüber geben sollten, ob eventuell ein Teil des BeO im UO_2 -Kristallgitter eingelagert wird, was durch Änderung der Gitterkonstanten des UO_2 nachgewiesen werden könnte, sollten mikroskopische Aufnahmen von angeschliffenen Sinterkörpern ein Bild von der Verteilung des BeO in den Mischpellets vermitteln.

Da UO_2 als radioaktives und BeO als toxisches Material in Pulverform in höchstem Maße gesundheitsschädigend sind, war es zur Durchführung der Arbeiten mit diesen Stoffen erforderlich, ein Speziallaboratorium einzurichten, das deren sichere Handhabung gestattete.

3. Einrichtung des Berylliumlaboratoriums

Das Berylliumlaboratorium wurde entsprechend den Empfehlungen der Gesundheitskommission der US-Atomenergiekommission (1) eingerichtet. Es hat einschließlich der Schleuse, durch die es allein betreten werden kann, eine Grundfläche von 56 m^2 . Die Schleuse ist völlig mit Wand- und Steinzeugbodenfliesen ausgekleidet und in drei Abteile geteilt. Das erste und dritte Abteil enthält Spinde für Tageskleidung bzw. für Schutzbekleidung, während im mittleren Abteil eine Dusche sowie eine Toilette installiert sind.

Das eigentliche Laboratorium ist ebenfalls bis unter die Decke mit Wandfliesen ausgekleidet, während der Fußboden aus einem PVC-Bahnenbelag besteht, dessen Bahnen nahtlos miteinander verschweißt sind. Die Labordecke aus mit Kunststoff wasserdicht verleimten Spanholzplatten ist mit einem wasserdichten und wasserfesten Kunststoffanstrich versehen. Die Raumbeleuchtung befindet sich in Lichtkästen, die in die Decke eingelassen sind und deren Glasscheiben mit der Decke abschließen. Somit kann das Laboratorium jederzeit leicht mit Wasser gereinigt werden.

Laboratorium und Schleuse werden durch eine Ventilationsanlage be- und entlüftet. Die Ventilation hat eine Leistung von $4000 \text{ m}^3/\text{h}$ und gestattet einen 20maligen Luftwechsel pro Stunde. Die eintretende Luft wird gefiltert und mit elektrischen Lufterhitzern auf die gewünschte Raumtemperatur erwärmt, so daß

auf Heizkörper im Laboratorium verzichtet werden konnte. Die Abluft wird über Mikrosorbanfilter geleitet, die einen Abscheidegrad von 99,9 % bezogen auf ein Grenzkorn von 0,3 μ haben.

Im Laboratorium sind zwei Handschuhboxen aus V2A-Stahl, ein Sinterofen, eine Presse sowie Misch- und Zerkleinerungseinrichtungen installiert. Die Handschuhboxen und die Presse sind abluftseitig direkt an die Ventilationsanlage angeschlossen, so daß sich an ihren Öffnungen Luftgeschwindigkeiten von 150 m/min ergeben und eine gefahrlose Handhabung des pulverförmigen Materials gewährleistet ist.

4. Charakterisierung der Ausgangsstoffe

Zur Herstellung der Prüfkörper, an denen die thermische Ausdehnung und die Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Zusammensetzung und von der Temperatur bestimmt werden sollten, standen folgende Ausgangsstoffe zur Verfügung:

- a) UO_2 -Pulver, nuklear rein, in "ceramic grade"-Qualität der Feinheit unter 325 mesh von nachstehenden Herstellerfirmen:
1. Eldorado Mining and Refining, Ltd., Port Hope, Ontario, Canada
 2. Mallinckrodt, St. Louis, USA
 3. Nukem GmbH., Wolfgang bei Hanau, Deutschland
- b) BeO -Pulver, nuklear rein, in "ceramic grade"-Qualität der Feinheit unter 325 mesh von
1. Brush Beryllium Company, Cleveland 3, Ohio
 2. Péciney, Paris.

Die Charakterisierung der Ausgangsstoffe diente zur Ermittlung derjenigen Pulver-Qualitäten, deren Sinterereigenschaften es ermöglichen, ohne wesentliche Schwierigkeiten die geforderte Sinterdichte von 92 bis 96 % der theoretischen Dichte des jeweiligen Gemisches bei einer Sintertemperatur von ca. 1600°C zu erreichen.

Die wesentliche Stoffeigenschaft, die die Sinterfähigkeit von Pulvern bestimmt, ist deren Feinheit ausgedrückt durch die spezifische Oberfläche. Bei UO₂-Pulvern ist darüber hinaus die Sinterfähigkeit auch noch abhängig von der Art des Ausgangsmaterials (Ammoniumdiuranat, Uranylнитrat usw.) und von den Herstellungsbedingungen. Von erheblicher Bedeutung hierfür ist das Verhältnis Uran zu Sauerstoff; es kann als Maß für die zu erwartende Sinterfähigkeit herangezogen werden (2, 3).

Die Bestimmung der spezifischen Oberfläche erfolgte nach der Methode von Brunauer, Emmett und Teller (BET-Methode) (4). Das Uran-Sauerstoff-Verhältnis wurde nach der Oxydationsmethode (5) bestimmt, da diese Methode zur Charakterisierung der Ausgangspulver genügend genau ist und den geringsten Aufwand erfordert.

Es wurden die in Tabelle 1 angegebenen Werte ermittelt:

Tabelle 1 Spezifische Oberfläche und U : O-Verhältnis der Ausgangspulver

	spez. Oberfläche m ² /g	U:O-Verhältnis
UO ₂ von Eldorado	6,83	2,233
UO ₂ von Mallinckrodt	3,36	2,114
UO ₂ von Nukem	3,68	2,099
BeO von Brush	14,7	-
BeO von Péchiney	6,0	-

5. Preß- und Sinterversuche

Zuerst wurden die Bedingungen für die Herstellung der Prüfkörper erarbeitet und hierzu Preß- und Sinterversuche durchgeführt, da die erzielbare Dichte außer von den im Vorstehenden beschriebenen Eigenschaften weiterhin auch vom Preßdruck, von der Sinter-temperatur, der Sinterzeit und von der Sinteratmosphäre abhängt.

Die Versuche wurden zunächst nur mit UO_2 ohne Zusätze durchgeführt, um auf diese Weise die für die eigentliche Prüfkörperherstellung am besten geeignete UO_2 -Qualität auswählen zu können.

Die UO_2 -Pulver wurden mit $0,7 \text{ t/cm}^2$ Preßdruck vorgepreßt, die Preßkörper zerdrückt und durch Absiebung Granulate verschiedener Körnungen hergestellt. Diese Granulate wurden mit verschiedenen Preßdrücken zu Pellets verpreßt.

Preßhilfen in Form von Binde- und/oder Gleitmitteln brauchten den Massen nicht zugesetzt werden. Es genügte, die Preßwerkzeuge, die mit einem Gleitmantel ausgestattet waren, mit Zinkstearat auszuwischen.

Die Preßkörper wurden anschließend in einem Ofen mit Molybdän-Heizleitern in Wasserstoffatmosphäre nach folgendem Programm gesintert: Der Ofen wurde in ca. 3 h auf 1000°C und dann mit 300°C/h bis auf 1600°C aufgeheizt. Diese Temperatur wurde 1 h gehalten und danach das Brenngut mit einem Temperaturabfall von 300°C/h auf 1000°C abgekühlt. Die weitere Abkühlung bis auf Raumtemperatur erforderte entsprechend der Wärmekapazität des Ofens ca. 6 bis 7 h.

In Tabelle 2 sind die Sinterdichten in Prozent der theoretischen Dichte in Abhängigkeit vom Preßdruck angegeben. Als Ausgangsgranulat war in diesem Fall ein Granulat der Körnung von 0,2

bis 0,4 mm Durchmesser verwendet worden, der Körnung, die sich in den Versuchen als am günstigsten erwiesen hatte.

Tabelle 2 Abhängigkeit der Sinterdichte vom Preßdruck bei Sinterkörpern von 12 mm Durchmesser und ca. 10 mm Höhe (Sintertemperatur 1600°C; Haltezeit 1 h)

UO ₂ -Pulver von:	Preßdruck t/cm ²	Sinterdichte % d. theoret.
Eldorado	1,50	95,3
	2,25	95,3
	3,00	95,0
Mallinckrodt	1,50	88,7
	2,25	90,6
	3,00	91,5
Nukem	1,50	88,5
	2,25	90,9
	3,00	91,7

Wie Tabelle 2 erkennen läßt, war die geforderte Dichte bei Verwendung des UO₂-Pulvers von Eldorado ohne weiteres zu erreichen. Die Sinterergebnisse der verschiedenen UO₂-Pulver stimmen damit gut mit den Erwartungen überein, die auf Grund der Werte für die spezifische Oberfläche und das U/O-Verhältnis daran geknüpft worden waren. Während die UO₂-Pulver von Mallinckrodt und Nukem in ihrem Preß- und Sinterverhalten einander sehr ähnlich sind und eine Abhängigkeit der Sinterdichte vom Preßdruck erkennen lassen, ist die Sinterdichte beim UO₂ von Eldorado nur wenig vom Preßdruck abhängig. Für die weiteren Versuche mit Zusätzen von BeO wurde daher das UO₂-Pulver von Eldorado verwendet.

Von den zur Verfügung stehenden BeO-Pulvern wurde das BeO-Pulver von Péchiney ausgewählt, das etwa die gleiche spezifische Oberfläche hat wie das UO_2 von Eldorado. Diese Wahl erfolgte aus folgendem Grund: Das thermische Verhalten von Sinterkörpern wird vor allem von der Zahl, der Größe und Form der Poren sowie von der Größe und Form der Kristallite beeinflusst. Deshalb wurde angestrebt, diese Einflußfaktoren für alle Mischungen aus UO_2 und BeO durch gleiche Sinterbedingungen weitgehend konstant zu halten. Auf diese Weise sollte versucht werden, den effektiven Einfluß von BeO-Zusätzen auf die thermischen Eigenschaften der UO_2 -BeO-Mischkörper bestimmen zu können und andere Einflußfaktoren möglichst zu eliminieren.

Um eine mengenmäßig exakte Zusammensetzung der Sinterkörper zu gewährleisten, wurden bei der Einwaage der Mischungen der Wassergehalt in Form von Adhäsionsfeuchtigkeit und Hydratwasser beim BeO sowie der Gewichtsverlust durch den beim reduzierenden Sintern frei werdenden, überschüssigen Sauerstoff des UO_2 berücksichtigt. Die Ausgangsstoffe wurden in Sintertonermøhlen jeweils 4 h gemischt. Aus diesen Mischungen wurden, wie oben beschrieben, Granulate der Körnung von 0,2 bis 0,4 mm hergestellt und damit Preß- und Sinterversuche durchgeführt.

In Tabelle 3 sind die Werte der Sinterdichte und der Schwindung in Abhängigkeit vom optimalen Preßdruck für UO_2 - und UO_2 -BeO-Sinterkörper bei in allen Fällen gleicher Sintertemperatur und Haltezeit angegeben.

Tabelle 3 Abhängigkeit der Sinterdichte und Schwindung vom optimalen Preßdruck für UO_2 - und UO_2 -BeO-Sinterkörper von 20 mm Durchmesser und ca. 10 mm Höhe (Sintertemperatur $1600^{\circ}C$, Haltezeit 1 h)

Zusammensetzung	Preßdruck t/cm^2	Sinterdichte		Schwindung %
		g/cm^3	% d.theoret.	
UO_2	1,25	10,42	95,0	23,74
UO_2 + 5 % BeO	1,00	10,05	95,2	23,86
UO_2 + 10 % BeO	1,00	9,71	95,4	23,86
UO_2 + 15 % BeO	1,00	9,24	94,6	23,23
UO_2 + 20 % BeO	1,00	8,86	94,7	22,50

Trotz unterschiedlicher Zusammensetzung der Sinterkörper und gleicher Preßdrücke - mit Ausnahme des etwas höheren Preßdruckes, der für reines UO_2 erforderlich war - konnten nahezu die gleichen Werte für die Sinterdichte erreicht werden. Die Differenzen betragen maximal nur $\pm 0,4$ %.

6. Herstellung der Prüfkörper

Für die Bestimmung der thermischen Ausdehnung wurden kleine Pellets hergestellt, die ca. 12 mm Durchmesser und ca. 10 mm Höhe hatten. Bei der Ausarbeitung der Herstellungsbedingungen erwies es sich als notwendig, die Sintertemperatur auf $1550^{\circ}C$ zu reduzieren. Damit konnten unter sonst gleichen Bedingungen die gleichen Dichtewerte erzielt werden wie bei den großen Prüfkörpern für Wärmeleitfähigkeitsmessungen, die einen Durchmesser von 20 mm und eine Höhe von ca. 10 mm hatten.

Die Prüfkörper zur Messung der Wärmeleitfähigkeit mußten je eine axiale Bohrung zur Aufnahme eines isolierten Heizstabes sowie je sechs kleine, jeweils um 60 Winkelgrad gegeneinander versetzte, in verschiedenen Abständen von der Prüfkörperachse angeordnete kleine Bohrungen zur Aufnahme der ebenfalls isolierten Thermolemente aufweisen. Die zentrale Bohrung mußte einen Durchmesser von 4,3 mm und die Thermolement-Bohrungen einen solchen von 0,5 mm haben.

Für diesen Zweck wurde ein Zusatzgerät zum Preßwerkzeug konstruiert und gebaut, da es gestattet, die Bohrungen beim Pressen der Körper zu erzeugen. Wegen der geringen Brennschwindungsunterschiede bei den verschiedenen Massezusammensetzungen genügte ein Zusatzgerät, dessen Stäbchen zur Erzeugung der Bohrungen entsprechend der größten Brennschwindigkeit dimensioniert waren.

Als Kontrollkörper zur Bestimmung der Sinterdichte wurden jedem Brand einige Prüfkörper gleicher Abmessungen jedoch ohne Bohrungen beigegeben.

Tabelle 4 enthält die Dichtewerte der verschiedenen Prüfkörper.

Tabelle 4 Sinterdichte der Prüfkörper zur Messung der thermischen Ausdehnung und der Wärmeleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Zusammensetzung, vom Preßdruck und von der Sintertemperatur

	kleine Pellets zur Messung d. Wärmeausdehnung Sintertemperatur 1550°C			große Pellets zur Messung d. Wärmeleitfähigkeit Sintertemperatur 1600°C		
Zusammensetzung	Preßdruck t/cm ²	Dichte		Preßdruck t/cm ²	Dichte	
		g/cm ³	% d. theoret.		g/cm ³	% d. theoret.
UO ₂	1,25	10,39	94,9	1,25	10,42	95,1
UO ₂ + 5 % BeO	1,00	10,09	95,5	1,00	10,07	95,3
UO ₂ + 10 % BeO	1,00	9,66	95,0	1,00	9,71	95,4
UO ₂ + 15 % BeO	1,00	9,26	94,8	1,00	9,24	94,6
UO ₂ + 20 % BeO	1,00	8,87	94,7	1,00	8,87	94,7

Wie Tabelle 4 erkennen läßt, sind die Differenzen der Dichte und damit des Porenraumes gering, so daß sie keinen nennenswerten Einfluß auf die Wärmeleitfähigkeit ausüben dürften.

7. Wärmeleitfähigkeitsmessungen

Die Wärmeleitfähigkeit der Mischpellets wurde in einer zylindrischen Anordnung mit radialem Wärmefluß bestimmt, bei der in der Längsachse eines zylindrischen Körpers eine bekannte Wärmemenge W von einem elektrischen Heizer abgegeben und der radiale Temperaturabfall in den Proben mit Thermoelementen gemessen wird. Wenn die Länge des Zylinders groß gegenüber seinem Radius ist, beträgt die Wärmeleitfähigkeit bei homogenem, radialem Wärmefluß im Hohlzylinder

$$\lambda = \frac{W}{2 \pi l} \frac{\ln \frac{r_a}{r_i}}{(T_i - T_a)} \quad (1)$$

Dabei bedeuten:

$W = U \cdot i$, die von dem Heizer auf der Länge l abgegebene Wärmemenge, die gleich der aufgewendeten elektrischen Leistung ist (i = Heizstrom, U = Spannungsabfall im zentralen Teil des Heizers entlang der Länge l).

$(T_i - T_a)$ ist die Temperaturdifferenz zweier Thermoelemente im Abstand r_i bzw. r_a von der Mittelachse des Zylinders.

Den wesentlichen inneren Teil der gewählten Meßanordnung zeigt schematisch die Abb. 1. Sieben zylindrische Pellets 2 von etwa 20 mm Durchmesser und 10 mm Höhe werden mit den plangeschliffenen Stirnflächen aufeinandergeschichtet. Die Temperaturverteilung über den Zylinderradius wird in der Mittelebene des mittleren Zylinders bestimmt. Sämtliche Pellets enthalten eine zentrale Bohrung mit einem Durchmesser von 4,3 mm zur Aufnahme des Heizers. Der Heizer besteht aus einem 280 mm langen Heizleiterstab aus Magapyr I (30 % Cr, 5 % Al, Rest Fe), an den in der Mitte im Abstand von 20 mm zwei Potentialsonden aus Platin-Rhodiumdraht von 0,2 mm angeschweißt sind. Die gesamte Anordnung ist mit Sintertonerde-Öhrchen isoliert.

Zur Aufnahme der Thermoelemente 1 dienen sechs gleichmäßig über die Querschnittsfläche verteilte Bohrungen von 0,5 mm Durchmesser in verschiedenen Abständen r von der Heizermittelachse. Verwendet wurden sowohl mit Sintertonerde-Öhrchen isolierte Nickel-Chromnickel-Thermodrähte von 0,1 mm Durchmesser als auch Chromel-Alumel Miniatur-Thermoelemente von Philips, deren Montage erheblich einfacher ist.

Der von keramischen Platten 7 begrenzte Prüfkörperstapel 2 wird von drei Sintertonerdestäbchen 11 gehalten und von beiden Seiten über je drei keramische Druckstäbe 8, verbunden mit je drei Strahlungsschirmblechen 10, mit Molybdän-Schraubenfedern zusammengepreßt.

Die gesamte Anordnung befindet sich in einem 700 mm langen Quarzglasrohr 9, durch das als Schutzgas Reinstickstoff geleitet wird. Bei Wärmeleitungsmessungen bis zu ca. 600°C steckt dieses Quarzrohr in einem mit Wasser gekühlten Rohr 13, bei Messungen über 600°C in einem Rohrofen. Stromzuführungen, Potentialsonden und Thermoelemente sind seitlich isoliert herausgeführt.

Die Messung der Thermospannungen erfolgt mit einem Kompensator auf etwa $\pm 1 \mu\text{V}$ genau. Ein Umschalter erlaubt sowohl die Messung der absoluten Thermospannungen aller 6 Thermoelemente, wobei sich die Bezugslötstelle in schmelzendem Eis befindet, als auch eine direkte Messung aller 15 Thermospannungsdifferenzen der heißen Thermolötstellen untereinander zur Bestimmung der Temperaturverteilung. Die Wechselstromheizleistung wird durch Messung von Strom, Spannungsabfall im zentralen Teil des Heizers (über die Potentialsonden) und Phasenlage mit einem AEG-Vektormesser auf $\pm 4 \%$ genau bestimmt.

Von jeder Probe wurden mehrere Meßreihen aufgenommen, wobei jedes Mal ein neuer zentraler Heizer, im allgemeinen sogar ein völlig neuer Aufbau der Meßanordnung mit neuen Thermoelementen und teilweise anderen Pellets, verwendet wurde. Es wurden stets im Temperaturgleichgewicht die absoluten Temperaturen der Thermoelemente in den 6 Prüfkörperbohrungen und sämtliche fünfzehn Temperaturdifferenzen zwischen diesen sechs Thermoelementen ermittelt. Die Auswertung der Messungen erfolgt im allgemeinen graphisch, indem die Meßwerte in ein $(T_i - T_a) = f(\lg r_a/r_i)$ Diagramm eingetragen werden und die Steigung der mittleren Geraden in diesem Diagramm bestimmt wird. Dadurch können geringe Inhomogenitäten des radialen Wärmeflusses eliminiert und der gesamte relative Fehler bei der Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit auf etwa $\pm 8 \%$ gehalten werden.

Die Ergebnisse der Wärmeleitfähigkeitsmessungen an UO_2 Mischpellets mit 0, 5, 10, 15 und 20 % BeO im Gebiet von 200 bis 1000°C sind in Abb. 2 zusammengestellt. Die Streuung der einzelnen Meßpunkte ist durch einen Bereich angegeben, in dem 90 % aller Meßpunkte liegen. Der Zusatz von 20 Vol.-% BeO bewirkt z. B. beim UO_2 bei 600°C eine Verdoppelung der Wärmeleitfähigkeit von 0,012 auf 0,025 cal/sec $^\circ\text{C cm}$.

8. Messung der Wärmeausdehnung

Zur Messung der Wärmeausdehnung wurden je fünf Pellets aufeinandergestellt. Diese Anordnung wurde gewählt, um eine gesonderte Herstellung von Stäbchen, wie sie sonst üblicherweise verwendet werden, zu vermeiden und um die Messungen an Körpern durchführen zu können, wie sie in der Praxis eingesetzt werden.

Ein vorhandenes Dilatometer wurde derart umgebaut, daß die Messungen in vertikaler Anordnung durchgeführt werden konnten. Um eine Oxydation der Prüfkörper zu vermeiden, erfolgten die Messungen in Wasserstoffatmosphäre. Die Längenänderungen wurden mittels einer Meßuhr bestimmt, die Längenänderungen von 0,002 mm abzulesen gestattete. Die Ablesungen wurden bei 20, 200, 400, 600, 800 und 1050°C vorgenommen, sobald sich das jeweilige Temperaturgleichgewicht eingestellt hatte.

Die unter Berücksichtigung der Ausdehnung der Trägerstäbchen aus Quarzglas ermittelten Werte für die Wärmeausdehnung der verschiedenen Mischkörper sind in Tabelle 5 einander gegenüber gestellt. Zum Vergleich sind die von Fernet (6) wiedergegebenen Werte für reines UO_2 sowie Werte für BeO nach Espe (7) angegeben.

Tabelle 5 Wärmeausdehnung von UO_2 - und UO_2 -BeO-Sinterkörpern

Temperaturbereich °C	lineare Wärmeausdehnung $\alpha \cdot 10^{-6}$ [cm · cm ⁻¹ · °C ⁻¹]						
	UO_2 *	UO_2	UO_2 + 5 % BeO	UO_2 + 10 % BeO	UO_2 + 15 % BeO	UO_2 + 20 % BeO	BeO nach Espe
20 - 200	9,1	9,13	9,06	8,96	8,88	8,98	7,1
20 - 400		9,55	9,50	9,32	9,22	9,09	8,6
20 - 600		9,83	9,75	9,54	9,60	9,49	9,6
20 - 800		10,04	10,14	9,80	9,80	9,82	10,3
20 - 1000		10,27	10,39	10,07	10,03	10,07	10,9
20 - 1100	10,8	10,36	10,41	10,16	10,16	10,13	
400 - 800		10,51	10,75	10,26	10,36	10,52	
800 - 1100		11,36	11,31	11,25	11,10		

* UO_2 nach Fernets Zusammenstellung

Die Ergebnisse lassen keine eindeutige Abhängigkeit der Wärmeausdehnung vom BeO-Gehalt der Mischkörper erkennen. Die Schwankungen der Einzelwerte liegen im Bereich der Meßgenauigkeit, die bei diesem Verfahren auf Grund von Wiederholungsmessungen mit ca. $\pm 0,2 \cdot 10^{-6}$ [cm · cm⁻¹ · °C⁻¹] angenommen werden kann.

9. Röntgenfeinstrukturuntersuchungen

Um festzustellen, ob bei der Sinterung der Prüfkörper ein Teil des BeO in das Kristallgitter des UO_2 und/oder UO_2 in das BeO Gitter eingebaut wird, sollten durch Röntgenfeinstrukturuntersuchungen die Gitterkonstanten von UO_2 und BeO des Mischkörpers aus UO_2 mit 20 % BeO bestimmt werden.

Der Mischkörper wurde für diesen Zweck auf eine Feinheit unter 40 μ zerkleinert, desgleichen ein Prüfkörper ohne BeO-Zusatz.

Weiterhin stand das BeO-Ausgangspulver zum Vergleich zur Verfügung. Da neben der Mischung also die reinen Komponenten UO_2 und BeO vorhanden waren, konnte eine Vergleichsmethode angewandt werden, die eine höhere Genauigkeit der Aussage gestattet. Unter Verwendung von gefilterter Cu K_{α} -Strahlung wurde mittels eines Zählrohr-Goniometers ein bei $69,15^\circ$ im Rückstrahlbereich liegender Beugungsreflex des UO_2 einmal am reinen UO_2 und ein andermal am UO_2 der Mischprobe vermessen. Dieser Winkel entspricht bei Verwendung von Cu K_{α} -Strahlung einem Netzebenenabstand von $d = 0,8243 \text{ \AA}$.

Die gemessene Abweichung der Winkellagen war kleiner als $0,01^\circ$ und damit unterhalb der Größe der mit dem Goniometer eben noch feststellbaren Abweichungen, die bei $0,016^\circ$ liegt. Das entspricht bei diesem Beugungswinkel und einer Wellenlänge von $1,54 \text{ \AA}$ einer maximalen Änderung der Gitterkonstanten von $0,000.05 \text{ \AA}$. Die hieraus und aus obigem d-Wert errechnete Abweichung ist $\frac{\Delta d}{d} = 6,25 \cdot 10^{-5}$. Daraus ergibt sich, daß keine feststellbare Gitterkonstantenänderung vorlag. Demnach hat keine Mischkristallbildung stattgefunden, die ohnedies wegen der Verschiedenheit der Gittertypen und Ionenradien wenig wahrscheinlich war (UO_2 kubisch; $a_0 = 5,468 \text{ \AA}$; BeO hexagonal, $a_0 = 2,698 \text{ \AA}$; $c_0 = 4,380 \text{ \AA}$).

Eine Überprüfung der Gitterkonstanten des BeO war infolge der großen Dichteunterschiede von UO_2 und BeO nicht möglich. Die BeO-Reflexe waren bei der Mischprobe so stark unterdrückt, daß im Rückstrahlbereich keine Reflexe gemessen werden konnten.

10. Mikroskopische Untersuchungen

Zur mikroskopischen Untersuchung des Gefüges der UO_2 - und UO_2 -BeO-Sinterkörper wurden Anschliffe hergestellt, wozu die Prüfkörper halbiert wurden. Um eine mögliche Hydratisierung der BeO-Anteile zu vermeiden, wurde trocken geschliffen und mit wasserfreier Diamantpaste poliert. Die Aufnahmen wurden mit Hilfe des Gerätes "Ortholux" von Leitz auf Agfa Negativ-Film (17/10) in 625facher Vergrößerung angefertigt.

Im Schliffbild erscheint das UO_2 gelblich-messingfarben und von kleinen Poren durchsetzt. Das BeO ist zwar als kompakter Körper weiß; als Einschluß in UO_2 sieht es unter dem Mikroskop jedoch schwach violett-grau aus, so daß nur ein schwacher Kontrast zu den "grauen" Poren besteht. Wegen ihrer gegenüber UO_2 größeren Härte (Mohs'sche Härte 9) ragen die BeO-Einschlüsse etwas aus der Ebene des Anschliffes heraus, so daß bei der Scharfeinstellung ein Kompromiß geschlossen werden muß.

Der reine UO_2 -Sinterkörper (Bild 3) ist von wenigen kleinen Poren, selten von Porenanhäufungen und nur vereinzelt von größeren Poren durchsetzt. In der Mitte des geschliffenen Körpers ist die Porenhäufigkeit am größten; diese Zone erstreckt sich bis zu den Ecken des Schliffes und deutet damit möglicherweise eine geringe Preßstruktur an.

Mit zunehmendem BeO-Gehalt (Bild 4 und 5) wächst auch die Anzahl der zu beobachtenden Poren. Da alle Sinterkörper nahezu die gleiche theoretische Dichte und damit den gleichen Porenanteil von ca. 5 % hatten, ist dies nur so zu erklären, daß beim Schleifen die harten BeO-Teilchen aus der relativ weicheren UO_2 -Grundmasse ausbrechen, ähnlich dem Schleifkorn einer Schleifscheibe. Beinahe proportional zum Anteil der violett-grauen BeO-Einschlüsse steigt auch der Anteil an kleinen und mittleren Poren.

An verschiedenen Stellen konnte beobachtet werden, daß die BeO-Teilchen in der Nähe der Poren oder innerhalb größerer Poren auftraten.

HGK/GHO/hstr

Literatur

1. Breslin, A.J. und Harris, W.B. Health and Safety Laboratory
USAEC-Report HASL-36, 1. Mai 1958
2. Murray, P. Uranium Dioxide as a Reactor Fuel
TID-7546, 432-41 (1957)
3. Langrod, K. Sintering of Uranium Oxide in the
Range of 1200 - 1300°C
Ceramic Bulletin 29 (1960) 366 - 369
4. Sandstede, G. und Robens, E. Gravimetrische Bestimmung der Gas-
sorption mit Hilfe einer elektroni-
schen Mikrowaage
Chem.-Ing.-Techn. 32 (1960) 413 - 417
5. Bright, Lake, Ripley and Rowland The Determination of the Oxygen-
Uranium Atomic Ratio in non-
stoichiometric Uranium Dioxide and
other Oxides of Uranium
MD-207, Juli 1956
6. Fernet, P. Fabrication et Propriétés d'Oxyde
d'Uranium
Monographie EUR/C/3829/60
7. Espe Werkstoffkunde der Hochvakuumtechnik
Bd. II, Silikatwerkstoffe,
VEB-Deutscher Verlag der Wissenschaften
Berlin 1960

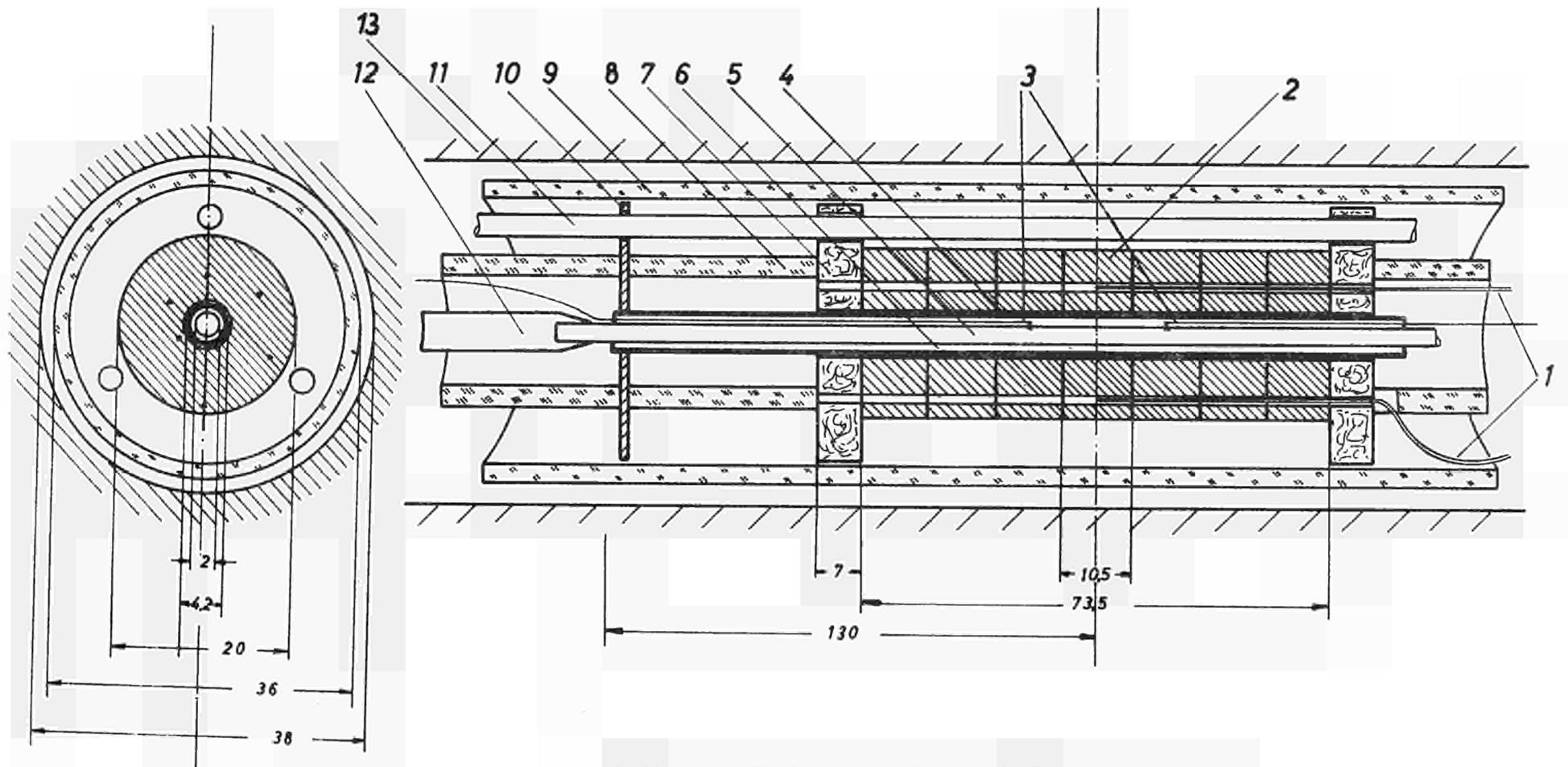
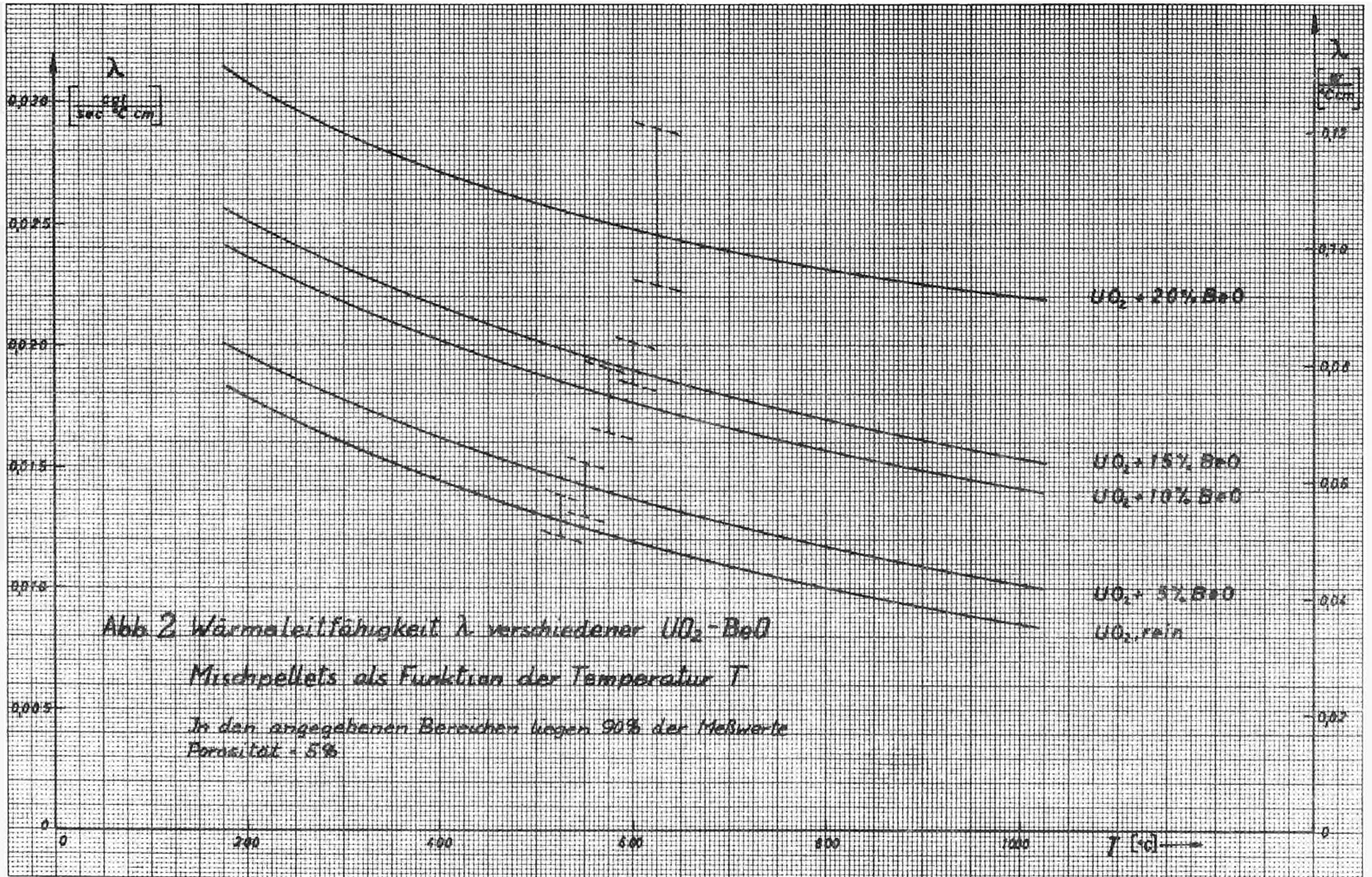


Bild 1: Schema der Meßanordnung
(nicht maßstäblich)



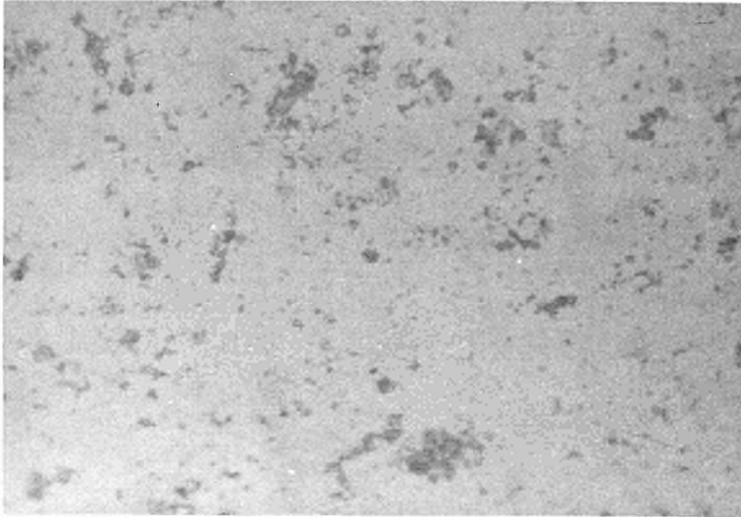


Bild 3

UO₂
625 : 1

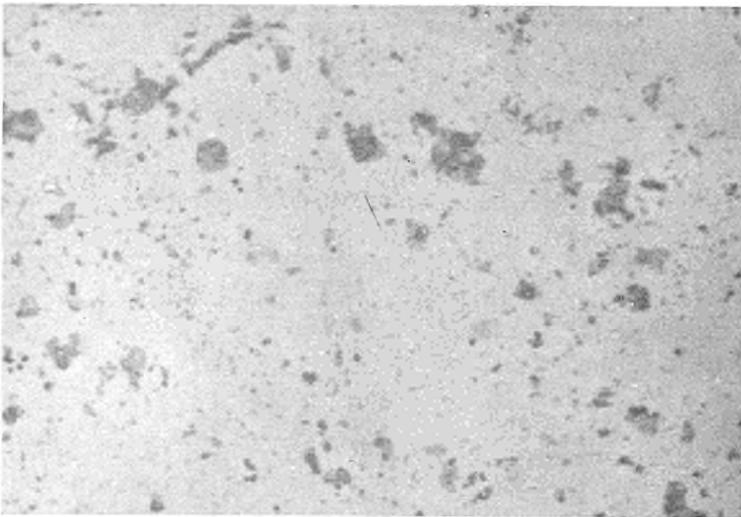


Bild 4

UO₂ + 5 % BeO
625 : 1

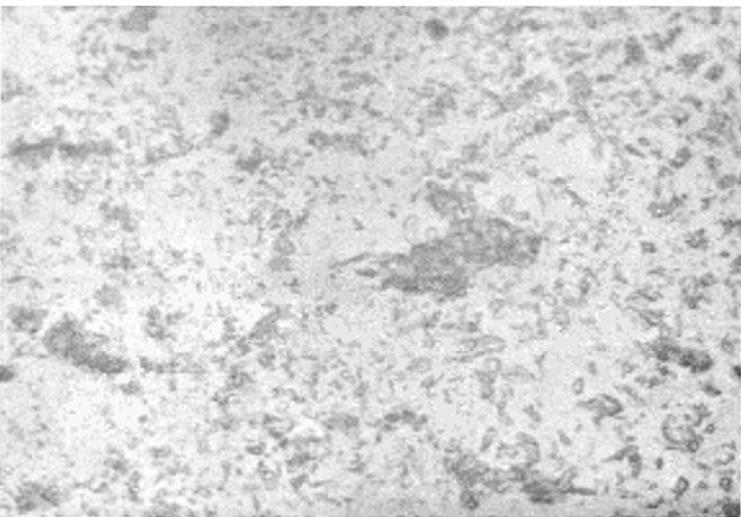


Bild 5

UO₂ + 15 % BeO
625 : 1

CDNA00116DEC