

EUR 4273 d

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT — EURATOM

**VERBESSERUNG DER TECHNOLOGIE
BEI DER FABRIKATION
GEGOSSENER URANKARBID-STÄBE**

Abschlußbericht

von

P. HIMMELSTEIN*, H. KÜHN*, O. PFAHLS* und R. LUCAS**

* NUKEM

** EURATOM

1969



ORGEL-Programm

Bericht abgefaßt von NUKEM

EURATOM Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang bei Hanau/Main
Deutschland

31. 7. 1969

BIBLIOTH. - R. T.

Euratom-Vertrag Nr. 246-66-1 ORGD

HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist im Rahmen des Forschungsprogramms der Kommission der Europäischen Gemeinschaften ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, daß die Kommission der Europäischen Gemeinschaften, ihre Vertragspartner und die in deren Namen handelnden Personen :

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 gegen gewerbliche Schutzrechte verstößt;

keine Haftung für die Schäden übernehmen, die infolge der Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden oder Verfahren entstehen könnten.

Dieser Bericht wird in den auf der vierten Umschlagseite genannten Vertriebsstellen

zum Preise von DM 5,60

FF 7,—

FB 70,—

Lit. 870

Fl. 5,10

verkauft.

Es wird gebeten, bei Bestellungen die EUR-Nummer und den Titel anzugeben, die auf dem Umschlag jedes Berichts aufgeführt sind.

Gedruckt von Van Muysewinkel
Brüssel, Juni 1969.

Das vorliegende Dokument wurde an Hand des besten Abdruckes vervielfältigt, der zur Verfügung stand.

EUR 4273 d

VERBESSERUNG DER TECHNOLOGIE BEI DER FABRIKATION GEGOSSENER URANKARBIDSTÄBE — Abschlußbericht

von P. HIMMELSTEIN*, H. KÜHN*, O. PFAHLS* und R. LUCAS**

* NUKEM

** EURATOM

Europäische Atomgemeinschaft — EURATOM

ORGEL-Programm

Bericht abgefaßt von NUKEM — Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang bei Hanau/Main (Deutschland)

Euratom-Vertrag Nr. 246-66-1 ORGD

Luxemburg, Juni 1969 — 50 Seiten — 20 Abbildungen — FB 70

Für den im Projekt ORGEL entwickelten Reaktortyp war ein Verfahren zur wirtschaftlichen Herstellung des Kernbrennstoffes Uranmonokarbid zu entwickeln.

Die Arbeiten begannen mit Untersuchungen über die Darstellungsmethode von Urankarbid aus Urandioxid- und Graphitpulver. Gleichzeitig wurden erste

EUR 4273 d

TECHNOLOGICAL IMPROVEMENT IN THE FABRICATION OF CAST URANIUM CARBIDE RODS — Final Report

by P. HIMMELSTEIN*, H. KÜHN*, O. PFAHLS* and R. LUCAS**

* NUKEM

** EURATOM

European Atomic Energy Community — EURATOM

ORGEL Program

Report prepared by NUKEM — Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang bei Hanau/Main (Germany)

Euratom Contract No. 246-66-1 ORGD

Luxembourg, June 1969 — 50 Pages — 20 Figures — FB 70

The aim was to develop a process for the economic fabrication of the nuclear fuel uranium monocarbide for the type of reactor developed in the ORGEL Project.

Work began with studies on the fabrication of uranium carbide from uranium dioxide and graphite powder. At the same time preliminary smelting tests

EUR 4273 d

TECHNOLOGICAL IMPROVEMENT IN THE FABRICATION OF CAST URANIUM CARBIDE RODS — Final Report

by P. HIMMELSTEIN*, H. KÜHN*, O. PFAHLS* and R. LUCAS**

* NUKEM

** EURATOM

European Atomic Energy Community — EURATOM

ORGEL Program

Report prepared by NUKEM — Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang bei Hanau/Main (Germany)

Euratom Contract No. 246-66-1 ORGD

Luxembourg, June 1969 — 50 Pages — 20 Figures — FB 70

The aim was to develop a process for the economic fabrication of the nuclear fuel uranium monocarbide for the type of reactor developed in the ORGEL Project.

Work began with studies on the fabrication of uranium carbide from uranium dioxide and graphite powder. At the same time preliminary smelting tests

EUR 4273 d

TECHNOLOGICAL IMPROVEMENT IN THE FABRICATION OF CAST URANIUM CARBIDE RODS — Final Report

by P. HIMMELSTEIN*, H. KÜHN*, O. PFAHLS* and R. LUCAS**

* NUKEM

** EURATOM

European Atomic Energy Community — EURATOM

ORGEL Program

Report prepared by NUKEM — Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang bei Hanau/Main (Germany)

Euratom Contract No. 246-66-1 ORGD

Luxembourg, June 1969 — 50 Pages — 20 Figures — FB 70

The aim was to develop a process for the economic fabrication of the nuclear fuel uranium monocarbide for the type of reactor developed in the ORGEL Project.

Work began with studies on the fabrication of uranium carbide from uranium dioxide and graphite powder. At the same time preliminary smelting tests

Schmelzversuche mit kleinen Lichtbogenöfen ausgeführt (1). Im nächsten Programmabschnitt konnten die günstigsten Pulver für die Festkörperreaktion sowie die optimalen Bedingungen für den Reaktionsablauf ermittelt werden. Mit der Entwicklung und dem Bau von Lichtbogenöfen im Technikumsmaßstab liefen auch Untersuchungen über geeignete Tiegel- und Elektrodenmaterialien an. Nach Inbetriebnahme größerer Schmelzanlagen begannen umfangreiche Untersuchungsarbeiten über den Einfluß der Schmelzbedingungen auf die Qualität von Urankarbidstäben (2). Die bei kleineren Produktionsserien gewonnenen Erfahrungen führten zu einer Modifikation des Herstellverfahrens von Urankarbid-Tabletten. Beim Lichtbogenschmelzen erwies sich das Vakuum-schmelzen gegenüber dem Schutzgasschmelzen trotz gewisser technischer Schwierigkeiten geeigneter, um Urankarbid im größeren Maße mit einem sehr geringen Anteil an Verunreinigungen zu verarbeiten.

Da dem Konzept für ORGEL entsprechend Urankarbidstäbe mit definierter Oberfläche hergestellt werden müssen, ist eine allseitige Bearbeitung der Stäbe durch Schleifen erforderlich. Auch das Anbringen eines Leervolumens (dishing) ist nur auf diese Weise möglich. Über die Verfahrensweise beim Rund-, Trenn-, Plan- und Dishingschleifen wird berichtet. Schließlich werden noch die Faktoren diskutiert, die die Wirtschaftlichkeit der Herstellung beeinflussen.

were performed with small arc furnaces (1). In the next section of the program the most favourable powders for the solid-state reaction together with the optimum conditions for the reaction were determined. Development and construction of arc furnaces on a technical scale were associated with studies on suitable crucible and electrode materials. After fairly large-scale smelting plants had been commissioned, comprehensive studies were initiated on the influence of smelting conditions on the quality of uranium carbide rods (2). The experience gained with smaller production series led to a modification of the process of fabricating uranium carbide pellets. In arc smelting it was found that despite certain technical difficulties vacuum smelting was more suitable than shielding-gas smelting for the preparation of uranium carbide on a relatively large scale with a very low impurity fraction.

Since the ORGEL design requires uranium carbide rods to be fabricated with a well-defined surface area, all-round grinding of the rods is necessary. This is also the only way of dishing the rods. An account is given of the techniques used in cylindrical, cut-off, face and dishing grinding. Lastly, the factors influencing the profitability of the process are discussed.

were performed with small arc furnaces (1). In the next section of the program the most favourable powders for the solid-state reaction together with the optimum conditions for the reaction were determined. Development and construction of arc furnaces on a technical scale were associated with studies on suitable crucible and electrode materials. After fairly large-scale smelting plants had been commissioned, comprehensive studies were initiated on the influence of smelting conditions on the quality of uranium carbide rods (2). The experience gained with smaller production series led to a modification of the process of fabricating uranium carbide pellets. In arc smelting it was found that despite certain technical difficulties vacuum smelting was more suitable than shielding-gas smelting for the preparation of uranium carbide on a relatively large scale with a very low impurity fraction.

Since the ORGEL design requires uranium carbide rods to be fabricated with a well-defined surface area, all-round grinding of the rods is necessary. This is also the only way of dishing the rods. An account is given of the techniques used in cylindrical, cut-off, face and dishing grinding. Lastly, the factors influencing the profitability of the process are discussed.

were performed with small arc furnaces (1). In the next section of the program the most favourable powders for the solid-state reaction together with the optimum conditions for the reaction were determined. Development and construction of arc furnaces on a technical scale were associated with studies on suitable crucible and electrode materials. After fairly large-scale smelting plants had been commissioned, comprehensive studies were initiated on the influence of smelting conditions on the quality of uranium carbide rods (2). The experience gained with smaller production series led to a modification of the process of fabricating uranium carbide pellets. In arc smelting it was found that despite certain technical difficulties vacuum smelting was more suitable than shielding-gas smelting for the preparation of uranium carbide on a relatively large scale with a very low impurity fraction.

Since the ORGEL design requires uranium carbide rods to be fabricated with a well-defined surface area, all-round grinding of the rods is necessary. This is also the only way of dishing the rods. An account is given of the techniques used in cylindrical, cut-off, face and dishing grinding. Lastly, the factors influencing the profitability of the process are discussed.

EUR 4273 d

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT — EURATOM

**VERBESSERUNG DER TECHNOLOGIE
BEI DER FABRIKATION
GEGOSSENER URANKARBID-STÄBE**

Abschlußbericht

von

P. HIMMELSTEIN*, H. KÜHN*, O. PFAHLS* und R. LUCAS**

* NUKEM
** EURATOM

1969



ORGEL-Programm

**Bericht abgefaßt von NUKEM
Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang bei Hanau/Main
Deutschland**

Euratom-Vertrag Nr. 246-66-1 ORGD

ZUSAMMENFASSUNG

Für den im Projekt ORGEL entwickelten Reaktortyp war ein Verfahren zur wirtschaftlichen Herstellung des Kernbrennstoffes Uranmonokarbid zu entwickeln.

Die Arbeiten begannen mit Untersuchungen über die Darstellungsmethode von Urankarbid aus Urandioxid- und Graphitpulver. Gleichzeitig wurden erste Schmelzversuche mit kleinen Lichtbogenöfen ausgeführt (1). Im nächsten Programmabschnitt konnten die günstigsten Pulver für die Festkörperreaktion sowie die optimalen Bedingungen für den Reaktionsablauf ermittelt werden. Mit der Entwicklung und dem Bau von Lichtbogenöfen im Technikumsmaßstab liefen auch Untersuchungen über geeignete Tiegel- und Elektrodenmaterialien an. Nach Inbetriebnahme größerer Schmelzanlagen begannen umfangreiche Untersuchungsarbeiten über den Einfluß der Schmelzbedingungen auf die Qualität von Urankarbidstäben (2). Die bei kleineren Produktionsserien gewonnenen Erfahrungen führten zu einer Modifikation des Herstellverfahrens von Urankarbid-Tabletten. Beim Lichtbogenschmelzen erwies sich das Vakuumschmelzen gegenüber dem Schutzgasschmelzen trotz gewisser technischer Schwierigkeiten geeigneter, um Urankarbid im größeren Maße mit einem sehr geringen Anteil an Verunreinigungen zu verarbeiten.

Da dem Konzept für ORGEL entsprechend Urankarbidstäbe mit definierter Oberfläche hergestellt werden müssen, ist eine allseitige Bearbeitung der Stäbe durch Schleifen erforderlich. Auch das Anbringen eines Leervolumens (dishing) ist nur auf diese Weise möglich. Über die Verfahrensweise beim Rund-, Trenn-, Plan- und Dishingschleifen wird berichtet. Schließlich werden noch die Faktoren diskutiert, die die Wirtschaftlichkeit der Herstellung beeinflussen.

SCHLAGWORTE

FUEL RODS
URANIUM CARBIDES
FABRICATION
URANIUM DIOXIDE
GRAPHITE

POWDERS
COMPACTING
MATERIALS TESTING
ECONOMICS
ORGEL REACTOR

Inhaltsverzeichnis

Seite

1. Einleitung	5
2. Darstellung von Urankarbid aus Urandioxid und Graphit	5
2.1 Ausgangspulver Urandioxid und Graphit	6
2.2 Mischen und Pressen	7
2.3 Festkörperreaktion	7
3. Schmelzen und Gießen von Urankarbid	9
3.1 Schmelzen von Urankarbid	10
3.2 Gießen von Urankarbid	13
4. Bearbeitung gegossener Urankarbidstäbe	14
4.1 Abtrennen von Gußköpfen	14
4.2 Schleifen von Urankarbid	14
5. Reinigen und Lagern fertig bearbeiteter Urankarbid-Stäbe	20
6. Schrottaufarbeitung	21
7. Prüfungen und Kontrollen	22
7.1 Chemische Analysen	22
7.2 Mechanische Prüfungen	24
8. Ökonomische Betrachtungen	24
8.1 Einfluß des Stabdurchmessers	24
8.2 Einfluß der Spezifikation	25
8.3 Einfluß der Kapazität einer Produktionslinie	26
Tabelle	29
Abbildungen	31-50

VERBESSERUNG DER TECHNOLOGIE BEI DER FABRIKATION GEGOSSENER
URANKARBID-STÄBE(*)

1. Einleitung

In dem Projekt ORGEL wurde ein Reaktortyp entwickelt, der mit schwerem Wasser moderiert und mit organischen Flüssigkeiten gekühlt werden soll. Als Kernbrennstoff ist wegen seiner hohen Uran-dichte und vor allem wegen seiner guten Wärmeleitfähigkeit Uran-monokarbid vorgesehen.

Das Ziel der Vertragsarbeiten mit Euratom war die Entwicklung eines geeigneten Herstellverfahrens für Uranmonokarbidstäbe. Nach Aufbau der technischen Einrichtungen waren Karbidstäbe für Untersuchungen und Reaktorteste herzustellen. Aufgrund der gewonnenen Erfahrungen sollte versucht werden, die Herstellkosten bei einer laufenden Produktion im industriellen Maßstab abzuschätzen.

Da die Entwicklungsarbeiten Ende 1967 abgeschlossen wurden, wird in dem vorliegenden Abschlußbericht noch einmal zusammenfassend über die wesentlichen Arbeiten im Rahmen folgender EURATOM-Verträge auf dem Uranmonokarbid-Gebiet berichtet:

Nr. 012-60-5 RDD;	Nr. 038-61-9 ORGD;
Nr. 061-61-5 RDD;	Nr. 088-62-7 RDD;
Nr. 233-65-1 ORGD;	Nr. 246-66-1 ORGD.

2. Darstellung von Urankarbid aus Urandioxid und Graphit

Zur technischen Darstellung von Urankarbid erschienen folgende Methoden geeignet:

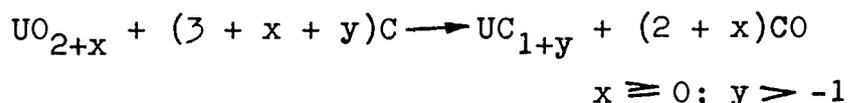
1. Die Reaktion von Uranmetallpulver mit Graphitpulver
2. Die Reaktion von Uranmetallpulver mit Methan oder anderen Kohlenwasserstoffen
3. Die Reaktion von Uranoxidpulver mit Graphitpulver

Da in der Nukem Urandioxid in größerem Maßstab hergestellt wird, haben wir uns aus wirtschaftlichen Gründen zu der dritten Methode entschlossen und untersuchten die Darstellung von Urankarbid aus den Ausgangsstoffen Urandioxid und Graphit⁽¹⁾, die nach folgender Gleichung abläuft:

(*) Manuskript erhalten am 9. Dezember 1968.



In der Praxis liegt das Oxid jedoch leicht überstöchiometrisch vor, d.h. das Sauerstoff/Uran-Verhältnis kann zwischen 2,01 und 2,06 schwanken. Ähnliches gilt für das Uranmonokarbid, bei dem das Kohlenstoff/Uran-Verhältnis zwischen z.B. 0,8 und 1,2 liegen kann. Diese für das Reaktionsprodukt wichtige Tatsache läßt sich am besten durch die erweiterte Gleichung



ausdrücken. D.h. der Kohlenstoffgehalt des Karbides wird durch geeignete Wahl der Oxid-Graphit-Mischung bestimmt.

2.1 Ausgangspulver Urandioxid und Graphit

Die neben der nuklearen Reinheit wichtigste Forderung an die Pulver ist die hinreichend gute Rieselfähigkeit im gemischten Zustand, damit eine einwandfreie Verarbeitung zu Grünlingstabletten möglich ist.

Da hochoberflächige Oxidpulver bei längerem Lagern weiter auf-oxidieren, wurden anfänglich bei hoher Temperatur reduzierte und calzinierte Urandioxid-Pulver verwendet. Demzufolge stellte sich eine kleine BET-Oberfläche ein⁽¹⁾. Mit zunehmenden Produktionserfahrungen haben aber die ursprünglichen Forderungen auf Oxidationsstabilität an Bedeutung verloren.

Das jetzt zur Verarbeitung kommende Oxidpulver ist praktisch gleich dem für Sinterkörper verwendeten "ceramic grade"-Pulver, das auch hinreichend gute Fließeigenschaften besitzt. Als Graphitpulver hat sich bei allen Versuchen ein Naturgraphit mit einem Aschegehalt von 600 ppm bewährt.

2.2 Mischen und Pressen

Eine wichtige Voraussetzung für die quantitative Umsetzung der Pulver zum Karbid ist neben der möglichst homogenen Mischung der innige Kontakt der Teilchen untereinander.

Zum Vermischen des Oxidpulvers mit dem Graphitpulver verwendeten wir einen Lödige-Mischer, der in 0,5 Stunden 12 kg Pulver homogenisierte. Das Pulvergemisch wurde anschließend in einer Rundläuferpresse bei einem Durchsatz von etwa 10 kg/h zu Tabletten mit einer Dichte von $4,5 \text{ g/cm}^3$ verpreßt. Die seit mehreren Jahren⁽³⁾ im Einsatz befindlichen Einrichtungen konnten durch Änderungen an einer Umfüllvorrichtung und durch Einsatz eines Förderbandes mit einer elektronischen Überwachung weitgehend automatisiert werden, wobei gleichzeitig die Schrottmenge vermindert wurde. Dieser Teil der Anlage läßt sich jetzt auch leicht reinigen, was beim Wechsel des Anreicherungsgrades von Vorteil ist. In den Abbildungen 1 und 2 sind die wesentlichsten Geräte dieser Anlage zu sehen.

2.3 Festkörperreaktion

Erste Versuche zur Darstellung von Urankarbid zeigten, daß eine Kombination von Reagieren und Schmelzen nicht sinnvoll ist. Bei dem Reaktionsprozeß werden je Mol gebildeten Uranmonokarbides (250 g) zwei Mole Kohlenmonoxid als Gas (ca. 50 l bei 760 Torr und 20°C) frei. Bei rapider Freisetzung dieser Gasmenge z.B. in der Wärme eines elektrischen Lichtbogens wird sowohl geschmolzenes als auch noch nicht geschmolzenes Material weggeschleudert und verspritzt⁽¹⁾. In einem induktiv beheizten Vakuumofen war hingegen die Reaktion der Oxid-Graphit-Mischung unter kontrollierten Bedingungen durchführbar. Die zuerst entwickelte Ofenanlage⁽²⁾ arbeitete halbkontinuierlich. Hierbei wurden aus einem auf den Deckel des Ofens angeflanschten Vorratsbehälter Preßlinge in kleinen Portionen in den Tiegel gebracht und dort reagiert. Anschließend fielen die Urankarbid-Tabletten zum Auskühlen in eine wassergekühlte Kanne und der

Tiegel wurde erneut beschickt. Eine verbesserte Ausführung dieses Ofens, wie er für eine Produktion im Technikumsmaßstab bei einem Durchsatz von etwa 3 kg/h eingesetzt wurde, ist in den Abbildungen 3 und 4 wiedergegeben⁽³⁾.

Bei der Herstellung von Urankarbid mit 5,5 % U-235 ist aus Kritikalitätsgründen die Reaktion zum Karbid in Einzelansätzen zu 5 kg vorgenommen worden⁽⁴⁾.

Nach Auswertung verschiedener Mengendurchsätze wurde festgestellt, daß beim Betrieb des halbkontinuierlich arbeitenden Ofens im Mittel etwa 5 % Schrott anfallen, der als feiner Staub durch Abrieb der Tabletten entstanden war. Wurde hingegen die Reaktion zum Karbid in Einzelansätzen durchgeführt, blieb die Anlage praktisch staubfrei. Diese Tatsache gab Anlaß zu prüfen, ob mit Einzelchargenbetrieb ein vergleichbarer Durchsatz wie bei dem halbkontinuierlich arbeitenden Ofen erreichbar ist. Ein größerer Vakuumofen wurde auf die Erfordernisse der Urankarbid-Herstellung umgerüstet. Er enthält einen Graphittiegel, der etwa 30 kg gepreßte Tabletten aufnehmen kann. Die Heizung erfolgt induktiv mit Wechselstrom von 4 kHz, der einem 80 kW-Generator entnommen wird. Das während der Reaktion gebildete Kohlenmonoxid wird durch Vakuumpumpen mit einer Förderleistung von $2.500 \text{ m}^3/\text{h}$ bei $5 \cdot 10^{-2}$ Torr abgesaugt und über einen Kamin in 12 m Höhe ins Freie abgelassen. Die Reaktions-temperatur ließ sich bei diesem Ofen auf 2000°C steigern, ohne daß eine Reaktion zwischen Tiegel und Tabletten eintrat. Dadurch verkürzte sich die Reaktionszeit bei gleichzeitiger Verminderung des Restsauerstoffgehaltes. Abbildung 5 zeigt den Verlauf der Temperatur und des Gasdruckes bei einer Reaktion.

Nach vollzogener Reaktion wurde der Ofen mit Argon bis etwa 300 Torr geflutet, um die Abkühlung des Tiegels zu beschleunigen. Die reagierten Urankarbid-Tabletten wurden dann unter Argon in Vorratsbehälter umgefüllt. Die Lagerung muß unter Schutzgas erfolgen, damit eine Reaktion mit der Luftfeuchte vermieden wird.

3. Schmelzen und Gießen von Urankarbid

Für das Schmelzen von Uranmonokarbid mit einem Schmelzpunkt von etwa 2500°C sind grundsätzlich mehrere Verfahren geeignet:

- Elektronenstrahlschmelzen
- Induktionsschmelzen
- Lichtbogenschmelzen

Beim Elektronenstrahlschmelzen wird das Urankarbid normalerweise mittels einer Zugabeeinrichtung kontinuierlich chargiert, geschmolzen und als Strang abgezogen. Eigene Untersuchungen führten zu dem Ergebnis, daß dieses Verfahren zur Herstellung von größeren Mengen gegossener Formkörper nicht geeignet ist, weil bereits bei Blocklängen von 30 mm Brüche entstanden und außerdem die Schmelzkapazität bei hohen Anlagekosten gering ist.

Das Schmelzen im Induktionsofen hat den entscheidenden Nachteil, daß der aus Graphit gefertigte Tiegel, der gleichzeitig als Heizelement dient, mit dem Schmelzgut reagiert.

Bei der Entwicklung des Lichtbogenschmelzens sind sowohl kleine kontinuierlich arbeitende Schmelzanlagen als auch Schmelzöfen aufgebaut worden, bei denen das Urankarbid in Graphittiegeln und wassergekühlten Kupfertiegeln geschmolzen und mittels der Zentrifugalkraft (Schleuderguß) bzw. der Erdbeschleunigung (Kippguß) in Kokillen zu Formkörpern vergossen wird. Von der zuerst ausgeübten Technik, das Karbid unter dem Schutzgas Argon zu schmelzen, wurde später auf das Schmelzen im Vakuum übergegangen⁽⁴⁾, da hierbei der Gehalt an Verunreinigungen im Karbid abgesenkt werden konnte.

3.1 Schmelzen von Urankarbid

3.1.1 Kontinuierliches Lichtbogenschmelzen

Mit dieser Methode können ohne großen apparativen Aufwand kleine Mengen geschmolzen werden^{(1),(2)}. Definierte Formkörper lassen sich hierbei aber nicht herstellen.

3.1.2 Skull-melting

Bei diesem Verfahren bildet sich zwischen der Schmelze und dem Tiegel eine feste Schale (Skull) aus dem Schmelzgut, wodurch eine Reaktion der Schmelze mit dem Tiegelmateriale vermieden wird. Das Schmelzen kann in einem sogenannten Schleudergußofen bzw. in einem Kippgußofen erfolgen.

3.1.2.1 Schleudergußofen SMO I⁺)

Der Schleudergußofen SMO I wurde in dem EUR-Bericht⁽²⁾ eingehend beschrieben. In diesem Ofen konnten in einem Graphittiegel je Schmelze 16 UC-Stäbe von 13 mm Durchmesser und 100 mm Länge erzeugt werden. Bei asymmetrischer Anordnung der Tiegellachse zur Drehachse war es möglich, Stäbe mit 30 mm Durchmesser herzustellen.

Durch Auswechseln der Kokilleneinsätze konnten Stäbe mit einem Durchmesser zwischen 10 und 16 mm hergestellt werden. Der max. Durchsatz je Tag betrug allerdings nur 20 kg.

3.1.2.2 Kippgußofen SMO II

Mit diesem Schmelzofen wurden zunächst die Grundlagen für das Schmelzen von Urankarbid in wassergekühlten Kupfertiegeln bei einer vergießbaren Menge von etwa 5 kg erarbeitet. Nachdem eine hinreichend große Menge Urankarbid aufgeschmolzen war, wurde die Schmelze durch Kippen des Ofens in eine kardanischn aufgehängte Graphitkokille gegossen.

⁺) SMO I = Skull-melting-Ofen Nr. I

Über Wirkungsweise und Ergebnisse von Schmelzversuchen wurde eingehend berichtet⁽³⁾. Für eine ökonomische Fertigung ist dieser Ofen jedoch nicht geeignet.

3.1.2.3 Kippgußofen SMO III

Dieser Ofen, der nicht im Rahmen der EUR-Kontrakte aufgebaut wurde, arbeitet nach dem gleichen Prinzip wie der bereits beschriebene SMO II. Er ist für die Herstellung größerer Mengen Gußstäbe aus Urkarbid gebaut worden. Abbildung 6 zeigt ein Schema dieses Ofens. Es können ca. 100 kg eingesetzt und in 20 Chargen zu Formkörpern vergossen werden, ohne daß der Ofen geöffnet werden muß.

Die Arbeitsweise dieses Schmelzofens ist wie folgt:

Das Chargiergut für 20 Schmelzen wird in die Kammern der Chargiereinrichtung gegeben und kann von dort über eine Förderrinne in den Schmelztiegel transportiert werden. Der wassergekühlte Schmelztiegel (Abbildung 7) ist an zwei Halbachsen so aufgehängt, daß das geschmolzene Urkarbid über die in den Tiegelrand eingearbeitete Gießstülpe in Graphitkokillen gegossen werden kann. Der Tiegel ist von einer Spule umgeben, mit der der Lichtbogen zentriert wird. Über dem Tiegel ist eine von einem wassergekühlten Kupferrohr gehaltene Graphit-elektrode angebracht. Mit Hilfe von Elektromotoren läßt sich der kardanischn aufgehängte Elektrodenturm so bewegen, daß die Elektrode die gesamte Tiegelfläche abfahren kann.

Nachdem der Ofen auf einen Druck von etwa 10^{-3} Torr evakuiert worden ist, wird der Lichtbogen durch Berührung der als Kathode geschalteten Elektrode mit dem als Anode geschalteten Tiegel bzw. Schmelzgut gezündet. Als Stromversorgung dienen vier parallelgeschaltete Si-Gleichrichter. Es können bei einer Lichtbogen-spannung von 40 V bis zu 4000 A entnommen werden. Die Schmelzzeit kann bis zu 15 Minuten betragen.

Wenn etwa 4 - 5 kg Urankarbid homogen geschmolzen sind, wird mit einer automatisch ablaufenden Kippbewegung, die auch eine Zwangssteuerung der Elektrode umfaßt, die Schmelze in eine durch eine Hubeinrichtung zuvor in Gießposition gehobene Kokille gegossen. Nach dem Erstarren wird die gefüllte Kokille zum weiteren Abkühlen wieder auf der Transporteinrichtung abgesetzt. Der Transportwagen wird dann um einen Schritt weiterbewegt, damit eine weitere von insgesamt 20 Kokillen von der Hubvorrichtung in Gießposition gebracht werden kann.

Alle Bewegungen werden von einem Schaltpult aus gesteuert und sind so gegeneinander verriegelt, daß Fehlhandlungen vermieden werden. Der Schmelz- und Gießvorgang kann programmgesteuert ablaufen, so daß ein reproduzierbarer Schmelzbetrieb gewährleistet ist.

Abbildung 8 zeigt eine Teilansicht der Schmelzanlage, durch die bis Ende des Jahres 1967 etwa 30 t Urankarbid durchgesetzt wurden. Hierbei konnte die Funktionssicherheit der Anlage nachgewiesen werden.

Beim Schmelzen von Urankarbid im Lichtbogenofen ist die Gleichmäßigkeit des Elektrodenabbrandes von Bedeutung, da hierdurch die Stöchiometrie des Karbides beeinflußt wird. Der Abbrand der Elektrode hängt im wesentlichen von der Stabilität des Lichtbogens ab. Diese ist nur zum Teil durch ein Magnetfeld zu erreichen, das durch eine um den Tiegel gewickelte stromdurchflossene Spule erzeugt wird. Von größerem Einfluß ist die Übereinstimmung der Strombahn mit der Symmetrieachse des Tiegels. Sie wurde, wie Abbildung 9 zeigt, durch Isolation der Tiegelwand vom Boden des Tiegels erreicht, so daß nun der Strom ausschließlich vom Zentrum der Schmelze durch den Skull in den Tiegelboden fließt. Durch das Schmelzen im Vakuum erhöht sich der Elektrodenabbrand durch an die Elektrode gelangte Schmelzspritzer, die in verstärktem Maße mit dem Elektrodengraphit sublimieren. Auf die Verringerung des Gehaltes an Sauerstoff und Stickstoff im geschmolzenen Material wirkt sich das Vakuumschmelzen allerdings günstig aus.

Der Kohlenstoffgehalt des gegossenen Karbides wird im Chargiergut durch Zugabe von unterstöchiometrischem Urankarbid bzw. Uranmetall oder überstöchiometrischem Karbid bzw. Graphit eingestellt. Hierbei wird die Kohlenstoffaufnahme der Schmelze durch den von der Elektrode abbrennenden Graphit berücksichtigt. So konnte ein angestrebter Kohlenstoffgehalt auf $\pm 0,15$ Gew.% eingehalten werden.

3.2 Gießen von Urankarbid

Das geschmolzene Urankarbid wird ausschließlich in Graphitkokillen gegossen. Abbildung 10 zeigt eine Kokille und einen Guß vor der Bearbeitung. Es wurde beobachtet, daß mit größer werdendem Stabdurchmesser auch die Rißanfälligkeit der Stäbe zunimmt. Z.B. wurde festgestellt, daß Stäbe mit 25,2 mm Durchmesser bedeutend weniger Risse aufweisen als solche mit 30,9 mm Durchmesser.

Es handelt sich hierbei vorwiegend um Querrisse, die vermutlich durch Spannungen beim Abkühlen entstehen. Um die Rißbildung zu verhindern, wurden folgende Maßnahmen ergriffen:

- a) Vorheizen der Kokillen
- b) Verwendung von Graphitsorten unterschiedlicher Wärmeleitfähigkeit
- c) Einsatz von Kokillen, die parallel und senkrecht zur Preßrichtung des Graphites hergestellt wurden
- d) Anpassung der Wärmekapazität der Kokille an die des Karbides durch Änderung der Kokillenmasse
- e) Beeinflussung der radialen und axialen Temperaturgradienten bei der Abkühlung des Gießlings mittels Wärmeisolierung
- f) Glühbehandlung der Stäbe im Gußzustand vor deren Entnahme aus der Kokille
- g) Verringerung des Kohlenstoff-Gehaltes unter 4,6 Gew.%
- h) Entgasung der Schmelze durch Schmelzen im Vakuum
- i) Änderung der Anzahl und Anordnung der Kokillenbohrungen
- k) Änderung des Durchmesser/Längenverhältnisses bei den Stäben

Alle diese Maßnahmen führten nur zum Teil zum Erfolg, da die Rißbildung nur vermindert, aber nicht völlig beseitigt werden konnte. Erschwerend wirkt sich hierbei der Umstand aus, daß Risse erst nach dem Rundschleifen erkannt werden können. Abbildung 11 zeigt längs aufgeschnittene Stäbe, die unter verschiedenen Bedingungen gegossen wurden.

Lunker wurden vor allem im oberen Drittel der Stäbe gefunden. Durch Vergrößerung der Gußköpfe konnte erreicht werden, daß Erstarrungslunker vorwiegend in diesem Teil des Gusses liegen. Durch die Erhöhung der Wärmekapazität im Gußkopf verringerte sich die Abkühlgeschwindigkeit, wodurch sich grobkristallines Gefüge in der Nähe des Gußkopfes ausbildete. Bei Stäben mit geringerem Durchmesser (ca. 14 mm) trat dieser Unterschied nicht so stark in Erscheinung. In Abbildung 12 sind verschiedene Kokillentypen wiedergegeben.

4. Bearbeitung gegossener Urankarbidstäbe

4.1 Abtrennen von Gußköpfen

Das Abtrennen der Gußköpfe von den Stäben erfolgt durch Abscheren mit einem zweiseitigen Werkzeug. Es konnte nicht nachgewiesen werden, daß hierdurch im Stab bevorzugt Risse entstehen. Der Vorteil dieses Verfahrens gegenüber dem Abtrennen der Gußköpfe durch Trennschleifen unter Ölkühlung liegt vor allem darin, daß die mit Lunkern und Poren durchsetzten Gußköpfe anschließend nicht vom anhaftenden Öl gereinigt werden müssen.

4.2 Schleifen von Urankarbid

Wegen seiner Härte und Sprödigkeit kann Urankarbid nur durch Schleifen bearbeitet werden. Andere Methoden, wie z.B. das Abtragen der Gußhaut auf einer Drehbank führen, zu sehr rauen Oberflächen.

Beim Schleifen von Urankarbid dürfen nur wasserfreie Kühlmittel verwendet werden, die mit dem Karbid nicht reagieren und außerdem schwer entflammbar sind, da feinverteiltes Urankarbid pyrophor ist. Die Viskosität sollte etwa der des Wassers entsprechen. Über mehrere Jahre wurde ein Schleiföl Dascolene 12 CO eingesetzt, das sich gut bewährte.

Das mit Schleifstaub durchsetzte Öl wird von allen Maschinen in eine Zentrifuge gepumpt, in der das mitgeführte Karbid vom Schleiföl getrennt wird.

Damit keine uranhaltigen Ölnebel in den Raum gelangen können, wurden die Maschinen gekapselt und eine Absauganlage mit einem Luftdurchsatz von $40 \text{ m}^3/\text{min}$ bei einer statischen Pressung von 400 mm WS installiert. In diese Anlage wurde ein Drucksprungfilter eingebaut, welches das mitgeführte Öl aus der Luft wieder entfernt. Dieses Filter arbeitet mit Ringdüsen, in denen der durchgesaugte Luftstrom so stark umgelenkt wird, daß Fliehkräfte zwischen dem 10.000- und 100.000-fachen der Schwerkraft entstehen. Durch diese hohen Fliehkräfte werden feinste Nebel und Stäube an den Wänden der Düsen abgeschieden. Das abgeschiedene Öl wird kontinuierlich zu den Schleifmaschinen zurückgeführt. Der Abscheidegrad kann durch Änderung der Druckdifferenz zwischen Lufteintritts- und -Austrittsseite und über die Düsenringgröße beeinflusst werden. In Abbildung 13 sind verschiedene Schleifmaschinen für die Bearbeitung von Urankarbid zu sehen.

4.2.1 Rundschleifen

Das Rundschleifen der gegossenen Formkörper erfolgt auf spitzenlosen Rundschleifmaschinen. Es wurden verschiedene Maschinen verwendet, die sich nur in der Anordnung und Größe der Schleifscheiben unterscheiden. Alle Maschinen waren mit gummigebundenen Regelscheiben und Schleifscheiben aus Siliziumkarbid ausgerüstet. Es wurden Schleifscheiben mit unterschiedlicher Körnung und Härte von verschiedenen Herstellern eingesetzt. Das günstigste Ergebnis wurde mit einer Scheibe vom Typ 80 I 8 V 70 ke erzielt.

Pro Durchgang kann der Stabdurchmesser um 0,2 mm vermindert werden, so daß ein Stab nach etwa vier Durchgängen am Umfang fertig bearbeitet ist. Die mittlere Rauhtiefe beträgt 0,9 - 1,4 μ m. Mitunter kommt es beim Schleifen des pyrophoren Materials zur Entzündung des Ölnebels, die jedoch mit einer automatischen Feuerlöschleinrichtung schnell unter Kontrolle gebracht werden kann.

Abbildung 14 zeigt Urkarbidstäbe vor und nach dem Rundschleifen.

4.2.2 Trennschleifen

Das Trennschleifen der beiden Stabenden erfolgt auf von der Nukem entwickelten Maschinen.

Der Stab wird in eine drehbar angeordnete Spannzange gespannt und mit geringer Kraft gegen eine mit etwa 5000 U/min rotierende Trennschleifscheibe gedrückt. Durch das sich drehende Werkstück wird nahezu unabhängig vom Durchmesser eine gleichbleibende Berührungsfläche zwischen Scheibe und Stab aufrechterhalten, wodurch eine saubere Schnittfläche erzeugt wird und vor allem Kantenausbrüche vermieden werden. Folgende Trennschleifscheibe hat sich bewährt: Stahlscheibe, auf die Diamantkörner in einer Bronzebindung Bz 302 N aufgebracht worden sind.

Durchmesser	:	150 mm
Breite	:	1 mm
Diamant-Körnung	:	D 100
Konzentration	:	100 = 14 Karat

4.2.3 Planschleifen

Das Planschleifen der beiden Stirnflächen geschieht auf einer Flächenschleifmaschine mit einer Topfscheibe folgender Abmessungen:

Durchmesser	:	175 mm
Schleifrandbreite	:	6 mm
Höhe der Diamantschicht	:	1 mm
Diamant-Körnung	:	D 100
Konzentration	:	100 = 14 Karat
Bindung	:	Bronze Bz 302 N

Die Stäbe werden von einem rechtwinklig zur Tischfläche ausgerichteten Dreibackenfutter aufgenommen. Dann wird mittels einer automatischen Zustelleinrichtung ein vorgegebener Betrag abgeschliffen. Hierbei werden pro Doppelhub des Schleiftisches etwa 0,02 mm zugestellt. Eine Abweichung von der Rechtwinkligkeit von $< 0,05$ mm ist bei Einzelabspannung ohne Schwierigkeiten einhaltbar.

4.2.4 Schleifen eines Leervolumens (dishing)

Leervolumina oder dishings werden an den Stirnflächen der Urankarbid-Stäbe angebracht, um die bei der Bestrahlung aufgrund von radialen Temperaturgefällen unterschiedlichen Ausdehnungen der Stäbe in Längsrichtung aufzufangen.

Eine günstige Methode zur Herstellung von solchen dishings ist die folgende, von der Nukem entwickelte:

Da, wie schon im Abschnitt 4.2 erwähnt, Urankarbid vorwiegend nur durch Schleifen bearbeitet werden kann, bietet sich als günstige Form für ein dishing die Kugelkalotte an. Zur Herstellung dieser Kalotte wird der Urankarbid-Stab, wie Abbildung 15 zeigt, um seine Längsachse gedreht, während eine schmale Schleifscheibe, deren Rotationsachse senkrecht auf der Stabachse steht und diese schneidet, die Stirnfläche abträgt.

Mit vorgegebenen Stabdurchmessern ist der Radius der Schleifscheibe festgelegt, wobei der Spielraum in der Abmessung des ebenen Randes (0,9 bis 1,2 mm) eine gewisse Abnutzung der Scheibe zuläßt.

Der Radius der Schleifscheibe errechnet sich aus:

$$r = \frac{h}{2} + \frac{s^2}{8h} . \quad (1)$$

Dabei bedeuten unter Anlehnung an Abb. 15

r	Radius der Schleifscheibe	=	114,4 mm
h	Tiefe der Kalotte	=	0,6 mm
s	Durchmesser der Kalotte	=	23,4 mm
d	Durchmesser des Stabes	=	25,2 mm
$\frac{d-s}{2}$	Breite des ebenen Randes	=	0,9 mm

Wie nun sowohl die Abnutzung der Scheibe vom Radius r als auch die Genauigkeit der Einhaltung der Tiefe h den Durchmesser s der Kalotte und damit die Randbreite beeinflusst, wurde durch partielle Ableitung der umgeformten Gl. 1

$$s = 2 \sqrt{2 rh - h^2} \quad (2)$$

untersucht.

Der Einfluß der Kalottentiefe h auf den Durchmesser s ergibt sich aus

$$\frac{\partial s}{\partial h} = 2 \frac{r - h}{\sqrt{2 rh - h^2}} . \quad (3)$$

Mit den Zahlenwerten

$$\begin{aligned} h &= 0,6 \text{ mm} \\ r &= 114,4 \text{ mm} \end{aligned}$$

folgt für

$$\frac{\partial s}{\partial h} = 20 .$$

Wird $\Delta h = \pm 0,005$ mm vorgegeben, so resultiert daraus

$$\Delta s = \frac{\partial s}{\partial h} \cdot \Delta h = 20 \cdot (\pm 0,005) = \pm 0,1 \text{ mm} \quad (4)$$

Die Schleiftiefe muß also auf ± 5 μ m genau eingehalten werden, um Durchmesserabweichungen der Kalotte innerhalb $\pm 0,1$ mm zu garantieren.

Der Einfluß des Schleifscheibenradius r auf den Kalottendurchmesser s bei konstanter Tiefe h ergibt sich aus

$$\frac{\partial s}{\partial r} = 2 \sqrt{\frac{h}{2r-h}} \quad (5)$$

Mit den Zahlenwerten

$$h = 0,6 \text{ mm}$$

$$r = 114,4 \text{ mm}$$

folgt für

$$\frac{\partial s}{\partial r} = 0,1 \text{ .}$$

Für eine Radiusabnahme von $\Delta r = 1$ mm ergibt sich eine Durchmesserabnahme der Kalotte

$$\Delta s = \frac{\partial s}{\partial r} \cdot \Delta r = 0,1 \cdot 1 = 0,1 \text{ mm.} \quad (6)$$

Da der nicht geschliffene Rand 0,9 bis 1,2 mm betragen kann, der Kalottendurchmesser s also maximal 0,6 mm abnehmen darf, kann die Schleifscheibe während des Betriebes im Durchmesser maximal 12 mm abnehmen. Damit ist sichergestellt, daß bei Verwendung einer diamantbesetzten Schleifscheibe keine Gefahr für Überschreitung der Kalottendurchmessertoleranz besteht.

Dagegen muß, wie die Gleichung (4) zeigte, durch äußerst präzise Zustellung der Schleifscheibe sichergestellt sein, daß die Kalottentiefe innerhalb einer Toleranz von $\pm 5 \mu\text{m}$ eingehalten wird.

Eine reproduzierbare Zustellung in der erforderlichen Genauigkeit konnte mit einer vollautomatisch zustellenden Flachsleifmaschine, bei der die Querbewegung des Tisches stillgelegt wurde, zufriedenstellend durchgeführt werden.

5. Reinigen und Lagern fertig bearbeiteter Urankarbid-Stäbe

Nachdem die UC-Stäbe fertig bearbeitet sind, muß das anhaftende Schleiföl wieder entfernt werden. Hierzu werden die Stäbe zunächst mit Tetrachloräthylen in einer handelsüblichen Dampfentfettungsanlage behandelt. Diese Reinigung führt zu befriedigenden Ergebnissen, wenn die zu reinigenden Teile eine geschlossene Oberfläche aufweisen, da aus der Dampfphase solange reines Lösungsmittel an den Stäben kondensiert, wie eine Temperaturdifferenz zwischen Tetrachloräthylen-Dampf und Urankarbid-Stäben vorhanden ist.

Nach der Reinigung werden die Stäbe im Vakuum bei einem Druck von $< 10^{-4}$ Torr etwa 3 h lang bei einer Temperatur von etwa 200°C behandelt, um Öl- und Lösungsmittelreste aus eventuell vorhandenen Rissen und Lunkern zu entfernen.

Verträglichkeitsuntersuchungen mit anderen Lösungsmitteln, wie 1. Methylenchlorid, 2. Trichloräthylen, 3. Petroläther, 4. Testbenzin und 5. Tributylphosphat wurden durchgeführt. Bei 1., 2. und 5. konnte bereits nach wenigen Stunden eine Reaktion mit den UC-Proben beobachtet werden. 3. und 4. wurden wegen ihrer leichten Entzündbarkeit ausgeschieden.

Fertig bearbeitete Stäbe können unter Argon in beidseitig verschlossenen Aluminiumrohren gelagert werden. Auslagerungsversuche bis zu 1 1/2 Jahren zeigten keinerlei Korrosionserscheinungen an den Stäben. Die Oberfläche war nach wie vor metallisch glänzend. Abbildung 16 zeigt eine Auswahl fertig bearbeiteter Monokarbid-Stäbe.

6. Schrottaufarbeitung

UC-Schrott fällt in stückiger Form, als Pulver und als Schleifschlamm an. Für die Aufarbeitung wurden zwei Verfahren entwickelt:

- a) Spaltung von Urankarbid mit Salpetersäure-Dampf
- b) Spaltung von Urankarbid in heißem Wasser

Bei der Methode a) werden in einem Drehrohrofen Chargen von 500 g auf 350°C aufgeheizt. Salpetersäure wird mit Kohlendioxid als Trägergas durch das Drehrohr geleitet und setzt das Urankarbid in etwa 3 h zu Uranoxid (U_3O_8) um. Der Restkohlenstoffgehalt betrug noch etwa 0,5 %.

Dieses Verfahren ist besonders für die Aufarbeitung kleinerer Mengen angereicherter Materials geeignet, da wasserfrei gearbeitet wird.

Bei der Methode b) wird der Schrott in stückiger Form in einem Siebkorb in heißes Wasser gebracht. Bei Temperaturen von 40 bis 60°C beginnt das Karbid mit dem Wasser zu reagieren, so daß keine weitere Wärmezufuhr erforderlich ist. Der gebildete Oxidschlamm kann das Sieb des Korbes passieren und sich auf dem Boden des Reaktionsgefäßes absetzen.

Liegt der Schrott als Pulver vor, wird er in kaltes Wasser gegeben und durch Einleiten von Dampf erwärmt. Hierbei wird gleichzeitig ein Rühreffekt erzielt, so daß auch dieser pulverförmige Schrott vollkommen durchreagiert.

In 200 l Wasser konnten fünf Chargen zu je 20 kg aufgearbeitet werden. Für eine Charge wurden etwa 2 h benötigt. Der Kohlenstoffgehalt des Oxides lag nach dem Trocknen bei etwa 3,5 % und konnte durch Glühen an Luft bei 800°C auf 50 ppm gesenkt werden.

Dieses Verfahren ist einfach und betriebssicher und ist daher zur Aufarbeitung größerer Mengen besser geeignet als das vorher beschriebene. Nachteilig wirkt sich jedoch bei der Aufarbeitung von angereichertem Urankarbid die wegen der Kritikalität erforderliche Mengenbeschränkung aus.

7. Prüfungen und Kontrollen

7.1 Chemische Analysen

Bei der Fabrikation von Urankarbid-Stäben dürfen vorgegebene Grenzwerte an Verunreinigungen, die mehr oder weniger stark Neutronen absorbieren, nicht überschritten werden. Für den Kohlenstoffgehalt ist ein unterer und oberer Grenzwert vorgegeben, damit gewährleistet ist, daß nur leicht überstöchiometrisches Urankarbid hergestellt wird. Da Sauerstoff und Stickstoff in sehr geringen Mengen im Karbid-Gitter Kohlenstoff substituieren, sind sie bezüglich Dichte und Stöchiometrie wie dieser zu behandeln.

7.1.1 Verunreinigungen

Die oberen Grenzwerte von Verunreinigungen waren festgelegt auf

0,3 ppm Bor und 0,33 ppm Boräquivalent auf der Grundlage der analytischen Bestimmung der Elemente: Al, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Mn, Mo, Ni, P, Si.

Die hier angegebenen Maximalwerte waren einzuhalten für Urankarbid mit natürlicher Isotopenzusammensetzung, wie es für Reaktorteste vorgesehen war. Im wesentlichen ist die Reinheit der Ausgangsstoffe wie Urandioxid und Graphit entscheidend, da durch den Verfahrensablauf eine Anhebung der Verunreinigungen so gut wie ausgeschlossen ist.

7.1.2 Kohlenstoffgehalt

Der Kohlenstoffgehalt von stöchiometrischem Uranmonokarbid beträgt theoretisch 4,803 %. Die Dichte des Karbides bei ungestörtem Gitteraufbau errechnet sich zu 13,605 g/cm³. Indessen ist es bei einer technischen Fertigung nicht möglich, den Kohlenstoffgehalt so vorzubestimmen, daß exakte Stöchiometrie in den Gußstäben eingehalten wird. Bei den ersten Urankarbid-Lieferungen lagen die einzuhaltenden Grenzwerte sowohl im

unter- wie auch überstöchiometrischen Gebiet und zwar von 4,55 % bis 4,95 % Kohlenstoff. Mit dem Kohlenstoffgehalt ändert sich die Dichte des Karbides und sehr deutlich auch das Mikrogefüge. Inzwischen haben Reaktortests ergeben, daß mit leicht überstöchiometrischem Karbid ein hinreichend hoher Abbrand ohne Schaden erreichbar ist. Aus diesem Grunde und aufgrund von Verträglichkeitsuntersuchungen mit dem Hüllmaterial mußten die Spezifikationen so geändert werden, daß der Kohlenstoffgehalt mehr als 4,80 % beträgt. Als obere Grenze wurde, wie oben, 4,95 % vorgegeben. Diese drastische Einschränkung des Toleranzbereiches bereitete bei der Herstellung von weiteren Reaktortestproben zunächst erhebliche Schwierigkeiten. Mit zunehmender Produktionserfahrung gelang es schließlich, mit nur geringer Einbuße an Ausbeute die geforderten Grenzen einzuhalten.

Der Gehalt an freiem Kohlenstoff war stets kleiner als 500 ppm.

7.1.3 Sauerstoff- und Stickstoffgehalt

Gasanalysen an Urankarbid-Tabletten ergaben Sauerstoff-Gehalte, die je nach Reaktionsbedingungen zwischen 1500 und 4000 ppm schwankten. Der Stickstoff-Gehalt lag in der Regel unter 500 ppm. Nach dem Schmelzen des Urankarbides war eine deutliche Abnahme des Sauerstoff-Gehaltes zu beobachten, so daß als obere Grenze für den Sauerstoff- und Stickstoff-Gehalt weniger als 0,15% akzeptiert werden konnte.

Nach Einführung des Vakuumschmelzens wurden indessen Sauerstoff- und Stickstoff-Gehalte gemessen, die weniger als ein Drittel des zuerst genannten Wertes betragen. Daraufhin wurde als maximaler Gehalt 500 ppm festgelegt.

Um der Tatsache, daß Kohlenstoff im Urankarbid-Gitter leicht durch Sauerstoff bzw. Stickstoff substituiert wird, Rechnung zu tragen, schließt die Spezifikation für den Kohlenstoff-Gehalt einen geringen Anteil an Sauerstoff und Stickstoff ein, derart, daß $4,8 \% \leq (C + N_2 + O_2) \leq 4,95 \%$ sein soll.

7.2 Mechanische Prüfungen

Über mechanische und physikalische Eigenschaften von Urankarbid wurde bereits berichtet⁽³⁾.

Bisher war bei der Herstellung von Stäben für Reaktortests der vorgegebene Durchmesser mit einer Genauigkeit von $\pm 0,02$ mm einzuhalten. Stäbe mit einem Gewicht bis zu 2000 g wurden auf $\pm 0,1$ g genau gewogen.

8. Ökonomische Betrachtungen

Im wesentlichen sind drei Faktoren für die Herstellungskosten von Stäben aus Uranmonokarbid maßgebend:

1. Wahl des Stabdurchmessers
2. Spezifikationen
3. Kapazität der Anlagen

8.1 Einfluß des Stabdurchmessers

Je kleiner der Stabdurchmesser, um so größer ist der Arbeitsaufwand je kg herzustellender Stäbe. Besonders bei den Arbeitsschritten der Oberflächenbearbeitung mit Rund- und Planschleifen ist ein erheblicher Einfluß auf den Arbeitsaufwand festzustellen. In Abbildung 17 ist die Anzahl der zu bearbeitenden Stäbe in Abhängigkeit vom Durchmesser bei gleichbleibendem Mengendurchsatz aufgetragen. In Abbildung 18 ist der beim Schleifen entstehende Schrott in Abhängigkeit vom Stabdurchmesser aufgezeigt. Mit zunehmendem Anteil an Schleifschrott, der wegen seiner Verunreinigung wieder aufgearbeitet werden muß, wächst auch die Menge an unwiederbringlichen Brennstoffverlusten.

Aus den erwähnten Gründen nimmt die Ausbeute an spezifikationsgerechten Stäben (bezogen auf das Gewicht) mit kleiner werdendem Durchmesser ab. Eine Abweichung dieser Tendenz tritt nur bei der Herstellung von Stäben mit Durchmessern über 25 mm auf, da hier durch Riß- und Lunkerbildung die Ausbeute wieder abnimmt.

Auch bei den Arbeitsschritten Schmelzen, Trennschleifen. Reinigen, Kontrolle und Verpacken wächst der Arbeitsaufwand pro kg herzustellenden Urankarbid mit abnehmendem Stabdurchmesser.

8.2 Einfluß der Spezifikation

Die bisher hergestellten Stäbe aus Urankarbid waren vorwiegend für Versuche im Rahmen des ORGEL-Projektes bestimmt gewesen und es ist verständlich, daß die Qualitätsanforderungen hoch waren. Wenn jedoch eine industrielle Produktion unter wirtschaftlichen Gesichtspunkten durchzuführen ist, können diese Forderungen in ihrer vollen Schärfe nicht aufrecht erhalten werden. Aus dem gleichen Grund muß auch der bisherige Prüfaufwand verringert werden.

In der Tabelle 1 sind die wesentlichen Merkmale und Grenzwerte von Maßen für Urankarbid-Stäbe aufgeführt. Die Spezifikationen sind unterteilt in "hart" und "weich", wobei unter harten Spezifikationen jene zu verstehen sind, die bei der Herstellung von Reaktortestproben gelten. Mit dem Vorschlag weicher Spezifikationen sollte mit einer vertretbaren Qualitätsminderung bei hinreichend großem Produktionsumfang eine deutliche Senkung des Arbeitsaufwandes um etwa 30 % erreichbar sein. Ganz besonders ist der Einfluß der gewünschten Oberflächenqualität der Stäbe auf den Arbeitsaufwand und auf die Ausbeute zu betonen. Abbildung 19 zeigt den Einfluß des Durchmessers auf den Preis mit zwei Spezifikationsgruppen als Parameter. Grundsätzlich kann man noch feststellen, daß durch hohe Anforderungen an die Qualität der Urankarbid-Stäbe eine weitgehende Mechanisierung der Arbeitsschritte und damit eine weitere Möglichkeit der Kostenerniedrigung erschwert wird.

8.3 Einfluß der Kapazität einer Produktionslinie

Nur größere Liefermengen können mit wirtschaftlich vertretbaren Kosten hergestellt werden, da in diesen Fällen ein erhöhter Investitionsaufwand für eine weitgehend automatisierte Produktionslinie mit großer Kapazität gerechtfertigt ist. An einigen Beispielen soll dieser Einfluß auf die Herstellungskosten von Urankarbid-Stäben aufgezeigt werden.

Der zur Zeit verwendete Schmelzofen hat eine Gießkapazität von 5 kg pro Charge. Eine nach dem gleichen Verfahren arbeitende große Schmelzanlage mit einem Chargengewicht von 50 kg könnte mit dem gleichen Personalaufwand und nur leicht erhöhten Energiekosten bedeutend wirtschaftlicher arbeiten.

Die jetzige Verfahrensweise beim Rundschleifen der Stäbe aus Urankarbid mit nur einer Maschine erfordert bei hohen Qualitätsanforderungen an die Oberfläche bis zu fünf Durchgänge, wobei jeweils die Maschine neu eingestellt werden muß.

Bei nicht allzuhohen Anforderungen an die Oberflächenqualität der Stäbe könnten zwei oder drei Rundschleifmaschinen mit fixierter Einstellung, verbunden mit einem vollmechanisierten Durchlauf der Stäbe, hintereinandergeschaltet werden.

Ebenso ist beim Planschleifen der Stirnflächen von Urankarbidstäben, das zur Zeit nur die Bearbeitung eines Stabes zuläßt, eine geeignete Vorrichtung denkbar, die während dieses Arbeitsvorganges das gleichzeitige Schleifen von 10 oder 20 Stäben erlaubt. Aber auch hier kann eine zu hohe Qualitätsanforderung an die Stäbe eine mögliche Mechanisierung behindern.

Nach vorsichtiger Abschätzung könnte, wie in Abbildung 20 angedeutet wird, eine neu zu erstellende, weitgehend automatisierte Produktionslinie mit einer Kapazität von ca. 200 t/ja gegenüber der bestehenden Linie eine Erniedrigung der Herstellkosten auf ca. 35 % erbringen.

Literatur

- (1) EUR 354.d Entwicklung von Verfahren zur Herstellung von
Urankarbiden sowie Cermets auf UC-Basis
Herstellung von Uran-Karbid-Brennstoffen 1963
- (2) EUR 355.d Entwicklung von Verfahren zur Herstellung von
Urankarbiden sowie Cermets auf UC-Basis
Herstellung von Uran-Karbid-Brennstoffen 1963
- (3) EUR 2004.d Entwicklung von Verfahren zur Herstellung von
Urankarbiden sowie Cermets auf UC-Basis
Herstellung von Uran-Karbid-Brennstoffen 1965
- (4) EUR 3467.d Herstellung von Urankarbid,
5,5 % Anreicherung 1967

Weitere Veröffentlichungen

Untersuchungen über die Herstellung von Urankarbid und seine
Verarbeitung zu Brennelementen

P. Himmelstein, B. Liebmann und L. Schäfer

Pulvermetallurgie in der Atomkerntechnik

4. Plansee Seminar, 20. bis 24. Juni 1961, S. 294

New Developments in Ceramic Fuels

P. Himmelstein, B. Liebmann und L. Schäfer

AEAS Symposium, Cannes, October 8-12, 1962

Herstellung und Verarbeitung von Uranmonokarbid für Brennelemente

P. Himmelstein, B. Liebmann und L. Schäfer

Berichte der Deutschen Keramischen Gesellschaft, 40 (1963)

S. 153 - 158

Preparation of Uranium Carbide and Fabrication of Rods by
different Casting Techniques

P. Himmelstein, B. Liebmann und L. Schäfer

Fourth Uranium Carbide Meeting, East Hartford, Connecticut,
May 20 and 21, 1963

Fabrication of Cast Uranium Carbide Rods

P. Himmelstein, B. Liebmann und L. Schäfer

Carbides in Nuclear Energy, The Proceedings of a Symposium
held at Harwell, November 1963, p. 736 - 744
Macmillan u. Co Ltd, London, 1964

Fabrication of Fused UO_2 , UC Feed Material and Cast UC Rods

P. Himmelstein, W. Hoppe, B. Liebmann, L. Schäfer,
L. Schikarski und W. in der Schmitten

Third United Nations International Conference on the
Peaceful Uses of Atomic Energy, Genf, May 1964

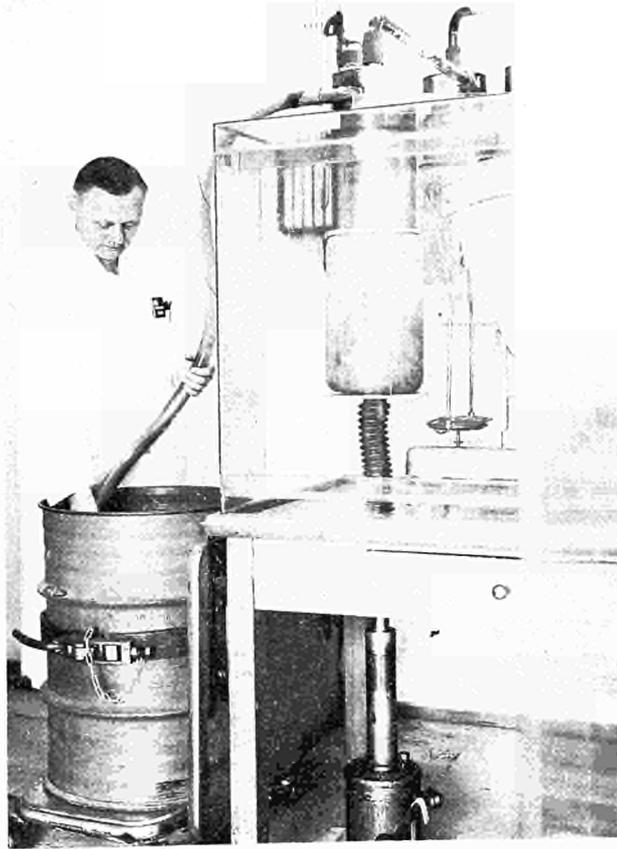
Tabelle 1 Spezifikationen

	"hart"	Prüfumfang	"weich"	Prüfumfang
1. Länge der UC-Stäbe	> 50 mm <100 mm	100%	ohne Längenbegrenzung in Säulen verlegt von ± 1 mm	100%
2. Durchmesser	$\pm 0,02$ mm	100%	$\pm 0,05$ mm	Stichproben
3. Orthogonalität	$\pm 0,03$ mm	100%	$\pm 0,06$ mm	Stichproben
4. geometrische Dichte	99% der th.D.	100%	98% der th.D.	Stichproben
5. Oberflächenbeschaffenheit	ohne Krusten, Risse und Poren	100%	Erlaubt sind in begrenztem Umfang : Feine Risse, vereinzelte Poren, leichte Oberflächenvertiefungen und Kantenausbrüche sowie feine Fadenslunker.	100%

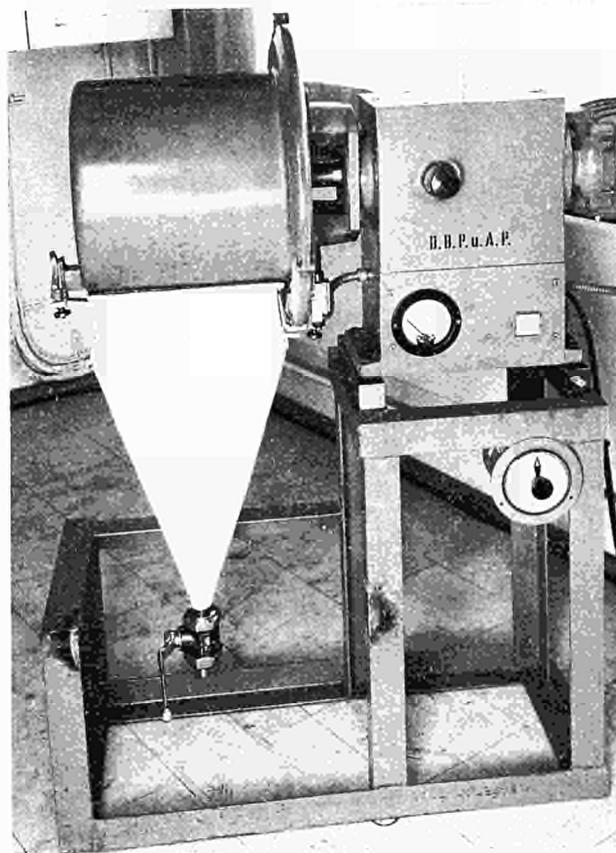
Tabelle 1

Spezifikationen (Fortsetzung)

	"hart"	Prüfumfang	"weich"	Prüfumfang
6. Reinheit				
a) Uran mit natürl. Isotopenzusammensetzung	0,3 ppm Bor 0,33 ppm Boräquivalent	2 Bestimmungen pro 100 kg	0,3 ppm Bor 0,33 ppm Boräquivalent	2 Bestimmungen pro 1000 kg
b) schwach angereichertes Uran	0,3 ppm Bor 2 ppm Boräquivalent	2 Bestimmungen pro 100 kg	0,3 ppm Bor 2 ppm Boräquivalent	2 Bestimmungen pro 1000 kg
7. Kohlenstoffgehalt	$4,8\% < (C+N_2+O_2) \leq 4,95\%$	2 Bestimmungen pro 100 kg	$4,8\% < (C+N_2+O_2) < 5,0\%$	2 Bestimmungen pro 1000 kg
8. Gasgehalt	$O_2 + N_2 \leq 500$ ppm	2 Bestimmungen pro 100 kg	$O_2 + N_2 \leq 500$ ppm durch Verfahren sichergestellt	
9. freier Kohlenstoff	$\leq 0,03$ Gew. -%	2 Bestimmungen pro 100 kg	$\leq 0,05$ Gew. -%	2 Bestimmungen pro 1000 kg
10. Identifizierung	jeder Stab wird nummeriert		entfällt	
11. Gewicht	jeder Stab wird gewogen		nur jede Säule wird gewogen	



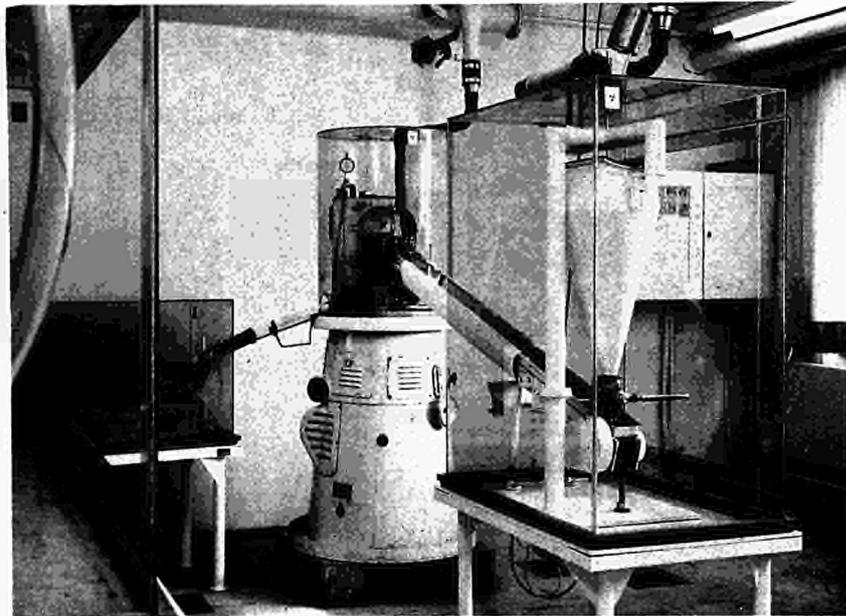
(66 - 213)



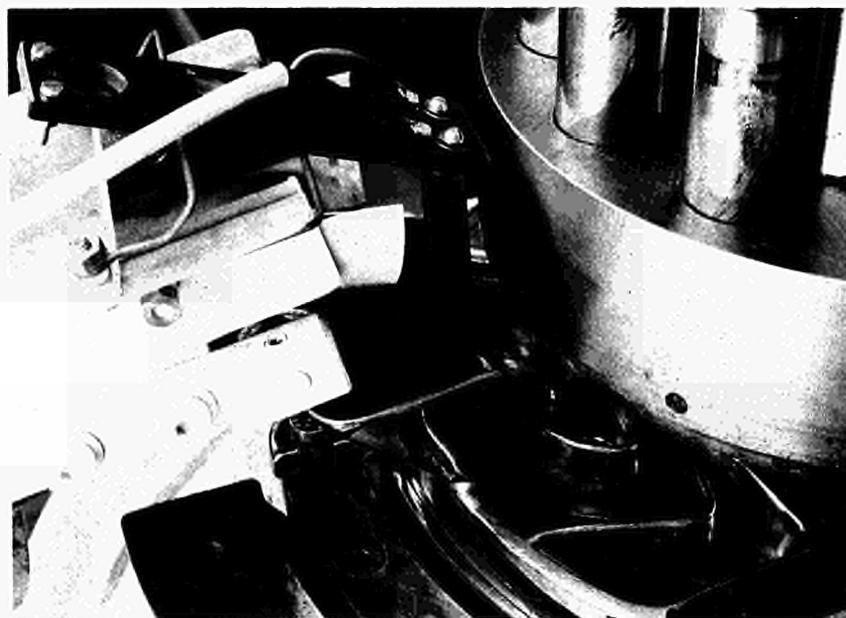
(66 - 211)

Abb. 1

*Umfüllvorrichtung und Abfüllbehälter
für Pulvergemisch*



(66 - 215)



(66 - 216)

Abb. 2

Tablettenpresse mit Pulverzuführung

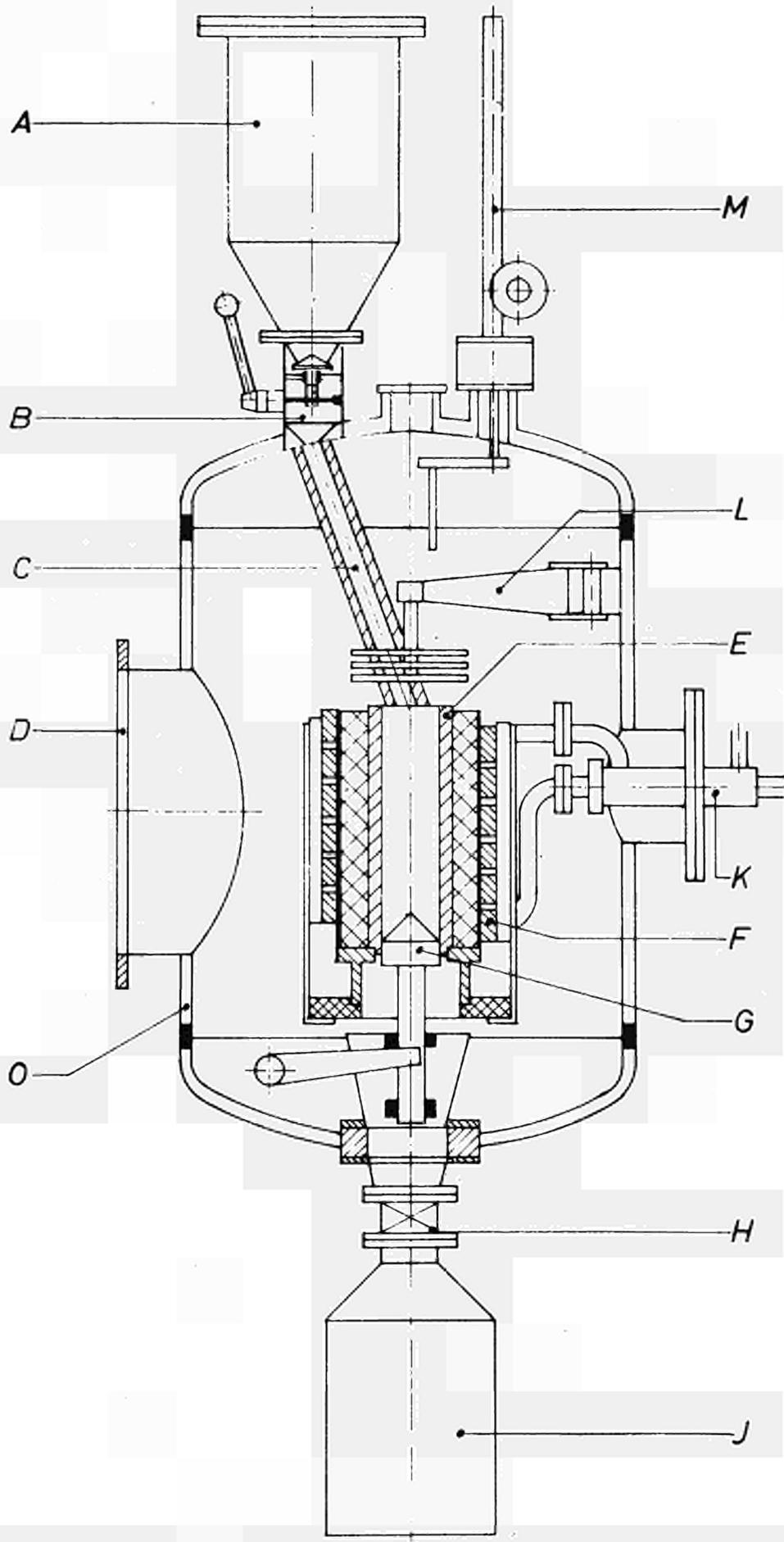


Abb. 3

Reaktionsofen (Schema)

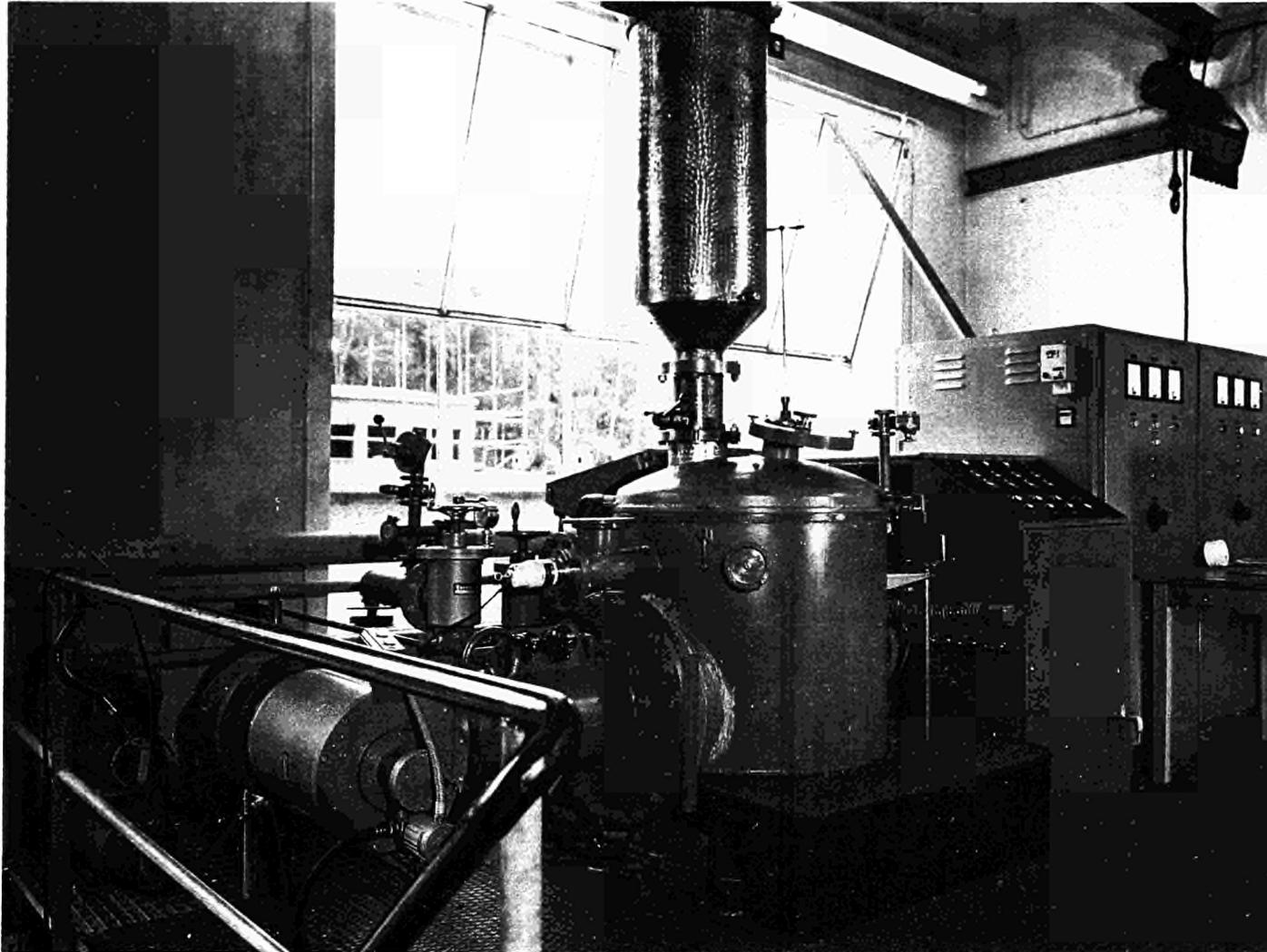


Abb. 4

Reaktionsofen

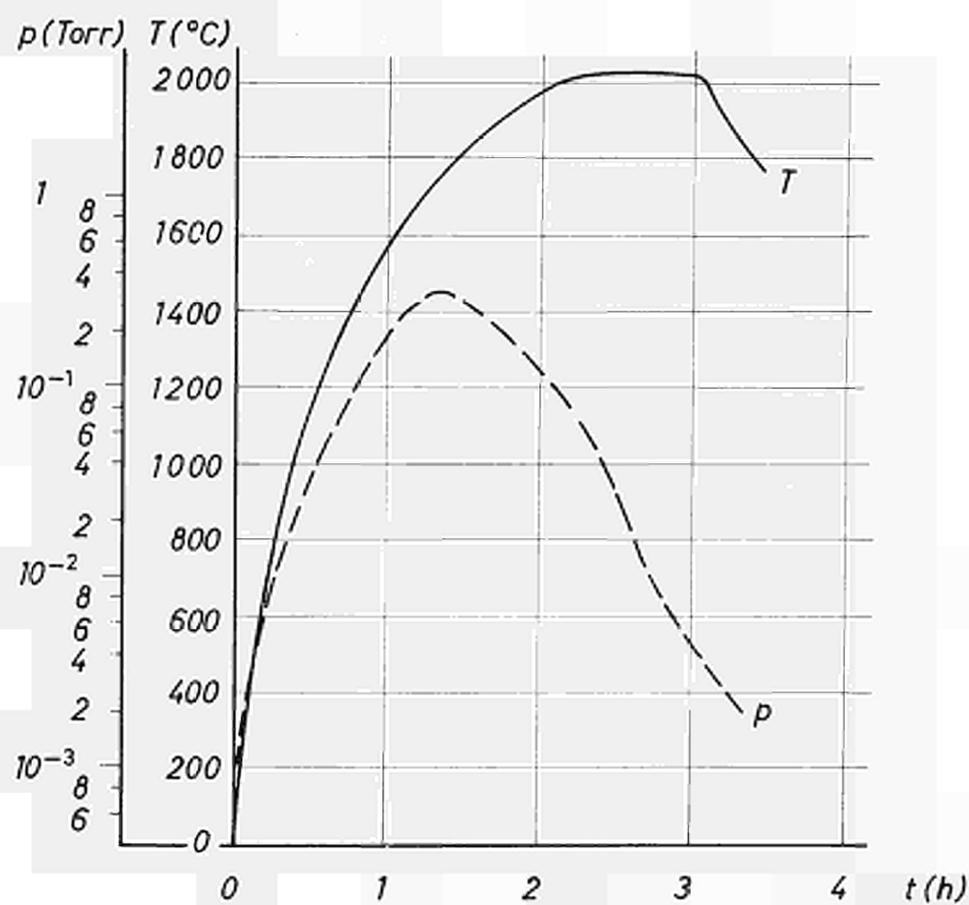


Abb. 5

Temperatur- und Druckverlauf bei
der Reaktion

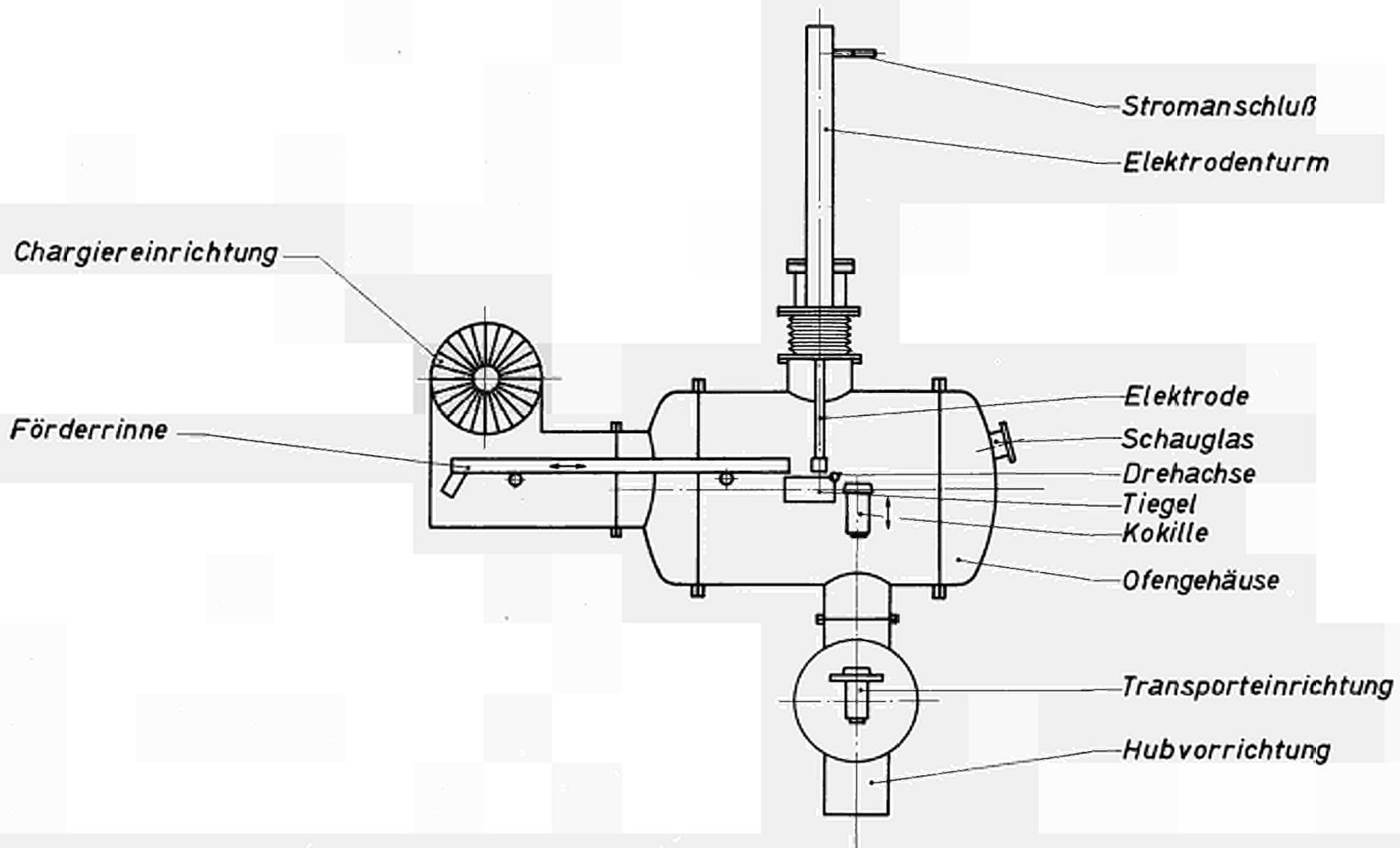
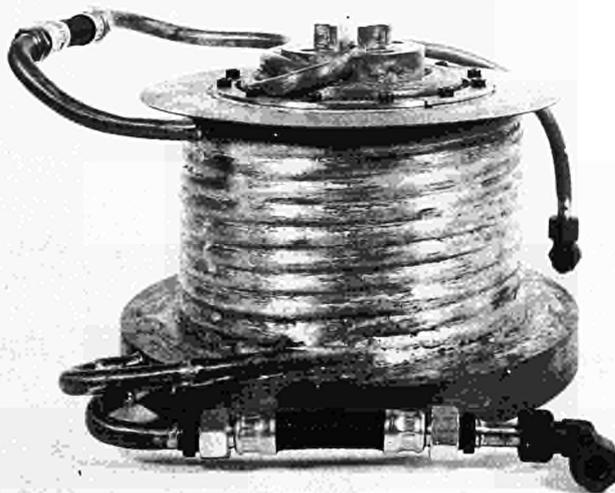


Abb.6

Schmelzofen SMO III (Schema)



(65 - 427)



(65 - 424)

Abb. 7

Schmelztiegel

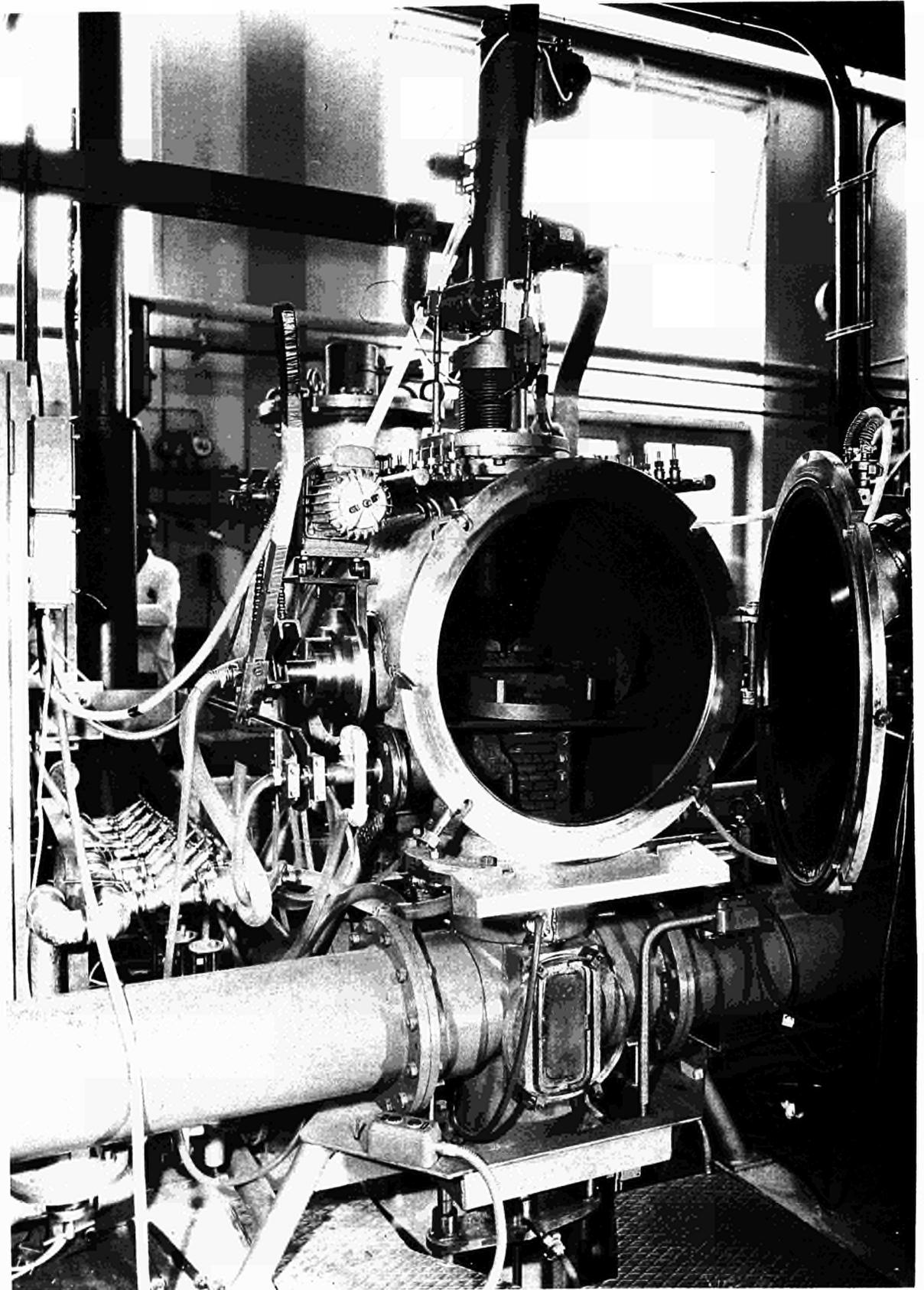
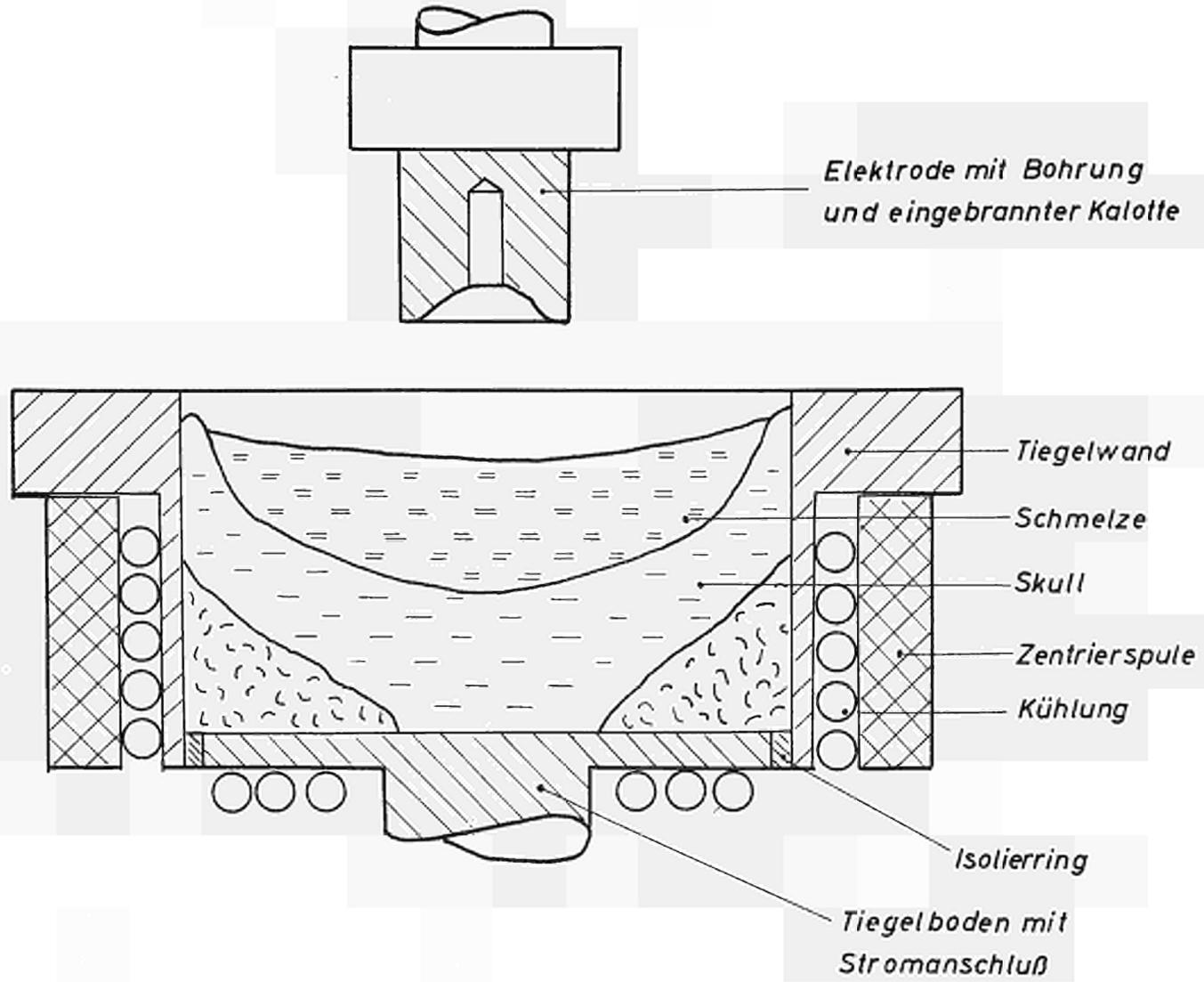


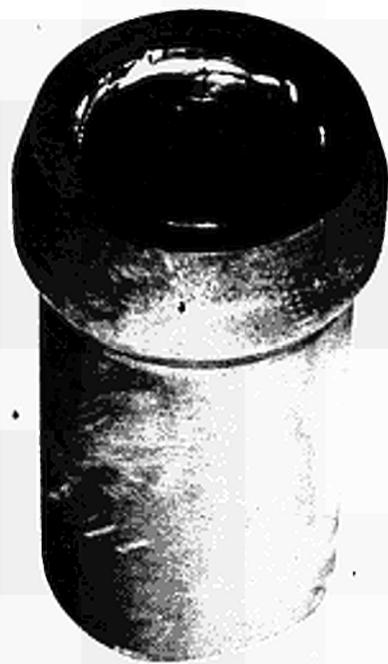
Abb. 8

Schmelzofen SMO III

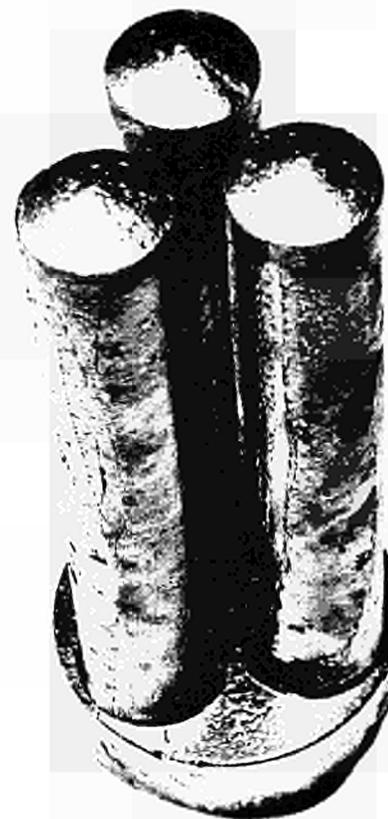
Abb. 9

Schmelztiegel (Schema)





(68 - 230)



(68 - 231)

Abb. 10

Graphitkokille und Gußstück

Kokille

dickwandig

EK 48



dickwandig

ATJ



dünnwandig

EK 48



dünnwandig

ATJ



(67 - 053)

Abb.11

Rißbildung an UC - Stäben



Abb. 12

Graphitkokillen

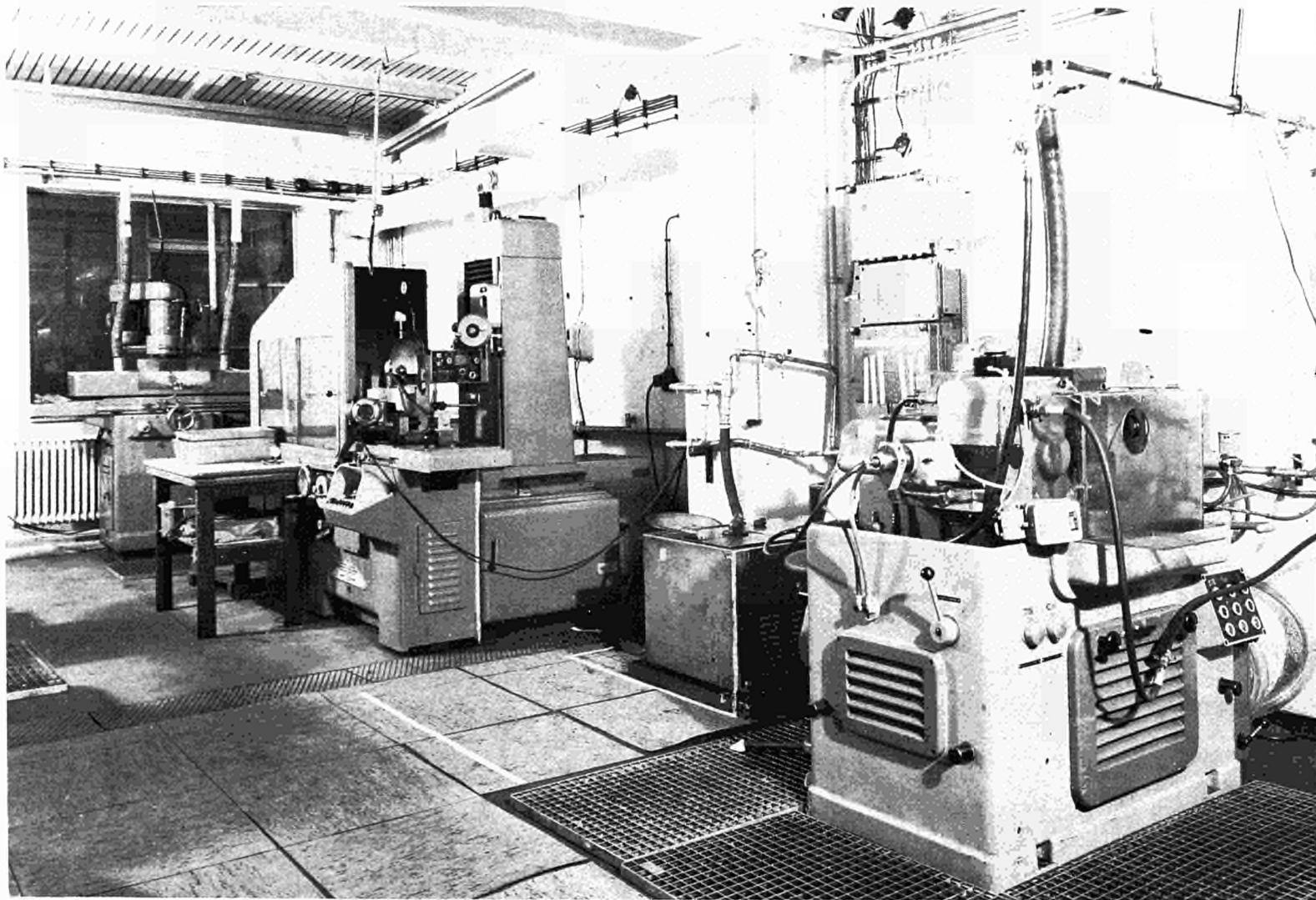
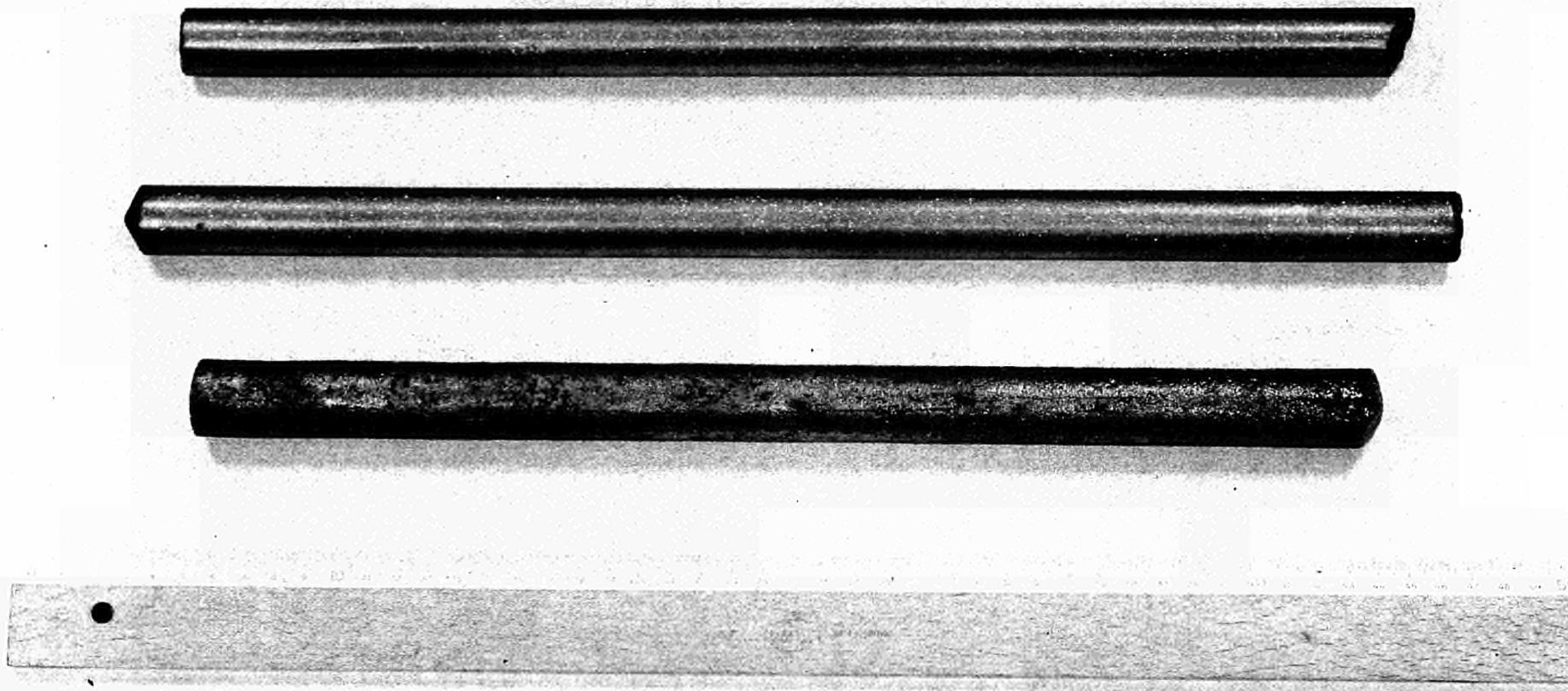


Abb. 13

Schleifmaschinen



(65 - 332)

Abb. 14

UC-Stäbe vor und nach dem Rundschleifen

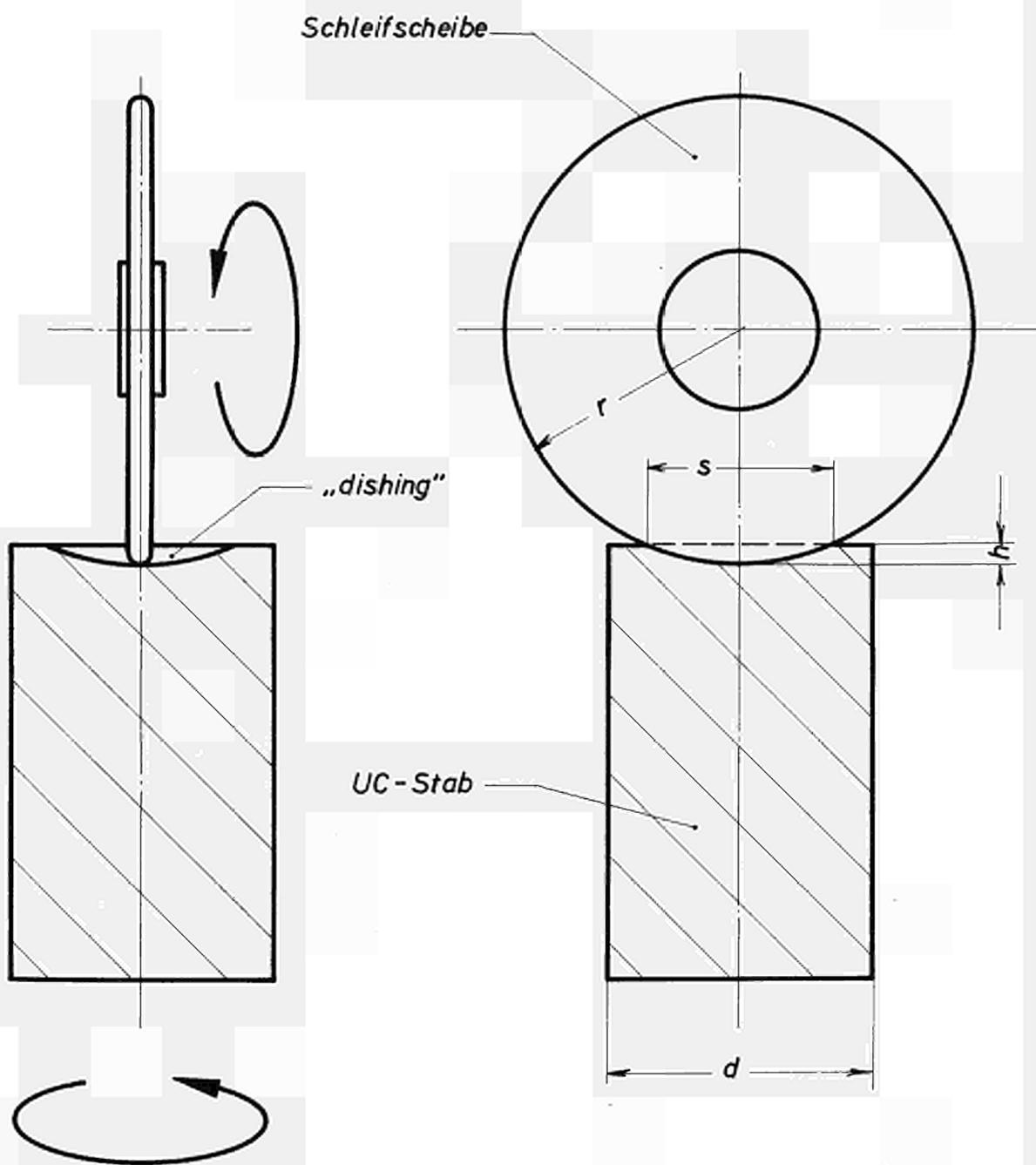
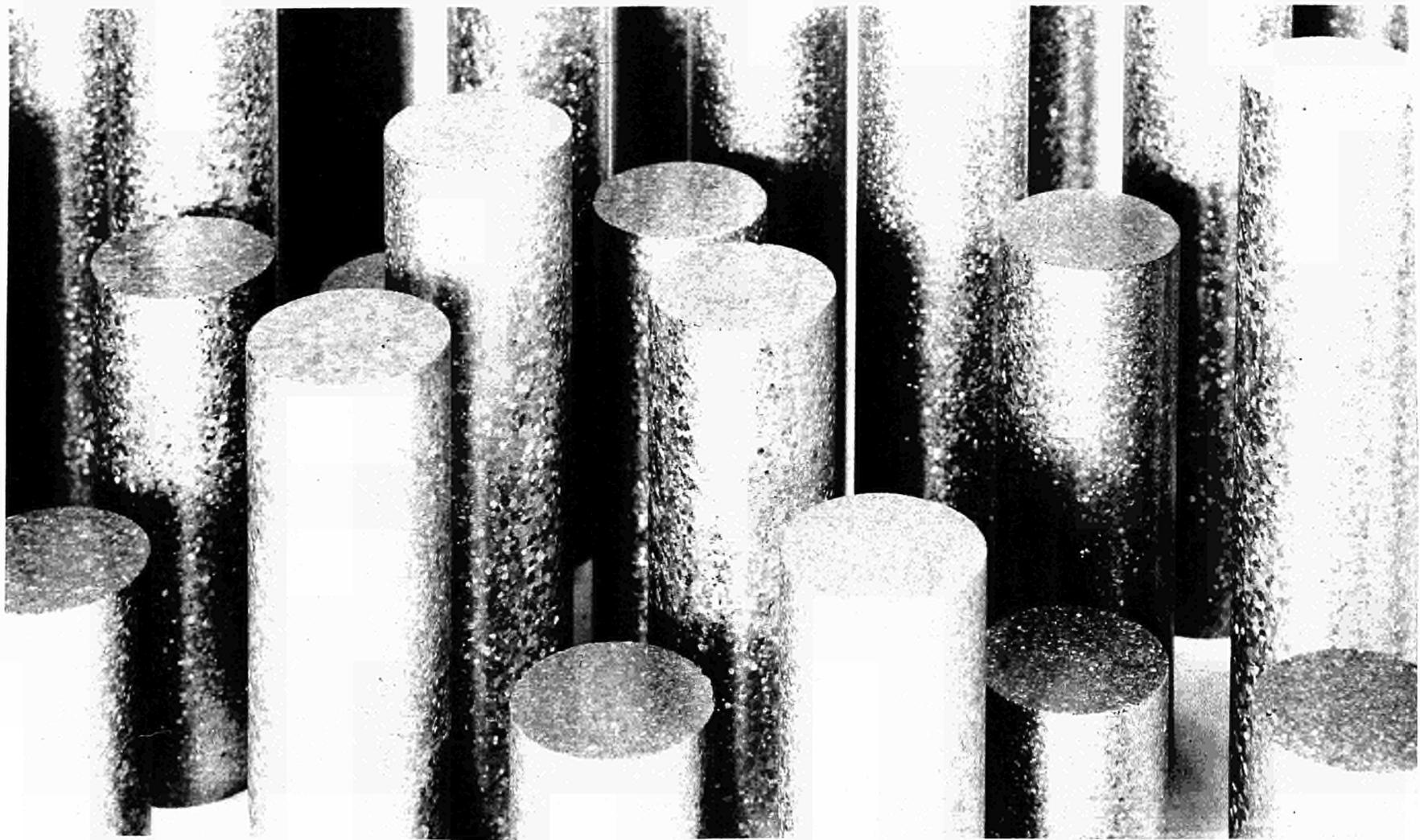


Abb. 15

Schleifen des Leervolumens
(dishing)



(00-017)

Abb. 16

Fertig bearbeitete UC-Stäbe

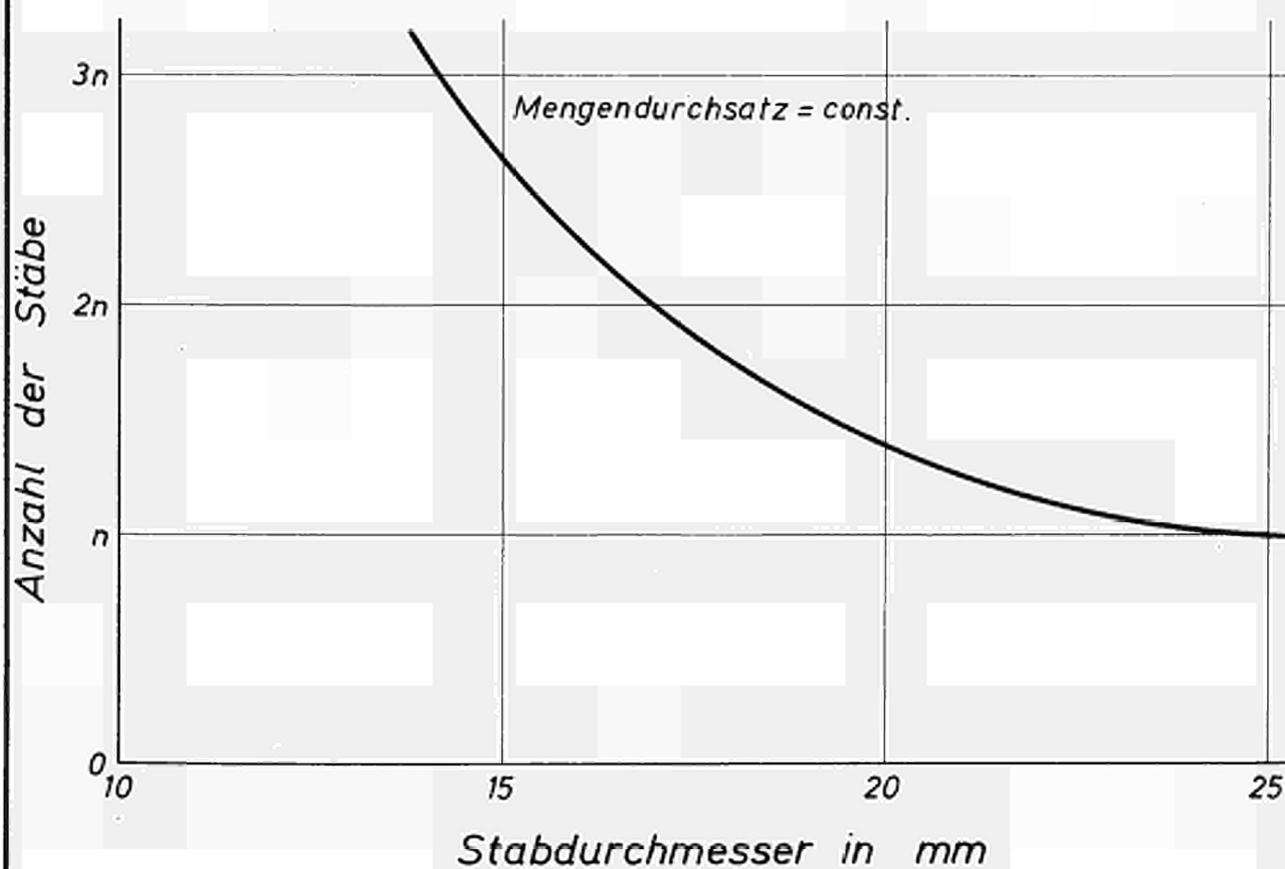


Abb. 17

Zahl der Stäbe als Funktion
des Durchmessers

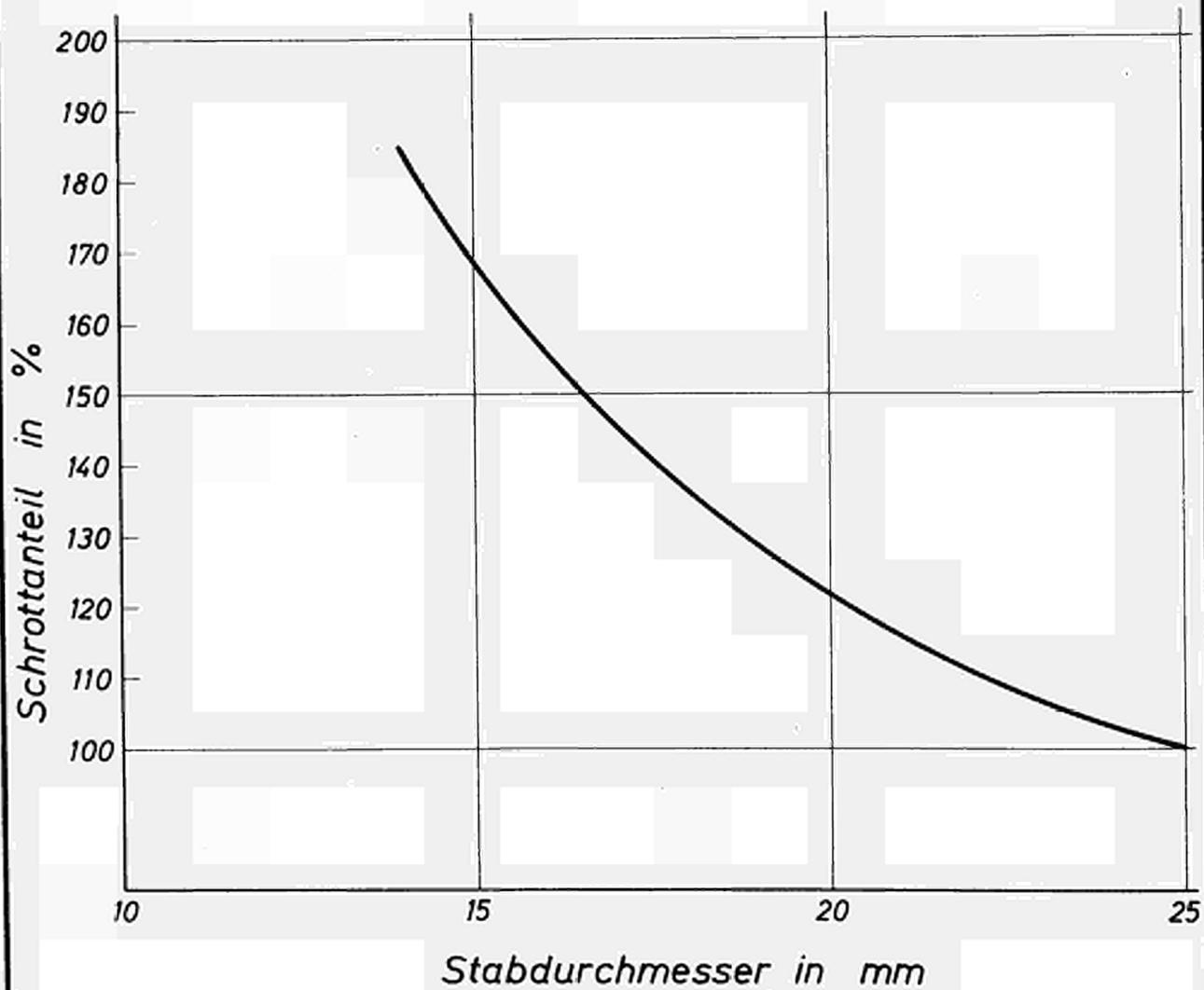


Abb.18

Einfluß des Stabdurchmessers
auf den Schrottanteil

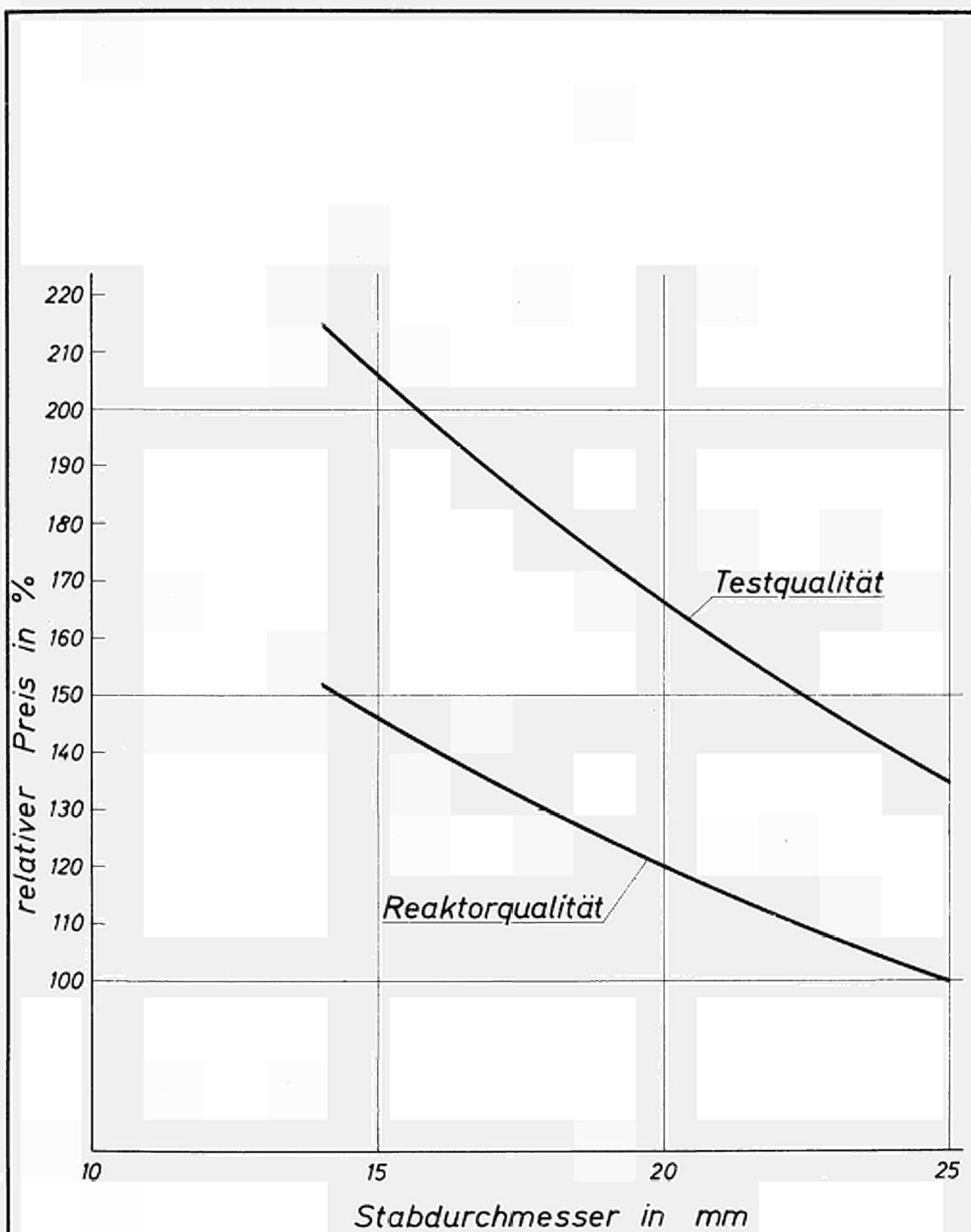


Abb.19

Einfluß des Stabdurchmessers
auf den Preis

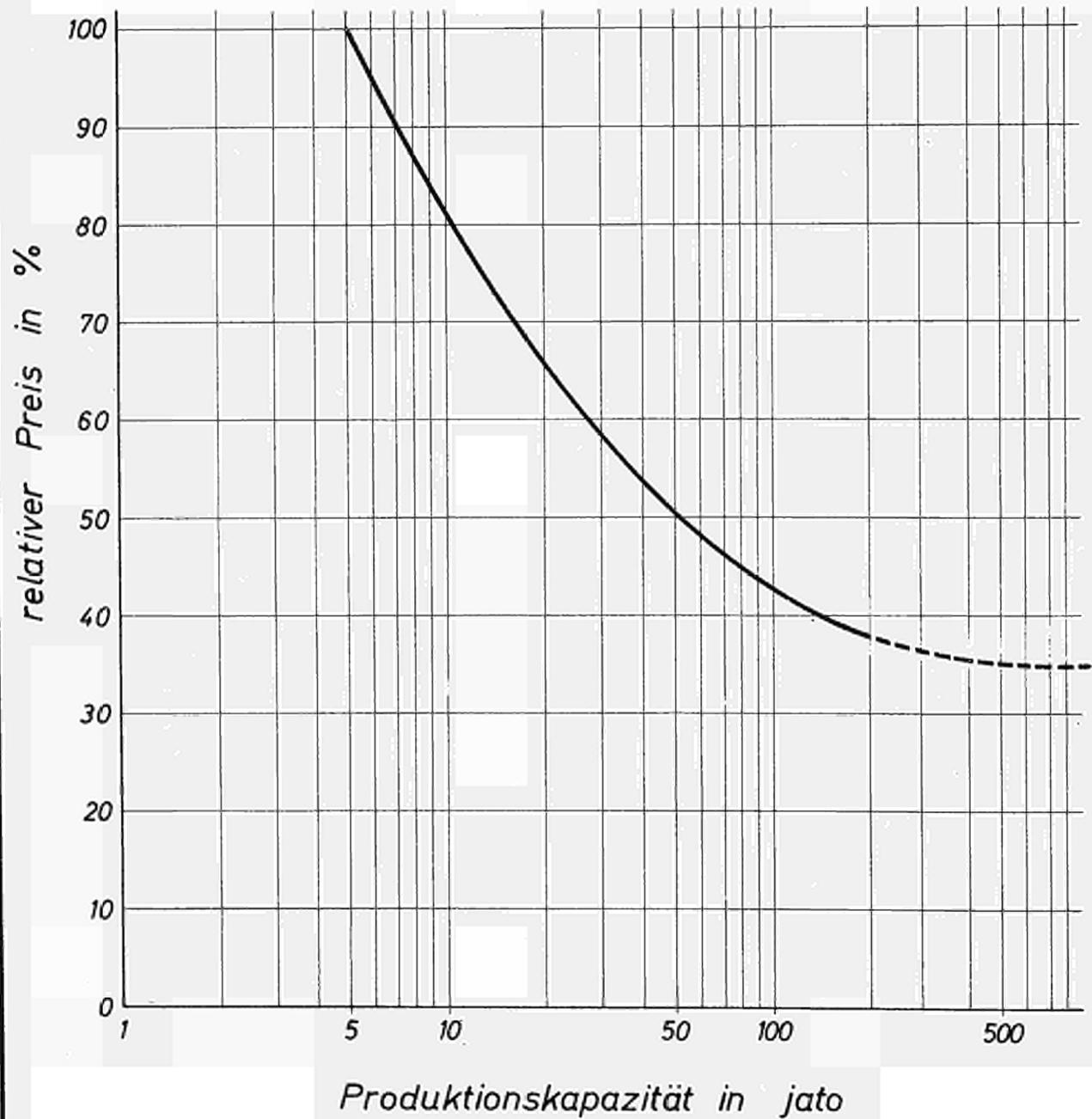


Abb. 20

Mögliche Preisentwicklung

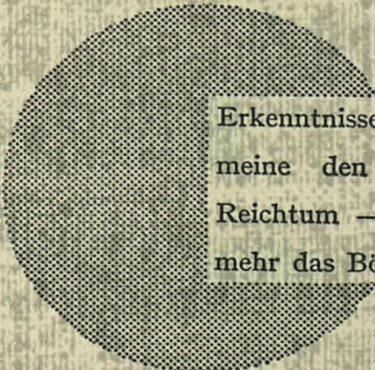
AN UNSERE LESER

Alle Euratom-Berichte werden nach Erscheinen in der von der Zentralstelle für Information und Dokumentation (CID) herausgegebenen Monatszeitschrift **EURATOM INFORMATION** angezeigt. Abonnements (1 Jahr : DM 60) und Probehefte sind erhältlich bei :

Handelsblatt GmbH
"Euratom Information"
Postfach 1102
D-4 Düsseldorf (Deutschland)

oder

Centrale de vente des publications
des Communautés européennes
37, rue Glesener
Luxembourg



Erkenntnisse verbreiten ist soviel wie Wohlstand verbreiten — ich meine den allgemeinen Wohlstand, nicht den individuellen Reichtum — denn mit dem Wohlstand verschwindet mehr und mehr das Böse, das uns aus dunkler Zeit vererbt ist.

Alfred Nobel

VERTRIEBSSTELLEN

Alle Euratom-Berichte sind bei folgenden Stellen zu den auf der ersten Rückseite des Umschlags angegebenen Preisen erhältlich (bei schriftlicher Bestellung bitte die EUR-Nummer und den Titel, die beide auf der ersten Umschlagsseite jedes Bericht stehen, deutlich angeben).

CENTRALE DE VENTE DES PUBLICATIONS DES COMMUNAUTES EUROPEENNES

37, rue Glesener, Luxembourg (Compte chèque postal N° 191-90)

BELGIQUE — BELGIË

MONITEUR BELGE
40-42, rue de Louvain - Bruxelles
BELGISCH STAATSBLAD
Leuvenseweg 40-42 - Brussel

LUXEMBOURG

CENTRALE DE VENTE
DES PUBLICATIONS DES
COMMUNAUTES EUROPEENNES
37, rue Glesener - Luxembourg

DEUTSCHLAND

BUNDESANZEIGER
Postfach - Köln 1

NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE
DES PUBLICATIONS DES
COMMUNAUTES EUROPEENNES
26, rue Desaix - Paris 15^e

ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO
Piazza G. Verdi, 10 - Roma

UNITED KINGDOM

H. M. STATIONERY OFFICE
P.O. Box 569 - London S.E.1

EURATOM — C.I.D.
29, rue Aldringer
Luxembourg

CDNA04273DEC