

**EUR 2693 . d**

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT — EURATOM

**HERSTELLUNG VON  $UO_2$ -PULVERN HOHER  
SCHÜTTDICHTEN DURCH SCHMELZEN UND MAHLEN  
UND IHRE VERARBEITUNG ZU BRENNELEMENTEN**

Abschlussbericht

von

**R. CHRIST, W. DÜRRSCHNABEL, W. HOPPE und L. SCHIKARSKI  
(NUKEM)**

1966



Abkommen über Zusammenarbeit EURATOM/USA

EURAEK-Bericht Nr. 1551 abgefaßt von NUKEM -  
Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang bei Hanau - Deutschland

Euratom-Vertrag Nr. 013-63-7 TEED

## HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist mit Unterstützung und Förderung der Kommission der Europäischen Atomgemeinschaft (Euratom) im Rahmen des in dem Abkommen über Zusammenarbeit zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der Regierung der Vereinigten Staaten von Amerika vom 8. November 1958 festgelegten Gemeinsamen Programms ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, daß die Euratomkommission, die Regierung der Vereinigten Staaten, die United States Atomic Energy Commission ihre Vertragspartner und alle in deren Namen handelnden Personen

weder ausdrücklich noch stillschweigend eine Gewähr dafür übernehmen, daß die in diesem Dokument enthaltenen Informationen richtig, vollständig und nützlich 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;

keine Haftung im Falle der Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen oder der in diesem Dokument bekanntgegebenen technischen Anordnungen, Methoden und Verfahren oder für Schäden übernehmen, die infolge dieser Verwendung entstehen.

Dieser Bericht wird in den auf der vierten Umschlagseite genannten Vertriebsstellen

zum Preise von DM 6,80	FF 8,50	FB 85	Lit. 1060	Fl. 6.20
------------------------	---------	-------	-----------	----------

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 s.p.r.l.  
Brüssel, März 1966

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

## EUR 2693.d

HERSTELLUNG VON  $UO_2$ -PULVERN HOHER SCHÜTTDICHTHE DURCH SCHMELZEN UND MAHLEN UND IHRE VERARBEITUNG ZU BRENN-ELEMENTEN - Abschlussbericht

von R. CHRIST, W. DÜRRSCHNABEL, W. HOPPE und L. SCHIKARSKI (NUKEM)

Europäische Atomgemeinschaft - EURATOM

Abkommen über Zusammenarbeit EURATOM/USA

EURAEK-Bericht Nr. 1551 abgefaßt von NUKEM - Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang bei Hanau (Deutschland)

Euratom-Vertrag Nr. 013-63-7 TEED

Brüssel, März 1966 - 70 Seiten - 45 Abbildungen - FB 85

Zur Herstellung von Pulvern mit hoher Partikeldichte, wie sie für die Vibrationsverdichtung geeignet sind, wurde die Methode des Schmelzens von  $UO_2$  im direkten Stromdurchgang unter Argon-Schutzgas weiterentwickelt. Der erstellte experimentelle Schmelzofen gestattet es, pro Arbeitstag beim Schmelzen von insgesamt vier Chargen bis zu 35 kg geschmolzenes  $UO_2$  herzustellen. Die Erhöhung der Kapazität durch den Bau von Öfen mit größerem Schmelzeinsatz

## EUR 2693.d

PRODUCTION OF  $UO_2$  POWDERS OF HIGH BULK DENSITY BY MELTING AND GRINDING AND THEIR PROCESSING INTO FUEL ELEMENTS - Final Report

by R. CHRIST, W. DÜRRSCHNABEL, W. HOPPE und L. SCHIKARSKI (NUKEM)

European Atomic Energy Community - EURATOM

EURATOM/US Agreement for Cooperation

Report EURAEK No. 1551 prepared by NUKEM - Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang bei Hanau (Germany)

Euratom Contract No. 013-63-7 TEED

Brussels, March 1966 - 70 Pages - 45 Figures - FB 85

For the production of powders with a high particle density, suitable for vibration-compaction, further development was done on the method of melting  $UO_2$  by induction heating under an argon blanket. Using the experimental furnace constructed and melting a total of four charges per working day, it is possible to produce up to 35 kg of melted  $UO_2$ . The output could be increased by building furnaces of greater capacity, but this was not attempted in the course

## EUR 2693.d

PRODUCTION OF  $UO_2$  POWDERS OF HIGH BULK DENSITY BY MELTING AND GRINDING AND THEIR PROCESSING INTO FUEL ELEMENTS - Final Report

by R. CHRIST, W. DÜRRSCHNABEL, W. HOPPE und L. SCHIKARSKI (NUKEM)

European Atomic Energy Community - EURATOM

EURATOM/US Agreement for Cooperation

Report EURAEK No. 1551 prepared by NUKEM - Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang bei Hanau (Germany)

Euratom Contract No. 013-63-7 TEED

Brussels, March 1966 - 70 Pages - 45 Figures - FB 85

For the production of powders with a high particle density, suitable for vibration-compaction, further development was done on the method of melting  $UO_2$  by induction heating under an argon blanket. Using the experimental furnace constructed and melting a total of four charges per working day, it is possible to produce up to 35 kg of melted  $UO_2$ . The output could be increased by building furnaces of greater capacity, but this was not attempted in the course

## EUR 2693.d

PRODUCTION OF  $UO_2$  POWDERS OF HIGH BULK DENSITY BY MELTING AND GRINDING AND THEIR PROCESSING INTO FUEL ELEMENTS - Final Report

by R. CHRIST, W. DÜRRSCHNABEL, W. HOPPE und L. SCHIKARSKI (NUKEM)

European Atomic Energy Community - EURATOM

EURATOM/US Agreement for Cooperation

Report EURAEK No. 1551 prepared by NUKEM - Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang bei Hanau (Germany)

Euratom Contract No. 013-63-7 TEED

Brussels, March 1966 - 70 Pages - 45 Figures - FB 85

For the production of powders with a high particle density, suitable for vibration-compaction, further development was done on the method of melting  $UO_2$  by induction heating under an argon blanket. Using the experimental furnace constructed and melting a total of four charges per working day, it is possible to produce up to 35 kg of melted  $UO_2$ . The output could be increased by building furnaces of greater capacity, but this was not attempted in the course

ist möglich, wurde aber im Rahmen des Vertrages nicht erprobt. Zum Schmelzen können sowohl Preßlinge mit großem Durchmesser als auch einfache Pulverschüttungen eingesetzt werden. Bei diesem Verfahren entsteht pro Charge nur etwa 1 % an chemisch aufzubereitendem Schrott.

Das geschmolzene und gemahlene  $UO_2$  weist nach einer Stöchiometrieglühung folgende Zusammensetzung auf: Verhältnis O/U = 2,00 bis 2,01 Kohlenstoff ca. 60 ppm,  $N_2$  ca. 50 ppm, Wasserstoff ca. 10 ppm, Feuchtigkeit zwischen 5 ppm (grobstückig) und 200 ppm (feinkörnig).

Schmelzen an Luft oder unter Wasserstoff erwies sich als weniger günstig verhalten mit Schmelzen unter Argon.

Aus dem erschmolzenen  $UO_2$  wurden Pulvermischungen von verschiedener Korngrößenverteilung hergestellt und für Vibrationsversuche in Hüllrohren unterschiedlicher Dimensionen aus austenitischem Stahl und Zircaloy-2 verwendet. Die erreichten Brennstoffdichten lagen in der Regel zwischen 87 und 88 %, in einigen Rohrorten konnten jedoch Werte bis zu 90 % th. D. erzielt werden.

Durch Rundhämmern der vibrierten Stäbe ließen sich Brennstoffdichten bis zu 93 % erzielen. Das Rundhämmern kann jedoch zu Hüllrohrschäden führen.

Bei einem Vergleich der Herstellungskosten von mit Pulver und mit Sinterkörpern gefüllten Stäben ergaben sich für die mit Pulver gefüllten Stäbe um rund 6 % geringere Kosten.

---

of the work under the contract. Either large-diameter pressings or simple powder charges can serve as feedstock for the melting step. With this process the amount of scrap requiring chemical treatment is only about 1% per charge.

The composition of the melted and ground  $UO_2$  after annealing for stoichiometry is as follows: O/U ratio 2.00 to 2.01; carbon approx. 60 ppm; nitrogen approx. 50 ppm; hydrogen approx. 10 ppm; moisture content between 5 ppm (coarse fraction) and 200 ppm (fine fraction). Melting in air or under hydrogen was found to be less favourable than melting under argon.

Powder mixtures of varying grain-size distributions were made from the melted  $UO_2$  and used for vibration-compaction tests in austenitic-steel and Zircaloy-2 cladding tubes of various sizes. The fuel densities attained were generally between 87 and 88% t.d., though in some types of tube values of up to 90% t.d. were achieved.

By swaging the vibration-compacted rods it was possible to obtain fuel densities of up to 93%, but the swaging can result in damage to the cladding tubes.

A comparison of the production costs of powder-filled fuel rods and rods filled with sintered material showed a difference of about 6% in favour of the former.

---

of the work under the contract. Either large-diameter pressings or simple powder charges can serve as feedstock for the melting step. With this process the amount of scrap requiring chemical treatment is only about 1% per charge.

The composition of the melted and ground  $UO_2$  after annealing for stoichiometry is as follows: O/U ratio 2.00 to 2.01; carbon approx. 60 ppm; nitrogen approx. 50 ppm; hydrogen approx. 10 ppm; moisture content between 5 ppm (coarse fraction) and 200 ppm (fine fraction). Melting in air or under hydrogen was found to be less favourable than melting under argon.

Powder mixtures of varying grain-size distributions were made from the melted  $UO_2$  and used for vibration-compaction tests in austenitic-steel and Zircaloy-2 cladding tubes of various sizes. The fuel densities attained were generally between 87 and 88% t.d., though in some types of tube values of up to 90% t.d. were achieved.

By swaging the vibration-compacted rods it was possible to obtain fuel densities of up to 93%, but the swaging can result in damage to the cladding tubes.

A comparison of the production costs of powder-filled fuel rods and rods filled with sintered material showed a difference of about 6% in favour of the former.

---

of the work under the contract. Either large-diameter pressings or simple powder charges can serve as feedstock for the melting step. With this process the amount of scrap requiring chemical treatment is only about 1% per charge.

The composition of the melted and ground  $UO_2$  after annealing for stoichiometry is as follows: O/U ratio 2.00 to 2.01; carbon approx. 60 ppm; nitrogen approx. 50 ppm; hydrogen approx. 10 ppm; moisture content between 5 ppm (coarse fraction) and 200 ppm (fine fraction). Melting in air or under hydrogen was found to be less favourable than melting under argon.

Powder mixtures of varying grain-size distributions were made from the melted  $UO_2$  and used for vibration-compaction tests in austenitic-steel and Zircaloy-2 cladding tubes of various sizes. The fuel densities attained were generally between 87 and 88% t.d., though in some types of tube values of up to 90% t.d. were achieved.

By swaging the vibration-compacted rods it was possible to obtain fuel densities of up to 93%, but the swaging can result in damage to the cladding tubes.

A comparison of the production costs of powder-filled fuel rods and rods filled with sintered material showed a difference of about 6% in favour of the former.

**EUR 2693 . d**

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT — EURATOM

**HERSTELLUNG VON  $UO_2$ -PULVERN HOHER  
SCHÜTTDICHTEN DURCH SCHMELZEN UND MAHLEN  
UND IHRE VERARBEITUNG ZU BRENNELEMENTEN**

**Abschlussbericht**

von

**R. CHRIST, W. DÜRRSCHNABEL, W. HOPPE und L. SCHIKARSKI  
(NUKEM)**

**1966**



Abkommen über Zusammenarbeit EURATOM/USA

EURAEK-Bericht Nr. 1551 abgefaßt von NUKEM -  
Nuklear-Chemie und -Metallurgie GmbH, Wolfgang bei Hanau - Deutschland

Euratom-Vertrag Nr. 013-63-7 TEED

## Zusammenfassung

Zur Herstellung von Pulvern mit hoher Partikeldichte, wie sie für die Vibrationsverdichtung geeignet sind, wurde die Methode des Schmelzens von  $\text{UO}_2$  im direkten Stromdurchgang unter Argon-Schutzgas weiterentwickelt. Der erstellte experimentelle Schmelzofen gestattet es, pro Arbeitstag beim Schmelzen von insgesamt vier Chargen bis zu 35 kg geschmolzenes  $\text{UO}_2$  herzustellen. Die Erhöhung der Kapazität durch den Bau von Öfen mit größerem Schmelzeinsatz ist möglich, wurde aber im Rahmen des Vertrages nicht erprobt. Zum Schmelzen können sowohl Preßlinge mit großem Durchmesser als auch einfache Pulverschüttungen eingesetzt werden. Bei diesem Verfahren entsteht pro Charge nur etwa 1 % an chemisch aufzuarbeitendem Schrott.

Das geschmolzene und gemahlene  $\text{UO}_2$  weist nach einer Stöchiometrieglühung folgende Zusammensetzung auf: Verhältnis O/U = 2,00 bis 2,01 Kohlenstoff ca. 60 ppm, N<sub>2</sub> ca. 50 ppm, Wasserstoff ca. 10 ppm, Feuchtigkeit zwischen 5 ppm (grobstückig) und 200 ppm (feinkörnig).

Schmelzen an Luft oder unter Wasserstoff erwies sich als weniger günstig verglichen mit Schmelzen unter Argon.

Aus dem erschmolzenen  $\text{UO}_2$  wurden Pulvermischungen von verschiedener Korngrößenverteilung hergestellt und für Vibrationsversuche in Hüllrohren unterschiedlicher Dimensionen aus austenitischem Stahl und Zircaloy-2 verwendet. Die erreichten Brennstoffdichten lagen in der Regel zwischen 87 und 88 %, in einigen Rohrarten konnten jedoch Werte bis zu 90 % th. D. erzielt werden.

Durch Rundhämmern der vibrierten Stäbe ließen sich Brennstoffdichten bis zu 93 % erzielen. Das Rundhämmern kann jedoch zu Hüllrohrschäden führen.

Bei einem Vergleich der Herstellungskosten von mit Pulver und mit Sinterkörpern gefüllten Stäben ergaben sich für die mit Pulver gefüllten Stäbe um rund 6 % geringere Kosten.

## Einleitung

Die Entwicklung zur Herstellung von Brennelementen mit  $\text{UO}_2$ -Pulverfüllung muß auf zwei Gebieten gleichzeitig vorangetrieben werden. Einmal sind auf wirtschaftlichem Wege Pulver mit kompakten Partikeln geeigneter Größenverteilung herzustellen. Dies geschieht am besten durch Schmelzen von  $\text{UO}_2$  und Mahlen der Schmelzprodukte.

Weiter müssen die verfahrenstechnischen Schritte zur Verarbeitung dieser Pulver zu Brennelementen geklärt werden. Hierzu gehören das Verdichten des Brennstoffs in den Hüllrohren durch Vibration und evtl. anschließendes Rundhämmern der Stäbe.

Der nachfolgende Bericht beschreibt Arbeiten, welche im Rahmen eines zweijährigen Entwicklungsvertrages zu diesen Themen durchgeführt wurden.

Manuskript erhalten am 16. Februar 1966.

## 1. Entwicklung von Verfahren zur Herstellung von geschmolzenem $UO_2$

Durch vorangegangene Untersuchungen<sup>1)</sup> war festgelegt worden, daß  $UO_2$  im direkten Stromdurchgang erschmolzen werden kann. Hierbei entstehen keine Verluste durch Verdampfung, und es wird ein dichtes, zum Mahlen geeignetes Produkt gewonnen. Dieses Schmelzverfahren wurde durch weitere Arbeiten ausgebaut und soll hier näher beschrieben werden.

### 1.1 Schmelzmethode

Zwei unterschiedliche Verfahrensvarianten für das Schmelzen von  $UO_2$  im direkten Stromdurchgang wurden erarbeitet. Bei beiden wird das Oxid mit Wechselstrom unter Argon von 400 - 760 Torr auf Schmelztemperatur erhitzt. Die beiden Varianten unterscheiden sich darin, daß die Ofencharge in einem Fall nur aus  $UO_2$ -Pulver besteht, während bei der anderen Methode ein Teil der Charge in Form von relativ großen  $UO_2$ -Preßkörpern eingesetzt wird.

#### 1.1.1 Schmelzeinrichtung

Der Versuchsschmelzofen (Abb. 1) besteht aus einem Metalltiegel und einem Aufsatz, welcher die obere Elektrode sowie zwei Vorratsbehälter für  $UO_2$ -Pulver enthält. Die obere Elektrode wird aus einem wassergekühlten Kupferrohr mit einer Graphitplatte gebildet. Sie ist beweglich angeordnet, damit während des Schmelzens der Kontakt mit der zusammensinkenden Uranoxidcharge aufrecht erhalten werden kann.



Der wassergekühlte Metalltiegel von ca. 20 cm innerem Durchmesser dient als untere Elektrode, er enthält einen Graphiteinsatz zur Aufnahme des Schmelzgutes. Nach Beendigung des Schmelzprozesses läßt er sich rasch gegen einen anderen chargierten Tiegel auswechseln. Hierdurch wird erreicht, daß die Schmelzeinrichtung nicht durch den langwierigen Abkühlprozess des  $UO_2$  blockiert ist.

Da wegen der starken Temperaturabhängigkeit des elektrischen Widerstandes von  $UO_2$  beim Schmelzvorgang ein großer Bereich von Spannung- und Stromstärkewerten durchlaufen werden muß, werden zwei Transformatorentypen benötigt: ein Regeltransformator mit einer Ausgangsspannung von 0 bis 600 Volt und einer Leistung von 50 kVA zum Aufheizen der kalten Pelletsäule sowie ein System von vier Schweißtransformatoren, das die für die Schmelzphase nötige Stromstärke von etwa 1600 Amp. bei ca. 20 Volt Spannung liefert.

### 1.1.2 Schmelzverfahren

Die beiden Varianten des Schmelzverfahrens lassen sich wie folgt charakterisieren:

#### a) Schmelzen von Preßkörpern

Die Anordnung der Schmelzeinrichtung geht aus Abb. 2 hervor. Es werden 3 Preßkörper von ca. 100 mm  $\varnothing$  mit einem Gesamtgewicht von 7 bis 8 kg in den Tiegel eingesetzt. Preßkörper dieser Abmessungen lassen sich auf einer gewöhnlichen Presse bei Drücken von 0,2 bis 0,4 t/cm<sup>2</sup> herstellen und weisen eine Dichte von etwa 4 g/cm<sup>3</sup> auf. Pellets mit noch größeren Durchmessern bis zu 150 mm konnten ohne Schwierigkeiten erzeugt werden, doch wurden im allgemeinen nur solche der oben ge-

nannten Abmessung verwendet, da die Dimensionierung der Versuchsschmelzanlage für größere Pellets etwas ungünstig war.

Bei der Pelletherstellung können Rücklaufprodukte vorhergehender Chargen (siehe Abschnitt 1.2) nach geeigneter Zerkleinerung mit verwendet werden. Üblicherweise werden 2 - 3 Teile frisches Pulver mit 1 Teil Rücklaufpulver gemischt, doch ist die Herstellung von Pellets auch bei einem Mischungsverhältnis von 1:1 noch ohne Schwierigkeiten möglich.

Der Zwischenraum zwischen der Pelletsäule und der Tiegelwand wird zur besseren Wärmeisolierung mit  $UO_2$ -Pulver gefüllt. Dieses Pulver wird erst während des Schmelzens aus den in Abb. 1 erkennbaren Vorratsbehältern zugegeben, wenn die Pelletsäule durch Vorwärmen über eine Zeit von 20 - 30 Minuten schon einen geringen elektrischen Widerstand erreicht hat.

Der Schmelzzyklus spielt sich folgendermaßen ab:

Der Ofen wird mit den Preßkörpern beschickt. Danach wird evakuiert, Schutzgas (Argon) eingelassen und der Heizstrom eingeschaltet und so die Pelletsäule allmählich erwärmt. In Abb. 3 sind einige Kurven der Temperaturverteilung über den Pelletquerschnitt (Durchmesser 100 mm) während der Heizphase wiedergegeben, die Meßstellen lagen in Pelletmitte und 10 bzw. 30 mm vom Pelletrand entfernt. Aus den Kurven entnimmt man, daß zu Beginn der Heizphase die Höchstwerte der Temperatur, bedingt durch Zufälligkeiten der Kontaktbildung zwischen den Pellets, nicht in der Achse der Pelletsäule liegen und sich erst nach einiger Zeit eine symmetrische Temperaturverteilung einstellt. Die Aufheizphase nimmt normalerweise ca. 30 Minuten in Anspruch.

Bevor das Schmelzen beginnt, wird das Isolierpulver aus den Vorratsbehältern zugegeben. Seine Menge entspricht ungefähr der Pelletsäule.

Die Temperaturverhältnisse in der Isolierpulverschicht gibt Abb. 4 wieder. Bei diesem Versuch wurden Pellets von 70 mm Durchmesser verwendet, wobei sich die Dicke der Isolierschicht entsprechend den Ofendimensionen zu 45 mm ergab. Aus Abb. 4 ist ersichtlich, daß im Laufe des Versuches, wenn die Pelletsäule auf die Schmelztemperatur erhitzt ist, ein großer Teil der Pulvermenge Temperaturen von über 2000°C annimmt, die randnahen Schichten dagegen relativ kalt blieben.

Das eigentliche Schmelzen dauert ebenfalls etwa 30 Minuten, sein Ende läßt sich an der Elektrodenstellung und aus der Stromspannungscharakteristik abschätzen. Gegen Ende des Schmelzprozesses wird der Ofen mehrmals kurz evakuiert und anschließend wieder mit Argon geflutet. Auf diese Weise läßt sich durch Verminderung der Porenbildung ein kompakteres Produkt erzielen.

Etwa 15 Minuten nach Beendigung des Schmelzens wird der Tiegel vom Aufsatz gelöst und unter Argon innerhalb 3 Std. auf Raumtemperatur abgekühlt. Nach Anbringen eines anderen, frisch chargierten Tiegels kann sofort ein neuer Schmelzzyklus beginnen.

Am Ende des Schmelzprozesses enthält der Tiegel die aufgeschmolzene Pelletsäule mit einer Kruste aus angesintertem, noch porösem  $UO_2$ , und daneben nicht gesintertes Isolierpulver. Das dichte, einwandfreie Material des Kernes wird durch Auslesen von Hand von der angesinterten Kruste und dem verbliebenen  $UO_2$ -Pulver getrennt. Das Pulver und die gesinterten Stücke fließen in den Prozeß zurück und nur der geschmolzene Kern der Pelletsäule wird weiterverarbeitet.

## b) Schmelzen von Pulverschüttungen

Bei dieser Verfahrensvariante entfällt die Herstellung großer Preßlinge, der Ofen wird einfach mit  $UO_2$ -Pulver gefüllt. Dafür muß die Charge beim Anheizen in der Mitte durch einen dünnen Graphitstab (Durchmesser 10 - 15 mm) vorgewärmt werden. Die Anordnung der Apparatur ist in Abb. 5 schematisch wiedergegeben. Die Menge des pro Schmelzvorgang ausgebrachten Materials hängt stark von der Dichte der Ausgangsschüttung ab. Um eine erhöhte Ausbeute zu erzielen, werden daher zwei verschiedene Pulverschüttungen eingebracht, eine innere mit höherer Dichte und etwa 100 mm Durchmesser, welche aus zerkleinertem Rücklaufmaterial oder besonderem Ausgangspulver (z.B. durch thermische Zersetzung von Uranylнитrat hergestelltem Pulver) und einer äußeren Isolierschicht entsprechend Variante a) besteht.

Der Schmelzvorgang spielt sich folgendermaßen ab:

Nach dem Beschicken wird der zentrale Graphitstab bei offenem Tiegel einige Minuten lang durch direkten Stromdurchgang auf etwa  $800^{\circ}C$  erhitzt. Danach wird der Stab entfernt und die Elektrode jetzt direkt auf die vorgewärmte zentrale Pulverzone gedrückt. Der Ofen wird geschlossen und mit Argon gespült. Die Pulverschüttung läßt sich nun nach dem für die Variante a) geschilderten Verfahren aufschmelzen.

Bei gleichem Gesamteinsatz ist die Ausbeute an geschmolzenem Material bei der Pulvervariante stets etwas niedriger als bei der Pelletmethode. So werden z. B. beim Pelletschmelzen 8 kg  $UO_2$  in Form von Preßlingen und 7 kg  $UO_2$  als Isolierpulver eingesetzt und etwa 8 kg geschmolzenes Material erzielt, was etwa der Menge der eingesetzten Pellets entspricht. Bei der

Pulvermethode dagegen lassen sich nur um etwa 25 % niedrigere Ausbeuten erreichen, wenn Geometrie und Dichte der inneren Pulverschüttung denen der Pelletsäule entsprechen. Die Zahlenwerte sind 9 kg für die dichte Schüttung (Dichte 3 - 4 g/cm<sup>3</sup>), 7 kg für die Isolierschicht und 6,5 kg für die Ausbeute. Den erwähnten Einfluß der Dichte der Pulverschüttung auf die Ausbeute zeigt Abb. 6.

Um die Menge des ausgebrachten UO<sub>2</sub> für beide Verfahren etwa gleich zu halten, wird beim Pulverschmelzen ein längerer Tiegel verwendet, nachdem sich gezeigt hatte, daß Pulverschüttungen mit einem Verhältnis von Höhe/Durchmesser wie 2/1 noch gut geschmolzen werden können. Dieser Tiegel muß allerdings in seinem oberen Teil wegen der Gefahr elektrischer Überschläge zwischen Elektrode und Tiegelfwand elektrisch isoliert werden.

Wie bereits erwähnt, wird nach dem Schmelzprozeß der erhaltene Regulus aus geschmolzenem UO<sub>2</sub> von den gesinterten Teilen durch Zerschlagen und Verlesen von Hand abgetrennt. Abb. 7 zeigt einen zerteilten Regulus, der aus einer Pelletsäule von 70 mm Durchmesser hergestellt wurde. Man erkennt deutlich, daß die dichte Zone hauptsächlich aus großen, im Temperaturgefälle gewachsenen Stengelkristallen besteht. In Abb. 8 sind einige typische dieser Kristalle wiedergegeben.

## 1.2 Mengenbilanz

Zur Ermittlung der genauen Mengenbilanz und des Arbeitsaufwands für die beiden Schmelzvarianten wurden nach einleitenden Versuchen zur Erprobung und Ausarbeitung der Verfahren Testproduktionsläufe durchgeführt. Hierbei wurden bei der Pelletvariante 217 kg geschmolzenes UO<sub>2</sub> in 28 Schmelzprozessen und bei

der Pulvervariante 115 kg  $UO_2$  in 14 aufeinanderfolgenden Schmelzen hergestellt. Die Abb. 9 und 10 zeigen den Materialfluß für die beiden Methoden, die Anteile für Einsatz, Ausbeute, Rücklauf und Schrott sind in den Darstellungen vermerkt. Beim Schmelzen nach der Pulvervariante wurde, wie erwähnt, ein etwas längerer Tiegel verwendet, so daß die Menge des pro Schmelzvorganges ausgebrachten Materials dem für das Pelletverfahren gebräuchlichen Wert von etwa 8 kg vergleichbar war. Aus den in Abb. 9 und 10 genannten Zahlenwerten für Ausbeute und Rücklauf geht hervor, daß die Umlaufmengen an  $UO_2$ , die zur Durchführung der Produktion benötigt wird, beim Pulververfahren etwa doppelt so hoch ist wie bei der Pelletvariante. Beim Schmelzen von Pulver wird dagegen die Verarbeitung des Rücklaufs merklich vereinfacht, da das geschmolzene  $UO_2$  nicht mehr in gesinterten und pulverförmigen Anteil getrennt werden muß, wie dies bei der Pelletmethode wegen der nachfolgenden Verwendung des gesinterten Anteils bei der Pelletherstellung notwendig ist. Der gesamte Rücklauf kann jetzt vielmehr nach einer groben Zerkleinerung der gesinterten Anteile direkt wieder zur Herstellung der dichten zentralen Pulverschüttung verwendet werden. Die vereinfachte Verarbeitung des Rücklaufes schließt noch den Vorteil mit ein, daß weniger Verunreinigungen in das Material eingeschleppt werden. So zeigte sich, daß das Mahlen des gesinterten Rücklaufes im Backenbrecher zu einer Korngröße  $< 0,8$  mm, wie es für die Pelletherstellung erforderlich ist, eine merkliche Erhöhung des Eisengehaltes mit sich bringt. Bei der Probeproduktion betrug der Fe-Gehalt im Schmelzprodukt nach den ersten Prozessen ca. 25 - 30 ppm, die letzte Schmelze wies dagegen 80 ppm Fe auf, obwohl der Rücklauf nach dem Mahlen magnetisch von einem Teil des eingeschleppten Eisens befreit worden war.

Wird die Magnetreinigung nicht angewendet, so wächst die Verunreinigung noch wesentlich rascher an. Bei den Pulverschmelzen war dagegen nach 14 Schmelzen noch keine Zunahme des Fe-Gehalts festzustellen.

Der Schrottanteil von 1 % des Einsatzes besteht hauptsächlich aus der den Elektrodenflächen anliegenden  $UO_2$ -Schicht, welche merkliche Verunreinigungen von Kohlenstoff enthält. Dieses Material muß chemisch wieder aufgearbeitet werden. Ein nennenswerter Materialverlust entsteht nicht.

In der Tabelle 1 ist der Aufwand für beide Schmelzvarianten genauer verglichen. Die eingetragenen Werte für Einsatz und Ausbeute gelten nicht für die ersten Schmelzen einer Produktion, sondern treffen nur dann zu, wenn Rücklaufmaterial mit verwendet wird. Die Veränderung der Ausbeute im Verlauf einer größeren Serie von Schmelzen zeigt Abb. 11 am Beispiel der Probeproduktion nach der Pelletvariante.

Der Aufstellung in Tabelle 1 entnimmt man, daß die Pulvervariante in der durchgeführten Form gegenüber der Pelletmethode weniger Arbeitsaufwand erfordert und daher für eine Produktion vorzuziehen ist. Es sei allerdings noch darauf hingewiesen, daß die aufzuwendende Arbeitszeit für Pulver- und Pelletvariante gleich werden, wenn die Pulversäule höherer Dichte die gleiche Geometrie wie die Pelletsäule hat. In diesem Fall beträgt der Einsatz an Pulver 17,5 kg und die Ausbeute 6,1 kg  $UO_2$  pro Schmelze.

### 1.3 Weiterverarbeitung des geschmolzenen $UO_2$

Das durch Verlesen von Hand vom pulverförmigen und gesinterten Material getrennte geschmolzene  $UO_2$  wird zunächst im Backenbrecher vorgebrochen. Nach diesem Behandlungsschritt haben

etwa 60 % des Produktes eine Teilchengröße  $> 4$  mm, 7 % haben eine Körnung von 4 bis 3 mm, 14 % von 3 bis 2 mm. 12 % von 2 bis 1 mm, der Rest von ca. 7 % ist  $< 1$  mm.

Der Sauerstoffgehalt des Schmelzproduktes entspricht nicht der stöchiometrischen Zusammensetzung, sondern liegt bei einem O/U-Verhältnis von 2,01 bis 2,08. Dabei werden die niedrigeren Werte am Rand, die höheren im Zentrum des Regulus gefunden.

Um ein der Stöchiometrie entsprechendes O/U-Verhältnis einzustellen, wird das Pulver in Wasserstoff geglüht. Versuche zur Ermittlung der günstigsten Glühzeit zeigten, daß bei einer Glühzeit von 5 h eine Stöchiometrisierung schon bei 800 - 1000°C möglich ist (Abb. 12) und bei 900°C auch sehr grobe Teilchen einen O/U-Wert unter 2,01 erreichen. Auf Grund dieser Ergebnisse wird der geschmolzene Anteil bei 1000°C 5 Std. zur Reduzierung geglüht.

#### 1.4 Eigenschaften des fertigen Produktes

Das nach dem in Abschnitt 1.1 geschilderte Verfahren hergestellte Pulver kann durch folgende Daten charakterisiert werden:

##### Dichte

Die Dichte der einzelnen Partikel liegt nach Messung mit einem Luftpyknometer zwischen 10,8 und 10,96 g/cm<sup>3</sup>. Der Einfluß des O/U-Verhältnisses auf die Dichte des erschmolzenen Materials zeigt Abb. 13. Man erkennt eine merkliche Zunahme der Dichte mit steigendem Sauerstoffgehalt. Dieses Ergebnis stimmt mit Befunden anderer Autoren überein<sup>2)</sup>.



### Spezifische Oberfläche

Die spezifische Oberfläche bestimmt die Menge adsorbierter Verunreinigungen, insbesondere den Gehalt an Wasser. Ergebnisse von Oberflächenmessungen an Pulvern verschiedener Korngröße nach dem BET-Verfahren sind in Abb. 14 wiedergegeben. Demnach ist die Oberfläche von geschmolzenem  $UO_2$  mit 0,01 mm Korngröße 4 bis 10 mal größer als im Falle idealer Kugeln zu erwarten wäre und erreicht Werte bis zu  $0,5 \text{ m}^2/\text{g}$ .

### Verunreinigungsgehalt

Kohlenstoff liegt meist zwischen 20 und 60 ppm vor. Abb. 15 zeigt die aus über 500 Einzelanalysen gewonnene Häufigkeitsverteilung der C-Gehalte. Danach treten Konzentrationen über 100 ppm nur äußerst selten auf.

Der Fe-Gehalt ist kleiner als 100 ppm. Nach dem Mahlen des geschmolzenen Materials werden in den feinen Pulverfraktionen merkliche Eisenverunreinigungen festgestellt. So liegen nach einem typischen Mahlversuch in den Kornfraktionen 0,03 mm ca. 20 ppm Fe vor, während im Bereich  $< 0,03 \text{ mm}$  84 ppm und  $< 0,01 \text{ mm}$  sogar 100 ppm nachgewiesen wurden.

Gemäß den Ergebnissen von Heißextraktionsanalysen liegt der  $N_2$ -Gehalt bei 50 ppm, die  $H_2$  Konzentration bei 10 ppm.

Der Feuchtigkeitsgehalt ist stark von der Korngröße des Materials abhängig, er beträgt für grobes Pulver ca. 5 ppm, kann jedoch im Reinanteil ( $< 60 \mu$ ) auf über 100 ppm bis zu 200 ppm ansteigen. Abb. 16 gibt die ermittelten Verhältnisse wieder. Für Pulvermischungen, wie sie für die Herstellung von Brennstäben verwendet werden (siehe Abschnitt 2.1), läßt sich hieraus ein Feuchtigkeitsgehalt von ca. 40 ppm abschätzen. Zur

Bestimmung des Wassergehaltes wurde unter Verwendung eines käuflichen Analysators (Moisture Monitor der Firma Consolidated Electrodynamic Corporation) eine geeignete Einrichtung aufgebaut, in der das Wasser bei 450°C aus den Proben ausgetrieben und mit Argon als Trägergas in den Analysator überführt wird.

### Stöchiometrie

Durch die beschriebene Nachbehandlung in Wasserstoff läßt sich das O/U-Verhältnis leicht in den Grenzen 2,00 bis 2,01 halten. Es wird durch Bestimmung der Gewichtszunahme bei Aufoxidation zu  $U_3O_8$  bestimmt.

Beim Mahlen im Backenbrecher und bei der Vibrationsverdichtung wird die Stöchiometrie nicht merklich verändert. Entsprechende Versuche zeigten nur bei Feinanteil mit einer Korngröße  $< 0,06$  mm Anzeichen für eine geringe Zunahme des O/U-Verhältnisses beim Vibrationsverdichten, die Effekte lagen jedoch nur wenig über der Erfassungsgrenze des Bestimmungsverfahrens.

### Mikrostruktur

Die Abb. 17 a bis c geben Gefügebildungen von Proben verschiedener Schmelzchargen wieder. Nach der Stöchiometrieglühung weist das Material das in Abb. 17 c gezeigte, homogene, einphasige Gefüge auf.

## 1.5 Schmelzversuche unter anderen Bedingungen

Zur Weiterentwicklung des beschriebenen Standardschmelzverfahrens sollten noch einige abgeänderte Methoden geprüft werden, so das Schmelzen unter Luft oder Wasserstoff, sowie das Schmelzen von  $U_3O_8$ .

### 1.5.1 Schmelzen an Luft

Hierbei werden Pelletsäulen unter 400 Torr Luftatmosphäre erschmolzen und entweder unter dieser Atmosphäre oder unter Argon abgekühlt.

Ausbeute, C-Gehalt und O/U-Verhältnis blieben gegenüber dem Schmelzen unter Argon praktisch unverändert, der Stickstoffgehalt lag mit 50 - 80 ppm etwas über den für Argon-Schmelzen üblichen Werten. Das Schmelzen an Luft wurde trotz dieser günstigen Ergebnisse nicht weiter verfolgt, da es keine Vereinfachung der Verfahrenstechnik mit sich bringt und weil das Isolierpulver teilweise zu  $U_3O_8$  oxidiert wird, was bei der Wiederverwendung bei nachfolgenden Schmelzen zu einem porigen Schmelzprodukt führt (siehe Abschnitt 1.5.3).

### 1.5.2 Schmelzen unter Wasserstoff

Versuche sollten zeigen, inwieweit beim Schmelzen in Wasserstoff direkt ein stöchiometrisches Produkt erzielt und die spätere Stöchiometrieglühung eingespart werden könnte. Beim Schmelzen von Pellets läßt sich jedoch keine merkliche Reduktion der Reguli im Kern beobachten, dagegen trat bei der Pulvervariante eine merkliche Veränderung des O/U-Verhältnisses ein. Der Wasserstoff wurde hierbei in den nach der Entfernung des Graphitheizstabes gebildeten zentralen Kanal eingeführt. Dadurch konnte gerade im Zentrum der Schmelzzone eine stärkere Reduktion erreicht werden. Die chemische Analyse und mikroskopische Untersuchungen ergaben, daß bei einem Teil der Reguli die Reduktion ungenügend war, während sich bei anderen Versuchen im Kern des Schmelzproduktes unterstöchiometrisches  $UO_2$  mit einem O/U-Verhältnis von 1,98 nachweisen ließ. Die Abb. 18 zeigt Gefügebildungen entsprechender Proben, in denen Partikel aus U-Metall deutlich zu erkennen sind. Da demnach

das Schmelzen unter Wasserstoff nicht zu genau reproduzierbaren C/U-Werten führt, wurde von einer weiteren Erprobung des Verfahrens abgesehen.

### 1.5.3 Schmelzen von $U_3O_8$ -Pellets

Wegen des hohen elektrischen Widerstands des  $U_3O_8$  war ein Schmelzen von Pellets aus reinem  $U_3O_8$ -Pulver in vernünftigen Zeiten nicht möglich. Aus  $UO_2$  und  $U_3O_8$ -Gemischen hergestellte Pelletsäulen ergaben ein poriges Produkt mit einem C/U-Verhältnis von 2,18 bis 2,22. Auch die Verwendung von  $U_3O_8$  als Isolierpulver führte zu porigen Schmelzreguli. Versuche an Pulversäulen wurden daher nicht durchgeführt.

### 1.6 Kleiner Schmelzofen für angereichertes $UO_2$

Zum Erschmelzen geringerer Mengen angereicherten Materials für Bestrahlungsversuche wurde ein kleiner Schmelzofen gebaut (Abb. 19). Im Aufbau und Wirkungsweise entspricht er der in Abschnitt 1.1 geschilderten Anlage, er ist jedoch nur mit einem Tiegel ausgestattet.

Es können in dieser Einrichtung bei Einsatz von Pellets zwischen 1,5 und 2 kg  $UO_2$  erschmolzen werden, der Einsatz an Isolierpulver beträgt dabei ca. 2 kg.

## 2. Verdichten des Pulvers aus direkt geschmolzenem $UO_2$ durch Vibration und Rundhämmern

### 2.1 Das Verdichten durch Vibration

Pulverschüttungen lassen sich durch Vibrationsbehandlung in eine Anordnung höherer Dichte überführen. Auf die durch den Verdichtungsvorgang erreichbare Enddichte sind folgende Größen von Einfluß:

- 1) Dichte der einzelnen Pulverpartikel
- 2) Korngrößenverteilung in der Pulverschüttung
- 3) Neigung des Pulvers zur Kornzerkleinerung durch Bruch und Abrieb (Sprödigkeit)
- 4) Arbeitsfrequenz und Beschleunigung des Verdichters
- 5) Verfahrensparameter, wie z.B. Zeit, Gleichmäßigkeit der Pulverzufuhr
- 6) Höhe der Pulversäule (Länge der Brennelemente)
- 7) Durchmesser, Wandstärke und Material des verwendeten Hüllrohrs

Die ermittelten Auswirkungen dieser Einflußgrößen werden im Abschnitt 2.1.2 näher erörtert. Hierbei bleibt die Dichte der Partikel unberücksichtigt, da für alle Arbeiten stets Pulver aus geschmolzenem  $UO_2$  mit der in Abschnitt 1.4 genannten Dichte Verwendung fand.

Auch der Einfluß der Sprödigkeit des Pulvers soll nicht weiter diskutiert werden. Versuche zeigten zwar, daß die Bildung von Abrieb und das Auftreten von Kornbruch beim Vibrationsverdichten von der Stöchiometrie des Pulvers abhängen und bei  $UO_2$  mit einem O/U-Verhältnis von 2,04 merklich stärker ausge-

prägt sind als bei stöchiometrischem Material entsprechend Abschnitt 1.4, für die Untersuchungen zur Ermittlung des Einflusses der unter 2), 4), 5), 6) und 7) genannten Parameter wurde jedoch stets stöchiometrisches  $UO_2$ -Pulver mit den beschriebenen Eigenschaften verwendet.

Wichtig für die Beurteilung des Vibrationsprozesses bezüglich seiner Eignung zur Herstellung von Brennstäben ist die Gleichmäßigkeit, mit der sich ein gewünschter Dichtewert einstellen und über die gesamte Stablänge hinweg konstant halten läßt. Hierbei wird angestrebt, Brennstoffdichten von ca. 90 % th. D. zu erzielen.

Für die Charakterisierung werden folgende Begriffe eingeführt:

- a) die mittlere Dichte in % der theoretischen Dichte des  $UO_2$  [% th. D.]: die über die gesamte Brennstablänge ermittelte Dichte.
- b) die maximale Dichteschwankung in [% th. D.]: die größte örtliche Abweichung der Dichte von der mittleren Dichte.
- c) die integrale Dichteschwankung in [% th.D.]: Schwankung der mittleren Dichte in Stababschnitten festgelegter Länge, z. B. 1/10 der Stablänge, gegenüber der mittleren Dichte des gesamten Stabes.

### 2.1.1 Beschreibung der Versuche

#### Pulvermischungen

Die für das Vibrationsverdichten gebräuchlichen Pulver enthalten Pulverfraktionen verschiedener Körnungen in wechselnden Anteilen. In der Literatur sind hierfür mehrere Beispiele beschrieben<sup>3) 4) 5) 6)</sup>.

Die Zusammenstellung dieser Pulvergemische erfolgt hauptsächlich auf Grund von Überlegungen zur Raumerfüllung der Partikelordnung<sup>7) 8)</sup>, gleichzeitig ist jedoch auch die wirtschaftliche Herstellung dieser Gemische aus dem Ausgangsmaterial mit zu berücksichtigen. In Tabelle 2 sind die bei den eigenen Arbeiten verwendeten Pulvermischungen aufgeführt. Die Mischungen I und II wurden nur bei einigen Versuchen zur Ermittlung des Einflusses der Pulverzusammensetzung auf die Vibrationsdichte verwendet, während alle anderen Arbeiten (siehe Aufstellung in Abschnitt 2.1) mit den Mischungen III und IV durchgeführt wurden. Diese beiden Mischungen gestatten eine gute Ausnutzung des Ausgangsmaterials, die Rücklaufmenge von Pulver zum Schmelzen betrug bei den Mischungen III und IV etwa 15 % der Ausgangsmenge.

Zur Herstellung der Pulvergemische für die Vibrationsversuche aus geschmolzenem und vorgebrochenem  $UO_2$  wurde eine halbautomatische Sieb- und Mahleinrichtung zusammengestellt. Sie besteht aus einem Backenbrecher mit verstellbarer Spaltbreite, der das Mahlgut auf vibrierende, schrägstehende Maschensiebe gibt. Mit dieser Einrichtung können täglich ca. 50 kg Grob- und Mittelfractionen in verschiedenen Korngrößen hergestellt werden. Die Menge der hierbei anfallenden Feinfraktionen < 0,07 mm reicht nicht aus, daher wird zusätzlicher Feinanteil in einer Schwingmühle von 6 l Inhalt erzeugt. Da diese Schwingmühle mit Porzellangefäßen und Mullitkugeln arbeitet, war zunächst eine Verunreinigung des Mahlgutes zu befürchten. Wie jedoch chemische Analysen zeigten, bleibt der Gehalt des  $UO_2$  an  $SiO_2$  und  $Al_2O_3$  auch nach dem Mahlen unter 40 ppm.

Das erzielte feine Pulver weist folgende Kornverteilung auf:

Anteil %	Korngröße mm
3,7	> 0,074
1,0	0,074 bis 0,063
8,6	0,063 bis 0,040
36,4	0,040 bis 0,032
50,3	< 0,032

Bei diesem Mahlprozeß entsteht also ein großer Anteil von sehr feinem Korn unter 0,032 mm. Wie aus Abb. 15 hervorgeht und auch weitere Messungen zeigten, muß für derartiges Pulver mit einem Feuchtigkeitsgehalt von ca. 200 ppm gerechnet werden.

Um den Wassergehalt der fertigen Pulvermischung so niedrig wie möglich zu halten, wird daher aus dem Feinanteil mit der Körnung < 0,074 mm bzw. < 0,063 mm die ultrafeine Fraktion mit < 0,015 mm mit einem Windsichter abgetrennt.

Die einzelnen Pulverfraktionen werden in der vorgesehenen Menge von Hand abgewogen und gemischt. Mit den beschriebenen Einrichtungen ist eine Herstellung von ca. 60 - 70 kg vibrationsfertigen Pulver pro Arbeitstag möglich.

#### Hüllrohre

Für die Untersuchungen über den Einfluß der Geometrie der Hüllrohre auf die erzielbare Brennstoffdichte (Punkt 6 und 7 der Aufstellung in Abschnitt 2.1) sowie die Ermittlung der Vibratorbauart (Punkt 4) wurden Rohre aus nichtrostendem austenitischen Stahl 18 8 Cr Ni mit W-Nr. 4550 oder 4541, sowie Rohre aus Zircaloy-2 verwendet. Die Abmessungen der Rohre waren:

bei Stahl:           äußerer Durchmesser zwischen 8 und 18 mm,  
                           Wanddicke zwischen 0,2 und 0,5 mm



bei Zircaloy-2: äußerer Durchmesser zwischen 10 und 15 mm,  
Wanddicke zwischen 0,4 und 0,8 mm.

Arbeiten zu den Punkten 2 und 5 wurden an Stahlrohren mit  
18 mm ä.D. und 0,3 mm Wanddicke ausgeführt.

#### 2.1.1.2 Versuchsdurchführung

Für die Arbeiten standen ein elektrodynamischer Vibrator  
(el. dyn. Vib.) mit einer Beschleunigung von max.  $B_{el} \approx 40 g$   
( $g =$  Erdbeschleunigung) und einer zwischen  $f = 100$  bis  $5000$  Hz  
veränderlichen Frequenz sowie ein pneumatischer Vibrator  
(pn. Vib) mit  $f \approx 30$  Hz zur Verfügung. Er erreicht Be-  
schleunigungswerte im Bereich von ca.  $5000 g$ .

Beim Vibrieren wird das zu füllende, einseitig mit einem ein-  
geschweißten Endstopfen verschlossene Hüllrohr auf dem Vibra-  
torkopf festgespannt und dann die vorgesehene Pulvermischung  
eingefüllt. Hierbei wird mit geringer Leistung des Vibrators  
gearbeitet. Die Zugabe des Pulvers erfolgt zweckmäßigerweise  
über eine Rüttelrinne, auf welche die fertige Pulvermischung  
aufgeschüttet wird. Eine getrennte, gleichzeitige Zugabe ein-  
zelner Pulverfraktionen über verschiedene Rinnen erwies sich  
als weniger geeignet.

Nach dem Füllen wird die Pulversäule mit einem Stempel von ge-  
eignetem Gewicht beschwert und unter den gewünschten Bedingungen  
verdichtet. Beim el. dyn. Vib. werden hierbei Frequenzen zwischen  
 $100$  und  $4000$  Hz in stetigem Wechsel durchfahren. Die Bestimmung  
der mittleren Dichte erfolgte in der Regel durch Messung der  
Länge und des Gewichtes der Brennstoffsäule, eine direkte Er-  
mittlung durch  $\gamma$ -Absorption diente in Einzelfällen zum Vergleich

Die Dichteschwankungen wurden mit Hilfe der Absorption der  $\gamma$ -Strahlen einer Cs-Quelle festgestellt, wobei es möglich war, über einen Schreiber ein Dichteprofil des Stabes aufzuzeichnen und mit einer numerischen Integrationseinrichtung direkt die Dichteschwankungen über Stababschnitte verschiedener Länge auszudrucken. Auf diese Weise konnten sowohl örtliche als auch integrale Dichteschwankungen erfaßt werden. Die bei der  $\gamma$ -Prüfung verwendete Blende und die eingestellte Prüfgeschwindigkeit führte bei der Aufnahme der Dichteschwankungskurven zu einer Mittelung über Längenschnitte von 6 mm.

## 2.1.2 Versuchsergebnisse

### 2.1.2.1 Einfluß der Pulvermischung

Mit den in Tabelle 2 aufgeführten Korngemischen ließen sich die unten zusammengestellten Brennstoffdichten erzielen.

Hüllrohr	Pulvermischung	Vibrationszeit [Min]	mittlere Dichte [% th. D.]
Stahl 18x0,3x1000mm	I	20	84
	II	20	80
	III	10	85
	IV	10	87
Stahl 12x0,4x2000mm	III	20	88
	IV	20	89,5

Bei der Auswertung dieser Ergebnisse muß noch der Zeiteinfluß (siehe Abschnitt 2.1.2.2) berücksichtigt werden.

Die Mischungen III und IV zeigen demnach das günstigste Verhalten, wobei sich die Mischung IV infolge ihres größeren Kornes für die verwendeten Hüllrohrdimensionen der Mischung III etwas überlegen erwies.

#### 2.1.2.2 Verfahrenseinflüsse

##### Zeit

In der Zusammenstellung ist am Beispiel von zwei Versuchen der Einfluß der Vibrationsdauer auf die mittlere Dichte gezeigt. Die Ergebnisse wurden an Stahlrohren 18 x 0,3 x 1000 mm mit der Pulvermischung III gewonnen.

Vibrationszeit Min.	mittlere Dichte [% th.D.]	
	Rohr S 18	Rohr S 6
0 (nach dem Einfüllen)	83,1	82,3
5	84,7	84,2
15	86,4	85,7
20	86,8	86,2
30	87,2	86,4
40	87,6	86,7
60	88,3	87,5

Eine gleichzeitige Verfolgung der integralen Dichteschwankungen ergab, daß diese bei Vibrationszeiten von über 15 Min. merklich ansteigen. Als Ursache hierfür müssen wohl Entmischungsvorgänge im Brennstoff angesehen werden. Der günstige Einfluß der Vibrationsdauer auf die mittlere Dichte kann also nur bis zu einer Vibrationsdauer von 15 Min. gefahrlos ausgenutzt werden, um bei Herstellung einer großen Serie von Brennstäben Schwankungen in der mittleren Dichte der einzelnen Stäbe durch sorgfältige Abstimmung der Vibrationszeit auszugleichen.

#### Stempelgewicht, Spalt

Wie Versuche mit verschiedenen Stempelgewichten (3; 5; 7,5 kp) und verschiedenen Spalten zwischen Stempel und Hüllrohr (25, 50, 75  $\mu$ m) ergaben, wird bei einer Spaltweite von 50  $\mu$ m die günstigste Dichteverteilung erzielt, hierbei bleibt die Last ohne merklichen Einfluß. Die schlechtesten Ergebnisse treten dagegen bei einer Kombination des engsten Spaltes (25  $\mu$ m) mit dem kleinsten Gewicht (3 kp) auf.

#### 2.1.2.3 Einfluß der Bauart des Verdichters

Grundsätzlich wurden im Einklang mit älteren Befunden<sup>5)</sup> bei Verwendung derselben Pulvermischung in allen Hüllrohren der angegebenen Abmessungen mit dem el. dyn. Vib. und dem pn.Vib. etwa die gleichen mittleren Dichtewerte erreicht, allerdings mußten beim elektrodynamischen Gerät hierzu etwas größere Vibrationszeiten angewendet werden.

Die Dichteschwankungen über die Rohrlänge unterscheiden sich jedoch je nach Art des Vibrators. In den Abb. 20 bis 24 sind die Verhältnisse anhand von schematisierten und gemessenen Dichtekurven für Rohre mit 1800 mm langen Pulversäulen verdeutlicht. In den Meßkurven sind die integralen Dichte-

schwankungen (Basis 20 cm) wiedergeben. Beim el.dyn. Vibrieren wird eine im wesentlichen S-förmige Verteilung festgestellt, wobei die S-Form von Fall zu Fall mehr oder weniger deutlich ausgeprägt und die Lage des Maximums zum Rohrende oder zur Rohrmitte hin verschoben sein kann. Auf die Ausbildung des S scheinen die Rohrdimensionen und die Pulvercharakteristik einen gewissen Einfluß zu haben (Abb. 21 und 22, Abb 37). Bei Rohren mit nur 1500 mm Länge beobachtet man einen etwa analogen Verlauf der Dichteschwankungen, bei kürzeren Rohren treten jedoch uneinheitliche Verhältnisse auf, wie sie aus Abb.23 für Rohre mit nur 1000 mm langer Säule hervorgehen.

Beim Arbeiten mit dem pneumatischen Vibrator stellt sich eine etwa U-förmige Dichteverteilung mit einem Minimum in der Stabmitte ein, wie sie Abb. 24 als Beispiel zeigt.

Die Werte der integralen Dichteschwankungen sind in beiden Fällen etwa gleich. Für die örtlichen Dichteschwankungen werden unter den in Abschnitt 2.1.1.2 genannten Prüfbedingungen gewöhnlich  $\pm 2\%$  gefunden, wobei am auf dem Vibratorkopf festgespannten Rohrende beim el. dyn. Vib. manchmal Abweichungen bis  $6\%$  vorliegen. Auf Grund der etwa gegenläufigen Dichteschwankungen bei den verschiedenen Vibratortypen läßt sich durch Kombination der Verfahren eine Verbesserung der  $UO_2$ -Verteilung erreichen, günstig erweist sich hierbei el.dyn.Vor- und pneumatisches Nachvibrieren.

#### 2.1.2.4 Einfluß der Geometrie der Hüllrohre

Diese Versuche wurden durch die verspätete Auslieferung der bestellten Hüllrohre stark behindert. So war es aus Zeitmangel nicht mehr möglich, für die verschiedenen Rohrabmessungen besonders abgestimmte Pulvergemische zur Erzielung optimaler

Dichtewerte zu erarbeiten. Für alle Rohre wurden vielmehr die aus mehr wirtschaftlichen Gesichtspunkten heraus aufgestellten Mischungen III und IV (Tabelle 2) verwendet, wobei die Mischung III für Rohre mit Außendurchmessern  $\leq 10$  mm, Mischung IV für Rohre mit einem Durchmesser  $> 10$  mm zur Anwendung kam.

Die durchgeführten Versuche lassen sich wie folgt aufteilen:

- a) Zur Ermittlung des Einflusses des Hüllmaterials wurden die unter b) bis d) beschriebenen Arbeiten mit Rohren aus 18 8 CrNi Stahl und Zry-2 ausgeführt.
- b) Bestimmung der Auswirkung des Hüllrohrdurchmessers auf mittlere Dichte und Dichteschwankungen an Rohren aus
  - 1) nichtrostendem Stahl mit ä.D. 8, 11, 12, 15, 18 mm, Zustand: abgeschreckt und leicht kaltverfertigt, Pulversäulenlänge 1800 mm, Wanddicke 0,3 mm.
  - 2) Zircaloy-2 mit ä.D. 10, 12, 14 mm, Wanddicke 0,6 mm, Zustand: rekristallisiert, Pulversäulenlänge 1800 mm.
- c) Ermittlung des Wanddickeneinflusses an Rohren mit einem äußeren Durchmesser von 12 mm aus
  - 1) nichtrostendem Stahl mit Wanddicken von 0,2, 0,3, 0,4 und 0,5 mm und einer Pulversäule von 1800 mm Länge.
  - 2) Zircaloy-2 mit Wanddicken von 0,4, 0,54, 0,6 und 0,8 mm und einer Pulversäule von 1800 mm Länge.
- d) Bestimmung der Auswirkung der Pulversäulenlänge an Rohren mit 12 mm ä.D. und 0,3 mm Wanddicke (18 8 CrNi Stahl) bzw. 0,54 mm (Zircaloy-2) bei Säulenlängen von ca. 500, 1000 und 1800 mm.

Zu diesen Arbeiten wurde meist der el.dyn.Vibrator herangezogen, einzelne Vergleichsversuche mit dem pn.Vib. dienten zur Ergänzung der Befunde. Jeder Meßpunkt wurde mit einer

Serie von mindestens 10 Einzelversuchen nach folgendem Schema belegt:

Die ersten beiden Rohre einer Serie wurden mit 15 Min. Vibrationszeit verdichtet, die hierbei erzielte mittlere Dichte wurde als Optimalwert angesehen. Bei der Herstellung der folgenden 8 Stäbe sollte dieser Dichtewert bis auf mindestens 0,5 % th. D. angenähert werden. Dazu waren meist wesentlich kürzere Vibrationszeiten von in einzelnen Fällen nur etwa 4 Min. erforderlich. Die in den Diagrammen eingetragenen Punkte sind Mittelwerte aus allen 10 Meßergebnissen und liegen also etwas unter den erreichbaren Optimalwerten. Die Ergebnisse sollen anhand der Abbildungen 25 bis 30 beschrieben werden.

Sowohl bei Stahlrohren, als auch bei Hüllrohren aus Zry-2 beeinflußt die Geometrie des Rohres die Brennstoffdichte, doch unterscheiden sich die Befunde bei den beiden Materialien grundsätzlich. Bei Zry-2 Rohren nimmt die erreichbare Enddichte mit steigendem Durchmesser zu (Abb. 25) und mit größer werdender Wandstärke ab (Abb. 26). Bei Stahlrohren ist im vergleichbaren Bereich kein systematischer Einfluß des Durchmessers auf die Enddichte festzustellen (Abb. 27), der etwas uneinheitliche Verlauf der Kurve ist wohl auf die unterschiedliche Vibrationszeit (siehe Seite 26) zurückzuführen. Der in Abb. 27 für Rohre 8 x 0,3 mm eingetragene Mittelwert läßt sich nicht ohne weiteres mit den anderen Angaben vergleichen, da für diese Rohre nicht wie sonst die Pulvermischung IV, sondern die Mischung III verwendet wurde. Mit zunehmender Wandstärke wird bei Stahlrohren im Gegensatz zu den Befunden bei Zry-2 die erreichbare Dichte größer (Abb. 28).

Die Länge der Pulversäule hat unter den gegebenen Bedingungen bei Zry-2 Rohren nur einen geringen (Abb. 29), bei Stahlrohren einen merklichen Einfluß auf die Enddichte (Abb. 30).

Die Abweichung der einzelnen Versuchsergebnisse von den in den Abb. 25 bis 30 eingetragenen Mittelwerten liegt innerhalb der Grenzen  $\pm 0,5$  % th. D., sie ist jedoch meist merklich innerhalb dieser Werte. In Abschnitt 2.1.2.3 wurde schon darauf hingewiesen, daß die Ausbildung der Dichteverteilung durch die Geometrie des Rohres beim el.dyn.Vibriieren nur wenig beeinflußt wird.

### 2.1.3 Untersuchungen an Rohren mit vibrationsverdichtetem $UO_2$

Für die Beurteilung von Brennstäben sind unter anderen Punkten der Zustand der Hülle und der Feuchtigkeitsgehalt des Brennstoffs wichtig. An einigen Proben wurde daher die Beeinflussung der Hülle durch das Vibrieren geprüft und der Feuchtigkeitsgehalt des  $UO_2$  sowie die Wirkung verschiedener Pumpbehandlungen untersucht.

#### 2.1.3.1 Hüllrohrbeschädigung beim Vibrieren

Bei der Ultraschallprüfung an Hüllrohren aus Stahl und Zry-2 im Neuzustand sowie nach dem Vibrieren und sorgfältigen Entleeren wurden keine durch das Verdichten entstandenen Fehler festgestellt. Die Empfindlichkeit der Anlage gestattete hierbei noch die Registrierung von Fehlern auf der Innenseite der Rohre mit ca.  $15 \mu$  Tiefe. Die mittlere Rauhtiefe ( $R_a$ ) von Stahlrohren erhöhte sich in der Stempelzone bei  $50 \mu$  m Spalt zwischen Stempel und Rohr und einem Stempelgewicht von 5 kg von anfangs 1 bis  $2 \mu$  m auf 2 bis  $4 \mu$  m nach dem Vibrieren.



### 2.1.3.2 Feuchtigkeitsgehalt von vibrationsverdichteten Brennstäben

In Abhängigkeit von der Evakuierungszeit wurde der Wassergehalt des Brennstoffs bei Rohren mit 12 mm ä.D. für verschiedene Stablängen bei Ausheiztemperaturen bis 100°C bestimmt. Hierzu wurden an einem Ende dicht verschweißte Probestäbe mit einer Rotationsvakuumpumpe evakuiert und gleichzeitig erwärmt, anschließend verschlossen und in eine kleine, mit der Feuchtigkeitsmeßzelle (siehe Abschnitt 1.4) verbundene Glovebox überführt. In dieser Glovebox konnten die Stäbe unter Argonatmosphäre angebohrt und Proben von ca. 20 g Gewicht zur Feuchtigkeitsbestimmung entnommen werden. Die Probestäbe wiesen Längen von 550, 1160 und 1650 mm auf, sie wurden bei 25, 50 und 100°C über 1, 4 und 16 Stunden hinweg evakuiert. Die Rohre waren mit der Pulvermischung IV von 85 % th. D. und einem Wassergehalt von ca. 25 ppm gefüllt. An jedem Stab wurde an 3 Stellen Pulver für die Wasserbestimmung entnommen. Die Abb. 31 gibt die Versuchsergebnisse nach verschiedenen Pumpzeiten bei 25°C für 550 mm lange Rohre wieder, in der Abb. 32 ist die Wirkung der Ausheiztemperatur bei diesen Rohren gezeigt. Die Stellen der Probenahme sind in den Abbildungen skizziert. Einen Vergleich der Verhältnisse bei verschiedenen langen Rohren bezüglich Ausheiztemperatur und -Zeit gestatten die Abb. 33 und 34. Die hier eingetragenen Punkte entsprechen den Mittelwerten der aus den 3 Meßstellen jedes Stabes gewonnenen Ergebnisse. Demnach wird mit zunehmender Pumpzeit der Feuchtigkeitsgehalt erniedrigt. Wird das Rohr während des Evakuierens erwärmt, so läßt sich eine raschere Trocknung erzielen. Bei langen Pulversäulen läuft die Trocknung erwartungsgemäß langsam ab. Auffallend ist, daß an der pumpseitigen Stelle der Probenahme immer der höchste Wassergehalt vorliegt (Abb. 31, 32). Diese Erscheinung kann durch Entmischungsvorgänge hervorgerufen sein.

Der Feuchtigkeitsgehalt feiner Pulver ist stets größer, als der mit größerem Korn (siehe Abschnitt 1.4, Abb. 15). Wie Siebana-lysen zeigten, traten an der Stelle 1 der Probenahme durch-schnittlich etwa 14,5 % Feinanteil mit  $< 0,074$  mm Kerndurch-messer auf, während der Sollwert für diese Fraktion 23 % betrug.

## 2.2 Rundhämmern von Brennstäben aus vibrationsverdichtetem $UO_2$

Eine Nachbearbeitung der Brennstäbe durch eine plastische Ver-formung bringt eine merkliche Steigerung der Brennstoffdichte gegenüber dem nur vibrationsverdichteten Zustand mit sich. Der Einfluß des Verformungsgrades auf die Dichte des Brennstoffs war schon aus vorangegangenen Arbeiten bekannt<sup>1)</sup>. Neben eini-gen-ergänzenden Untersuchungen zu diesem Problem wurden jetzt vor allem die Dichteschwankungen von gehämmerten Stäben ge-prüft und die Beschädigungen der Hüllrohre durch die Verformung untersucht, sowie einige Versuche zur Frage des Hämmerns auf eine vorgeschriebene Länge durchgeführt.

### 2.2.1 Mittlere Dichte und Dichteschwankungen von rundgehämmerten Brennstäben

Im Rahmen dieser Versuche wurden insgesamt etwa 100 meist durch el.dyn., teilweise auch durch pn. Vibration vorverdichtete Stäbe hergestellt und geprüft, wobei unabhängig vom Rohrdurch-messer bei der Mehrzahl der Proben die Pulvermischung III ver-wendet wurde. Diese Festlegung wurde getroffen, um die Gefahr der Hüllrohrbeschädigung durch die Grobfraktion zu vermindern. Einige wenige Versuche mit Mischung I und IV dienten zum Ver-gleich.

Die Verformung wurde auf einer Vierbacken-Rundhämmermaschine vom Typ Alkett RH 12 durchgeführt, wobei sich Querschnittreduk

tionen bis zu 20 % in meistens 3 Hammerschritten erzielen ließen. Eine stärkere Reduktion des Querschnittes bringt bei den vorliegenden Ausgangsdichten des Brennstoffs keine wesentliche Steigerung der Enddichte mehr mit sich<sup>1)</sup>, erhöht jedoch die Gefahr der Hüllrohrbeschädigung sehr stark. Brennstoffdichten von etwa 91 % ließen sich in Hüllrohren aus Stahl und Dichten von über 92 % in Rohren aus Zry-2 reproduzierbar herstellen. In Abb. 35 und 36 sind einige typische Ergebnisse dargestellt. Jeder der eingetragenen Meßpunkte stellt einen Mittelwert aus 10 Einzelversuchen dar.

Aus Abb. 35 geht hervor, daß die Wandstärke der Hüllrohre keinen Einfluß auf den Verdichtungsprozess ausübt. Weiter zeigte sich, daß Stahlrohre mit 12 mm ä.D. und Mischung III ihre höchste Dichte schon nach ca. 10 % Verformung erzielen haben, während bei Rohren mit 15 mm ä. D. und Mischung IV die Verdichtung auch bei einer Verformung von 20 % noch nicht abgeschlossen ist. Erwartungsgemäß ist die Nachverdichtung durch das Hämmern bei niedrigeren Ausgangsdichten des Brennstoffs etwas höher als bei Rohren mit hoher Vibrationsdichte. Auf die Dichteschwankungen wirkt der Verformungsprozess sehr stark ausgleichend, doch bleiben die typischen, durch die Bauart des Vibrators bedingten Dichteschwankungskurven der Stäbe (siehe Abschnitt 2.1.2.3) auch nach dem Hämmern erhalten. Die Abb. 37 bis 39 geben die Verhältnisse am Beispiel von el.dyn. (Abb. 37) und pneumatisch (Abb. 38) vibrationsverdichteten Stäben mit Zry-2 Hüllen vor und nach dem Hämmern (Abb. 39) wieder. Es ist hier wieder der Verlauf der integralen Dichteschwankungen in Stababschnitten von 20 cm Länge aufgetragen. Bei Verwendung von Hüllrohren aus Stahl lassen sich analoge Ergebnisse gewinnen.

### 2.2.2 Rundhämmern auf Länge

Bei der Herstellung von Brennstäben durch Rundhämmern besteht das Problem, die Fertigung so zu lenken, daß vorgegebene Grenzen für Länge und mittlere Dichte mit geringer Ausschußrate eingehalten werden und eine Bearbeitung des gehämmerten Stabes an seinen Enden möglichst entfallen kann.

Der Zusammenhang zwischen Vibrationsdichte und Dichte sowie Längung nach dem Hämmern muß also bekannt und reproduzierbar sein.

Die Auswertung der durchgeführten Hämmerversuche ergab, daß sich bei Stäben von 2000 mm Länge bei konstanter Verformung die Längung nicht genügend genau reproduzieren läßt und mit Abweichungen von  $\pm 10$  mm auch dann gerechnet werden muß, wenn die Ausgangsdichte auf  $\pm 0,2\%$  konstant ist. Die Schwankungen der Brennstoffdichte erscheinen dagegen durchaus vertretbar, sie liegen bei  $\pm 0,4$  th. D. für den erwähnten Bereich der Ausgangsdichte. Diese Aussagen treffen für Hüllrohre aus Stahl und Zry-2 zu.

Einige Versuche mit Stäben von nur 1000 mm Länge und Stahlhüllen der Abmessung  $18 \times 0,3$  mm machen es jedoch wahrscheinlich daß unter diesen Bedingungen evtl. eine Nachbearbeitung entfallen kann. Die beobachtete Längung schwankte hier in den Grenzen von ca.  $\pm 1$  mm bei einer Querschnittsverminderung von 14 %. Diese Befunde bedürfen jedoch noch der Erhärtung.

### 2.2.3 Hüllrohrbeschädigung beim Rundhämmern

Die starke Beanspruchung des Hüllmaterials beim Rundhämmern bringt die Gefahr von Beschädigungen der Hülle insbesondere durch die Körner des Grobanteils der Pulverfüllung mit sich.

Das Ausmaß der Schäden wurde in besonderen Versuchen an Rohren aus Stahl und Zry-2 ermittelt.

### Versuche mit Hüllrohren aus Stahl

Rohre der Abmessung 12 x 0,4 x 2000 mm aus 18 8 CrNi Stahl, W.Nr. 4550 wurden zunächst im leeren Zustand mit Wirbelstrom auf Fehler untersucht.\*) Nach dem Vibrationsverdichten auf 86,3 bis 87,1 % th. D. wurden die Rohre auf einen Außendurchmesser von 10,8 mm entsprechend 18,8 % Querschnittsreduktion kalt gehämmert. Die Brennstoffdichte betrug danach 90,6 bis 91,7 % th. D. Der Verformungsgrad mußte sich nach den zur Verfügung stehenden Meßeinrichtungen richten und war deshalb so hoch gewählt. Die Wirbelstromprüfung erfolgte mit Meßfrequenzen von 10 und 30kHz, jeweils ohne und mit Magnetisierung.

Aus den Messungen an den leeren Rohren ging hervor, daß das Rohrmaterial eine merkliche Zahl von ferritischen Einschlüssen aufwies. Eines der Rohre mit Nr. 153 zeigte einen nicht näher identifizierten Defekt, der wahrscheinlich auf seiner inneren Oberfläche lag. In den Abb. 40 und 41 sind die Prüfdiagramme der beiden Rohre wiedergegeben. Die Bezeichnungen a bis d beschreiben die Prüfbedingungen

- a) 10 h Hz      ohne Magnetisierung
- b) 10 h Hz      mit Magnetisierung
- c) 30 h Hz      ohne Magnetisierung
- d) 30 h Hz      mit Magnetisierung

---

\*) Diese Wirbelstromprüfungen wurden freundlicherweise vom Institut Dr. Förster, Reutlingen durchgeführt.

Die Prüfschriebe derselben Rohre nach dem Hämmern zeigen die Abb. 42 und 43, die Empfindlichkeit des Anzeigegerätes ist hierbei auf ca. 1/8 gedrosselt. Nach dem Hämmern ließen alle Rohre starke Unregelmäßigkeiten erkennen. Der im leeren Rohr 153 festgestellte Fehler trat jetzt nicht mehr hervor, dagegen wurde an einem anderen Rohr mit der Nr. 151 ein sehr starker Defekt festgestellt.

Die Verformung durch das Hämmern beeinflusste die Wandstärke der Rohre kaum, an Querschliffen wurde zwar an einzelnen Stellen an denen sich große Körner in die Wand eingedrückt hatten, Werte von nur 0,384 mm gemessen, doch lag die mittlere Wanddicke noch bei 0,396 mm. Abb. 44 gibt Querschliffe durch einige derartige Eindrücke wieder. Diese Beschädigungen weisen Tiefen bis ca. 16  $\mu$ m auf. In Abb. 45 ist eine Stelle der inneren Rohroberfläche der fehlerhaften Zone von Rohr 151 gezeigt. Der abgebildete Fehler hat eine Tiefe von etwa 80  $\mu$ m.

Den Einfluß der Hämmerbehandlung auf die mechanischen Eigenschaften der Stahlrohre verdeutlicht die folgende Zusammenstellung:

Eigenschaften	Ausgangszustand	nach dem Hämmern
HV $\text{kp/mm}^2$	264 - 294	296 - 336
5 $0,2 \text{ kp/mm}^2$	59 - 60,5*	-
6 B $\text{kp/mm}^2$	79,5*	86 - 87,5 $\Delta$
Bruchdehnung %	45,4*	42,5 $\Delta$
* gemessen an Rohrabschnitten		
$\Delta$ Zerreißproben aus dem aufgeschnittenen Hüllrohr herausgearbeitet.		

## Versuche mit Hüllrohren aus Zircaloy-2

Untersuchungen über den Zustand der Hülle wurden unter Verwendung von Rohren mit 11,7 mm ä.D. und 0,62 mm Wandstärke ausgeführt. Diese wurden auf Brennstoffdichten von 86,7 - 86,9 % th. D. vorvibriert und anschließend durch Rundhämmern mit einer Querschnittsreduktion von 13,2 % auf 92,4 bis 93,0 % th. D. nachverdichtet. Bei der Untersuchung von Querschliffen dieser Rohre wurden zahlreiche Fehler bis ca. 30  $\mu$  Tiefe auf der Hüllrohrinnenfläche infolge Beschädigung durch einzelne Körner festgestellt. Diese Beschädigungen sind im Durchschnitt merklich stärker als die bei den Stahlrohren beobachteten, was sich mit der geringeren Härte und Festigkeit des Zry-2, verglichen mit der von Stahl, erklären läßt. Die Vickershärte der Rohre erhöhte sich durch die Verformung von 190 = 215  $\text{kp/mm}^2$  auf 210 - 235  $\text{kp/mm}^2$ .

Die Versuchsergebnisse lassen folgende Schlüsse zu:

Bei der Verformung von Brennstäben mit Metallhüllen durch Rundhämmern tritt eine leichte Verfestigung des Hüllmaterials ein. Auf der Rohrrinnenwand können Beschädigungen durch  $\text{UO}_2$ -Körner der Grobfraktion entstehen, die bei den hier angewendeten Querschnittsreduktionen noch im Rahmen der zulässigen Grenze (10 % der Wanddicke) blieben, jedoch bei der an Stahlrohren durchgeführten Wirbelstromprüfung schon bemerkbar wurden. Es muß jedoch auch bei vorher geprüften und für einwandfrei befundenen Rohren mit dem Auftreten größerer Schäden gerechnet werden. Dies verlangt eine Prüfung der fertigen Brennstäbe auf den Zustand des Hüllmaterials. Da hierfür jedoch das Ultraschallverfahren wegen des mechanischen Kontakts zwischen Hülle und Brennstoff ausscheidet, kommt nur die Prüfung mit Wirbelstrom infrage. Für austenitische Stähle und Nickellegierungen ist dieses Verfahren sehr wohl brauchbar, es liefert bei Zirkoniumlegierungen allerdings weniger befriedigende Ergebnisse.

### 3. Diskussion der Ergebnisse

#### Schmelzen

Das ausgearbeitete Verfahren liefert ein Produkt, das bezüglich seiner Reinheit mit dem von anderer Seite angebotenen Material durchaus vergleichbar ist. Soweit bekannt, wird das im Handel erhältliche geschmolzene  $UO_2$  in Lichtbogenöfen hergestellt, wobei große Verdampfungsverluste auftreten. So stellt z. B. die Norton Company<sup>9)</sup> etwa 400kg geschmolzenes  $UO_2$  in einem großen Lichtbogenofen in einem einzigen Schmelzvorgang her. 10 % dieser Menge verdampfen während des Prozesses und müssen in einem kostspieligen Staubsammelsystem aufgefangen werden. Demgegenüber können bei dem hier beschriebenen Verfahren des Schmelzens im direkten Stromdurchgang Verdampfungsverluste vernachlässigt werden. Die Kapazität der Einrichtungen gestattet z. Zt. die Herstellung von ca. 35 kg geschmolzenem  $UO_2$  pro Schicht, es erscheint jedoch technisch durchaus möglich und vorteilhaft, diesen Wert durch Erstellung einer größeren Anlage noch anzuheben.

Wie bereits in Abschnitt 1.2 erwähnt, bietet für den Fall einer Produktion größeren Umfangs die Pulvervariante gegenüber der Pelletmethode gewisse Vorteile, die vor allem in der einfacheren Behandlung des Rücklaufs und einer Vereinfachung des Verfahrens bestehen. Ein weiterer Vorteil der Pulvervariante ist, daß sie sich auch zur Verarbeitung von  $UO_2$  eignet, das in Form von gesinterten oder geschmolzenen Stücken vorliegt. Hierbei muß lediglich eine grobe Zerkleinerung vorgenommen werden, und ein Zusatz von Frischpulver ist nicht nötig.

#### Vibriieren

Die systematischen Versuche über den Einfluß der Hüllrohrgeometrie auf die erreichbare mittlere Dichte wurden durch das verspätete Eintreffen der bestellten Rohre stark behindert.



Auf Grund der gewonnenen Ergebnisse kann jedoch geschlossen werden, daß sich mit den verwendeten Pulvermischungen zumindest in einigen der geprüften Rohrabmessungen Dichtewerte erzielen lassen, welche zwar die in der Literatur angegebenen Höchstwerte aus Einzelversuchen von 92 - 94 % 4) 5) 10) 11) nicht erreichen, aber doch zu der Erwartung berechtigen, daß Dichten zwischen 88 - 90 % nach weiterer Entwicklung routinemäßig erzielt werden können. Hierbei ist noch zu berücksichtigen, daß einmal die Leistung der verwendeten Vibratoren unter der von an anderen Stellen benutzten Geräten liegt und daß zum anderen die Kornverteilung der Pulvermischungen nicht an die verschiedenen Hüllrohrdimensionen optimal angepaßt waren, sondern noch einen relativ einfachen Aufbau bei guter Wirtschaftlichkeit besaßen. Besonders die Verwendung stärkerer Vibratoren wäre ein wesentlicher Schritt zur Verbesserung des Verfahrens, da dann unter Umständen mit noch einfacheren Gemischen gearbeitet werden kann<sup>12) 13)</sup>.

### Hämmern

Die Erhöhung der Brennstoffdichte von vibrationsverdichteten Stäben durch Rundhämmern erschien in der Vergangenheit hauptsächlich deshalb erwünscht, weil hohe  $UO_2$ -Dichten von etwa 93 bis 95 % erzielt werden sollten, um die Gleichwertigkeit von Pulverstäben gegenüber solchen mit Pelletfüllung sicherzustellen. Mit der immer mehr verstärkten Forderung nach hohen Brennstoffabbränden hat sich diese Zielsetzung jedoch etwas gewandelt und es erscheinen jetzt Brennstoffdichten von 89 bis 90 % als durchaus genügend. Diese Werte liegen in einem Bereich der heute durch Vibrieren allein im technischen Maßstab teilweise schon erreicht wird bzw. erreichbar erscheint. Neben einer Erhöhung der Brennstoffdichte bewirkt das Hämmern auch eine Ausglei chung der Dichteschwankungen im Brennstoff, doch

ist mit diesem Vorteil die Gefahr der Hüllrohrbeschädigungen verbunden. Wie die beschriebenen Untersuchungen gezeigt haben, macht die Gefahr der Beschädigung der Rohre durch den Brennstoff einen weiteren Prüfprozeß nach dem Hämmern erforderlich, der die Funktionstüchtigkeit der Stäbe sicherstellt.

### Literatur

- 1) P. Himmelstein, u.a. Rep. EUR 541 d (1964)
- 2) B.E. Schaner, Journ. Nucl. Mat. 2 (1960) 110 - 120
- 3) J.D. Sease, A.L. Lotts, F.C. Davies, 11. th. Hot Lab. Proceedings, ANS, Nw 1963, 33
- 4) R.C. Breuyer, B.E. Murtha, in Rep. CEND - 153 (1961)
- 5) W.S. Ernst jr., R.L. Beatty, in Rep. CEND - 153 (1961)
- 6) W.R. Hollander, Rep. GMF - 4032 (1962)
- 7) R.K. Mc.Georg, Journ. Americ. Ceram. Soc. 44 (1961) 513
- 8) R.L. Richardson, Rep. HW - 73057 (1961)
- 9) J.J. Scott, J.E. Patchett, in Meeting on Characterization of Uranium Dioxide (1961) USAEC, Division of Technical Information, Tennessee, S. 481 - 488
- 10) E. Vandenbenden, in Rep. CEND - 153 (1961)
- 11) H.G. Marsh Rep. DP - 681 (1962)
- 12) J.J. Houth in Rep. CEND - 153 (1961)
- 13) A.L. Lotts, ORNL, persönliche Mitteilung

Tabelle 1 Aufwand für die Herstellung von geschmolzenem  $UO_2$

		Pelletvariante	Pulvervariante
Material	Einsatz [kg]	15,2	31
	Ausbeute [kg]	8,2 (55%)	9 (29%)
Zeit	Schmelzzeit pro Charge [Min]	59	68
Energie	[kWh/kg geschm. $UO_2$ ]	3	3
Wasser	[m <sup>3</sup> /kg geschm. $UO_2$ ]	2,8	2,8
Arbeitszeit	[Mannstunde/kg $UO_2$ ]	1	0,75

Tabelle 2 Kornverteilung der verwendeten Pulvermischungen

	Anteil [Gew. %]	Körnung	
		mesh	[mm]
Mischung I a	ungesiebttes Mahlprodukt, hergestellt im Backenbrecher mit Spaltweiten von 1 bis 1,5 bzw. 1,5 bis 2 mm		
Mischung II	70		3,0 bis 2,0
	30		< 0,06
Mischung III	40		2,0 bis 1,2
	20		1,2 bis 0,8
	15		0,4 bis 0,2
	25		0,06
Mischung IV	35	6-8	3,33 bis 2,36
	25	8-12	2,36 bis 1,40
	5	12-20	1,40 bis 0,83
	12	32-60	0,50 bis 0,25
	23	200	< 0,074

## A N H A N G

### Vergleich der Herstellungskosten von Brennstäben mit UO<sub>2</sub>-Pellets und vibrationsverdichtetem Pul- ver aus geschmolzenem UO<sub>2</sub>

Die Kostenabschätzung setzt eine gleichgroße fortlaufende Produktion von Stäben für beide Varianten voraus. Hierbei sollen pro Tag 50 Brennstäbe mit leicht angereichertem UO<sub>2</sub> (Anreicherungsgrad 2 bis 5 %) und Zry-2 Hüllen erzeugt werden. Die aus der geringen Differenz der Dichte resultierende unterschiedliche Brennstoffmenge pro Stab soll durch leichte Erhöhung des Anreicherungsgrades im vibrierten Brennstoff ausgeglichen werden. Die Abschätzung schließt die Punkte Konversion, Brennstoffherstellung, Stabherstellung, Hüllrohre und Kontrolle, sowie Schrottaufarbeitung ein, berücksichtigt jedoch nicht die Assemblierung der Stäbe zum Brennelement sowie Kapital- und Brennstoffkosten. Im einzelnen werden folgende Schritte erfaßt:

1. Konversion Herstellung von UO<sub>2</sub>-Pulver aus UF<sub>6</sub>
2. Brennstoffherstellung
  - a) bei Pellets:  
Pressen, Sintern, Schleifen
  - b) bei geschmolzenem UO<sub>2</sub>:  
Schmelzen, Sintern, Vorbrechen, Homogenisieren, Mahlen
3. Stabherstellung
  - 3.1 Hüllmaterialvorbereitung:

Bearbeitung der Rohre, Herstellung der Stopfen

### 3.2 Schweißen:

Durchführung der Arbeiten in einer halbautomatischen Schweißvorrichtung

Pumpzeit: 15 Stunden

### 3.3 Einfüllen

#### a) bei Pellets

Einfüllen der Sinterkörper in die einseitig verschlossenen Hüllrohre

#### b) bei geschmolzenem $UO_2$ :

Mischen der Pulverfraktionen und Einvibrieren in die Stäbe auf eine mittlere Dichte von 87 - 88 % (hierbei ist eine Wiederholung dieses Schrittes bei 15 % der Stäbe infolge ungenügender Dichte oder Dichteschwankungen eingeschlossen), sowie Prüfung der Dichteschwankungen mit  $\gamma$ -Strahlen an 100 % der Stäbe.

## 4. Hüllrohre und Kontrolle

### 4.1 Materialkosten für Rohre und Stopfen

Für Rohre sollen bei beiden Varianten die gleichen Spezifikationen gelten.

4.2 Kontrolle des Hüllmaterials, Zwischenkontrollen während der Fertigung (ausgenommen Dichteprüfung bei vibrierten Stäben), Endkontrolle der fertigen Stäbe.

## 5. Schrottaufarbeitung

Chemische Aufarbeitung der nicht mehr im Prozeß verwendbaren  $UO_2$ -Mengen

Die Abschätzung ist durchgeführt für Stäbe mit 2000 mm Länge und inneren Durchmessern von 12,5 und 9mm.

In den Tabellen A 1 und A 2 sind die Herstellungskosten nach folgendem Verfahren zusammengefaßt: Der Wert für Pelletstäbe gilt als Standardwert und wird gleich 100 % gesetzt. Für die einzelnen Fabrikationsschritte sind die Einsparungen bzw. Verteuerungen, welche die Herstellung von Stäben mit geschmolzenem und gemahlenem  $UO_2$  verursacht, anteilmäßig angeführt. Die Summe der Veränderungen ist als Endwert angegeben.

Aus den Tabellen geht hervor, daß die Herstellung von vibrationsverdichteten Brennstäben mit etwa 6 % geringeren Kosten durchzuführen ist, als die von Pelletstäben. Dies gilt, wenn die sehr aufwendige Dichteschwankungskontrolle an 100 % der vibrationsverdichteten Stäben durchgeführt wird. Es erscheint durchaus möglich, diese Prüfung auf 50 % der Stäbe zu beschränken. Hierdurch wäre eine zusätzliche Einsparung von 1,3 % bei den dickeren und 1,9 % bei den dünneren Stäben möglich.

Für Stäbe mit geringerem Durchmesser ist abzusehen, daß sich die Kostenersparnis durch Schmelzen und Vibrieren des  $UO_2$  noch mehr erhöhen wird.

Für die Beurteilung der beiden Prozesse ist noch wichtig, daß die Investitionen für eine Produktion des vorausgesetzten Umfangs bei Schmelzen und Vibrieren nur etwa 87 % der für Pellets erforderlichen betragen.

Tabelle A 1 Kostenvergleich zwischen Pellet und Pulverstäben  
von 12,5 mm Innendurchmesser

Arbeitsschritt	Kosten Pelletstäbe %	Pulverstäbe % der Kosten für Arbeitsschritt
1. Konversion UF <sub>6</sub> - UO <sub>2</sub>	23,4	0
2. Brennstoff- herstellung	25,3	- 46,6
3. Stabherstel- lung	7,0	+ 104
4. Hüllrohre und Kontrolle	40,2	0
5. Schrottauf- arbeitung	4,1	- 35
	100,0	- 5,9 Gesamtveränderung % der Kosten f. Pellet- stäbe

Tabelle A 2 Kostenvergleich zwischen Pellet und Pulverstäben  
von 9,0 mm Innendurchmesser

Arbeitsschritt	Pelletstäbe %	Pulverstäbe Veränderung in % der ursprünglichen Kosten für Arbeitsschritt
1. Konversion	16,2	0
2. Brennstoffherstellung	23,3	- 60,5
3. Stabherstellung	9,7	+ 90,5
4. Hüllrohre und Kontrolle	48,0	0
5. Schrottaufarbeitung	2,8	- 33
	100,0	- 6,2 Gesamtveränderung % der Kosten für Pelletstäbe



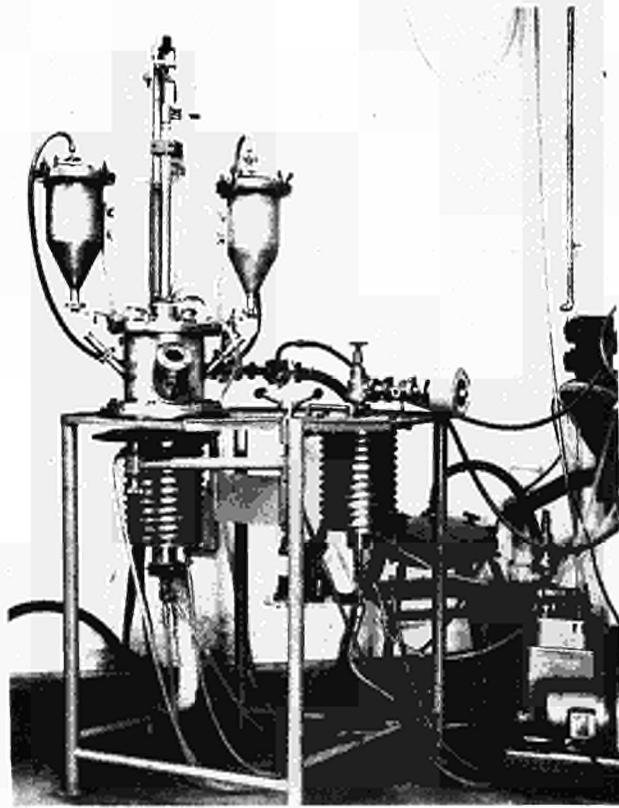
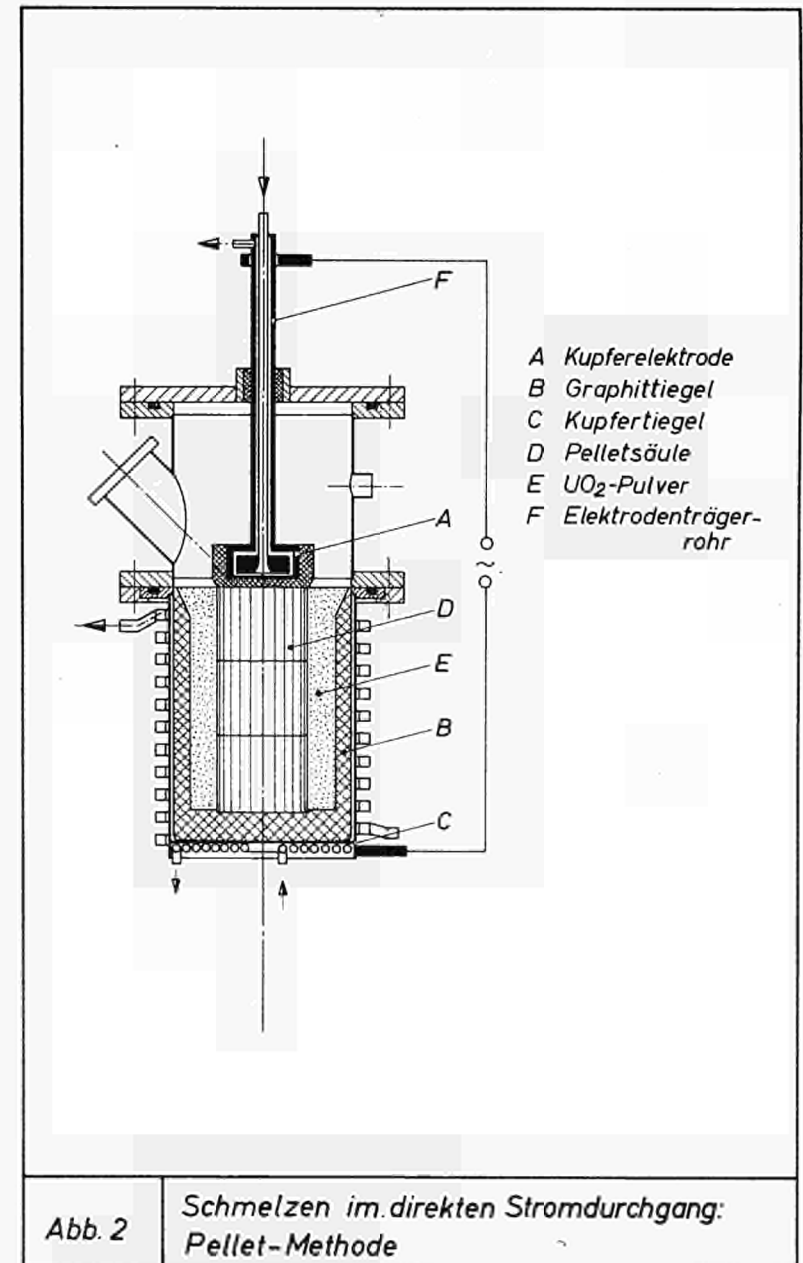


Abb. 1 Schmelzofen mit mehreren Tiegeln



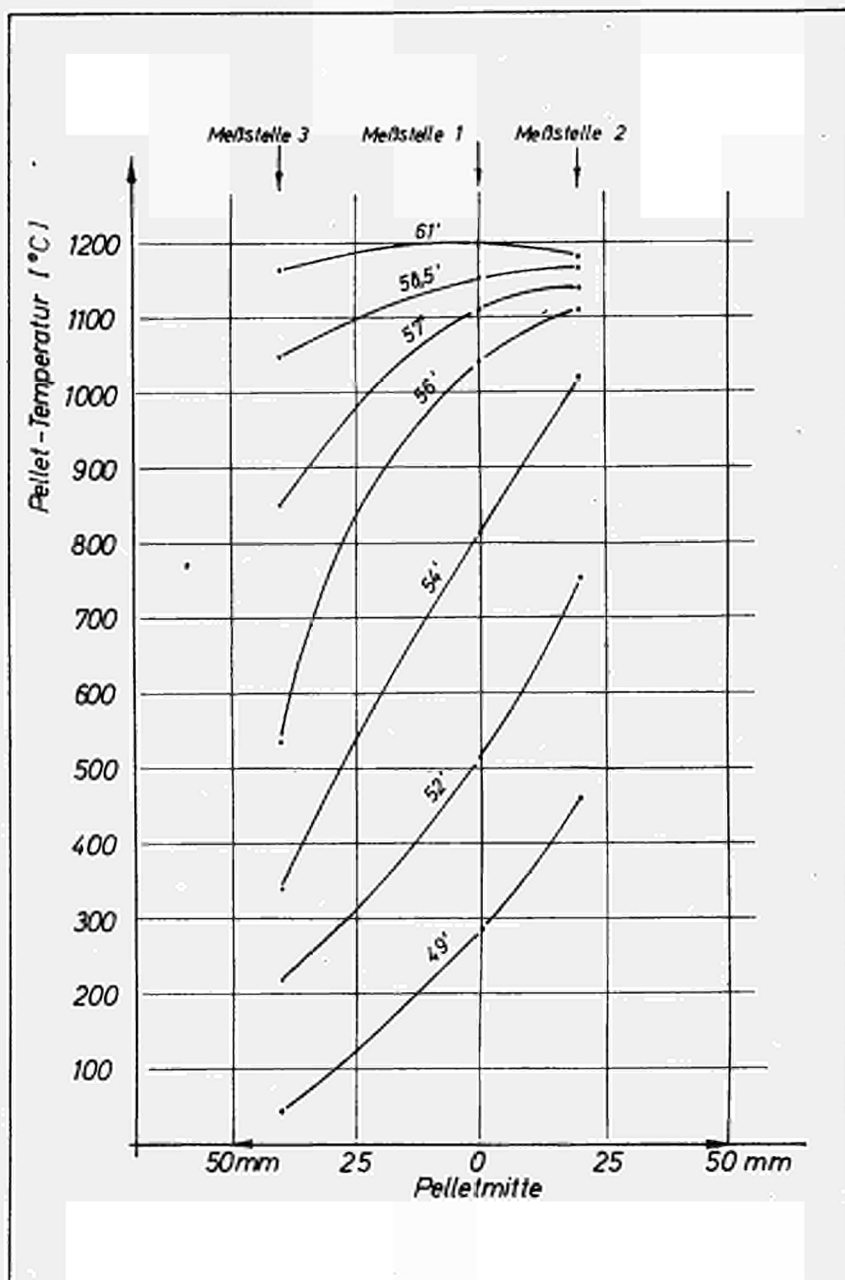


Abb. 3 Temperaturmessung in der Pelletsäule während der Aufheizphase

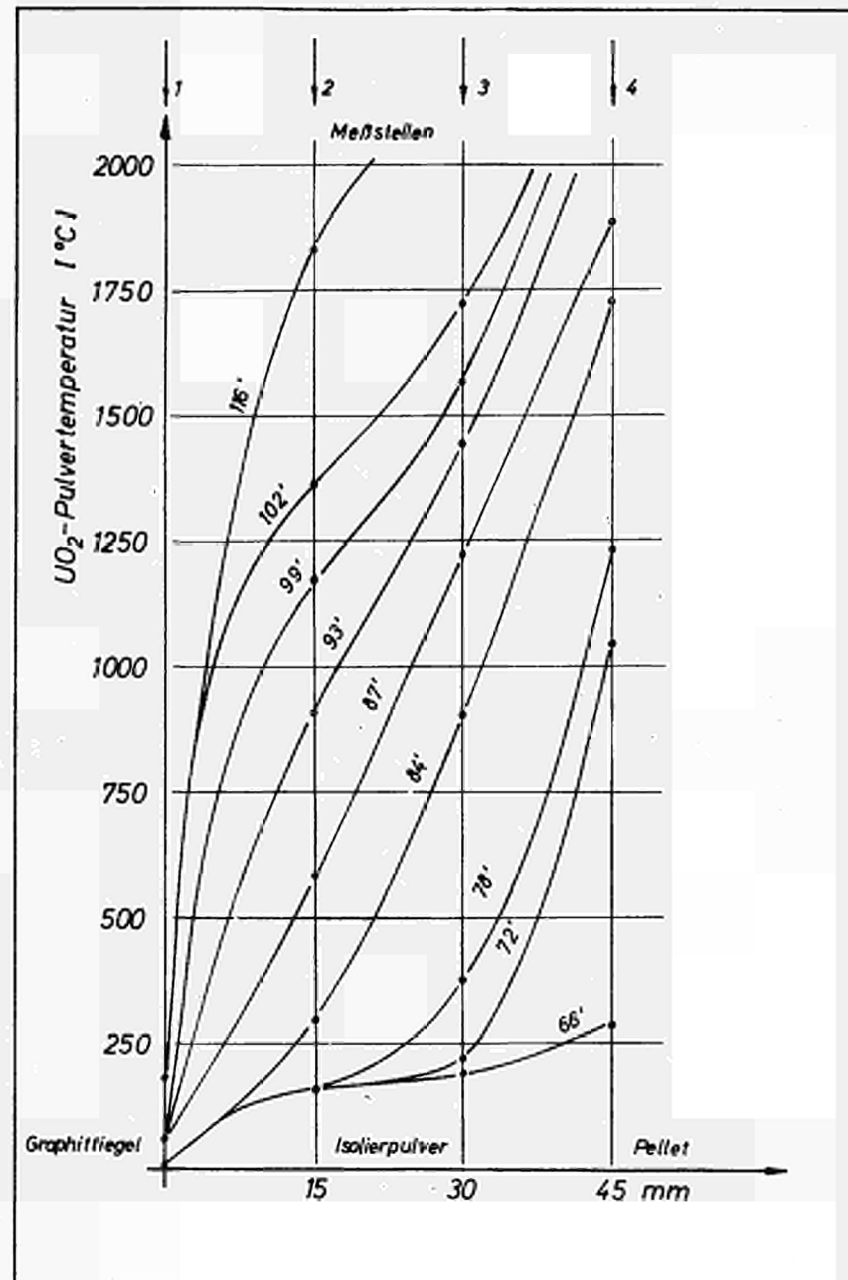


Abb. 4 Temperaturmessung in der  $UO_2$ -Pulverschicht während der Aufheizphase

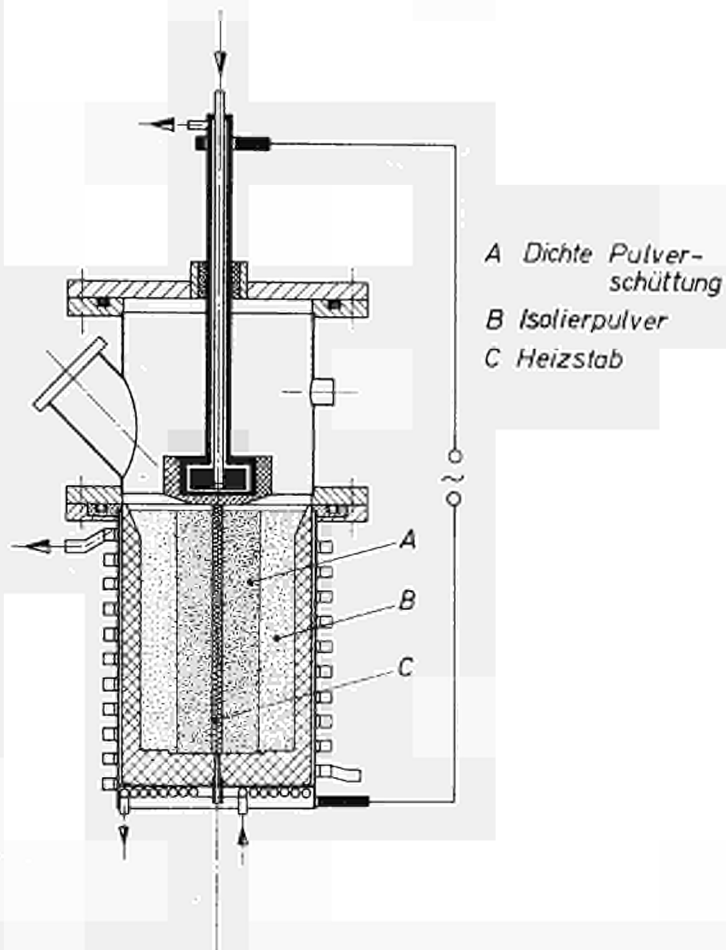


Abb. 5 Schmelzen im direkten Stromdurchgang:  
 Heizstab-Methode

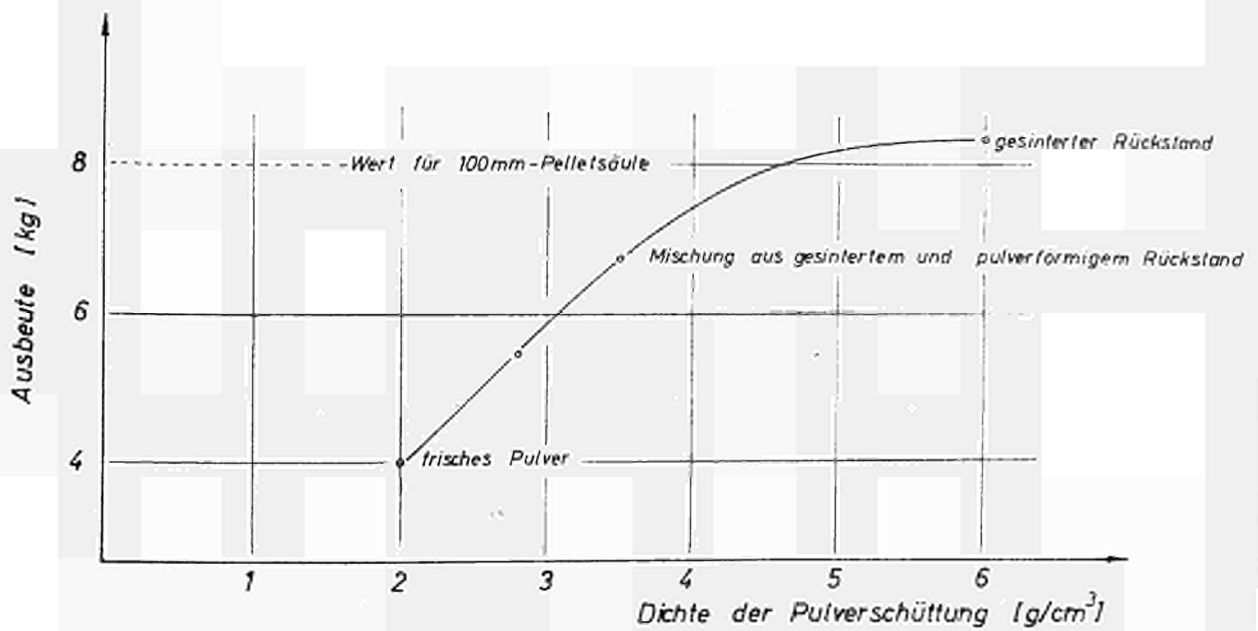
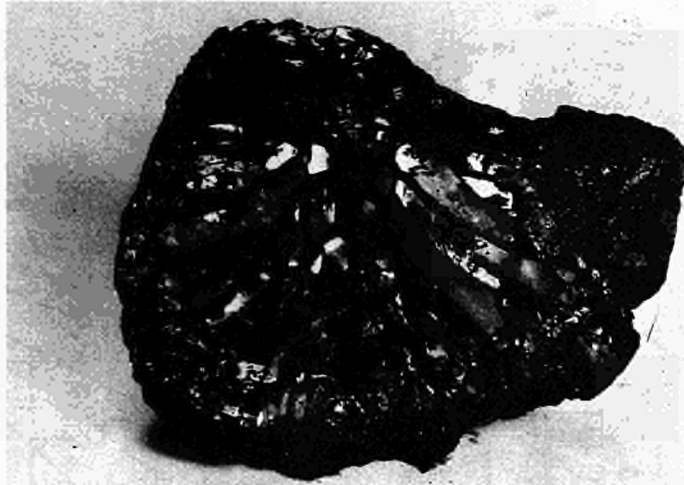


Abb. 6 Abhängigkeit der Schmelzausbeute von der Dichte der Pulverschüttung



ca. 1/2

Abb. 7 *Geschmolzene Pelletsäule (70mm  $\phi$ ); Kern mit Stengelkristallen und gesinterter Kruste*



ca.1 / 2

Abb. 8 *Geschmolzenes  $UO_2$ , Stengelkristalle*

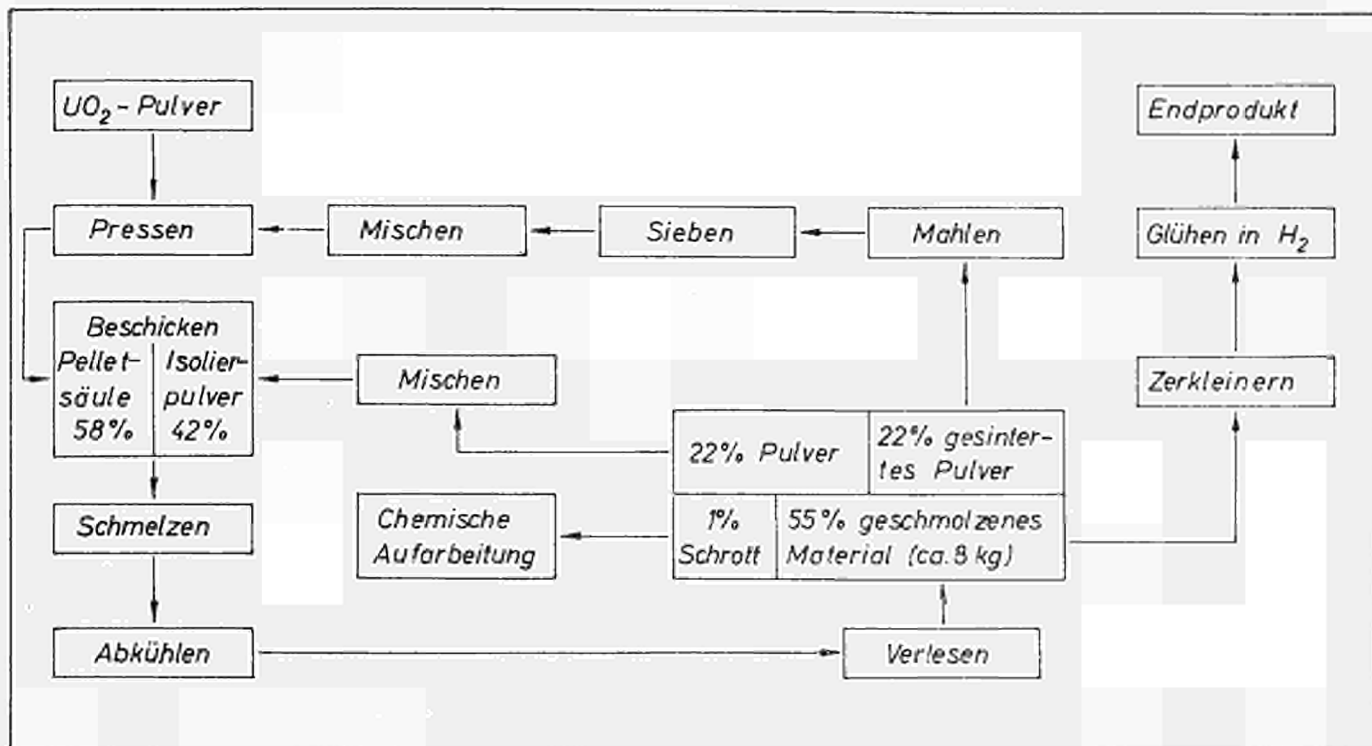


Abb. 9

Fließschema für das Schmelzen von UO<sub>2</sub>, Pelletvariante

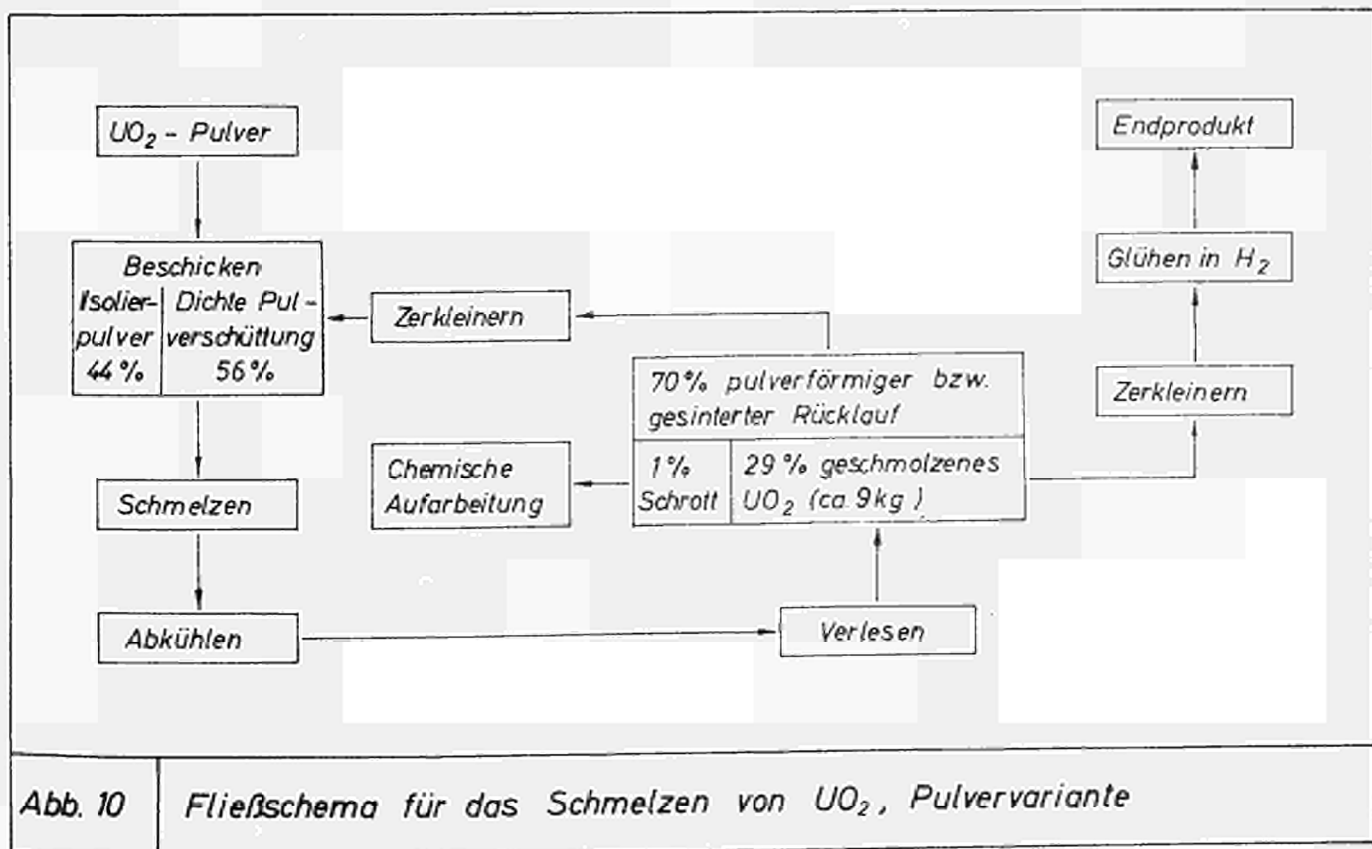


Abb. 10

Fließschema für das Schmelzen von UO<sub>2</sub>, Pulvervariante

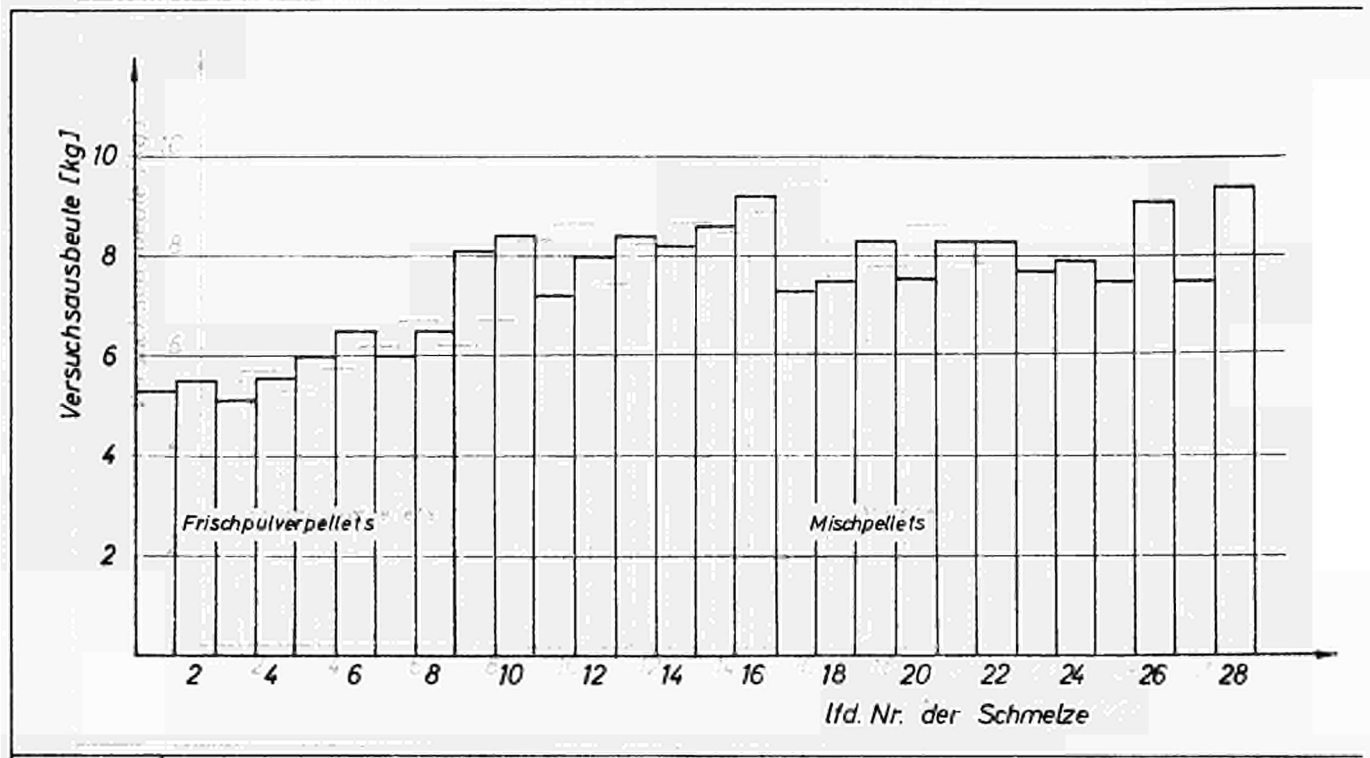


Abb. 11 Versuchsausbeute im Verlauf der Probeproduktion

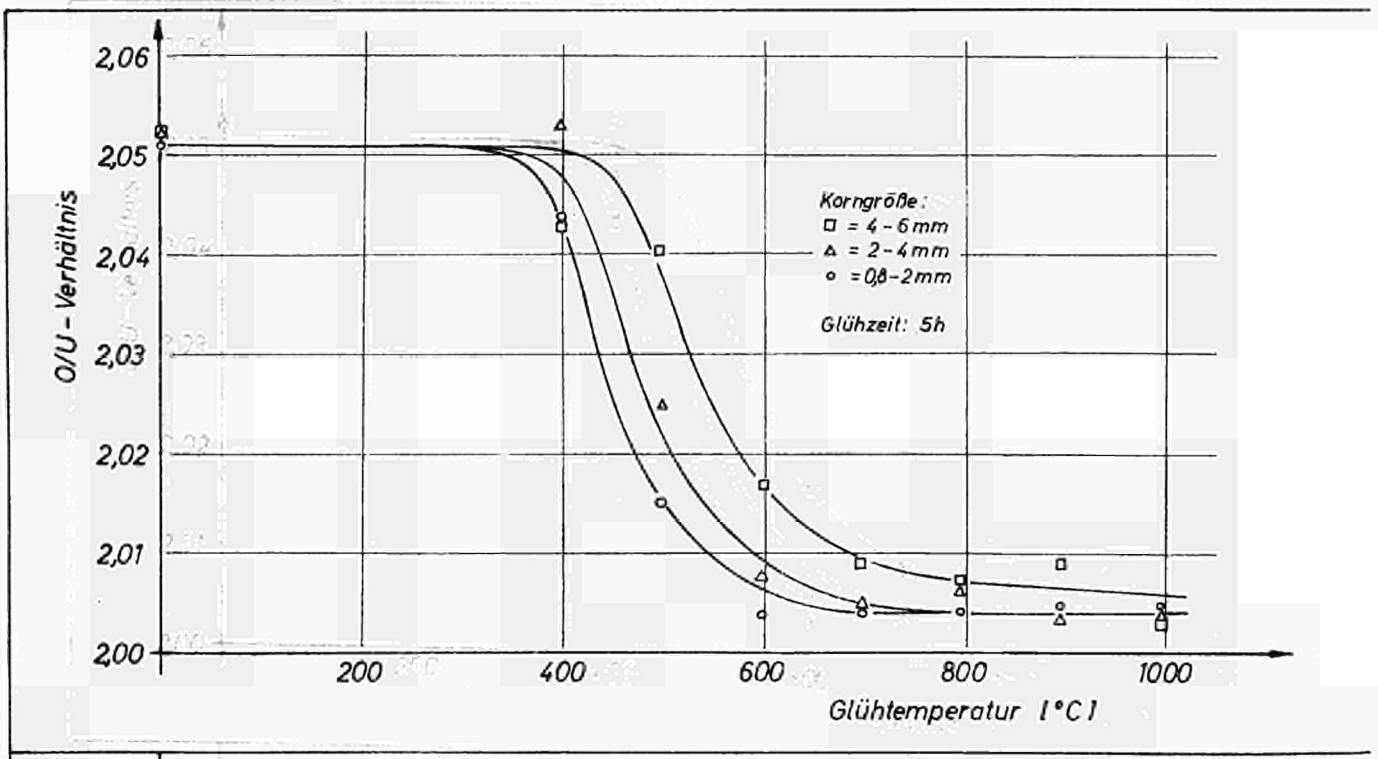


Abb. 12 O/U-Verhältnis in Abhängigkeit von der Glühtemperatur

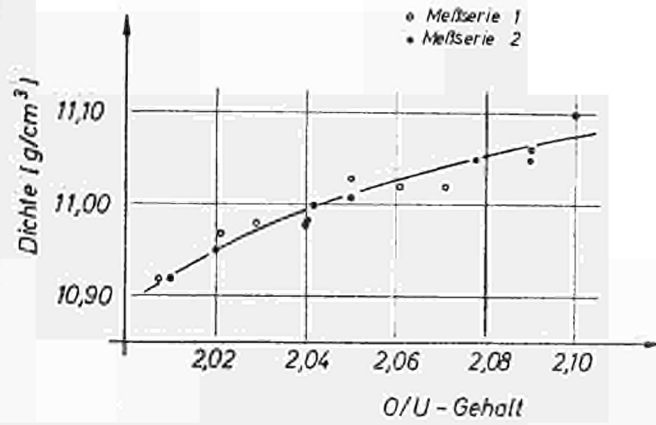


Abb. 13 Dichte von geschmolzenem  $UO_2$  in Abhängigkeit vom O/U-Verhältnis

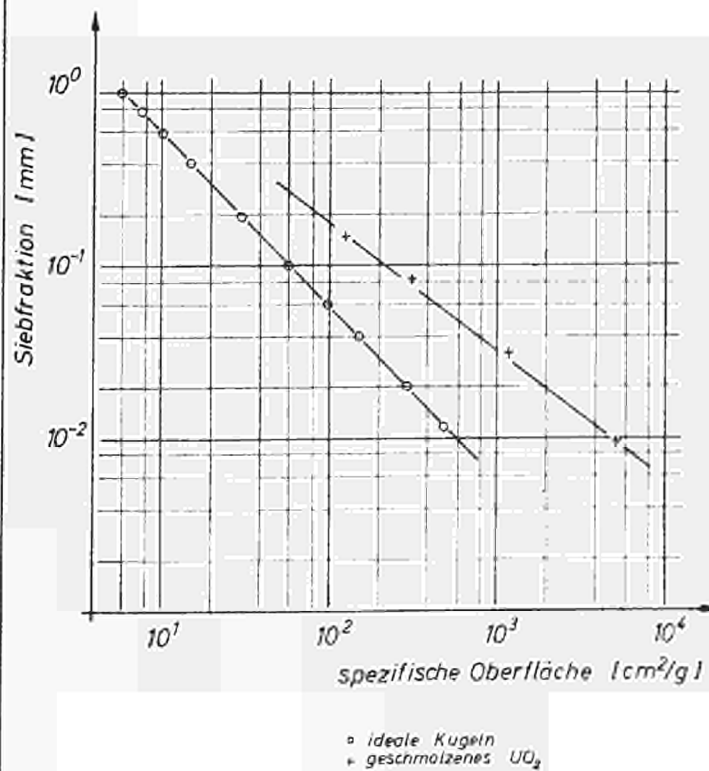
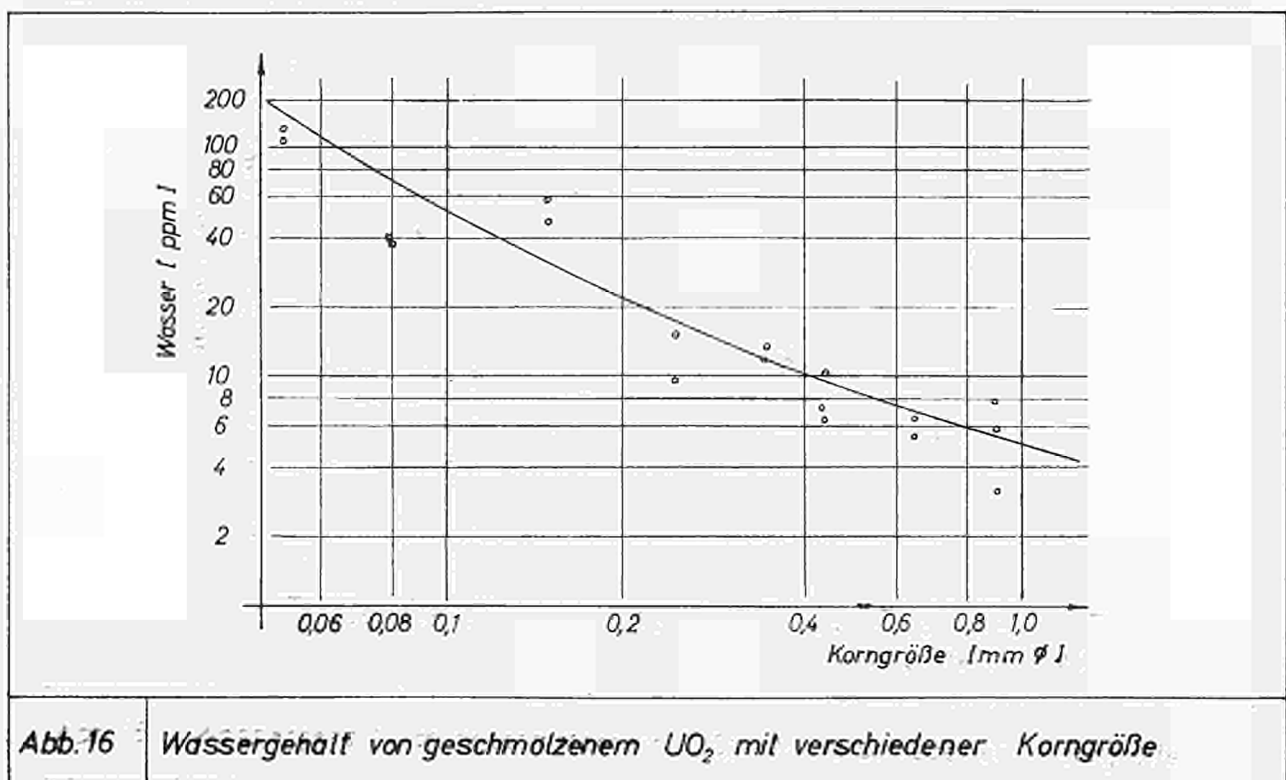
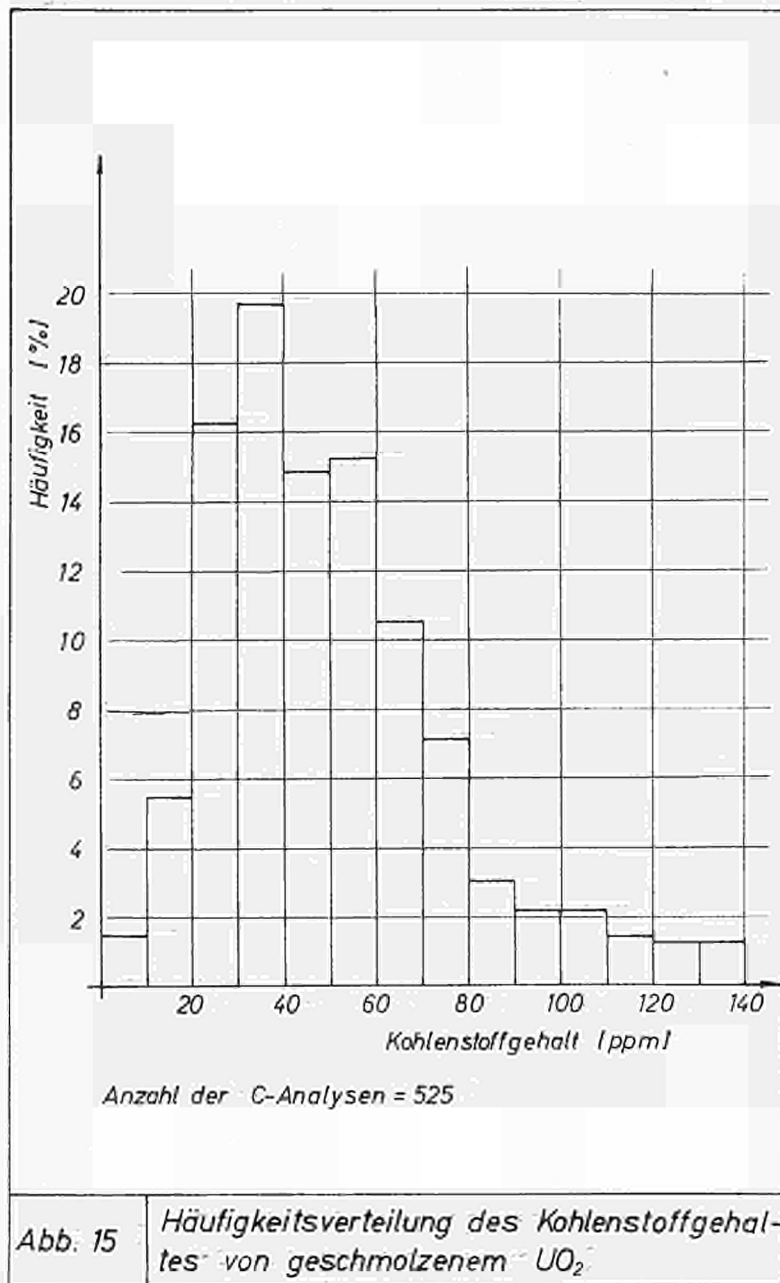


Abb. 14 Spezifische Oberfläche von geschmolzenem  $UO_2$





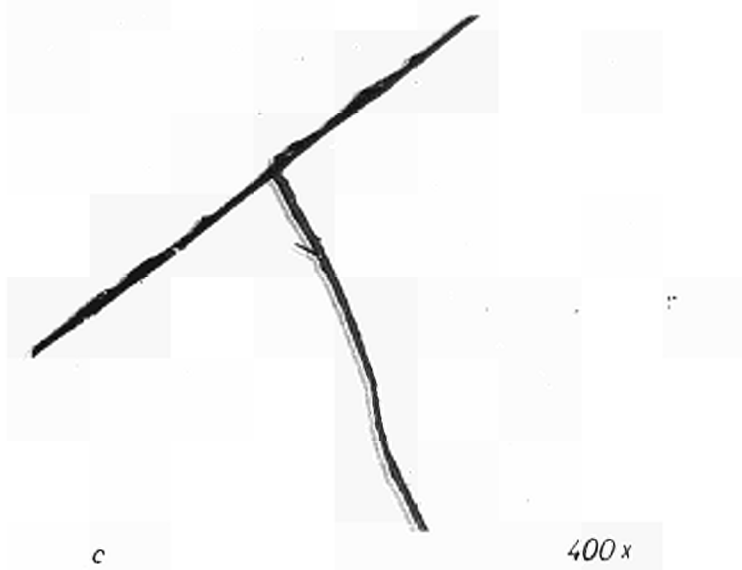
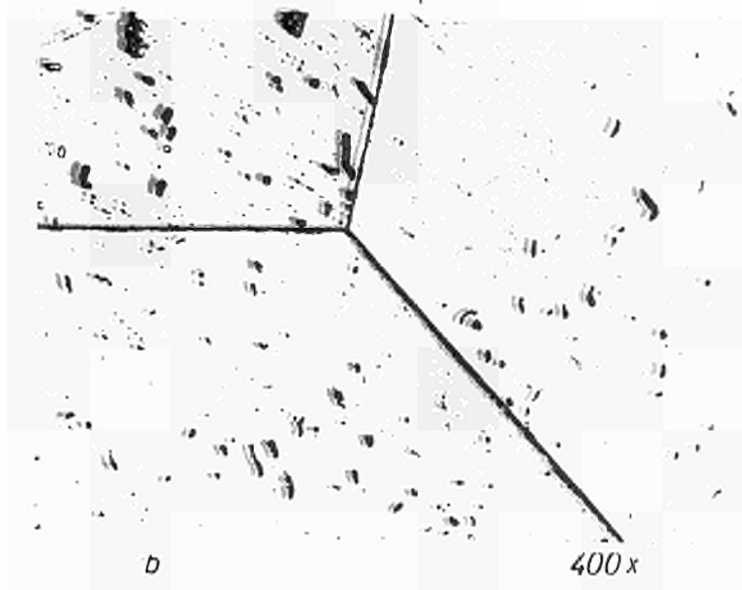
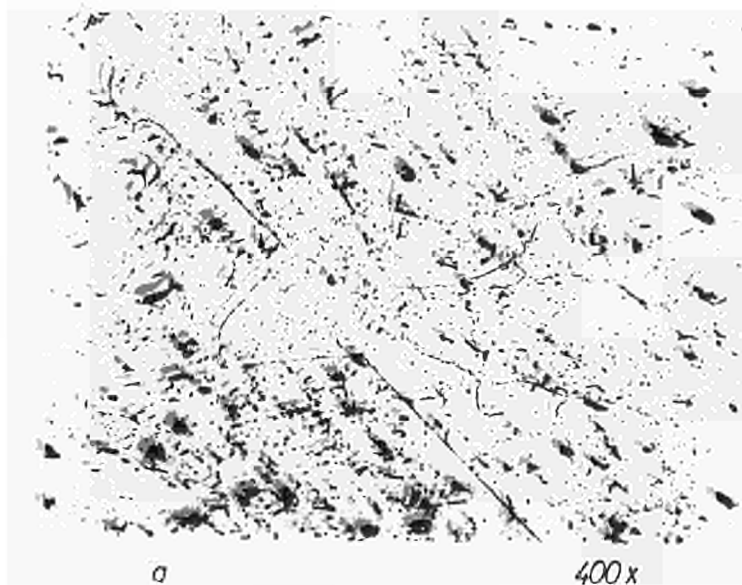
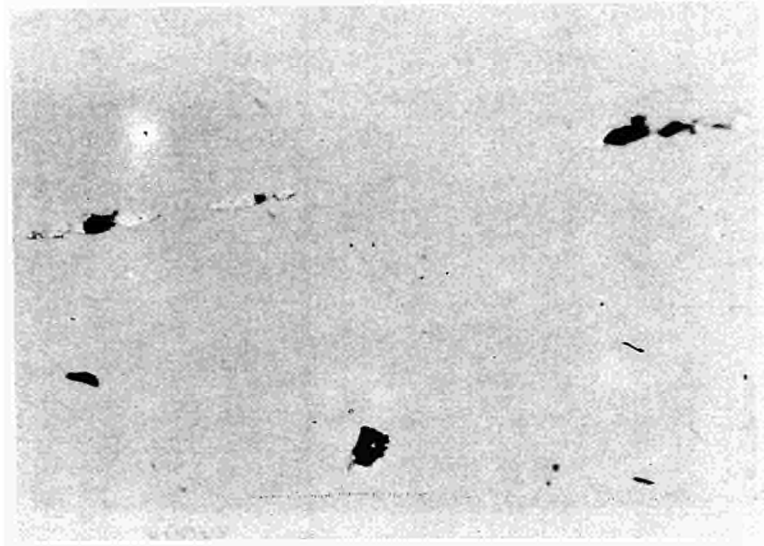
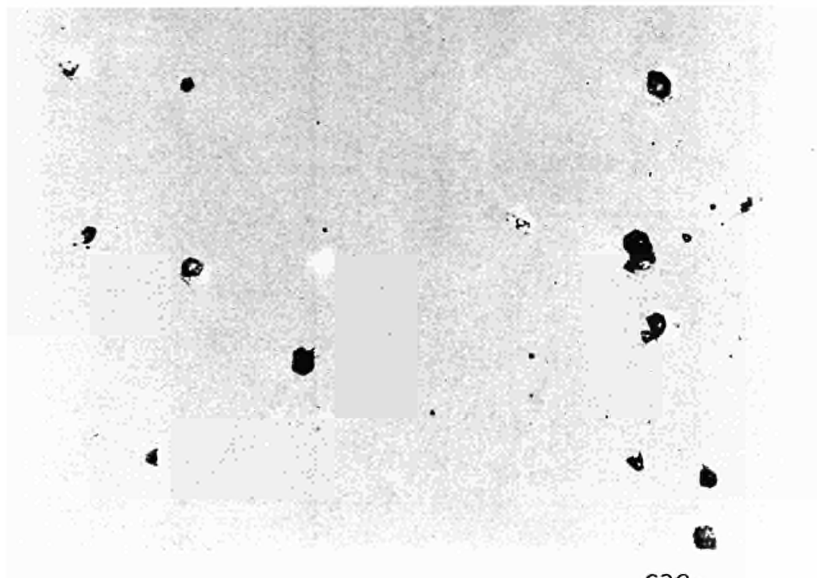


Abb. 17

Gefüge von verschiedenen Chargen des direkt geschmolzenen UO<sub>2</sub>



630x



630x



1240x

Abb. 18

Uranmetall -Ausscheidungen in geschmolzenem  $UO_2$  ( $O/U = 1,98$ )

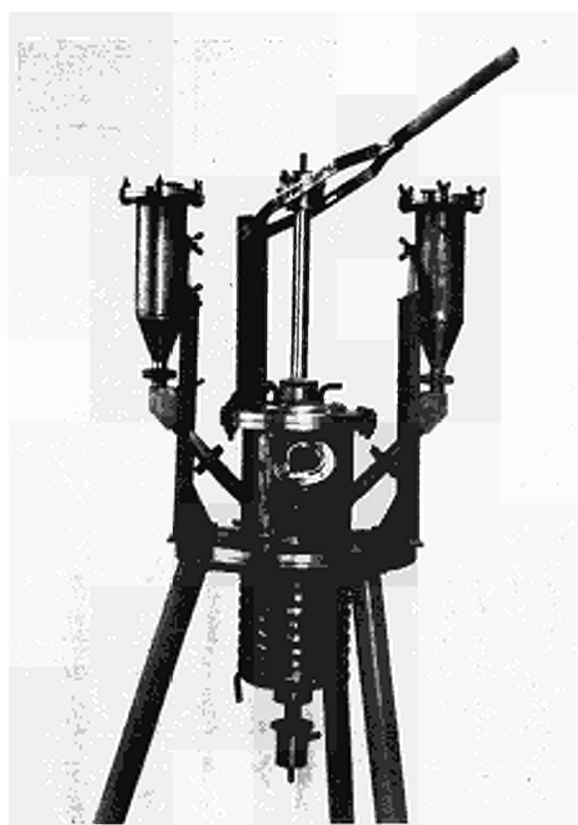


Abb. 19 Kleiner Schmelzofen für angereichertes  $UO_2$

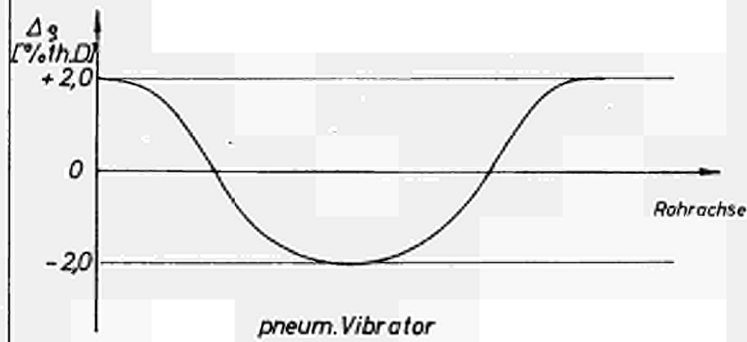
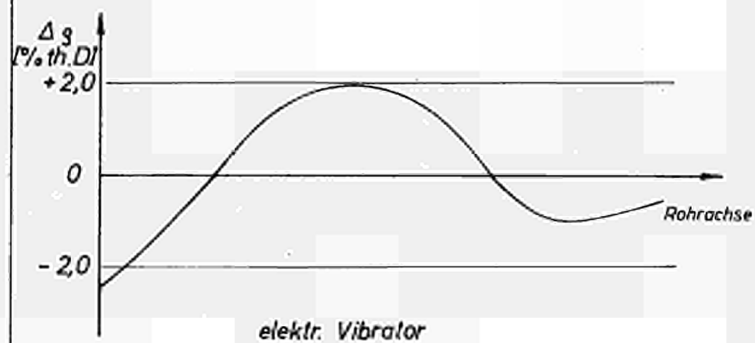


Abb. 20 Verlauf der Dichte in Röhren mit vibrationsverdichtetem  $UO_2$  (schematisch)

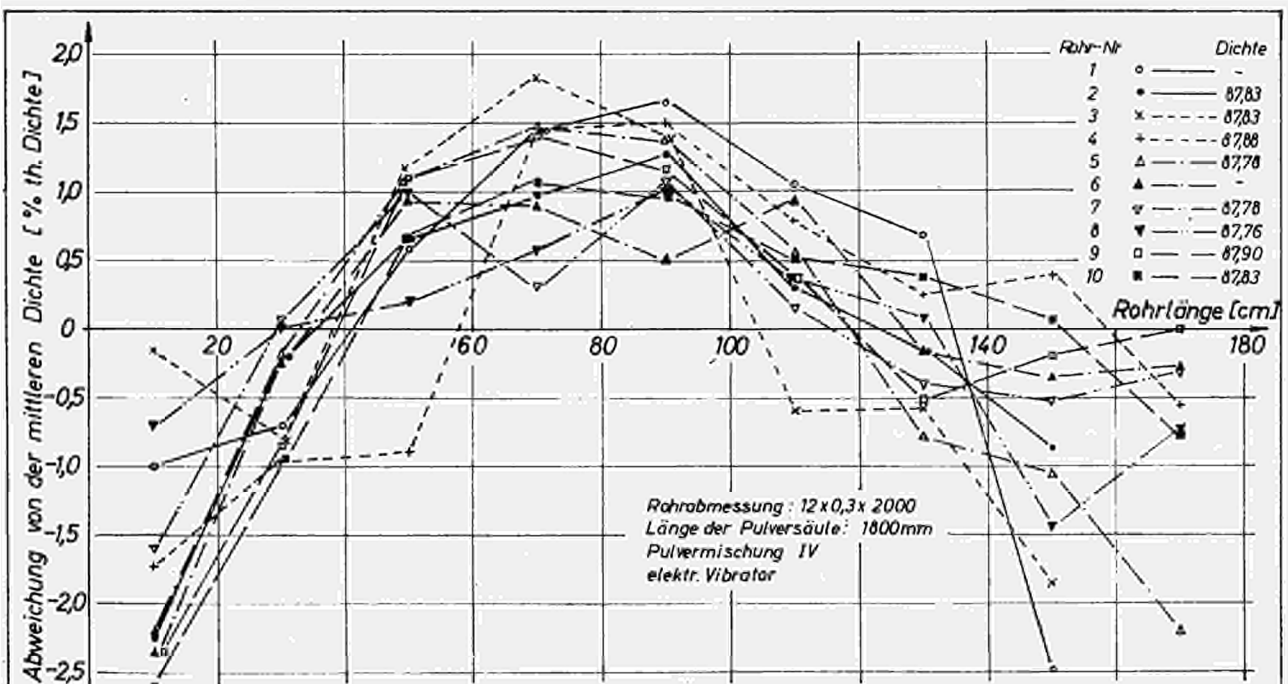


Abb. 21  $UO_2$ -Dichteschwankungen in vibrierten Edelstahlrohren (Die Meßpunkte sind Mittelwerte von 20 cm Pulversäule)

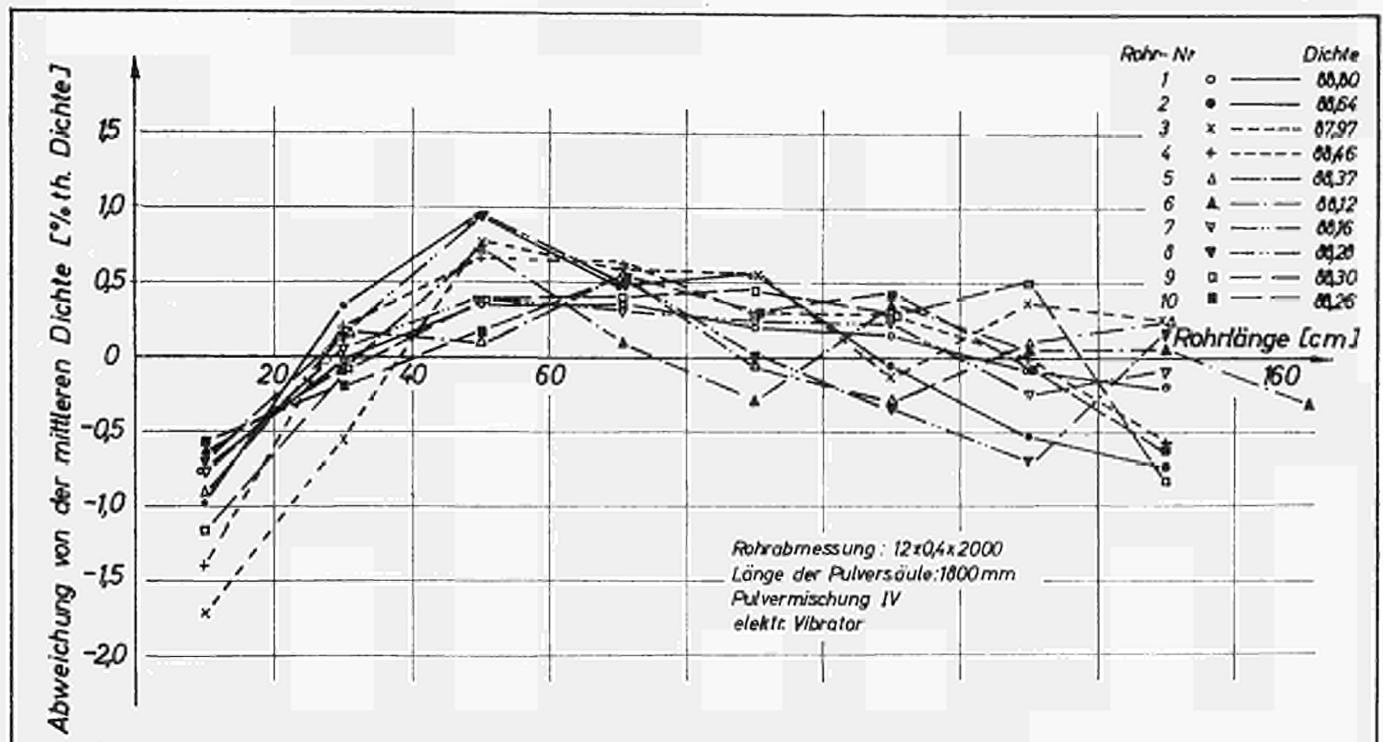


Abb. 22  $UO_2$ -Dichteschwankungen in vibrierten Edelstahlrohren  
 (Die Meßpunkte sind Mittelwerte von 20 cm Pulversäule)

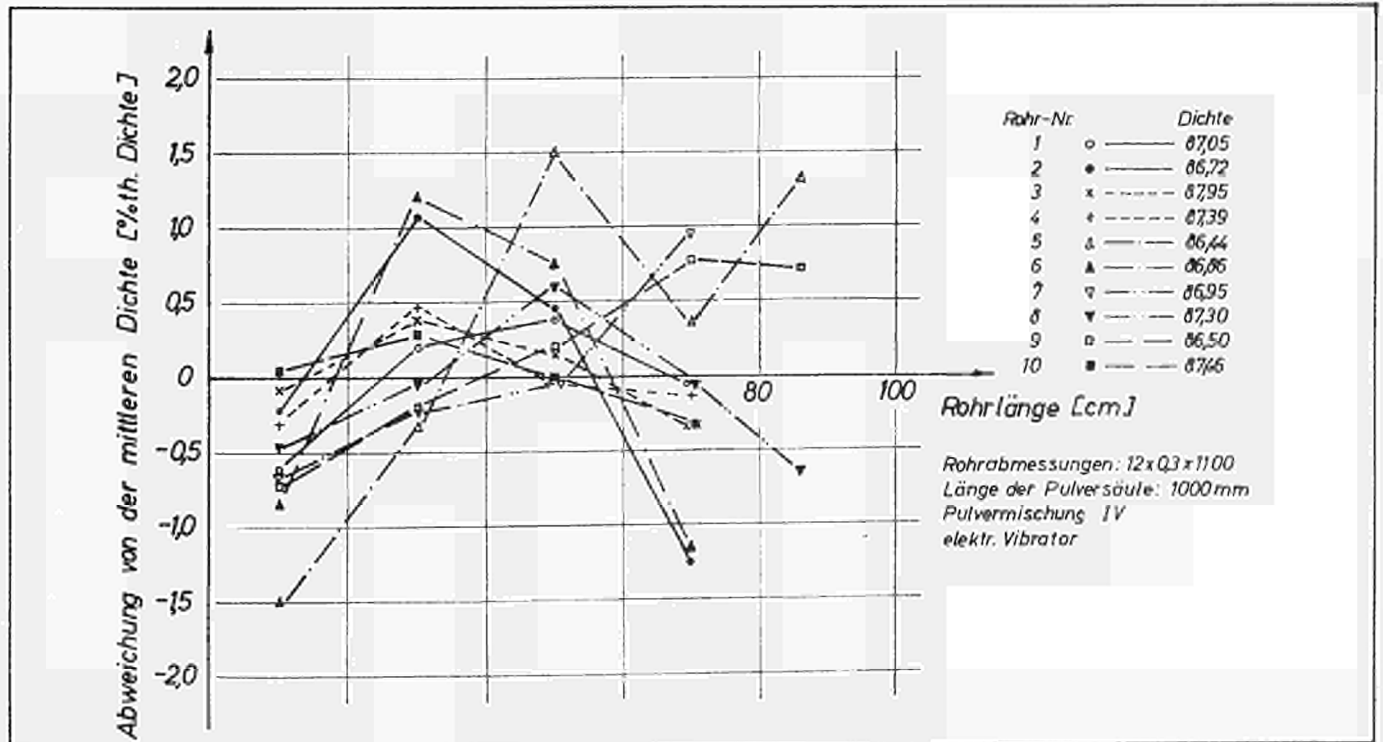


Abb. 23  $UO_2$ -Dichteschwankungen in vibrierten Edelstahlrohren  
 (Die Meßpunkte sind Mittelwerte von 20 cm Pulversäule)

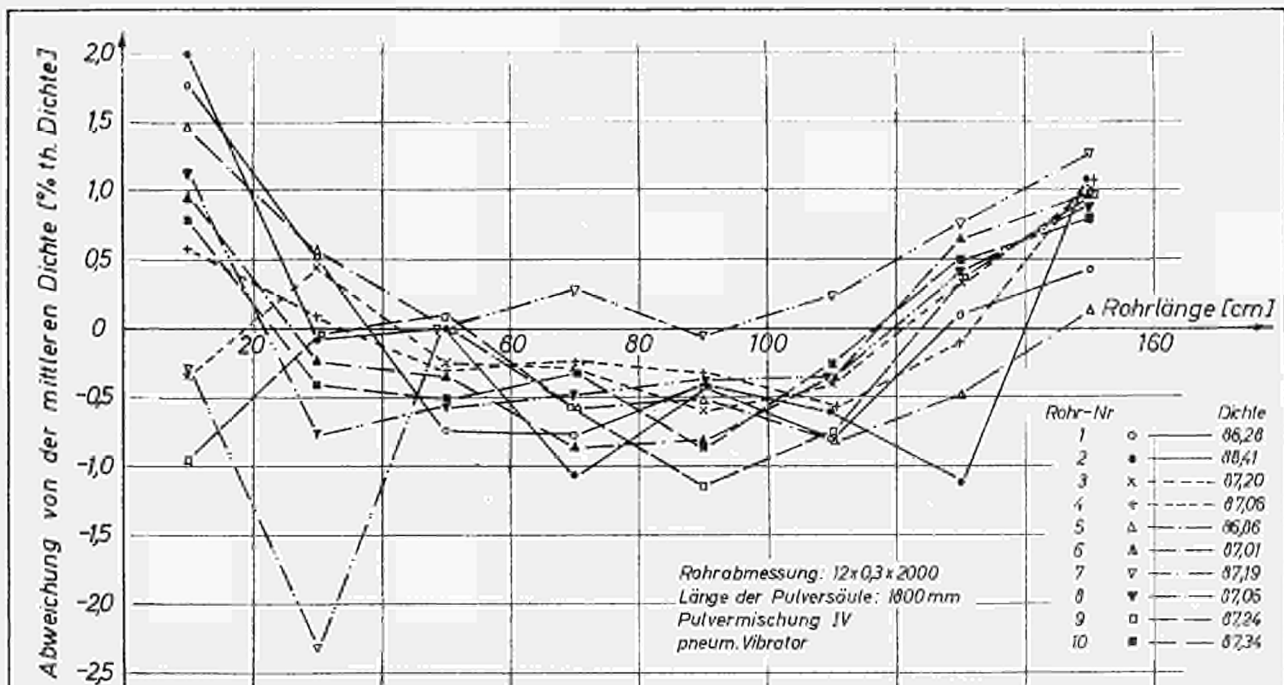


Abb. 24  $UO_2$ -Dichteschwankungen in vibrierten Edelstahlrohren  
 (Die Meßpunkte sind Mittelwerte von 20 cm Pulversäule)

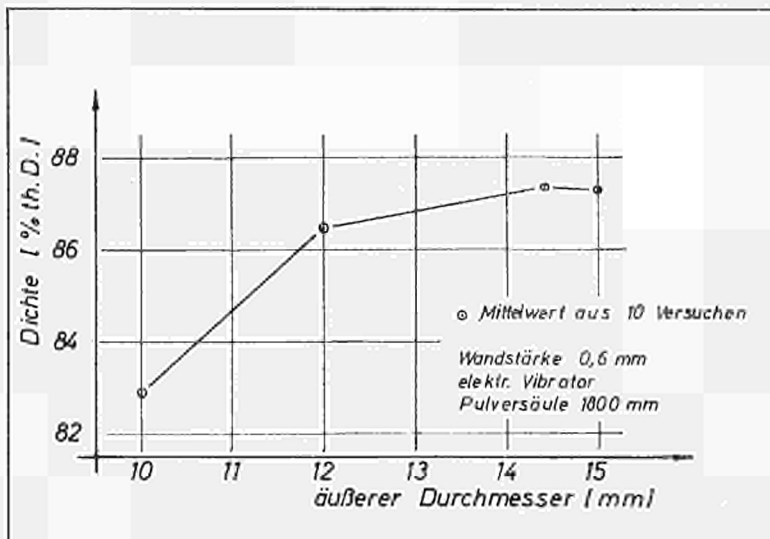


Abb. 25 Vibrationsdichte in Zircaloy-2 Rohren in Abhängigkeit vom Rohrdurchmesser

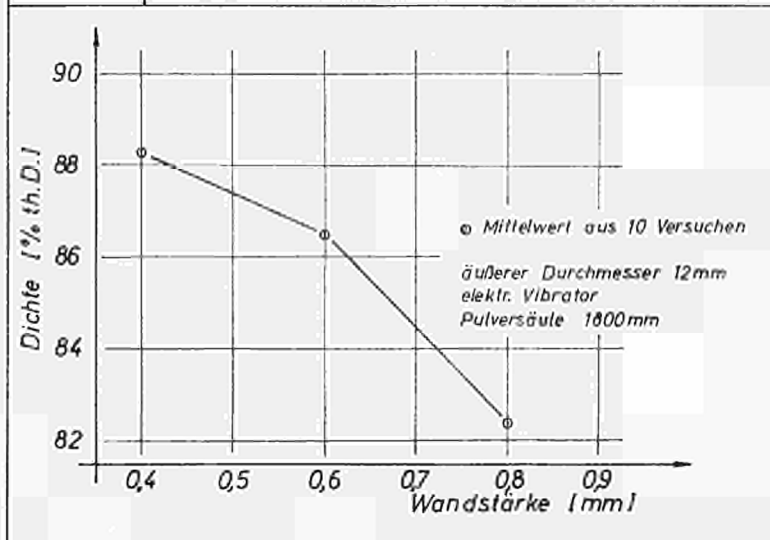


Abb. 26 Vibrationsdichte in Zircaloy-2 Rohren in Abhängigkeit von der Hüllrohrwandstärke

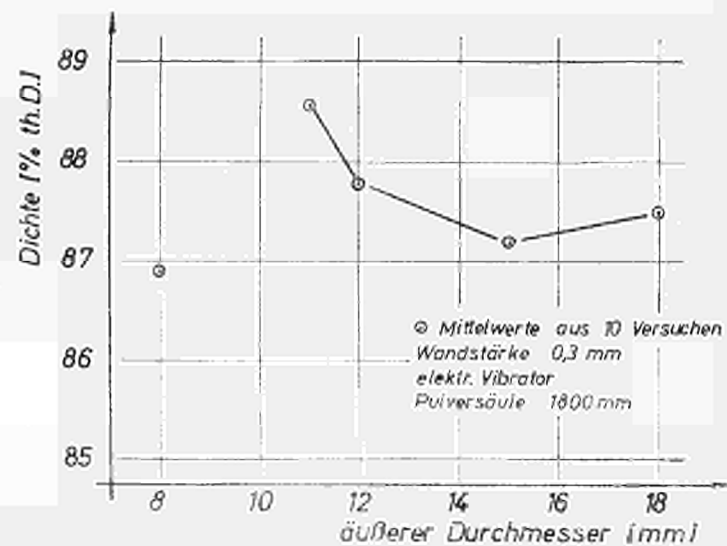


Abb. 27 Vibrationsdichte in Edelstahlrohren in Abhängigkeit vom Rohrdurchmesser

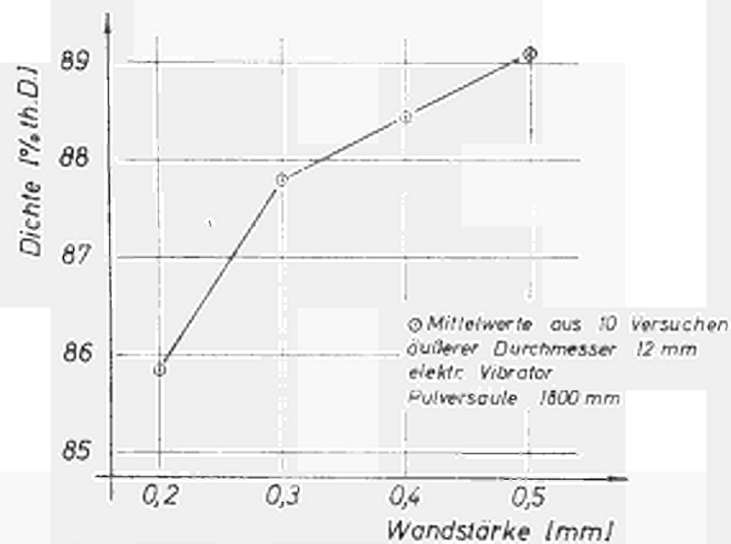


Abb. 28 Vibrationsdichte in Edelstahlrohren in Abhängigkeit von der Hüllrohrwandstärke

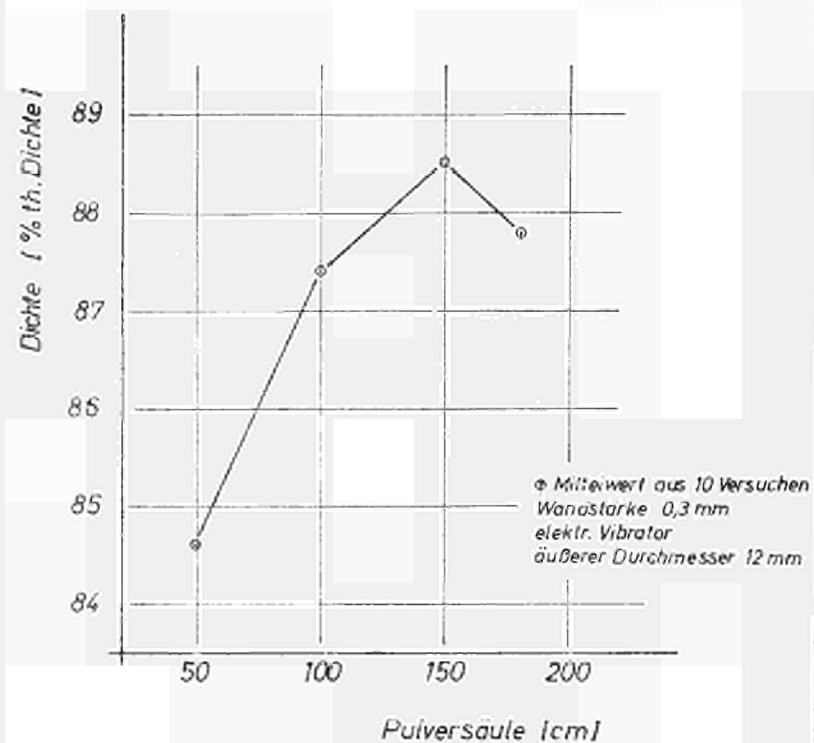
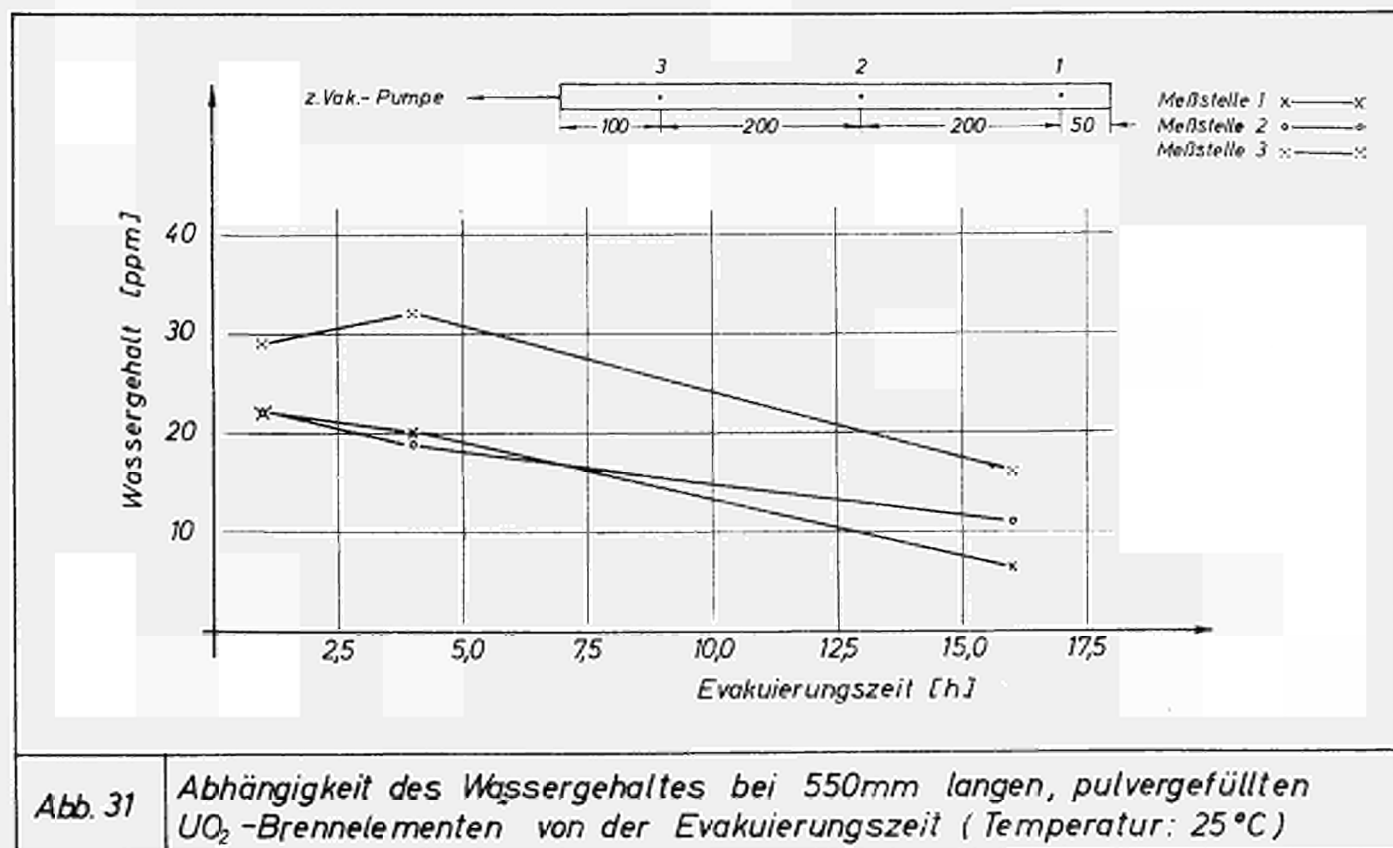
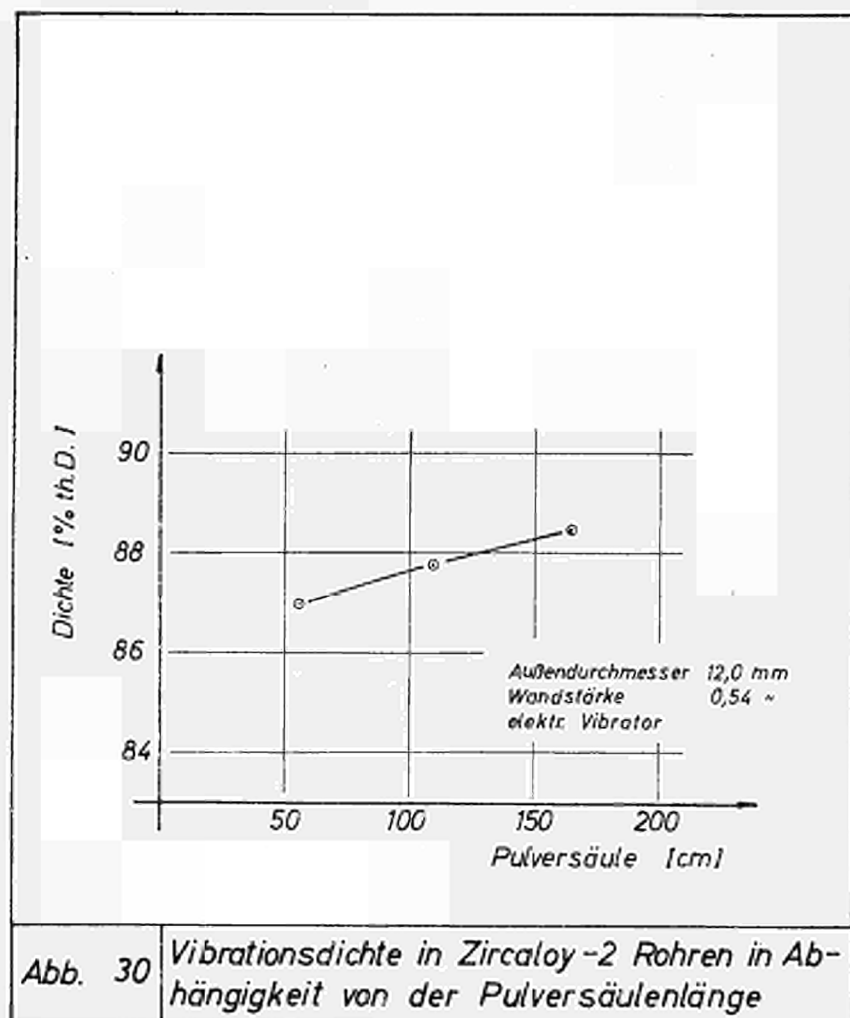


Abb. 29 Vibrationsdichte in Edelstahlrohren in Abhängigkeit von der Pulversäulenlänge





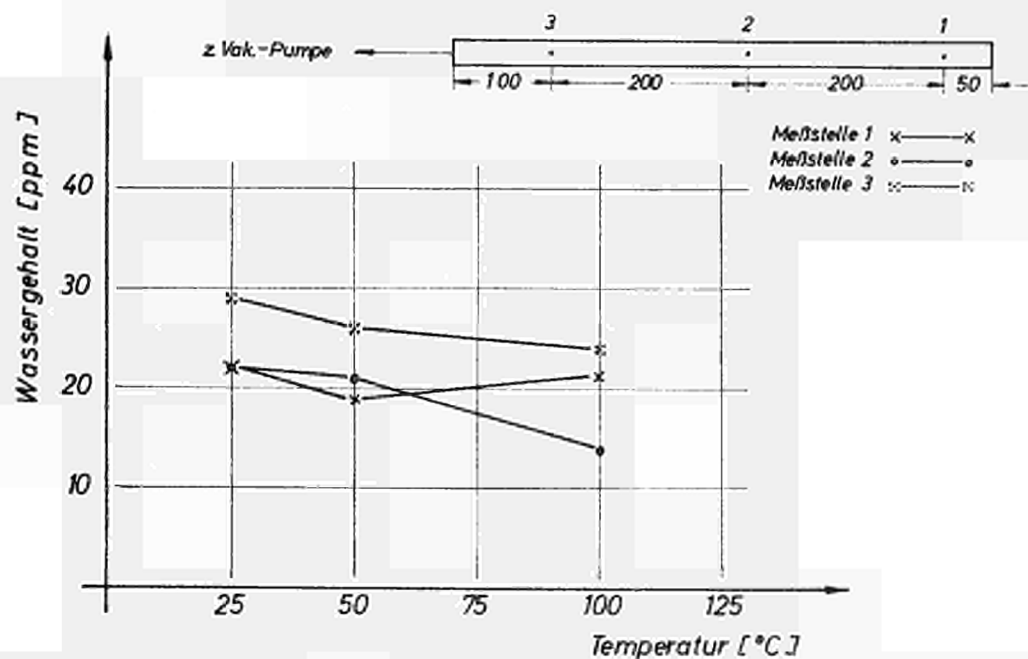


Abb. 32

Abhängigkeit des Wassergehaltes bei 550mm langen, pulvergefüllten  $UO_2$  Brennelementen von der Temperatur (Evakuierungszeit 1h)

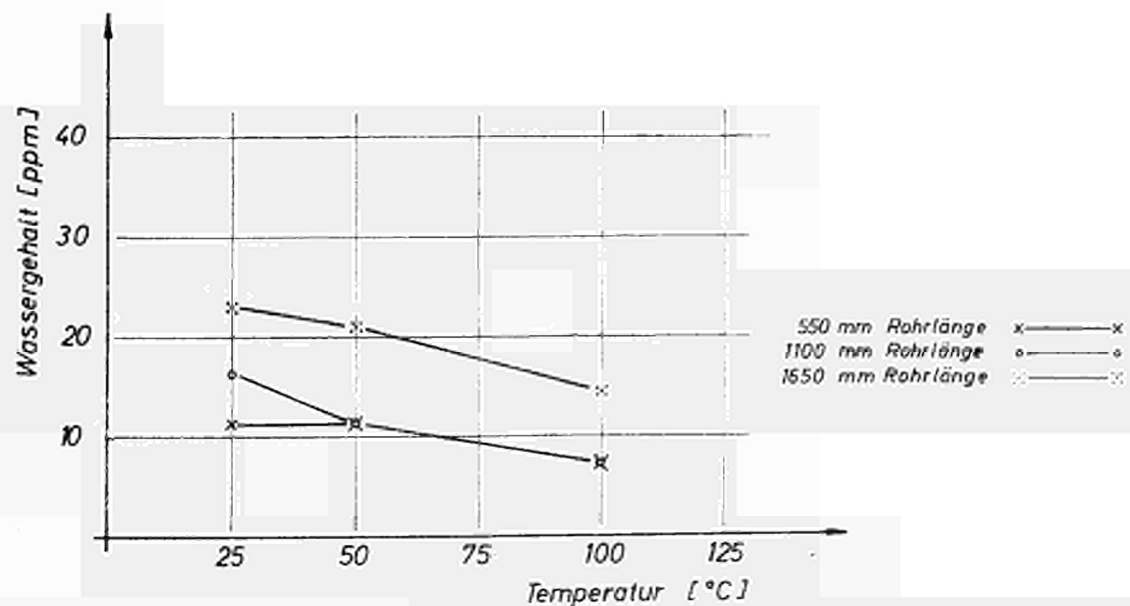


Abb. 33

Abhängigkeit des Wassergehaltes von der Temperatur bei verschiedenen langen, pulvergefüllten  $UO_2$ -Brennelementen (16h Evakuierungszeit)

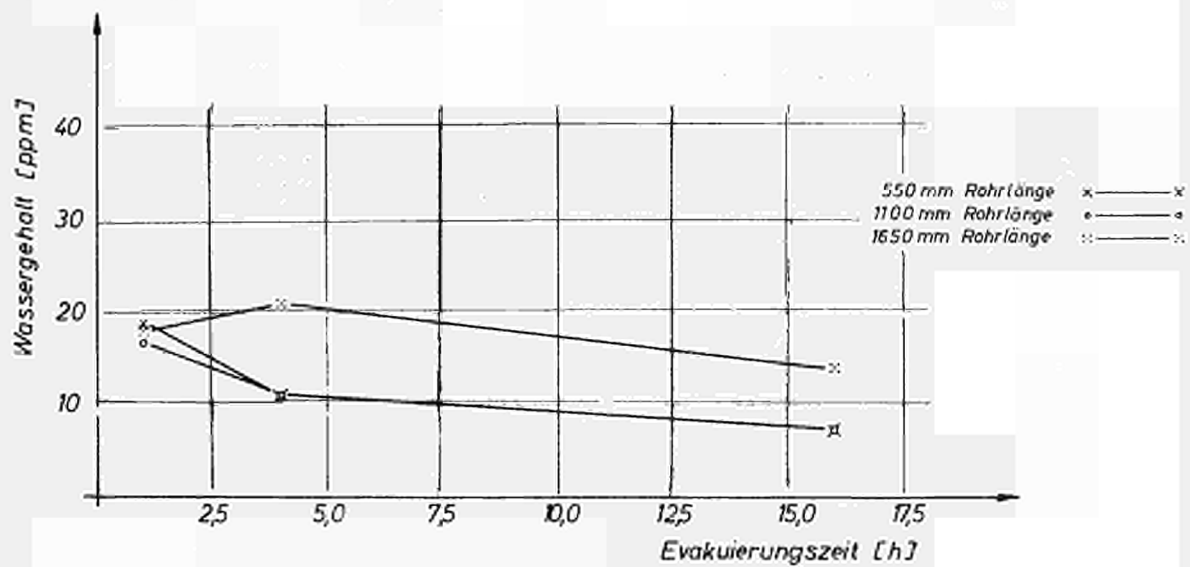


Abb. 34 Abhängigkeit des Wassergehaltes von der Evakuierungszeit bei verschiedenen langen, pulvergefüllten  $UO_2$ -Brennelementen (Temperatur:  $100^\circ C$ )

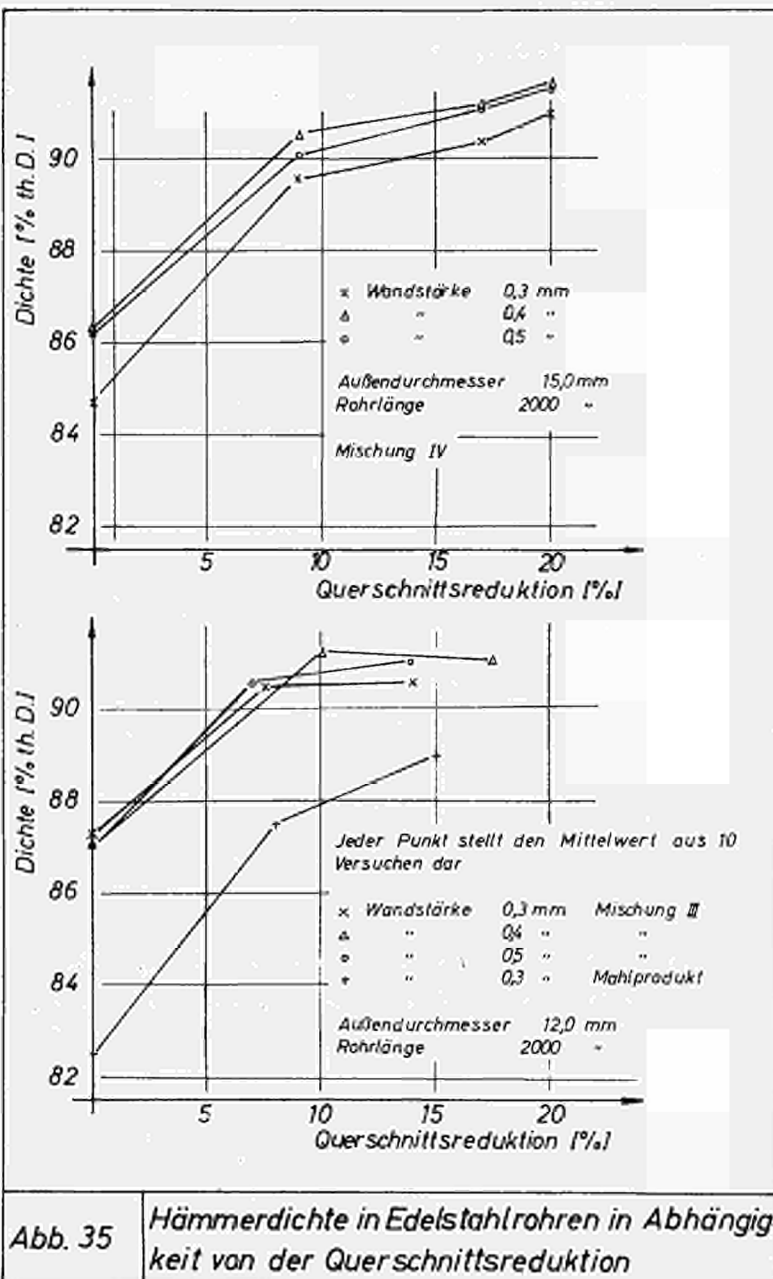


Abb. 35 Hämmerdichte in Edelstahlrohren in Abhängigkeit von der Querschnittsreduktion

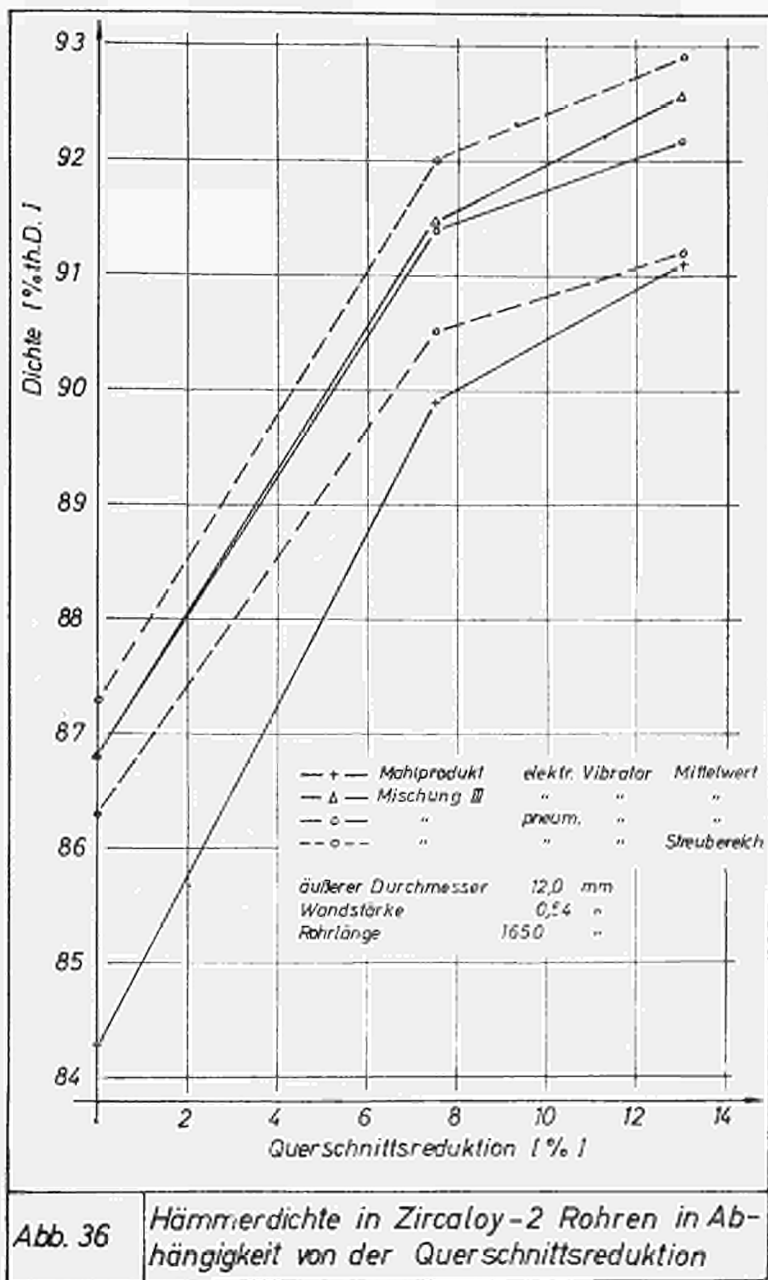


Abb. 36 Hämmerdichte in Zircaloy-2 Röhren in Abhängigkeit von der Querschnittsreduktion

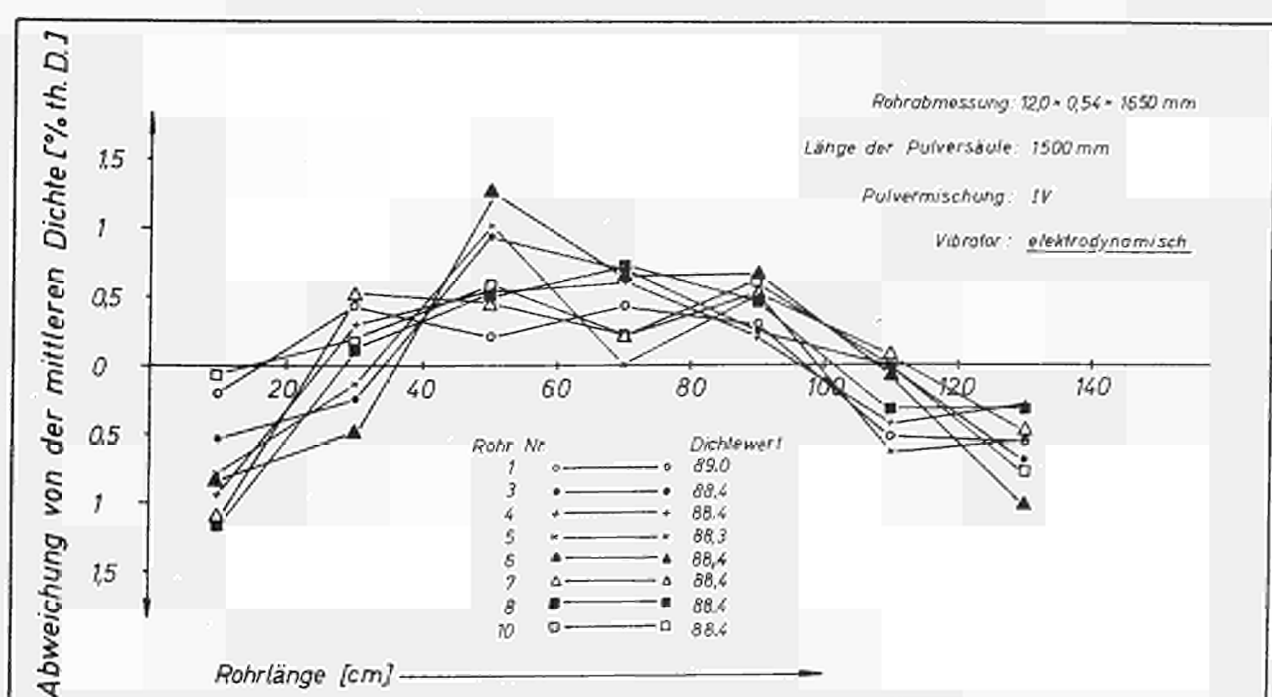


Abb. 37  $UO_2$ -Dichteschwankungen in vibrierten Zircaloy-2-Röhren (Die Meßpunkte sind Mittelwerte von 20 cm Pulversäule)

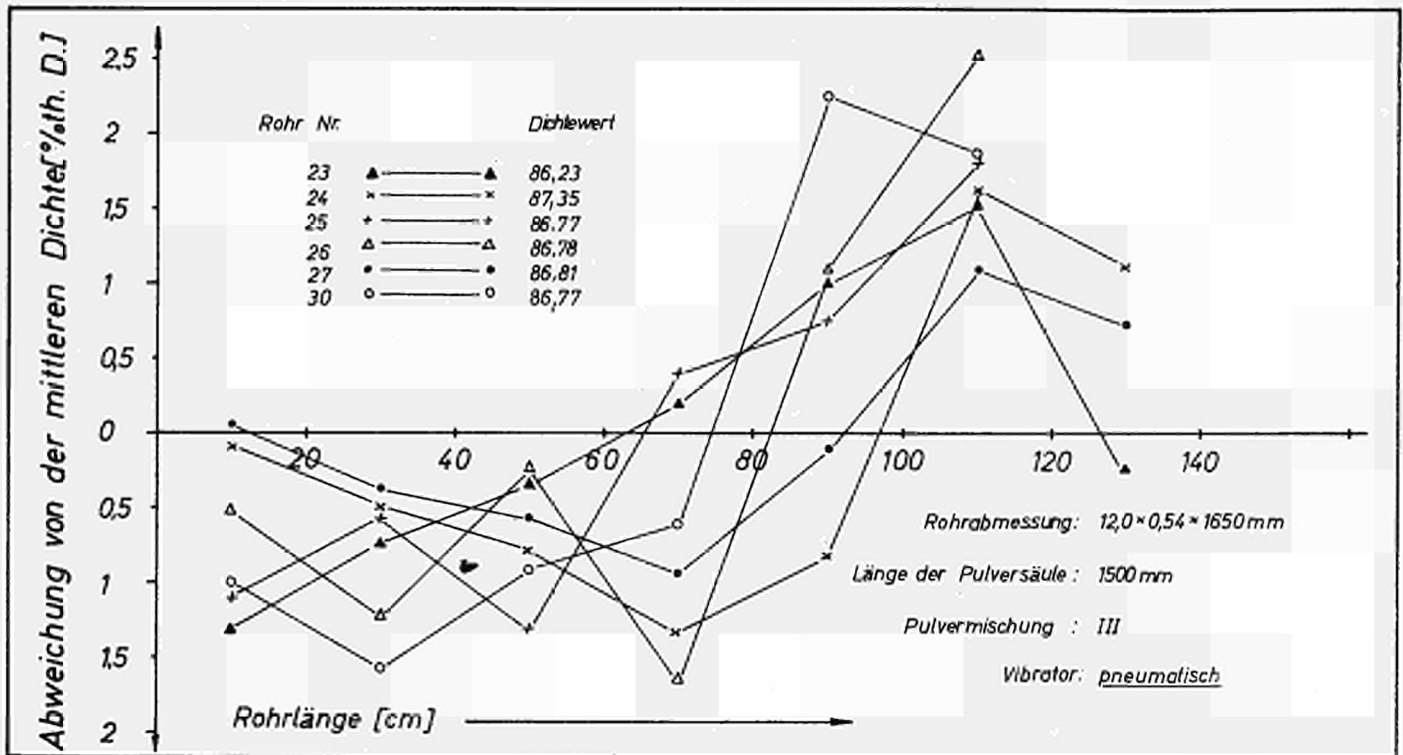


Abb. 38  $UO_2$ -Dichteschwankungen in vibrierten Zircaloy 2-Rohren  
(Die Meßpunkte sind Mittelwerte von 20 cm Pulversäule)

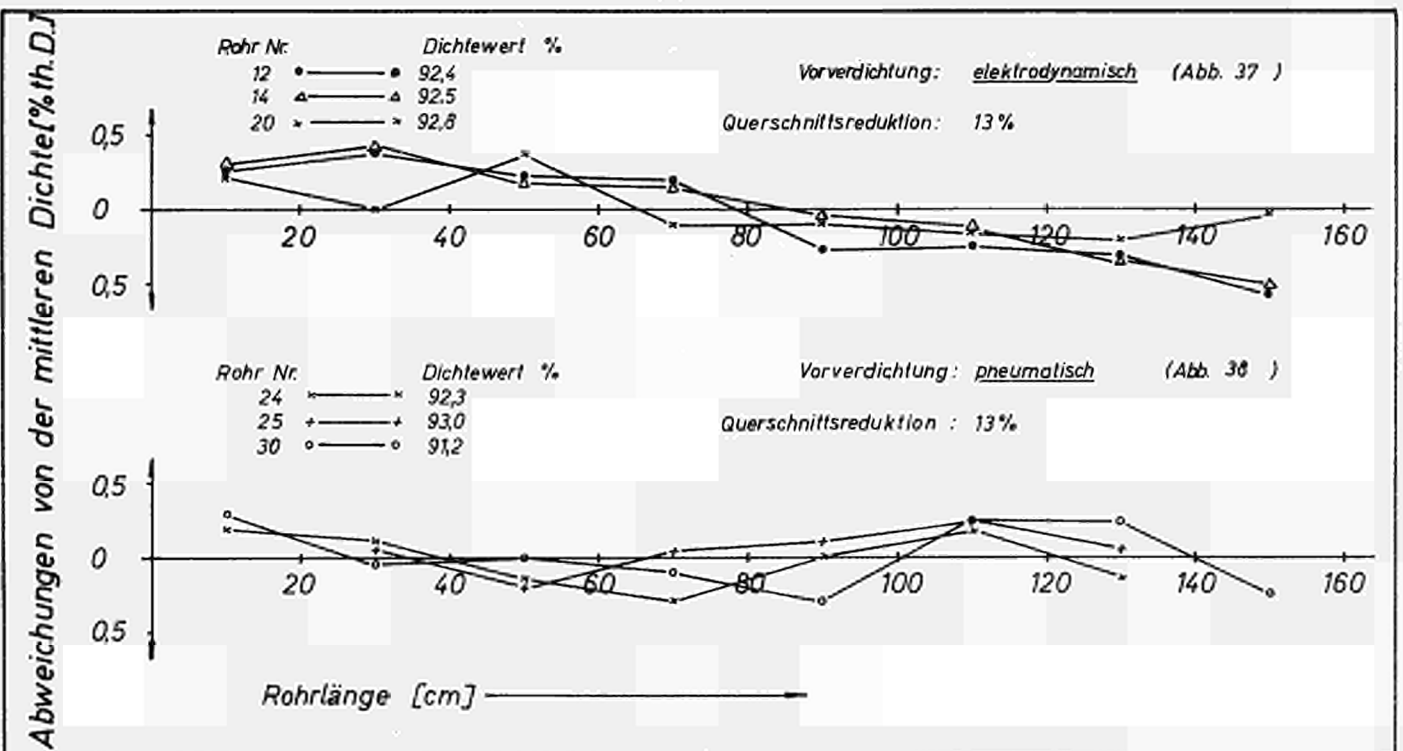


Abb. 39  $UO_2$ -Dichteschwankungen in gehämmerten Zircaloy 2-Rohren  
(Die Meßpunkte sind Mittelwerte von 20 cm Pulversäule)

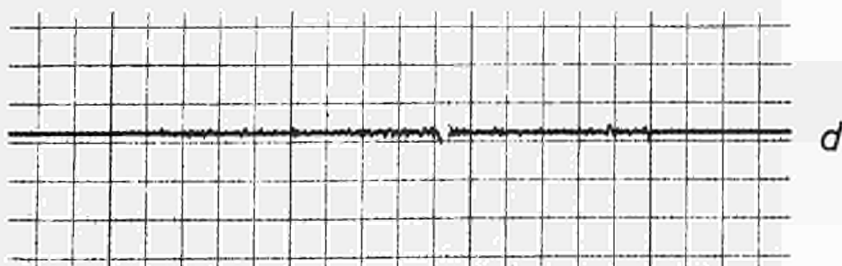
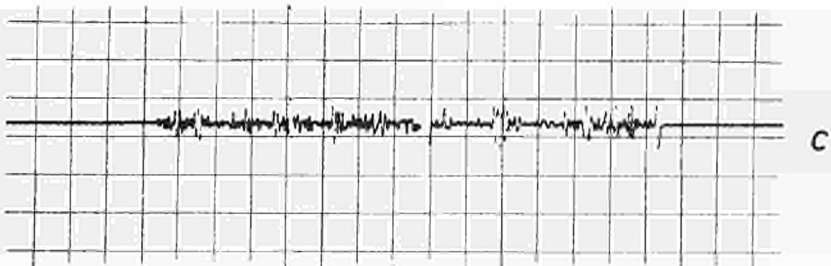
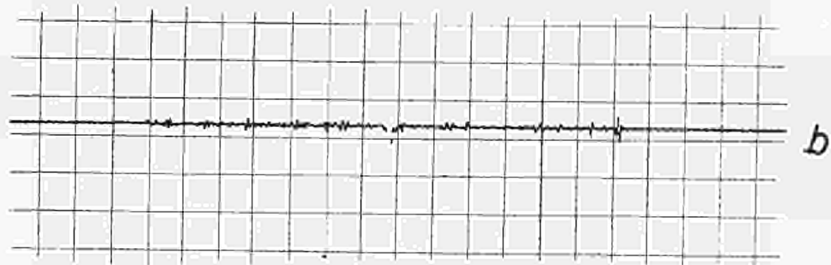
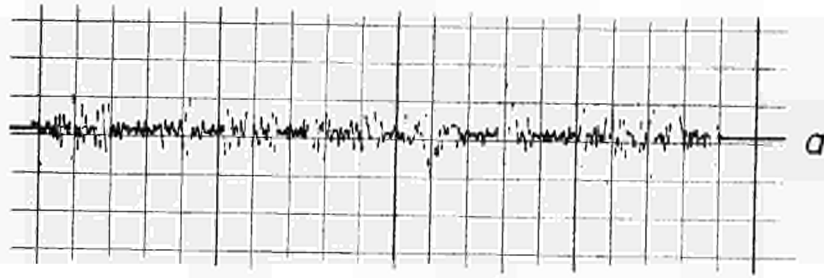


Abb. 40 Wirbelstromprüfung, Rohr 153, leer

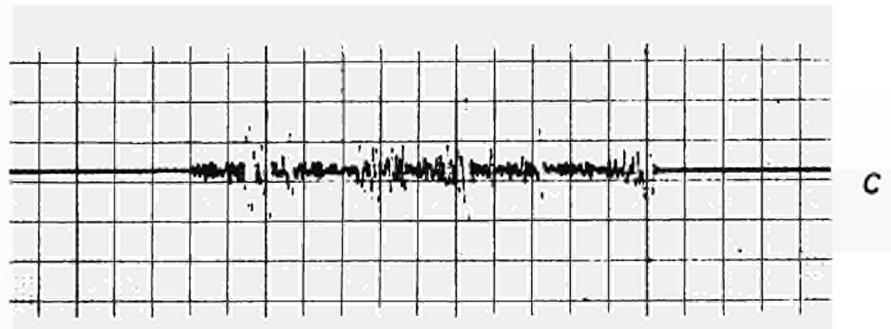
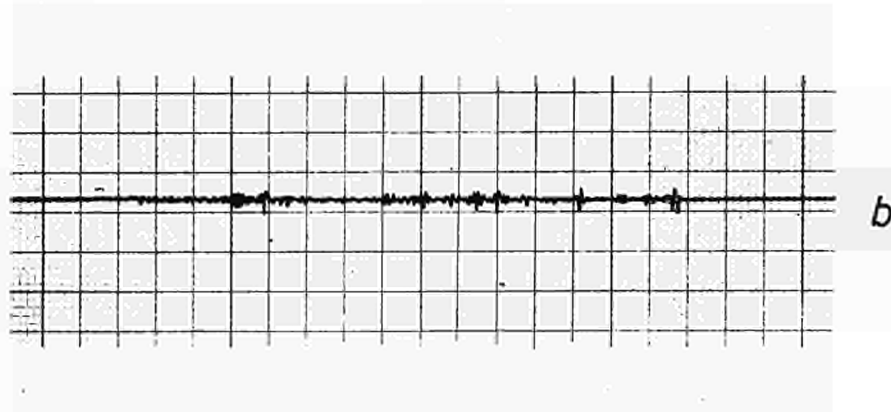
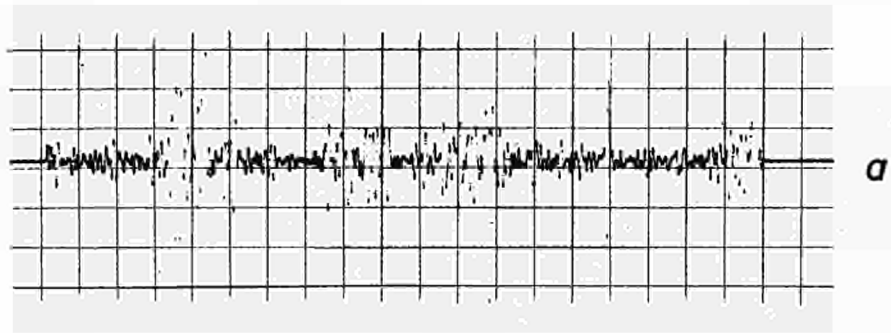


Abb. 41 Wirbelstromprüfung, Rohr 154, leer

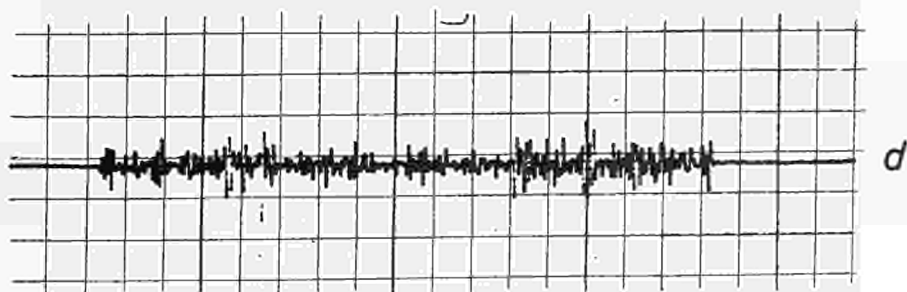
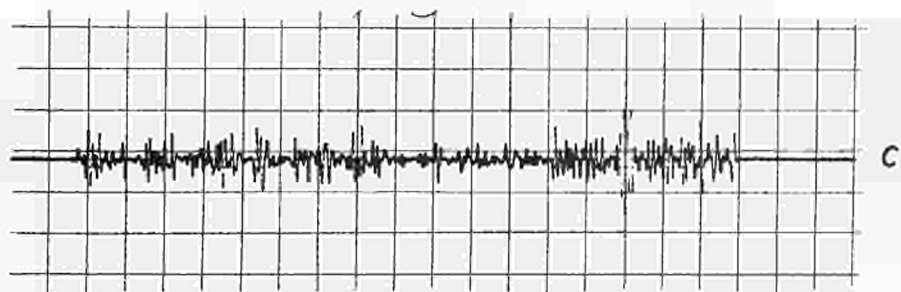
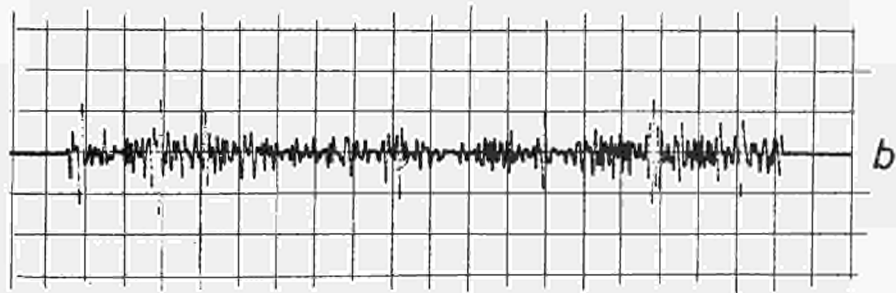
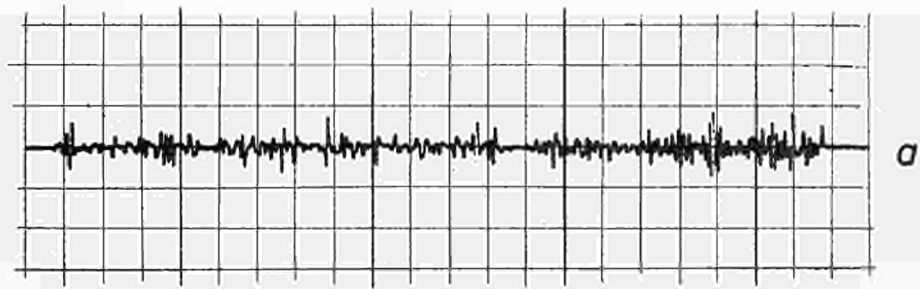


Abb. 42

Wirbelstromprüfung, Rohr 153,  
gefüllt und gehämmert

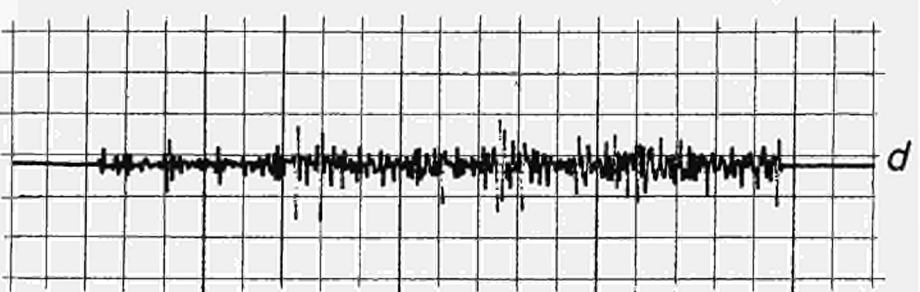
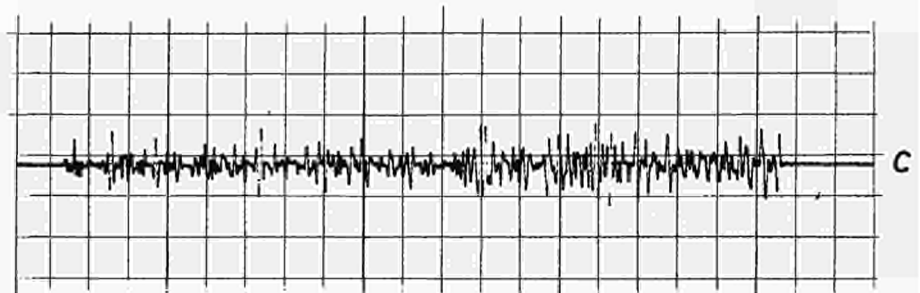
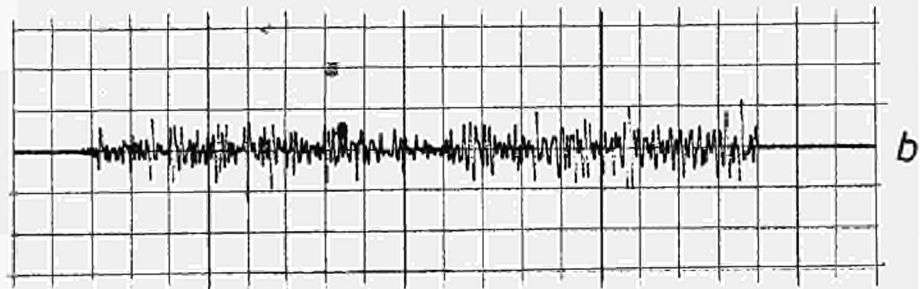
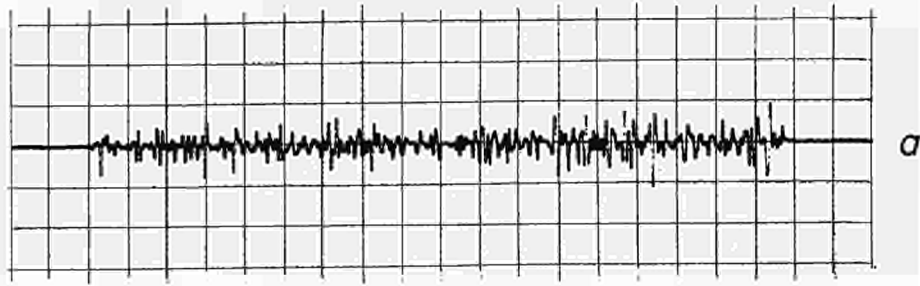


Abb. 43

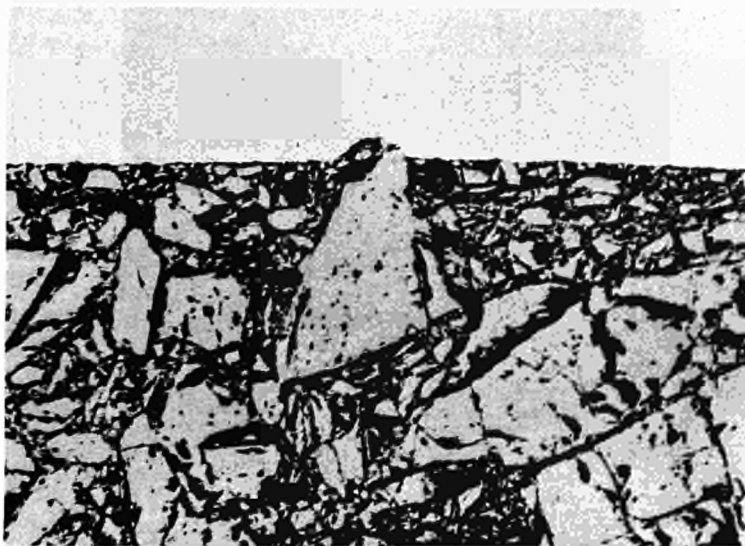
Wirbelstromprüfung, Rohr 154,  
gefüllt und gehämmert





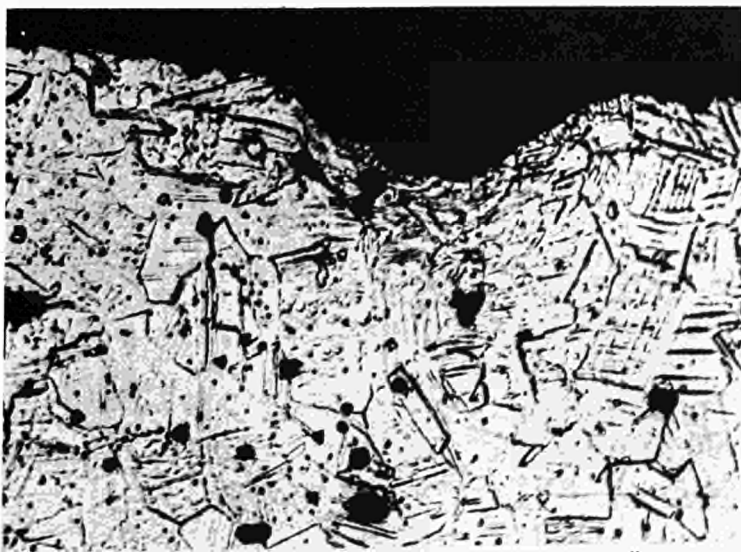
a

80x, ungeätzt



b

260x, ungeätzt

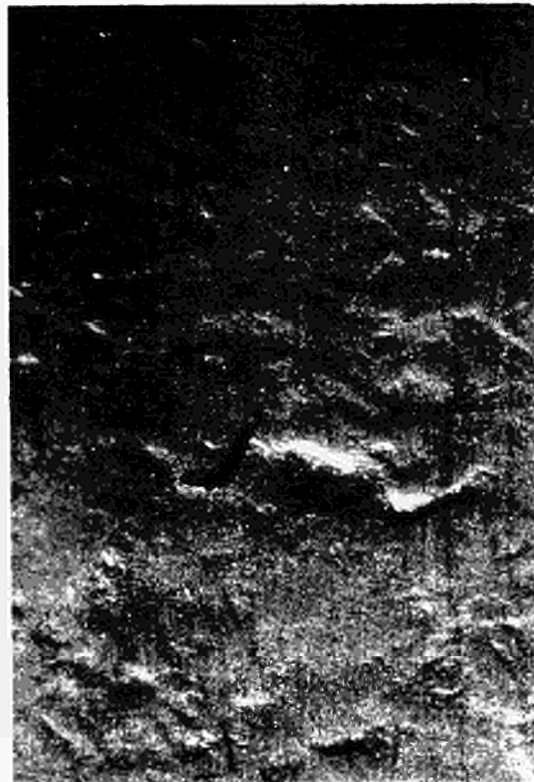


c wie b

990x, geätzt

Abb. 44

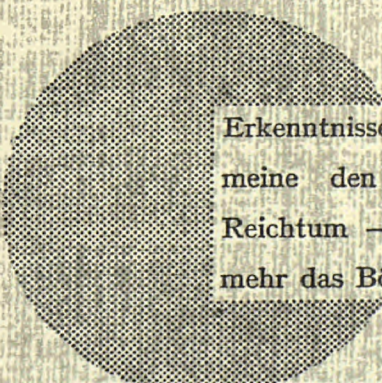
Hüllrohrschäden bei gehämmerten Rohren  
aus austenitischem Stahl



12x

Abb. 45

*Fehler auf der Innenfläche von Rohr 151  
nach dem Hämmern*



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 Rückseite des Umschlags angegebenen Preisen erhältlich (bei schriftlicher Bestellung bitte die EUR-Nummer und den Titel, die beide auf dem Umschlag jedes Berichts stehen, deutlich angeben).

### PRESSES ACADEMIQUES EUROPEENNES

98, chaussée de Charleroi, Bruxelles 6

Banque de la Société Générale - Bruxelles  
compte N° 964.558,

Banque Belgo Congolaise - Bruxelles  
compte N° 2444.141,

Compte chèque postal - Bruxelles - N° 167.37,

Belgian American Bank and Trust Company - New York  
compte No. 22.186,

Lloyds Bank (Europe) Ltd. - 10 Moorgate, London E.C.2,  
Postcheckkonto Köln - Nr. 160.861.

### OFFICE CENTRAL DE VENTE DES PUBLICATIONS DES COMMUNAUTES EUROPEENNES

2, place de Metz, Luxembourg (Compte chèque postal N° 191-90)

#### BELGIQUE — BELGIË

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

#### DEUTSCHLAND

BUNDESANZEIGER  
Postfach - Köln 1

#### FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE  
DES PUBLICATIONS DES  
COMMUNAUTES EUROPEENNES  
26, rue Desaix - Paris 15<sup>e</sup>

#### GRAND-DUCHE DE LUXEMBOURG

OFFICE CENTRAL DE VENTE  
DES PUBLICATIONS DES  
COMMUNAUTES EUROPEENNES  
9, rue Goethe - Luxembourg

#### ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO  
Piazza G. Verdi, 10 - Roma

#### NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ  
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

EURATOM — C.I.D.  
51-53, rue Belliard  
Bruxelles (Belgique)