

EUR 353.d

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT – EURATOM

**HERSTELLUNG
VON RUNDGEHÄMMERTEN UO_2 -BRENNELEMENTEN**

von

F. HOFMANN, H. KROLL, B. LIEBMANN

1963



Abkommen über Zusammenarbeit Euratom - Vereinigte Staaten

**EURAEC-BERICHT NR. 522 ABGEFASST VON DER
NUKLEAR-CHEMIE UND -METALLURGIE GMBH (NUKEM) WOLFGANG BEI HANAU
IM RAHMEN DES EURATOM-VERTRAGES NR. 011-60-5 RDD**

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

1. 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;
2. 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 zum Preise von 40,— bfrs. verkauft. Bestellungen sind zu richten an: PRESSES ACADEMIQUES EUROPEENNES - 98, chaussée de Charleroi, Brüssel 6.

Die Zahlung ist zu leisten durch Überweisung

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

als Bezug ist anzugeben: „EUR 353.d - Herstellung von rundgehämmerten UO₂-Brennelementen.“

Gedruckt von Snoeck-Ducaju & Zoon, Gent
Brüssel, September 1963.

EUR 353.d

HERSTELLUNG VON RUNDGEHÄMMERTEN UO₂-BRENNNELEMENTEN
von F. HOFMANN, H. KROLL, B. LIEBMANN

Europäische Atomgemeinschaft - EURATOM
Abkommen über Zusammenarbeit Euratom/Vereinigte Staaten
EURAEK-Bericht Nr. 522 abgefaßt von der Nuklear-Chemie
und -Metallurgie GmbH (NUKEM), Wolfgang bei Hanau,
im Rahmen des Euratom-Vertrages Nr. 011-60-5 RDD
Brüssel, September 1963 - Seiten 16 - Abb. 10

Im Berichtszeitraum wurde eine größere Anzahl von UO₂-Pulvern verschiedener Darstellungsart auf ihre Hämmeereigenschaften geprüft. Wie zu erwarten war, eignen sich Pulver mit kleiner BET-Oberfläche besonders gut zur Herstellung rundgehämmerter Brennelemente mit hoher Dichte. Im wesentlichen wurden vier Pulvergruppen, die sich bezüglich ihrer Herstellungsart grundsätzlich voneinander unterscheiden, für die Versuche benutzt:

1. durch Schmelzen und Mahlen hergestellte Pulver;
2. aus Ammoniumdiuranat hergestellte Pulver;

EUR 353.d

FABRICATION OF SWAGED UO₂ FUEL ELEMENTS
by F. HOFMANN, H. KROLL, B. LIEBMANN

European Atomic Energy Community - EURATOM
Euratom/United States Agreement for Cooperation
EURAEK Report No. 522 established by Nuklear-Chemie
und -Metallurgie GmbH (NUKEM), Wolfgang bei Hanau (Germany)
under the Euratom Contract No. 011-60-5 RDD
Brussels, September 1963 - Pages 16 - Fig. 10

In the period from April 1, 1960 to June 30, 1961 the suitability for swaging of various kinds of UO₂-powders was tested. As to be expected powders with a small BET-surface are most favourable for reaching high swaged densities. Four types of powders have been prepared by different methods.

1. Fused uranium dioxide, prepared by a continuous fusing process.
2. Powders, prepared by high temperature treatment of ADU.
3. Powders, made from uranium peroxide.

EUR 353.d

FABRICATION OF SWAGED UO₂ FUEL ELEMENTS
by F. HOFMANN, H. KROLL, B. LIEBMANN

European Atomic Energy Community - EURATOM
Euratom/United States Agreement for Cooperation
EURAEK Report No. 522 established by Nuklear-Chemie
und -Metallurgie GmbH (NUKEM), Wolfgang bei Hanau (Germany)
under the Euratom Contract No. 011-60-5 RDD
Brussels, September 1963 - Pages 16 - Fig. 10

In the period from April 1, 1960 to June 30, 1961 the suitability for swaging of various kinds of UO₂-powders was tested. As to be expected powders with a small BET-surface are most favourable for reaching high swaged densities. Four types of powders have been prepared by different methods.

1. Fused uranium dioxide, prepared by a continuous fusing process.
2. Powders, prepared by high temperature treatment of ADU.
3. Powders, made from uranium peroxide.

EUR 353.d

FABRICATION OF SWAGED UO₂ FUEL ELEMENTS
by F. HOFMANN, H. KROLL, B. LIEBMANN

European Atomic Energy Community - EURATOM
Euratom/United States Agreement for Cooperation
EURAEK Report No. 522 established by Nuklear-Chemie
und -Metallurgie GmbH (NUKEM), Wolfgang bei Hanau (Germany)
under the Euratom Contract No. 011-60-5 RDD
Brussels, September 1963 - Pages 16 - Fig. 10

In the period from April 1, 1960 to June 30, 1961 the suitability for swaging of various kinds of UO₂-powders was tested. As to be expected powders with a small BET-surface are most favourable for reaching high swaged densities. Four types of powders have been prepared by different methods.

1. Fused uranium dioxide, prepared by a continuous fusing process.
2. Powders, prepared by high temperature treatment of ADU.
3. Powders, made from uranium peroxide.

3. durch spezielle Fällungsmethoden hergestellte Pulver;
4. Pulver, die durch Tränken mit Uranylнитratlösung und anschließendes Kalzinieren nachbehandelt wurden.

Bei der Verarbeitung wurden die Pulver zunächst in V2A-Rohren verschiedener Abmessungen vorverdichtet. Anschließend wurden die Rohre mit Argon geflutet und an beiden Enden durch Einschweißen von Stopfen luftdicht verschlossen.

Zur Weiterverarbeitung durch Rundhämmern wurde eine Zweibacken-Hämmermaschine benutzt. Zum Erreichen maximaler Dichten erwies es sich als zweckmäßig, die Rohre zunächst kalt um 20-30 % im Querschnitt zu reduzieren und dann eine Reduktion von 20-30 % bei 750° C anzuschließen. Auf diese Art konnten Dichten von ca. 85-94 % der th.D. erzielt werden.

Besonders gute Ergebnisse wurden mit durch spezielle Fällungsmethoden und mit durch Schmelzen und Mahlen hergestellten Pulvern erzielt.

Die Dichte des gehämmerten UO_2 -Pulvers wurde durch Gewichts- und Volumensmessung bestimmt. Außerdem wurde mit dem Aufbau eines γ -Absorptionsgerätes zur Dichtebestimmung begonnen. Die Stöchiometrie der Pulver wurde laufend kontrolliert und Porositätsmessungen ausgeführt. Der häufigste Porendurchmesser in dem durch Hämmern verdichteten UO_2 lag in der Größenordnung von $0,1 \mu$.

4. UO_2 -powders, which were improved by soaking with a solution of uranyl nitrate and subsequent calcination.

Fused powders and powders made from uranium peroxide reached the highest densities.

For the fabrication of the fuel elements the powders were tamped into stainless steel tubes of 18 mm o.d. The tubes were evacuated, filled with Argon and sealed by welding the end closures. A two die machine was used for swaging. A cold reduction of 20 to 30 % in cross section, followed by a hot reduction at 750° C of 20 to 30 % in cross section yielded the highest UO_2 -densities. With this method densities between 85-94 % TD have been reached.

The density of the swaged UO_2 was determined by measuring weight and volume. Construction of equipment for determining the UO_2 -density and the uniformity of density along the rod by gamma absorption has been started. The O/U-ratio of the swaged powders has been measured and the pore structure has been studied by means of mercury porosimetry. The mean pore diameter in the swaged UO_2 was in the range of 1μ .

4. UO_2 -powders, which were improved by soaking with a solution of uranyl nitrate and subsequent calcination.

Fused powders and powders made from uranium peroxide reached the highest densities.

For the fabrication of the fuel elements the powders were tamped into stainless steel tubes of 18 mm o.d. The tubes were evacuated, filled with Argon and sealed by welding the end closures. A two die machine was used for swaging. A cold reduction of 20 to 30 % in cross section, followed by a hot reduction at 750° C of 20 to 30 % in cross section yielded the highest UO_2 -densities. With this method densities between 85-94 % TD have been reached.

The density of the swaged UO_2 was determined by measuring weight and volume. Construction of equipment for determining the UO_2 -density and the uniformity of density along the rod by gamma absorption has been started. The O/U-ratio of the swaged powders has been measured and the pore structure has been studied by means of mercury porosimetry. The mean pore diameter in the swaged UO_2 was in the range of 1μ .

4. UO_2 -powders, which were improved by soaking with a solution of uranyl nitrate and subsequent calcination.

Fused powders and powders made from uranium peroxide reached the highest densities.

For the fabrication of the fuel elements the powders were tamped into stainless steel tubes of 18 mm o.d. The tubes were evacuated, filled with Argon and sealed by welding the end closures. A two die machine was used for swaging. A cold reduction of 20 to 30 % in cross section, followed by a hot reduction at 750° C of 20 to 30 % in cross section yielded the highest UO_2 -densities. With this method densities between 85-94 % TD have been reached.

The density of the swaged UO_2 was determined by measuring weight and volume. Construction of equipment for determining the UO_2 -density and the uniformity of density along the rod by gamma absorption has been started. The O/U-ratio of the swaged powders has been measured and the pore structure has been studied by means of mercury porosimetry. The mean pore diameter in the swaged UO_2 was in the range of 1μ .

EUR 353.d

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT – EURATOM

**HERSTELLUNG
VON RUNDGEHÄMMERTEN UO_2 -BRENNELEMENTEN**

von

F. HOFMANN, H. KROLL, B. LIEBMANN

1963



Abkommen über Zusammenarbeit Euratom - Vereinigte Staaten
EURAEK-BERICHT NR. 522 ABGEFASST VON DER
NUKLEAR-CHEMIE UND -METALLURGIE GMBH (NUKEM) WOLFGANG BEI HANAU
IM RAHMEN DES EURATOM-VERTRAGES NR. 011-60-5 RDD

I N H A L T S V E R Z E I C H N I S

	Seite
1 — PULVERENTWICKLUNG	6
1.1 — Durch Schmelzen und Mahlen hergestellte Pulver (G-Pulver) . .	6
1.2 — Aus Ammoniumdiuranat hergestellte Pulver (A-Pulver)	6
1.3 — Durch spezielle Fällungsmethoden hergestellte Pulver (S-Pulver)	6
1.4 — Pulver, die durch Tränken mit Uranyl-nitratlösung und anschließendes Kalzinieren nachbehandelt werden (N-Pulver) . . .	7
2 — HÜLLENMATERIAL	7
3 — VORVERDICHTUNG	8
4 — RUNDHÄMMERVERSUCHE	9
4.1 — Rundhämmerversuche an G-Pulvern	14
4.2 — Rundhämmerversuche an S-Pulvern	14
4.3 — Rundhämmerversuche an anderen Pulvern	14
5 — MESSUNGEN AN GEHÄMMERTEN PULVERN	14
5.1 — Dichtemessung	14
5.2 — Porenvolumenbestimmung	14
5.3 — Stöchiometriebestimmung	17

TABELLEN

	Seite
Tab. 1 — Charakteristische Daten von G-Pulvern	15
Tab. 2 — Charakteristische Daten von S-, A-, AT- und N-Pulvern	16

A B B I L D U N G E N

	Seite
Abb. 1 — Argonarc-Schweißvorrichtung zum Schweißen von Rohren	7
Abb. 2 — Stampfanlage	8
Abb. 3 — Zweibacken-Rundhämmermaschine	9
Abb. 4 — Die Dichte eines kaltgehämmerten Rohres (G-Pulver) als Funktion der Querschnittsreduktion	10
Abb. 5 — Die Dichte von UO_2 als Funktion der Reduktion bei verschiedenen Hämmer-temperaturen (N-Pulver)	11
Abb. 6 — Die Dichte von verschiedenen UO_2 -Pulvern in kaltgehämmerten Rohren, als Funktion der Querschnittsreduktion	12
Abb. 7 — Arbeitsgänge beim Rundhämmern	13
Abb. 8 — Porengrößenverteilung in zwei kalt gehämmerten Rohren	18
Abb. 9 — Porengrößenverteilung in einem N-Pulver für drei verschiedene Kaltreduktionen und Hämmerdichten	19
Abb. 10 — Porengrößenverteilung für drei bei verschiedenen Temperaturen um 53 % reduzierte Rohre mit N-Pulver	20

HERSTELLUNG VON RUNDGEHÄMMERTEN UO_2 -BRENNELEMENTEN

ZUSAMMENFASSUNG

Im Berichtszeitraum wurde eine größere Anzahl von UO_2 -Pulvern verschiedener Darstellungsart auf ihre Hämmergeigenschaften geprüft. Wie zu erwarten war, eignen sich Pulver mit kleiner BET-Oberfläche besonders gut zur Herstellung rundgehämmerter Brennelemente mit hoher Dichte. Im wesentlichen wurden vier Pulvergruppen, die sich bezüglich ihrer Herstellungsart grundsätzlich voneinander unterscheiden, für die Versuche benutzt:

1. durch Schmelzen und Mahlen hergestellte Pulver;
2. aus Ammoniumdiuranat hergestellte Pulver;
3. durch spezielle Fällungsmethoden hergestellte Pulver;
4. Pulver, die durch Tränken mit Uranylнитratlösung und anschließendes Kalzinieren nachbehandelt wurden.

Bei der Verarbeitung wurden die Pulver zunächst in V2A-Rohren verschiedener Abmessungen vorverdichtet. Anschließend wurden die Rohre mit Argon geflutet und an beiden Enden durch Einschweißen von Stopfen luftdicht verschlossen.

Zur Weiterverarbeitung durch Rundhämmern wurde eine Zweibacken-Hämmermaschine benutzt. Zum Erreichen maximaler Dichten erwies es sich als zweckmäßig, die Rohre zunächst kalt um 20-30 % im Querschnitt zu reduzieren und dann eine Reduktion von 20-30 % bei 750° C anzuschließen. Auf diese Art konnten Dichten von ca. 85-94 % der th.D. erzielt werden.

Besonders gute Ergebnisse wurden mit durch spezielle Fällungsmethoden und mit durch Schmelzen und Mahlen hergestellten Pulvern erzielt.

Die Dichte des gehämmerten UO_2 -Pulvers wurde durch Gewichts- und Volumenmessung bestimmt. Außerdem wurde mit dem Aufbau eines γ -Absorptionsgerätes zur Dichtebestimmung begonnen. Die Stöchiometrie der Pulver wurde laufend kontrolliert und Porositätsmessungen ausgeführt. Der häufigste Porendurchmesser in dem durch Hämmern verdichteten UO_2 lag in der Größenordnung von 0,1 μ .

SUMMARY

In the period from April 1, 1960 to June 30, 1961 the suitability for swaging of various kinds of UO_2 -powders was tested. As to be expected powders with a small BET-surface are most favourable for reaching high swaged densities. Four types of powders have been prepared by different methods.

1. Fused uranium dioxide, prepared by a continuous fusing process.
2. Powders, prepared by high temperature treatment of ADU.
3. Powders, made from uranium peroxide.
4. UO_2 -powders, which were improved by soaking with a solution of uranyl nitrate and subsequent calcination.

Fused powders and powders made from uranium peroxide reached the highest densities.

For the fabrication of the fuel elements the powders were tamped into stainless steel tubes of 18 mm o.d. The tubes were evacuated, filled with Argon and sealed by welding the endlosures. A two die machine was used for swaging. A cold reduction of 20 to 30 % in cross section, followed by a hot reduction at 750° C of 20 to 30 % in cross section yielded the highest UO_2 -densities. With this method densities between 85-94 % TD have been reached.

The density of the swaged UO_2 was determined by measuring weight and volume. Construction of equipment for determining the UO_2 -density and the uniformity of density along the rod by gamma absorption has been started. The O/U-ratio of the swaged powders has been measured and the pore structure has been studied by means of mercury porosimetry. The mean pore diameter in the swaged UO_2 was in the range of 1 μ .

1 — Pulverentwicklung

Urandioxydpulver sind im allgemeinen nur dann durch Vibration, Stampfen und kaltes Rundhämmern zu einem hohen Prozentsatz ihrer th.D. zu verdichten, wenn sie

kompakte Kornform,
geeignete Korngrößenverteilung und
ausreichenden Grobkornanteil

besitzen. Daher wurde im Berichtszeitraum versucht, Pulver mit diesen Eigenschaften zu finden; es wurde eine größere Anzahl von UO_2 -Pulvern verschiedener Darstellungsart getestet. Von den wichtigsten Pulvern wurden elektronenmikroskopische Aufnahmen hergestellt und Oberflächenbestimmungen (Blaine, BET) durchgeführt. Die Untersuchungen ergaben folgende für das Rundhämmerverfahren geeignete Pulver, die in vier Gruppen eingeteilt werden können:

1.1 — *Durch Schmelzen und Mahlen hergestellte Pulver (G-Pulver)*

In einem kleinen Schmelzofen wurde UO_2 -Pulver erschmolzen und die bei der Erstarrung entstehenden Brocken anschließend vermahlen und gesiebt. Zur Abtrennung des anhaftenden ungeschmolzenen Pulvers wurde ein Luftstrahlsieb verwendet.

Da das auf diese Art gewonnene G-Pulver eine im Vergleich zu den übrigen untersuchten Pulvern besonders kleine Oberfläche besitzt, ist es für kaltes Rundhämmern besonders gut geeignet.

Der Sauerstoffgehalt lag im Bereich zwischen 1,99 und 2,01 Molprozent. Die beim Schmelzen durch Elektrodenabbrand entstehenden Wolframverunreinigungen konnten im Berichtszeitraum noch nicht unter 1000 ppm gedrückt werden.

In Tab. 1 sind charakteristische Daten über G-Pulver zusammengestellt.

1.2 — *Aus Ammoniumdiuranat hergestellte Pulver (A-Pulver)*

Ammoniumdiuranatgefällte Pulver ergaben nur dann befriedigende Dichten beim Rundhämmern, wenn sie bei Temperaturen oberhalb 900°C kalziniert und reduziert wurden. Durch nachträgliche, zweistündige Temperaturbehandlung bei 1500°C in H_2 -Atmosphäre ließ sich das A-Pulver verbessern. Dieses als AT-Pulver bezeichnete UO_2 hat eine gute Rieselfähigkeit, ein höheres Schüttgewicht und ist im Gegensatz zum A-Pulver ($\text{UO}_{2,04-2,05}$) genau stöchiometrisch. Tab. 2 gibt eine Zusammenstellung wesentlicher Eigenschaften dieser Pulver wieder.

1.3 — *Durch spezielle Fällungsmethoden hergestellte Pulver (S-Pulver)*

Mit den — aus einer Peroxydfällung hergestellten — S-Pulvern konnten bei hoher Querschnittsreduktion gute Hämmerdichten erzielt werden. Die ständige Kontrolle ergab ein O/U-Verhältnis zwischen 2,00 und 2,01. Schütt-, Stampf- und Hämmerdichten sind aus Tab. 2 ersichtlich.

1.4 — Pulver, die durch Tränken mit Uranyl-nitratlösung und anschließendes Kalzinieren nachbehandelt werden (N-Pulver)

Einige Eigenschaften dieses Pulvers sind in Tab. 2 wiedergegeben.

2 — Hüllenmaterial

Als Hüllenmaterial wurden V2A-Rohre mit einer Länge zwischen 0,2 und 1,0 m verwendet. Die Wandstärken der Rohre lagen zwischen 0,85 und 2,0 mm. Der Anfangs- Außendurchmesser betrug 18,0 mm. Die Enden wurden durch Einschweißen von V2A-Stopfen verschlossen. Abb. 1 zeigt die benutzte Argonarc-Schweißvorrichtung mit eingesenntem Rohr.

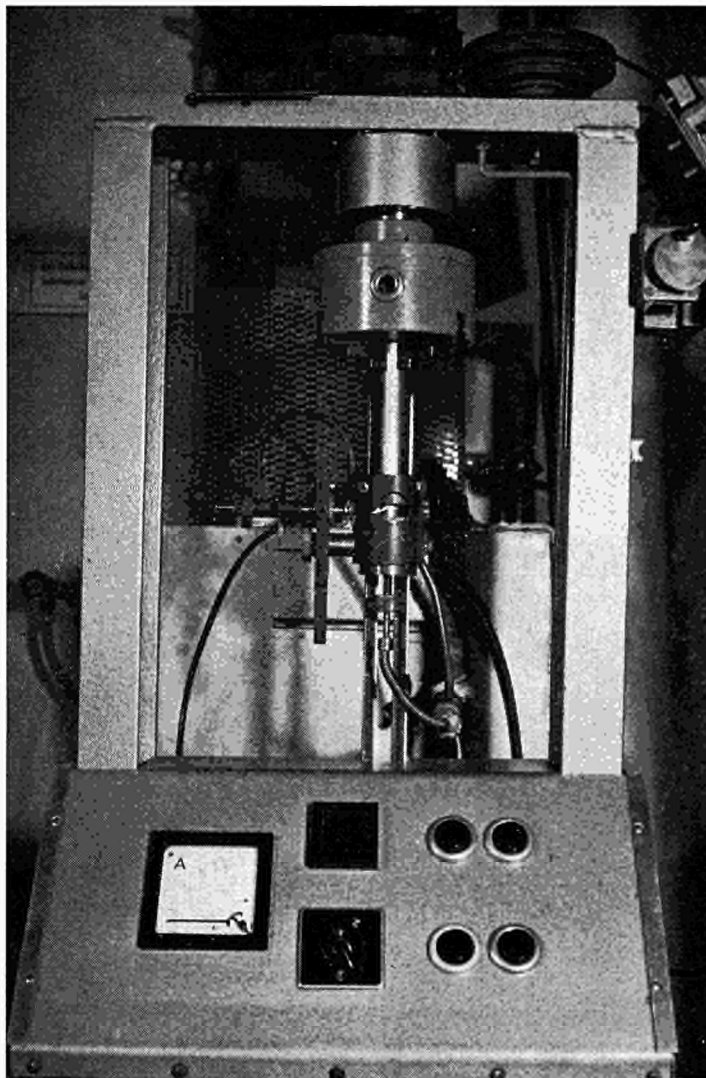


ABB. 1 — Argonarc-Schweißvorrichtung zum Schweißen von Rohren.

3 — Vorverdichtung

Um eine hohe Querschnittsreduktion des Rohres und damit eine zu hohe Beanspruchung des Hüllmaterials zu vermeiden, ist es zweckmäßig, das Pulver vor Beginn des Rundhämmerns schon möglichst weit vorzuverdichten. Bei gut vorverdichteten Pulvern ergeben sich bereits hohe Hämmerdichten bei relativ geringer Querschnittsreduktion.

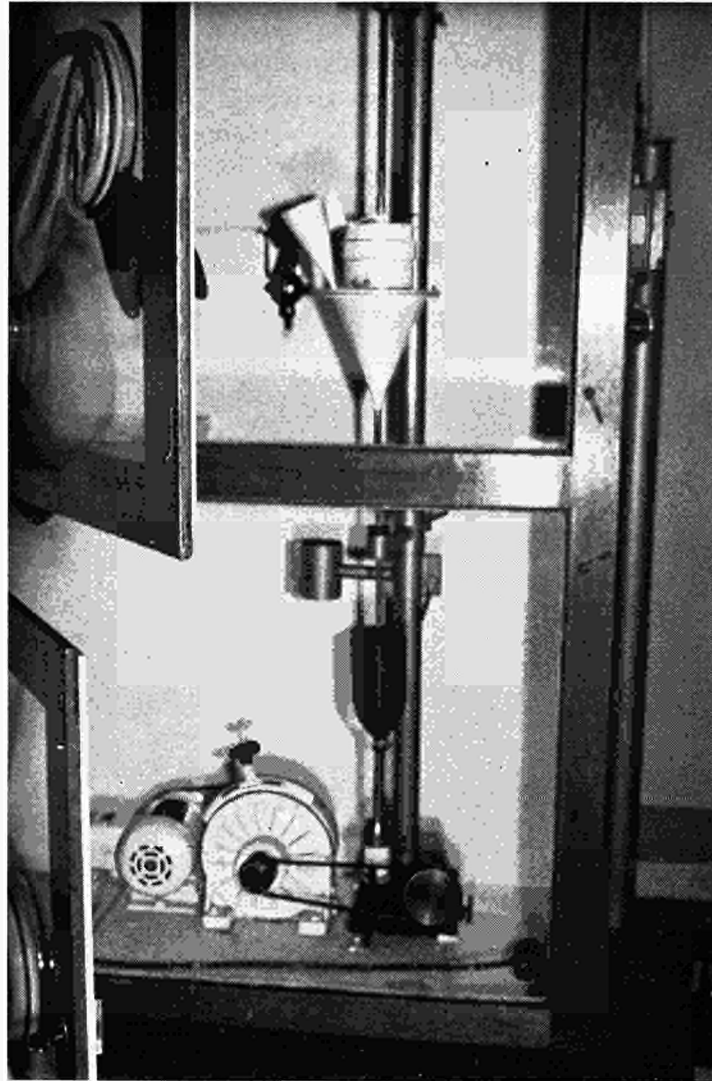


Abb. 2 — Stampfanlage.

Nachdem durch Einvibrieren des Pulvers mit einem elektromagnetischen Vibrator keine befriedigenden Ergebnisse erzielt werden konnten, wurde eine mechanische Stampfanlage (Abb. 2) entwickelt, die es ermöglicht, bei kürzerer Rüttelzeit (20 Minuten) wesentlich höhere Pulverdichten zu erreichen.

Um für die Anlage eine optimale Fahrweise zu erreichen, wurde die Abhängigkeit der Stampfdichte von der Rüttelfrequenz, dem Stampfkolbenhub und der Pulverdosie-

rung systematisch untersucht. Die Stampfdichte wächst bei konstantem Stampfkolbenhub und konstanter Rüttelfrequenz mit abnehmender Zugabemenge und zunehmendem Zugabeabstand. Niedrige Frequenzen zwischen 16 und 20 Hz erwiesen sich als besonders geeignet zum Erreichen einer hohen Dichte.

Nach orientierenden Versuchen mit Al_2O_3 -Pulver wurden die verschiedenen UO_2 -Pulver vorverdichtet. Dabei konnten mit G-Pulver Stampfdichten zwischen 70 und 78 % th.D. und mit S-Pulver um 60 % th.D. erreicht werden. Die Reproduzierbarkeit der Stampfdichten ist noch nicht befriedigend.

Die Stampfanlage gestattet die Vorverdichtung von UO_2 in Rohren bis zu 1 m Länge.

4 — Rundhämmerversuche

Für die Rundhämmerversuche wurde eine einfache Zweibacken-Hämmermaschine benutzt (Abb. 3). Während in der ersten Hälfte des Berichtszeitraumes vornehmlich Kalthämmerversuche (u.a. auch mit Al_2O_3) unternommen wurden, sind in der zweiten Hälfte auch vorgeheizte Rohre gehämmer worden. Zum Aufheizen der Rohre wurde ein widerstandsbeheizter Rohrofen benutzt, aus dem die Rohre mittels einer am Endverschluß angeschraubten Stange direkt durch die Hämmermaschine gezogen wurden. Der beheizte Raum des Ofens ist durch ein gasdichtes Rohr mit der Hämmermaschine verbunden. Da-

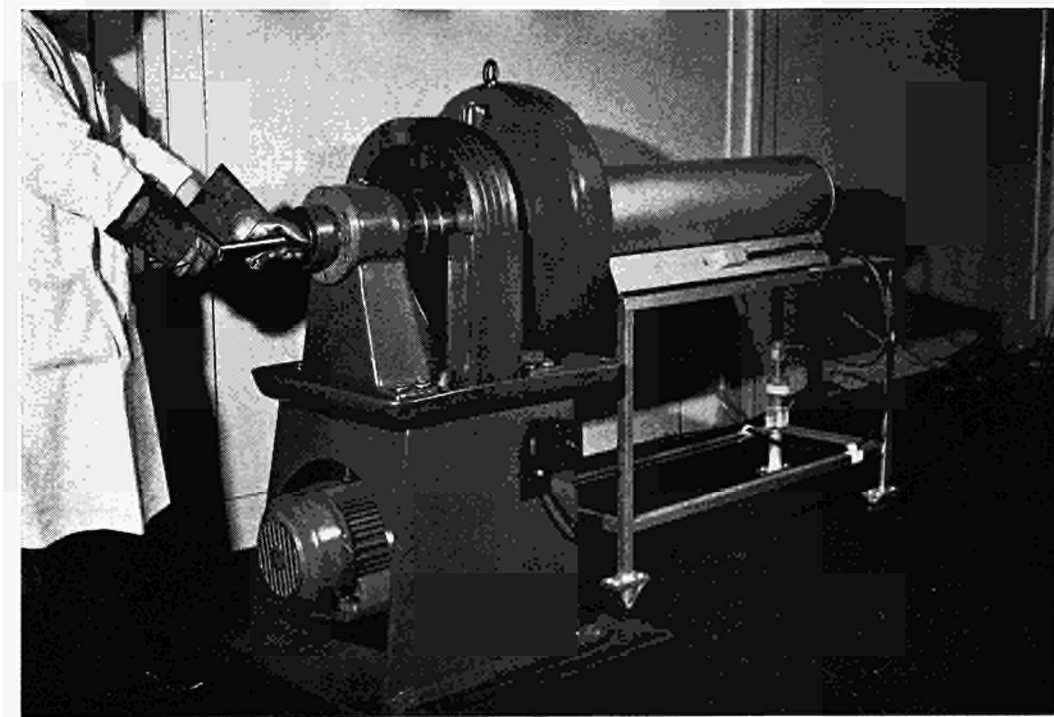
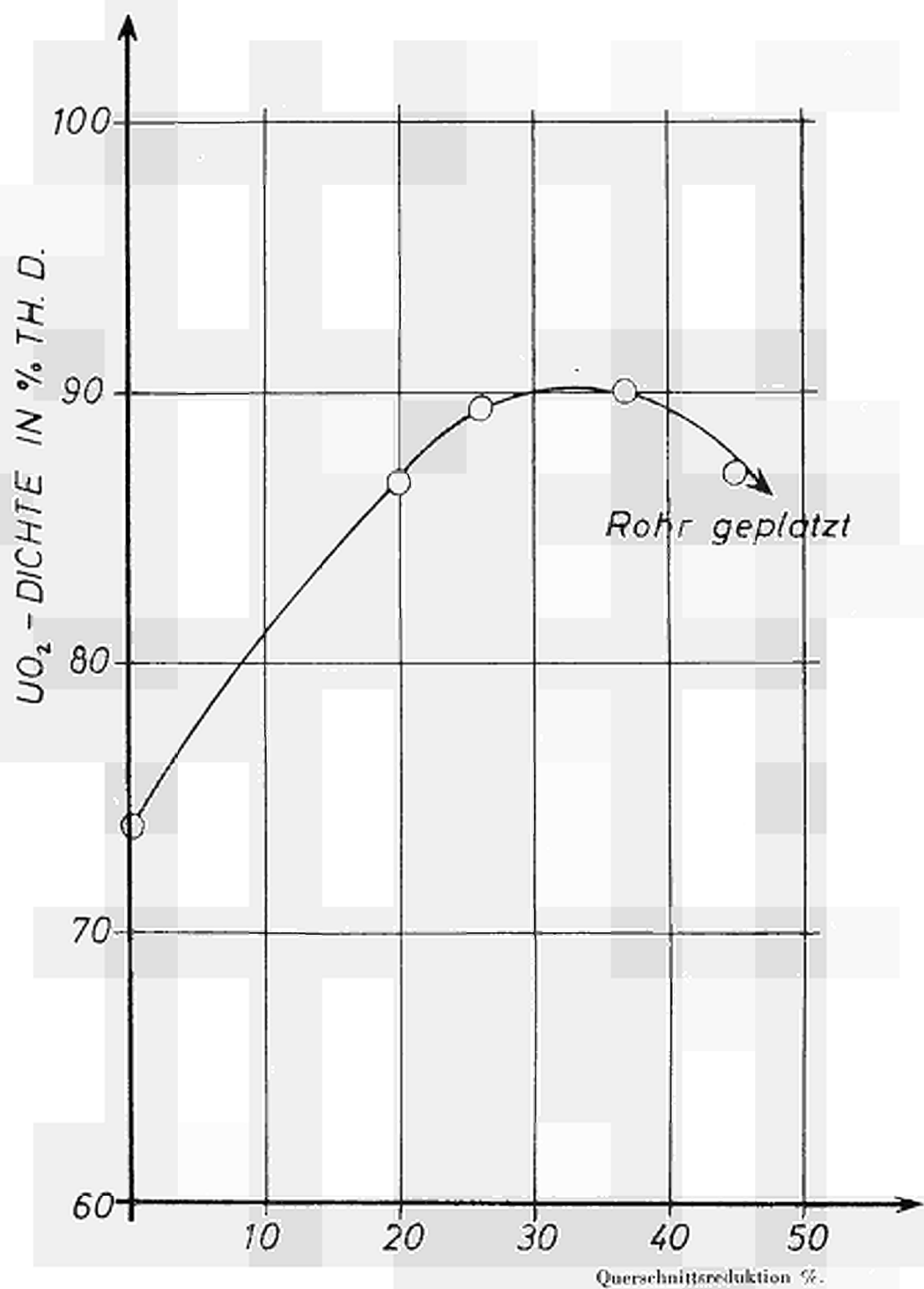
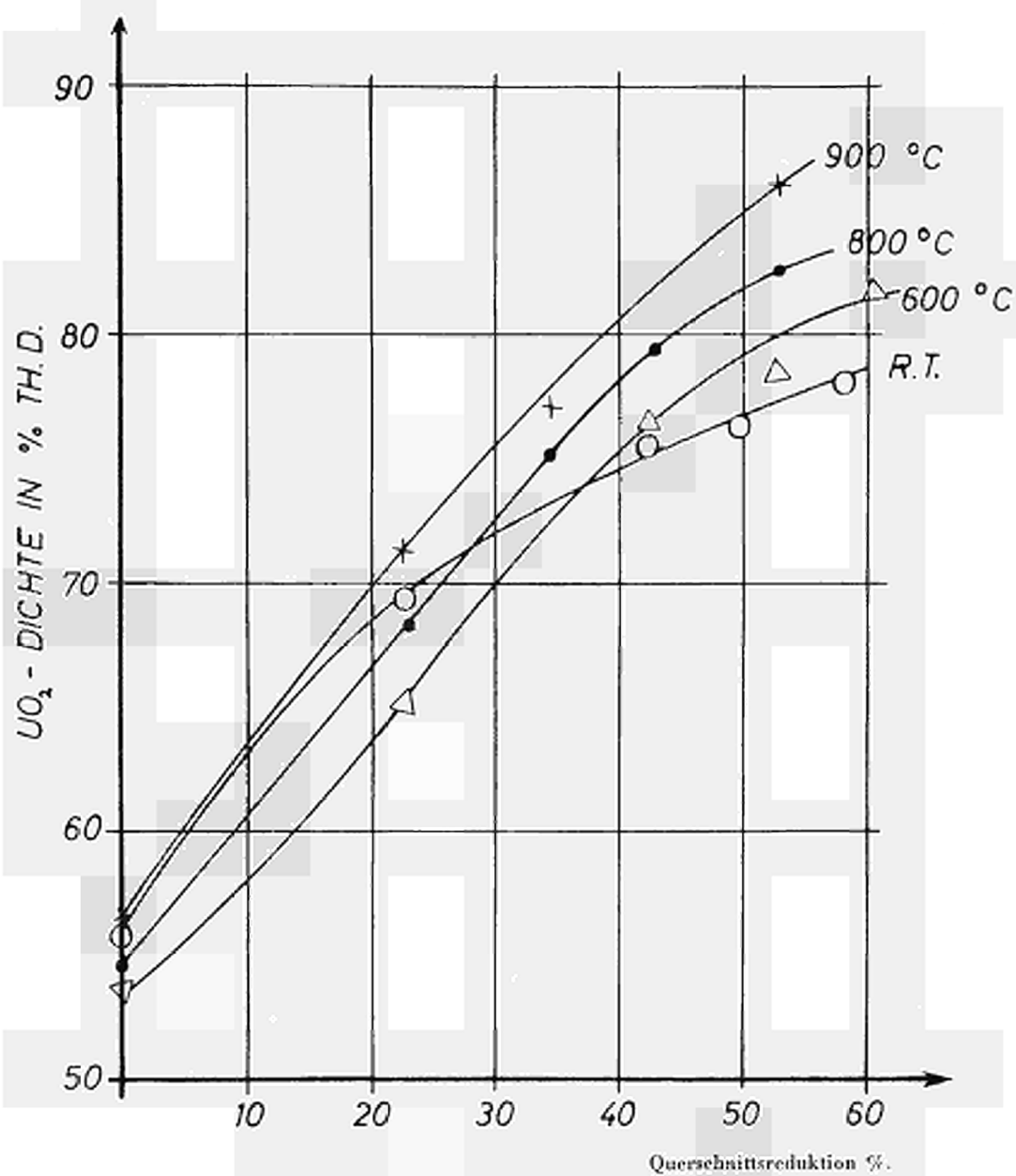


Abb. 3 — Zweibacken-Rundhämmermaschine.



Ann. 4

Die Dichte eines kaltgehämmerten Rohres (G-Pulver) als Funktion der Querschnittsreduktion.



Ans. 5

Die Dichte von UO_2 als Funktion der Reduktion bei verschiedenen Hämmertemperaturen (N-Pulver).

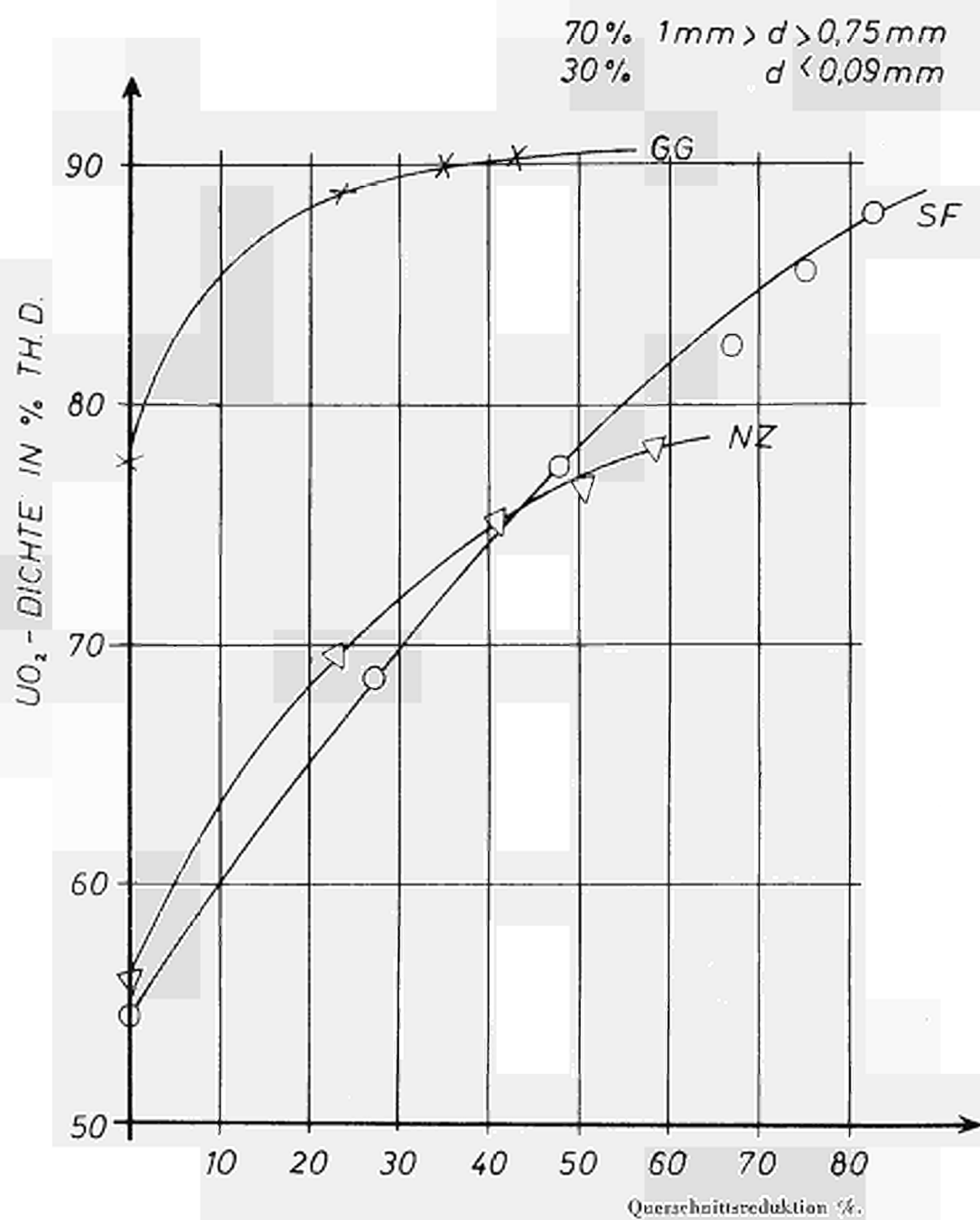


Abb. 6

Die Dichte von verschiedenen UO_2 -Pulvern, in kaltgehlümmerten Rohren, als Funktion der Querschnittsreduktion.

durch war es möglich, nicht nur beim Aufheizen, sondern auch während des Hämmerns unter Argonatmosphäre zu arbeiten. Außerdem wurden die Rohre vor dem Zuschweißen der Endstopfen evakuiert und mit Argon geflutet, damit das UO_2 nicht oxydieren konnte.

Die Abhängigkeit der UO_2 -Dichte eines kalt gehämmerten Rohres von der Querschnittsreduktion ist in Abb. 4 dargestellt. Der Verlauf dieser Kurve — es handelt sich um eines der zahlreich getesteten G-Pulver — ist charakteristisch für den Kalthämmer-Dichteverlauf.

Das Dichtemaximum lag beim Kalthämmern gegenüber dem Heißhämmern bei geringerer Querschnittsreduktion und kleineren Dichten. Wurde der Querschnitt beim Kalthämmern über den zur max. Dichte gehörigen Querschnitt hinaus weiter reduziert, so bewirkte das eine Dichteabnahme. Außerdem wurde das Hüllrohr in solchen Fällen durch den hohen Kaltverformungsgrad häufig so stark beansprucht, daß es stellenweise aufriß.

Zur Erreichung max. Dichten erwies es sich als zweckmäßig, beim Hämmern nicht gleich mit hohen Temperaturen zu beginnen, sondern die ersten Reduktionsschritte bei Raumtemperatur vorzunehmen. Abb. 5 zeigt die Hämmerdichte von N-Pulver als Funktion der Querschnittsreduktion bei vier verschiedenen Temperaturen.

Die für die verschiedenen Pulver günstigsten Hämmerverfahren hängen von der Art des Pulvers ab. Ein Vergleich der Hämmergeigenschaften von G-, S- und N-Pulver zeigt, daß die beiden letztgenannten Pulver noch bei hohen Querschnittsreduktionen eine stark steigende Dichtetendenz aufweisen, während das G-Pulver dort eine kaum noch steigende oder sogar schon wieder fallende Charakteristik hat (Abb. 6).

Abb. 7 zeigt Proberohre nach verschiedenen Arbeitsgängen.

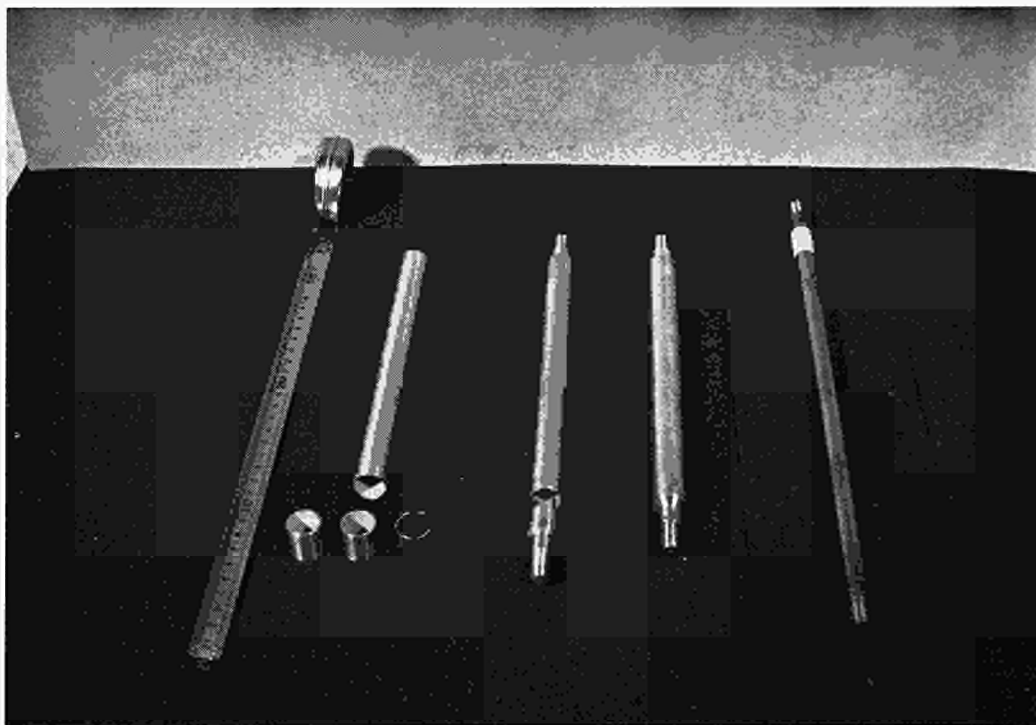


ABB. 7 — Arbeitsgänge beim Rundhämmern.
(Von links nach rechts: Rohrabschnitte verschiedener Wandstärke, einseitig verschlossenes Rohr und zweiter Stopfen, gefülltes und verschlossenes Rohr, rundgehämmertes Rohr.)

4.1 — Rundhämmerversuche an G-Pulvern

Die vorverdichteten Pulver wurden zunächst kalt von 18 auf 15 mm Außendurchmesser reduziert ($\sim 30\%$ Querschnittsreduktion). Die hierbei erreichten Hämmerdichten lagen im Bereich um 90 %. Eine weitere schrittweise Querschnittsreduktion auf 13 mm Außendurchmesser bei 750° C ergab Dichten von 92-94 % th.D. (Tab. 1).

Es wurden Siebfraktionen und auch Korngrößengemische verarbeitet. Die bei einer Querschnittsreduktion um 50 % erreichbare Enddichte ist dabei anscheinend unabhängig von der Gemischzusammensetzung. Das ist vermutlich darauf zurückzuführen, daß die unterschiedlichen Ausgangs-Korngrößenverteilungen beim Stampfvorgang und beim Hämmeren durch Zerschneiden der Körner stets zu einer ähnlichen Endverteilung verändert werden.

4.2 — Rundhämmerversuche an S-Pulvern

Durch Rundhämmeren von mit S-Pulvern gefüllten Rohren konnten 87 % bis 91 % th.D. erzielt werden, indem zunächst zwei Kalthämmer Schritte (ca. 30 % Querschnittsreduktion) und anschließend bei 750° C drei Heißhämmer Schritte (ca. 60 % Querschnittsreduktion) durchgeführt wurden (Tab. 2).

4.3 — Rundhämmerversuche an anderen Pulvern

Mit N-Pulver ist eine Enddichte um 85 % th.D. erreichbar, während mit AT-Pulver Heißhämmerdichten um 87 % th.D. erzielt werden konnten.

5 — Messungen an gehämmerten Pulvern

5.1 — Dichtemessung

Die Dichte des Pulvers im Rohr wurde aus Gewichts- und Volumenmessungen bestimmt. Um eine genaue Bestimmung der Dichteschwankung längs des Rohres zu ermöglichen, wurde mit dem Bau eines γ -Absorptionsgerätes zur Dichtemessung begonnen.

5.2 — Porenvolumenbestimmung

Zur Untersuchung der Porenstruktur im gehämmerten UO_2 wurde eine Reihe von Messungen mit dem Quecksilberporosimeter ausgeführt. Dieses Gerät dient zur Bestimmung der Porengrößenverteilung in Abhängigkeit vom Porendurchmesser.

Abb. 8 zeigt die Porengrößenverteilung in zwei kalt gehämmerten Rohren. Eines dieser Rohre enthielt S-Pulver mit einem mittleren Teilchendurchmesser zwischen 1 und 10 μ , während das zweite durch Schmelzen und Mahlen hergestelltes G-Pulvergemisch enthielt, das vor der Verarbeitung zu 70 % aus Teilchen von 800-1000 μ und zu 30 % aus Teilchen von unter 90 μ Durchmesser bestand. Es ist bemerkenswert, daß die Größen der häufigsten Poren (Maxima der Verteilungskurven) bei so unterschiedlichen Pulvern nur um einen Faktor zwei auseinanderlagen, obwohl die Teilchengrößen vor der Verarbeitung

Tabelle 1 — CHARAKTERISTISCHE DATEN VON G-PULVERN

Korngröße [μ]				Schütt- dichte [g·cm ⁻³]	Stampf- dichte [g·cm ⁻³]	Kalthämmern		Heißhämmern		Temper. [°C]		
						Dichte [g·cm ⁻³]	Red. [%]	Dichte [g·cm ⁻³]	Red. [%]			
60 %	800-1000	4 %	300-500	36 %	< 90	5,75	8,24	9,83	43			
70 %	800-1000		—	30 %	< 90		8,46	10,12	43	10,23	55	850
80 %	800-1000		—	20 %	< 90	5,88	8,15	9,85	43	10,29	43	600
80 %	500- 800			20 %	< 90		8,20	9,67	43			
75 %	800-1000	10 %	100-200	15 %	N	5,98	8,41	9,88	43			
80 %	300- 400			20 %	N	5,67	8,18	9,61	43			
50 %	< 100			50 %	N	5,96	6,78	8,99	43	9,16	55	800
100 %	1000-1600					5,19	7,24	9,67	33	10,09	55	750
100 %	1000-1600						7,99	9,98	33	10,44	55	750
90 %	1000-1600	10 %	200-315			5,00	7,47	9,97	33	10,53	55	750
90 %	1000-1600	10 %	200-315				7,94	9,84	33	10,33	55	750
80 %	1000-1600	20 %	200-315			5,55	7,51	9,81	33	10,31	55	750
80 %	1000-1600	20 %	200-315				7,62	9,82	33	10,45	55	750
70 %	1000-1600	30 %	200-315				8,47	9,92	33	10,21	55	750
70 %	1000-1600	30 %	200-315				7,44	9,60	33	10,33	55	750
60 %	1000-1600	40 %	200-315			5,26	8,11	9,96	33	10,24	55	750
50 %	1000-1600	50 %	200-315			5,40	8,08	9,94	33	10,41	55	750
50 %	1000-1600	50 %	200-315				7,67	9,80	33	10,41	55	750
40 %	1000-1600	60 %	200-315			5,55	7,98	10,10	33	10,36	55	750
40 %	1000-1600	60 %	200-315				8,16	9,95	33	10,39	55	750
30 %	1000-1600	70 %	200-315				8,19	9,97	33	10,44	55	750
30 %	1000-1600	70 %	200-315				7,71	9,91	33	10,46	55	750
20 %	1000-1600	80 %	200-315			5,40	8,35	10,02	33	10,28	55	750
20 %	1000-1600	80 %	200-315				8,13	9,84	33	10,25	55	750
10 %	1000-1600	90 %	200-315			5,26	8,26	9,88	33	10,41	55	750
		100 %	200-315				8,38	9,89	33	10,06	55	750
		100 %	200-315			5,12	7,42	9,67	33	10,44		

Tabelle 2 — CHARAKTERISTISCHE DATEN VON S-, A-, AT- UND N-PULVERN

Pulverart	Schüttdichte [g·cm ⁻³]	Stampfdichte [g·cm ⁻³]	Kalthämmern		Heißhämmern		Temper. [°C]
			Dichte [g·cm ⁻³]	Reduktion [%]	Dichte [g·cm ⁻³]	Reduktion [%]	
S	2,91	5,50	8,57	67	—	—	—
	3,57	5,92	8,51	82	—	—	—
	4,22	6,57	9,27	75	—	—	—
	4,48	7,05	9,50	75	—	—	—
	3,14	6,05	—	—	9,70	65	600
	—	6,09	9,06	50	9,96	60	750
	—	5,88	7,82	33	9,84	50	750
	—	5,87	7,92	33	10,18	60	750
	—	5,79	7,83	33	9,96	60	750
	—	5,52	7,58	33	9,65	60	750
	—	5,83	7,79	33	9,81	60	750
	—	5,73	7,66	33	9,50	60	850/750
	—	5,50	7,41	33	10,07	60	850/750
A	2,69	5,45	—	—	8,46	40	600
	2,73	5,31	—	—	8,88	50	800
AT	3,97	5,33	7,17	33	9,55	60	750
N	3,22	6,10	9,60	75	—	—	—
	—	5,55	9,45	75	—	—	—
	3,70	6,47	9,24	75	—	—	—
	—	6,00	8,25	—	8,97	50	800
	—	5,39	—	—	9,45	50	900
	—	6,05	—	—	8,74	50	600

um etwa 10^2 differierten. Diese Beobachtung läßt darauf schließen, daß die größeren Teilchen des G-Pulvers beim Stampfen und Kalthämmern zerbrechen.

Abb. 9 gibt die Porengrößenverteilung in einem N-Pulver für drei verschiedene Kaltreduktionen und Hämmerdichten wieder. Die Maxima der Verteilungskurven verschieben sich mit zunehmender Querschnittsabnahme zu kleineren Porendurchmessern. Man kann daher annehmen, daß die Verdichtung beim Kalthämmern durch Verkleinerung der vorhandenen Poren erfolgt.

Abb. 10 zeigt die Porengrößenverteilung für drei bei verschiedenen Temperaturen um 53 % reduzierte Rohre mit N-Pulver. Das Maximum der Verteilungskurve liegt bei allen drei Temperaturen an der gleichen Stelle, jedoch nimmt die Anzahl der Poren mit wachsender Temperatur ab.

5.3 — *Stöchiometriebestimmung*

Die Stöchiometrie des gehämmerten UO_2 wurde laufend überprüft. Eine Veränderung des O/U-Verhältnisses während des Hämmerns konnte nicht festgestellt werden.

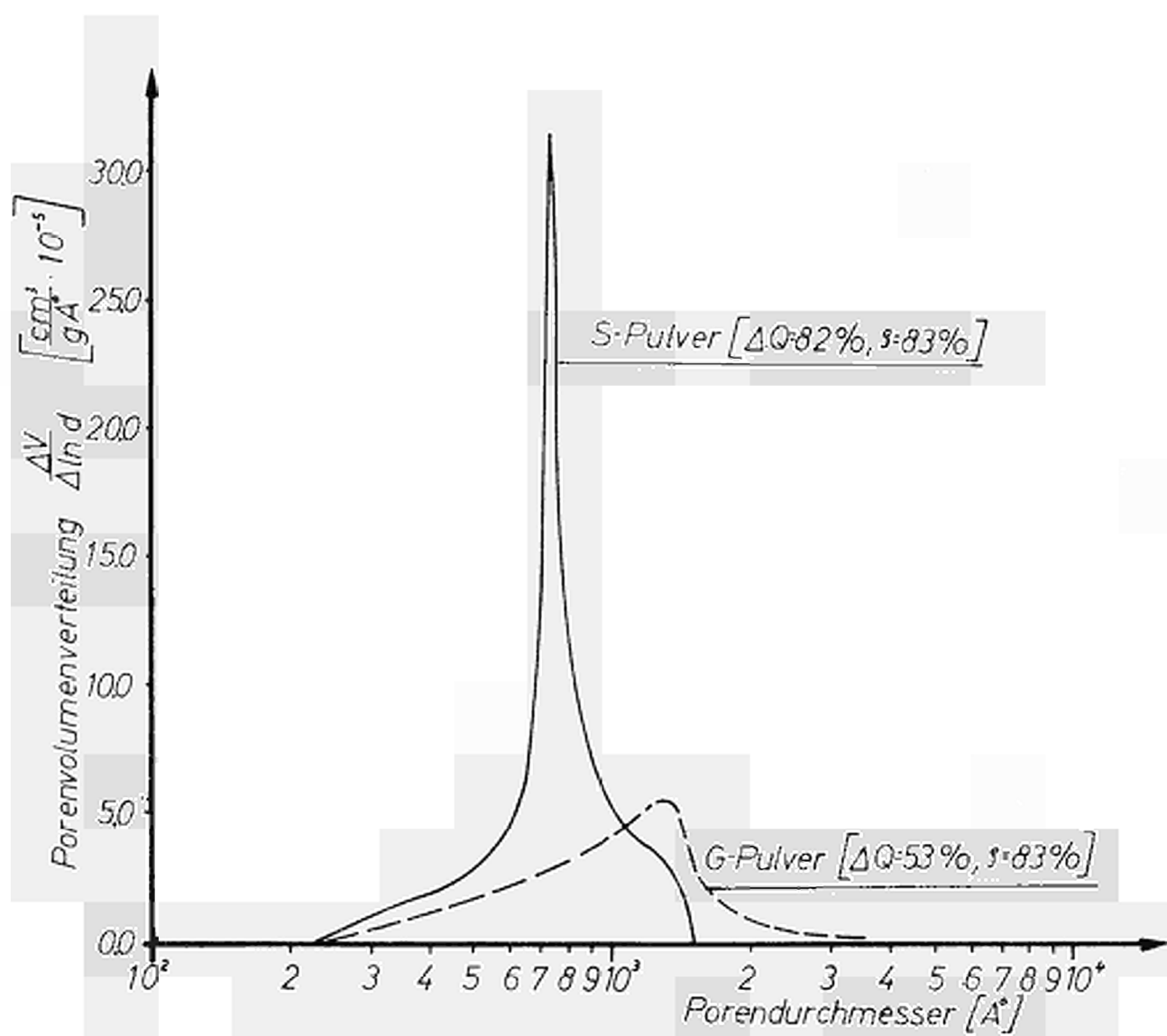


Abb. 8
Porengrößenverteilung in zwei kalt gehämmerten Röhren.

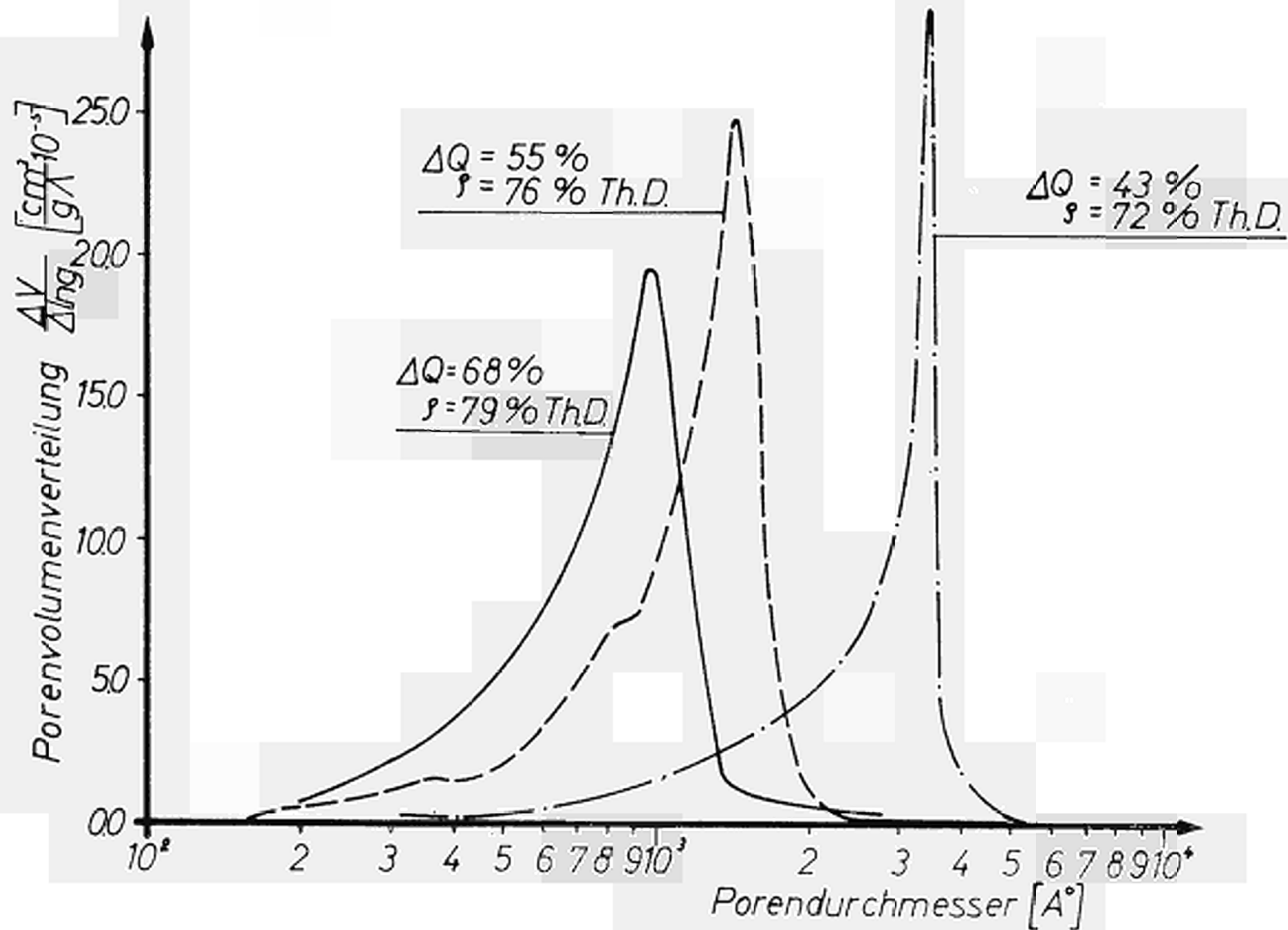
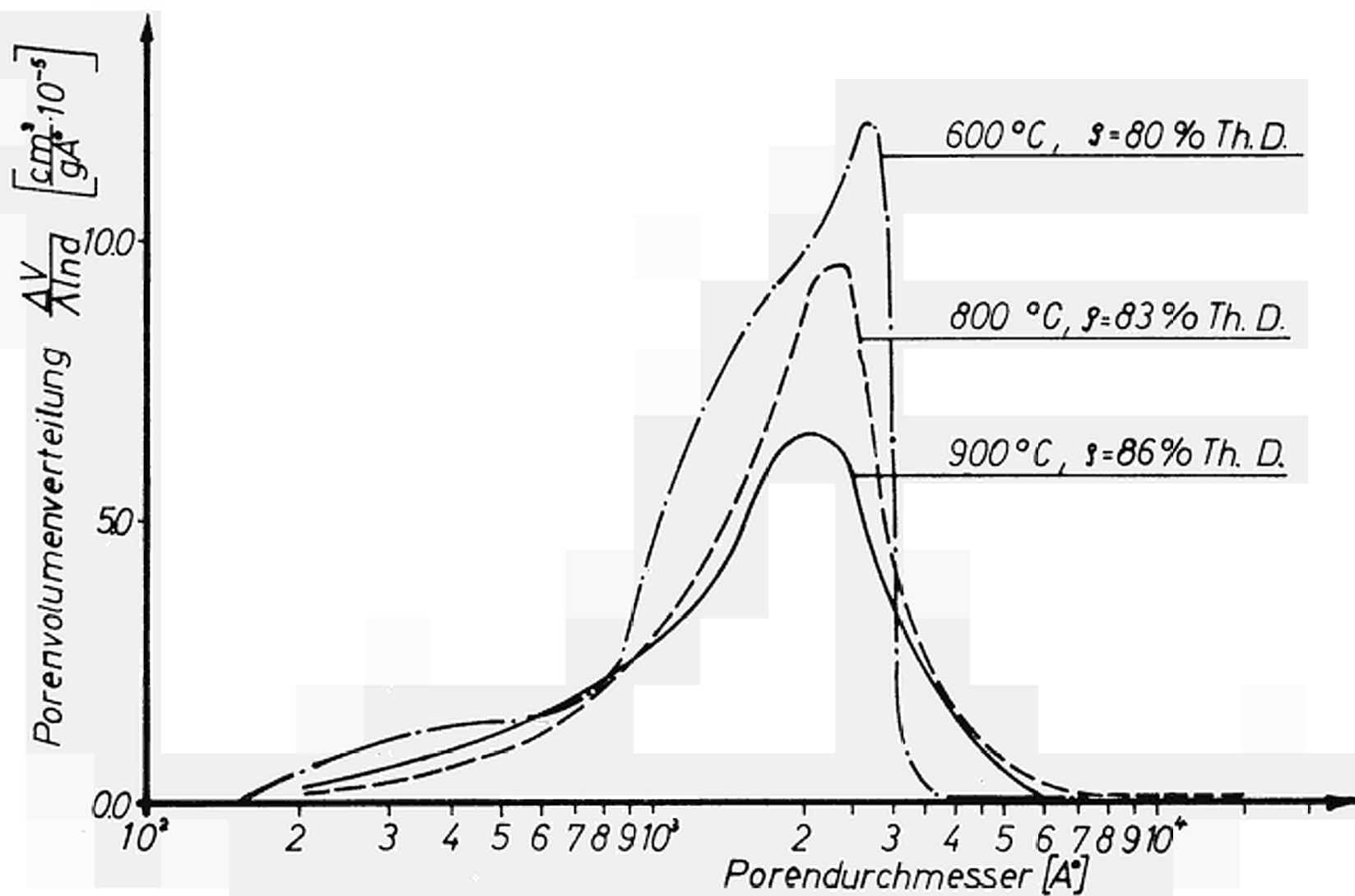


Abb. 9

Porengrößenverteilung in einem N-Pulver für drei verschiedene Kaltreduktionen und Hämmerlichten.



Ann. 10

Porengrößenverteilung für drei bei verschiedenen Temperaturen um 53 % reduzierte Rohre mit N-Pulver.

CDNA00353DEC