

KFK-204

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

Dezember 1963

KFK 204

Institut für Radiochemie

Das Verhalten von festen Spaltelementen  
und Plutonium im Brennstoff Urandioxid.

Literaturübersicht

Dietrich H. Geithoff



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Dezember 1963

K F K 204

Institut für Radiochemie

DAS VERHALTEN VON FESTEN SPALTELEMENTEN  
UND PLUTONIUM IM BRENNSTOFF URANDIOXID.

Literaturübersicht

von

Dietrich H. Geithoff <sup>+)</sup>

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H. KARLSRUHE

+)

Diese Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der  
EUROPÄISCHEN ATOMGEMEINSCHAFT und der GESELLSCHAFT FÜR  
KERNFORSCHUNG auf dem Gebiete der schnellen Reaktoren  
durchgeführt.

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H.  
Zentralbücherei 3. Juni 1964

Nr. 2

Büroexemplar

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe

## Inhaltsverzeichnis

=====

	<u>Seite</u>
I. Einleitung	
II. Abbrandbestimmungen in bestrahltem Kernbrennstoff	1
III. Verhalten der Spaltprodukte in bestrahltem Urandioxid und Gemischen von Urandioxid und Plutoniumdioxid.	11
IV. Tabellen und Diagramme über Spaltprodukte	24

## I. Einleitung

Das Verhalten der Spaltelemente in Kernbrennstoffen hat durch die in der heutigen Reaktor-Entwicklung angestrebten hohen Abbrände eine größere Bedeutung erlangt. Um eine Übersicht über den augenblicklichen Stand der Kenntnisse auf diesem Gebiet zu gewinnen, wurde die vorliegende Literaturrecherche durchgeführt.

Sie schließt alle wesentlichen Veröffentlichungen ein, die sich direkt mit dem Verhalten der Spaltprodukte in Urandioxid und Gemischen von Urandioxid und Plutoniumdioxid als Kernbrennstoff befassen. Weiter wurden auch Effekte in bestrahltem Urandioxid aufgeführt, von denen angenommen wird, daß sie einen Einfluß auf das Wanderungsverhalten der Spaltprodukte haben. Arbeiten über das Verhalten der Edelgase wurden in diese Zusammenstellung nicht mit aufgenommen.

Die Bestimmung des Abbrandes in bestrahlten Proben bildete mehrfach den Ausgangspunkt für die Untersuchung der Wanderung der Spaltprodukte. Daher wurden auch Arbeiten über alle wichtigen Methoden zur Bestimmung des Abbrandes in diese Literaturübersicht mit einbezogen.

Es erschien nützlich, in diesem Zusammenhang auch Arbeiten aufzuführen, die sich mit der Zusammensetzung von Spaltproduktgemischen bei verschiedenen Bestrahlungs- und Abkühlzeiten befassen. Angaben über wichtige Tabellen und grafische Darstellungen dieser Art sind in einem gesonderten Kapitel enthalten.

In der vorliegenden Literaturzusammenstellung wurden die bis zur Mitte des Jahres 1963 veröffentlichten Arbeiten berücksichtigt.

Gesellschaft für Kernforschung m. b. H.  
Zentralbücherei

## II. Abbrandbestimmungen in bestrahltem Kernbrennstoff

J. Bubernak, J.W.T.Meadows, M.Lew, G.M.Matlack

TID-7629

( Okt.1961 )

Seite 177-183

"THE DETERMINATION OF BURNUP IN PLUTONIUM REACTOR FUELS"

Mit Hilfe der Spaltprodukt-Analyse wurde der Abbrand in kurzzeitig ( bis zu 10<sup>6</sup> Stunden) bestrahltem Plutonium bestimmt. Die Radionuklide Sr-90, Zr-95, Mo-99, Ru-103, Cs-137, Ba-140 und Ce-144 wurden zur Bestimmung herangezogen und die Ergebnisse miteinander verglichen. Es zeigt sich eine Übereinstimmung der Einzelwerte mit Abweichungen bis zu 6 % .Für Langzeitbestrahlungen unter wechselnden Reaktorbedingungen wird das Sr-90 als Abbrand-Monitor empfohlen. Das Spalt-Strontium wird nach der üblichen radiochemischen Methode (Nitrat-, Chromat-, Oxalatfällung isoliert und nach dem Anwachsen der Tochter wird das Y-90 durch Extraktion mit TBP abgetrennt und gemessen. Die Testanalysen ergaben eine Genauigkeit von  $\pm 3\%$  (Standard-Abweichung).

13 Literaturhinweise)

R.S.Forsyth, D.G.Guthrie, A.E.Ross

TID-7629

(June 1962)

p.166-176

"DETERMINATION OF BURNUP USING STABLE FISSION-PRODUCT MOLYBDENUM"

Die Autoren berichten über die Erfahrungen mit einer Abbrandbestimmungsmethode, bei der das stabile Spalt-Molybdän mit Hilfe der Verdünnungsanalyse bestimmt wird. Als Vorteile dieser Methode werden die hohe Spaltausbeute des Abbrand-Indikators, sein niedriger Neutroneneinfangsquerschnitt, die Unabhängigkeit von Bestrahlungs- und Abkühlzeit und das Fehlen gasförmiger Vorläufer bei den Mo-Isotopen angegeben. Das Verfahren verläuft wie folgt: Die Brennstoffproben werden in HNO<sub>3</sub> gelöst und eine bestimmte Menge natürliches Mo hinzugefügt. Durch Oxydationszyklen wird ein vollständiger Austausch von natürlichem und Spalt-Molybdän gewährleistet. Anschließend wird das Molybdän durch Extraktionen von den andern Spaltprodukten getrennt

und seine Isotopenzusammensetzung im Massenspektrometer gemessen. Aus den Intensitätsverhältnissen der Massenpeaks ( Natürliches Molybdän enthält 3 Isotope, die im Spalt-Molybdän nicht vorkommen) wird der Gehalt an Spalt-Molybdän und daraus der Abbrand der Brennstoffprobe errechnet. Die Übereinstimmung mit Ergebnissen anderer Abbrandbestimmungen ( $Zr^{95}$ ,  $Sr^{89}$ ,  $Cs^{137}$ ) ist gut ( $\pm 6\%$  Abweichung von den Molybdän-Werten).

( 9 Literaturhinweise )

A.J.Fudge, A.J.Wood, M.F.Banham

TID-7629

( June 1962 )

p. 152-165

"THE DETERMINATION OF BURNUP IN NUCLEAR FUEL TEST SPECIMENS USING STABLE FISSION-PRODUCT ISOTOPES AND ISOTOPIC DILUTION "

In bestrahlten  $UO_2$ -Proben wurde der Abbrand mit Hilfe der Isotopenverdünnungsanalyse an stabilen Molybdän- und Neodym-Isotopen bestimmt. Als Bezugsgrösse für die nachfolgende massenspektrometrische Bestimmung wurden den Proben  $Mo^{92}$  bzw.  $Nd^{142}$  als hochangereicherte Isotope zugesetzt. Bei einer Abbrand der Proben von etwa  $0,5\%$  betrug der Unterschied zwischen beiden Methoden nur  $\pm 3\%$ .

Innerhalb der gleichen Methode stimmten die Werte auf  $\pm 2\%$  überein. Auch die zum Vergleich durchgeführten radiochemischen Bestimmungen mit  $Zr^{95}$ ,  $Cs^{137}$  und  $Ce^{144}$  als Abbrandindikatoren zeigten eine gute Übereinstimmung mit den Molybdän- und Neodym-Werten. Von dem Gesamtmittelwert aller Methoden wichen die Mittelwerte der Einzelmethoden wie folgt ab:

$Mo = 1,8\%$ ;  $Nd = 2,6\%$ ;  $Zr^{95} = 3,0\%$ ;  $Ce^{144} = 4,1\%$

(16 Literaturhinweise)

L.V.Grošev, A.M.Demidov

Atomnaja Energija ( Nov. 1962 )

Seite 458-466

"BESTIMMUNG DES ABBRANDES VON BRENNELEMENTEN MITTELS  
EINES MAGNETISCHEN  $\gamma$ -SPEKTROMETERS" ( Original russisch )

In der Arbeit wird vorgeschlagen, ein magnetisches Comptonspektrometer zur zerstörungsfreien Bestimmung des Abbrandes von Brennelementen zu verwenden. Der Abbrand wird aufgrund der Intensität der 2,19 MeV  $\gamma$ -Linie des Pr 144 (Tochter des Ce <sup>144</sup>) bestimmt. Da das  $\gamma$ -Spektrum der Spaltprodukte im Gebiet über 1.5 MeV verhältnismäßig einfach ist, reicht ein Gerät mit 2 - 3% Auflösung aus. Die Änderungen des Betriebszustandes des Reaktors müssen für diese Art der Bestimmung des Abbrandes genau bekannt sein. Wegen der geringen Intensität der 2,19 MeV  $\gamma$ -Linie ist für jede Meßprobe eine Mindestmenge von ca. 100mg Spaltprodukte erforderlich. Die Summe der möglichen Fehler durch Selbstabsorption, ungenügend bekannte Detektorempfindlichkeit u.a. betragen 40 %. Die beschriebene Methode eignet sich weniger für die Bestimmung des absoluten Abbrandes als vielmehr für die relative Abbrandbestimmung.

( 8 Literaturhinweise )

R.G.Hart, M.Lounsbury, C.D.Mckay

TID-7610 ( Oct.1960 )

Seite 86-103

AECL-1176

CRDC-1001

"A COMPARISON OF METHODS OF DETERMINING BURNUP  
ON URANIUM DIOXIDE FUEL TEST SPECIMENS"

Der Abbrand von UO<sub>2</sub>-Pellets wurde nach 6 verschiedenen Methoden bestimmt.

- 1.) Bestimmung der U<sup>235</sup>-Abreicherung durch Massenspektrometrie,
- 2.) Bildung von Co<sup>60</sup> in Kobalt-Sonden,
- 3.) Bestimmung des Spalt-Cs<sup>137</sup>,
- 4.) Bildung von Pu durch Neutroneneinfang in U<sup>238</sup>,
- 5.) Kalorimetrie,
- 6.) Berechnung des Neutronenflusses aus Reaktorleitung und Reaktor-f-Faktor.

Die Bestimmungsmethoden werden einander gegenübergestellt und wie folgt charakterisiert:

- 1.) Die Bestimmung der  $U^{235}$ -Anreicherung ist am verlässlichsten. Durch die Wahl eines geeigneten Spektrometers können die Ungenauigkeiten, die bei sehr niedrigen Abbränden auftreten, klein gehalten werden.
- 2.) Die Verwendung einer Co-Sonde verlangt eine genaue Kenntnis des Neutronenspektrums zur Ermittlung des effektiven Einfangquerschnittes. Außerdem ist die Selbstabsorption des Co zu berücksichtigen. Wegen der Einfachheit der Ausführung ist die Methode sehr beliebt.
- 3.) Die Cs-137-Methode sollte ebenfalls zu genauen Resultaten führen. Fehlerquellen sind hier die Cs-Wanderung im Brennstoff und die Adsorption von Cs an Glaswänden. Durch die Entnahme von genügend großen Proben und Zusatz von Cs-Träger können die Fehler klein gehalten werden.
- 4.) Die Pu-Methode ist nur bei genauester Kenntnis des Neutronenspektrums durchzuführen.
- 5.) Die Kalorische Methode muß mit einer andern Methode kombiniert werden, welche die Flußverteilung in einer grösseren Probe zu bestimmen erlaubt.
- 6.) Wie bei Methode Nr. 5 ist eine genaue Kenntnis der Flussverteilung erforderlich.

( 25 Literaturhinweise )

D.R. MacKenzie

Talanta Vol.8, Seite 72-93 (1960)

"DETERMINATION OF  $U^{235}$  BURNUP IN IRRADIATED NATURAL URANIUM BY CHEMICAL AND COUNTING METHODS"

Das Ziel der Arbeit war die Bestimmung von  $U^{235}$  in bestrahltem natürlichem Uran mit einer Genauigkeit von 1 %. Da kein Massenspektrometer zur Verfügung stand, wählte der Verfasser zwei Methoden aus, die auf indirektem Weg die Bestimmung gestatten. Die Isotopenzusammensetzung wurde durch Messung der Spaltrate und der  $\alpha$ -Zählrate des von den Spaltprodukten angetrennten Urans ermittelt. Wegen der niedrigen  $\alpha$ -Zählrate mußten die Analysenproben im Reaktor aktiviert und anschließend das  $Pu^{239}$  gemessen werden. Es wurde schließlich eine Genauigkeit von 1,3 - 2,6% erreicht. Die Methoden sind jedoch recht aufwendig und nicht routinemäßig durchzuführen. Danach wurde am gleichen Ort die  $U^{235}$ -Bestimmung mit einem Massenspektrometer durchgeführt und dabei eine Genauigkeit von 0,5 - 1,4 % erreicht.



J.E.Rein, B.F.Rider

TID-17385

Januar 1963

21 Seiten

"BURNUP DETERMINATION OF NUCLEAR FUELS"  
Progress-Report - Calender Year 1962

Der Bericht enthält in seinem ersten Teil eine allgemeine Übersicht über die Probleme der Abbrandbestimmung in Kernbrennstoffen. Die einzelnen Arbeitsmethoden werden kurz umrissen.

Teil zwei gibt eine Zusammenfassung der bisher durchgeführten und der geplanten Arbeiten an gemeinsamen Forschungsprojekten der General Electric Co. und der Phillips Petroleum Co.. Die Abbrandbestimmungsmethoden mit aktiven oder stabilen Spaltprodukten als Indikator nehmen dabei den größten Raum ein. Daneben sollen die Spalt- und Einfangsquerschnitte der höheren Transurane bestimmt werden.

( 21 Literaturhinweise )

B.F.Rider, C.P.Ruiz

Progress in Nucl. Energy, Series IX, Analyt. Chem. Vol. 3, Pt. 1-3, Seite 25-60

"THE DETERMINATION OF ATOM PER FISSION IN URANIUM FUEL"

Die experimentellen Methoden zur Bestimmung des Abbrandes im Uran werden ausführlich beschrieben und ihre möglichen Fehler diskutiert. Die Autoren unterscheiden die verschiedenen Wege der Abbrandbestimmung:

- 1.) Messung von einem oder mehreren gebildeten Spaltprodukten
- 2.) Messung der Isotopenzusammensetzung des Brennstoffes vor und nach der Bestrahlung
- 3.) Zerstörungsfreie Messung wie Kalorimetrie oder Neutronenflußmessung

Für den ersten Weg wird als Beispiel die Bestimmung des Spaltcäsiums eingehend beschrieben. Probeentnahme, chemische Abtrennung und Meßtechnik werden auf Fehlerquellen hin untersucht. Der Gesamtfehler beträgt danach, bei einem Abbrand von 0,5 - 1,5 % des U-Brennstoffes, 5,7 %. Für den zweiten Weg wird die experimentelle Ausführung der Massenspektrometrie nur kurz erwähnt, dafür aber um so mehr Aufmerksamkeit den verschiedenen Kernreaktionen und ihren Wirkungsquerschnitten gewidmet.

Die Fehler der Bestimmung werden je nach Abbrand (0,5-1,5 % mit 6-8 % angegeben).

Für den dritten Weg wird als Beispiel die Neutronenflußmessung durch Sonden behandelt.

Die Autoren kommen zu dem Ergebnis, daß bei geringen Abbränden die " Spaltproduktmethoden " die grösste Genauigkeit aufweisen. Bei höheren Abbränden wird die gleiche Genauigkeit auch durch die Massenspektrometrie erreicht. Nur wo ein grösserer Fehler in Kauf genommen werden muß, sind zerstörungsfreie Bestimmungsmethoden anwendbar.

(26 Literaturhinweise)

B.F.Rider, J.L.Russel jr., D. W.Harris, J.P.Peterson jr.

GEAP-3373

(März 1960)

62 Seiten

"THE DETERMINATION OF URANIUM BURNUP IN MWD/TON"

Zwei Methoden zur Abbrandbestimmung in bestrahltem Uran werden einander gegenübergestellt :Die radiochemische und die massenspektrometrische Methode. Bei ersterer wird das Spalt-Cäsium als einziger Abbrand-Indikator diskutiert. Die Fehlerquellen beider Methoden werden einer eingehenden Betrachtung unterzogen.Im Anhang werden genaue Arbeitsvorschriften für die Uran-,Plutonium-und Spalt-Cäsiumanalyse angegeben. Nach Abwägung der Vor- und Nachteile beider Abbrand-Bestimmungsmethoden kommen die Autoren zu folgenden Ergebnissen:

- 1.) Beide Methoden haben einen optimalen Anwendungsbereich
- 2.) Bei wichtigen Proben, bei denen die Genauigkeit eine grosse Rolle spielt,ist es sinnvoll, die Analyse nach beiden Methoden durchzuführen
- 3.) Um nicht den Aussagewert der Messung in Frage zu stellen, ist der Entnahme von Brennstoffproben vor und nach der Bestrahlung besondere Sorgfalt zuzuwenden.
- 4.) Sehr genaue Messungen des Abbrandes erfordern einen grossen Aufwand. Sie sind wirtschaftlich gerechtfertigt nur für die wichtigsten Proben.

(57 Literaturhinweise)

B.F.Rider

GEAP-4053-1

(März 1962)

14 Seiten

"ACCURATE NUCLEAR FUEL BURNUP ANALYSES"  
First Quarterly Report ( Dez.-Febr.)

Zwischen der Phillips Petroleum Co. und der General Electric Co. wurde ein gemeinsames Forschungsprogramm vereinbart. Untersucht werden sollen die Methoden zur möglichst genauen Bestimmung des Abbrandes in Kernbrennstoffen. Die G.E. wird sich zunächst mit der Massenspektrometrie der stabilen Spaltprodukt-Isotope beschäftigen. Mit den Vorbereitungen des Programms ( Kauf von reinen Kernbrennstoffen und hochangereicherten stabilen Isotopen ) wurde begonnen.

B.F.Rider

GEAP-4053-2

Juni 1962

13 Seiten

"ACCURATE NUCLEAR FUEL BURNUP ANALYSIS"  
Second Quarterly Report, ( März-Mai )

Es wurden Vorbereitungen für die Bestrahlung von reinen Kernbrennstoffproben getroffen. Der Aufbau der Bestrahlungskapseln und der Probenhalter wird in Zeichnungen ausführlich dargestellt. Weiter wird über die Chemie der Abtrennung des Molybdäns und die massenspektrometrische Bestimmung dieses Elements berichtet. Molybdän-Extraktionen mit  $\alpha$ -Benzoin-Oxim und Acetyl-Aceton wurden untersucht und die Extraktionsausbeute in Abhängigkeit von Extraktionszeit und pH des wässrigen Lösungsmittels festgestellt. Die Arbeiten über das Molybdän sollen fortgesetzt werden.

B.F.Rider

CEAP-4082

Oct.1962

18 Seiten

"ACCURATE NUCLEAR FUEL BURNUP ANALYSES"  
Third Quarterly Progress Report June-Sept.

Es wird über den Fortgang verschiedener Arbeiten am Projekt berichtet. In fünf Teilgebieten wurden im Berichtszeitraum folgende Arbeiten ausgeführt:

- 1.) Die Bestrahlungskapsel GEV-1, die  $U^{235}$ ,  $U^{233}$ ,  $Pu^{239}$  und mehrere Neutronenflußsonden enthält, wurde im Juli in den Reaktor MTR eingebracht. Mit Hilfe dieser Proben soll die Spaltausbeute gewisser stabiler Spaltprodukte bestimmt werden.
- 2.) Eine Zwillingsprobe zur GEV-1 wurde im August in den Reaktor VBWR eingesetzt. Dieser Reaktor besitzt ein gehärtetes Neutronenspektrum. Zur Ermittlung der Neutroneneinfangquerschnitte werden im VBWR außerdem stabile Spaltprodukte bestrahlt.
- 3.) Die Ionenaustausch-Isolierungsmethode für Spaltneodym wurde weiter bearbeitet. Gegen Ce und Sm wurden DF-Werte von 100 resp. 10 erreicht.
- 4.) Eine Extraktionsmethode für die Isolierung von Neodym wurde untersucht.
- 5.) Die massenspektrometrische Bestimmung des Neodyms konnte verbessert werden. Für eine Bestimmung ist nunmehr nur noch eine Menge von 0,2 Nanogramm:Neodym notwendig.

(4 Literaturhinweise )

B.F.Rider, C.P.Ruiz, J.P.Peterson Jr.:

GEAP-4137

Dez. 1962

29 Seiten

"ACCURATE NUCLEAR FUEL BURNUP ANALYSES"  
Fourth Quarterly Progress Report Sep.-Nov.

Es wird über weitere Fortschritte auf zwei Teilgebieten des Projektes berichtet. Für die Untersuchung der Spaltproduktwanderung wurden zwei Proben unter Bedingungen bestrahlt, bei denen etwa 70 % des Probenquerschnittes schmolzen. Die danach vorgenommenen Bestimmungen der Spaltprodukte  $Zr^{95}$ ,  $Ce^{141}$ ,  $Cs^{137}$  und  $Sr^{89/90}$  sowie des Pu zeigten, daß eine geringe Wanderung dieser Nuklide in Richtung zum heißen Kern stattgefunden hatte. Anreicherungen von 10-20% gegenüber dem theoretischen Wert wurden beobachtet, wobei jedoch erwähnt werden muß, dass die Fehlergrenzen der Bestimmungen etwa 15 % betragen.

An den Wänden des Zentralkanals wurde eine starke Anreicherung ( etwa 2,5-fach) von  $Ce^{141}$ ,  $Zr^{95}$ , und  $Pu^{239}$  festgestellt. Das Spalt-Cäsium destilliert, wie früher bereits festgestellt, aus den Innenzonen heraus in die relativ kalten Randzonen. Die chemische Abtrennung des Neodyms von den Spaltprodukten mit Hilfe von Ionenaustauschern wurde weiter untersucht. Es wird eine genaue Beschreibung der zur Zeit durchgeführten Abtrennungsmethoden gegeben.

B.F.Rider      C.P.Ruiz,      J.P.Peterson jr.  
GEAP-4201                              (März 1963)

28 Seiten

"ACCURATE NUCLEAR FUEL BURNUP ANALYSES"  
Fifth Quarterly Progress Report, Dez.62-Febr.63

Eine Methode zur Bestimmung des Abbrandes in den Kernbrennstoffen  $U^{233}$ ,  $U^{235}$ ,  $U^{238}$ ,  $Pu^{239}$  und in  $Th^{232}$  wird beschrieben. Abweichend von den bisherigen Spaltprodukt-Bestimmungsmethoden wird hier das stabile Spaltneodym als Abbrand-Indikator herangezogen. Das Verfahren verläuft wie folgt: Aus der Brennstoff-Spaltprodukt-Lösung wird mit Hilfe einer Dowex-2-Austauschersäule die Masse der Spaltprodukte und der Brennstoffe von Neodym getrennt. Drei weitere Austauschersäulen, zwei mit Diäthylhexylphosphorsäure auf Bakelitpulver und eine mit Dowex-50 beladen, dienen zur Abtrennung des Cers, der anderer Seltenen Erden und der Actiniden. Das so gereinigte Spalt-Neodym wird massenspektroskopisch analysiert. Als Bezugsgrösse dient das am Anfang der Trennung zugesetzte stabile Isotop  $Nd^{150}$ , das bei der Spaltung nur mit geringer Ausbeute gebildet wird. Mit dem chemischen Abtrennungsverfahren wird ein  $\beta$ - $\gamma$ -DF  $> 10^4$  erreicht. Für  $Ce^{144}$ ,  $Cs^{137}$ ,  $Zr^{95}$  und  $Ru^{106}$  ist der DF sogar  $> 10^5$ . Die Genauigkeit dieser Abbrandmethode hängt ab von der Genauigkeit, mit der die Spaltausbeuten des Nd bekannt sind. Zur Zeit sind Untersuchungen im Gange, um die Spaltausbeuten für  $Th^{232}$  und  $U^{238}$  mit schnellen Neutronen zu bestimmen.

(7 Literaturhinweise)

Duane N. Sunderman

ASTM Special Techn.Publ.No.276, Seite 3-8, (Oct.1959)

"THE RADIOCHEMICAL DETERMINATION OF URANIUM BURNUP"

Die experimentellen Methoden zur Bestimmung des Abbrandes werden aufgegliedert in direkte und indirekte Methoden, aufgezählt und kurz besprochen. Etwa die Hälfte des Aufsatzes ist einer Beschreibung der Cs<sup>137</sup>-Methode gewidmet, in welcher Probenahme, chemische Trennung, Messung, Abbrandberechnung und die dabei zu beachtenden Fehlerquellen eingehend erläutert werden.

(26 Literaturhinweise)

III. Verhalten der Spaltprodukte in bestrahltem Urandioxid und Gemischen von Urandioxid und Plutoniumdioxid

A.S.Bain

ASTM Special Techn.Publ. No.306 ( June 1961 ) p. 30-46

"THE HEAT RATING REQUIRED TO PRODUCE  
CENTRAL MELTING IN VARIOUS  $UO_2$  FUELS"

Es wird über kurzzeitige Bestrahlungsversuche mit  $UO_2$ -Brennstoffen berichtet. Bestrahlt wurden zylindrische Stäbe von 1,85 cm  $\emptyset$ , die  $UO_2$  verschiedener Dichte, ferner überstöchiometrisches  $UO_{2,12}$ - $UO_{2,19}$  und zum Teil Zusätze von  $Y_2O_3$  enthielten. Bei Stableistungen zwischen 40 und 92 Watt/cm wurde ein Schmelzen des Zentrums beobachtet, wobei das am höchsten verdichtete  $UO_{2,0}$  die höchste Stableistung (92 W/cm) zum Schmelzen erforderte. Der für diese Stäbe typische Zentralkanal bildet sich schon nach einer Bestrahlungszeit von 5 Minuten aus. Die Zusätze von  $Y_2O_3$  führten bei gleicher Stableistung zu einer Vergrößerung der geschmolzenen Zone.

( 28 Literaturhinweise )

J.Lambert Bates

ASTM Special Techn.Publ.No.306, (June 1961) Seite 16-28

"VOIDS IN IRRADIATED  $UO_2$ "

Fünf Typen von Hohlräumen wurden bei der metallografischen Prüfung von zylindrischen  $UO_2$ -Brennelementen beobachtet. Die Brennelemente wurden unter Bedingungen bestrahlt, die zu einer hohen zentralen Temperatur und einen großen radialen Temperaturgradienten führten. Bei Bestrahlungszeiten zwischen 20 Minuten und 12 Wochen wurde nur eine geringfügige Änderung der Porenstruktur mit der Bestrahlungszeit festgestellt. Der Einfluss, den die Anwesenheit und die Wanderung dieser Hohlräume auf die Verteilung und Rückhaltung der Spaltprodukte ausüben kann, wird erwähnt.

J.Lambert Bates James A. Christensen, William E. Roake

Nucleonics ( März 1962) Vol.20 Nr.3 Seite 88-90

"FISSION PRODUCTS AND PLUTONIUM MIGRATE IN URANIUM-DIOXIDE FUEL"

Die Arbeit befaßt sich mit der radialen Spaltprodukt- und Pu-Verteilung in einem  $UO_2$ -Brennelement. Ein stabförmiges  $UO_2$ -Brennelement mit einem Durchmesser von 3,5 cm wurde nach der Bestrahlung (300 MWD/t  $UO_2$ , 36 kw/ft) durchgeschnitten und quer über die Schnittfläche ca. 20 kleine Brennstoffproben entnommen. Die Radionuklide  $Zr^{95}$ ,  $Ru^{103}$ ,  $Cs^{137}$ , und  $Ce^{144}$  sowie das erbrütete Pu wurden in jeder Probe analysiert und in einem Diagramm die gefundenen Aktivitäten gegen den Stabdurchmesser aufgetragen. Im Diagramm sind sowohl für die Spaltprodukte als auch für das Plutonium deutlich 2 symmetrische Minima zu erkennen, aus denen zu schliessen wäre, daß eine Abreicherung der analysierten Stoffe im Gebiet starken Kornwachstums stattgefunden hat. Der tatsächliche Aussagewert der Kurven wird jedoch durch die hohen Fehlergrenzen der Analyse (12 % für  $Cs^{137}$ ; 15 % für  $Zr^{95}$ , 15 % für  $Ce^{144}$ , 25 % für  $Ru^{103}$ , 20 % für Pu) stark herabgesetzt, da die gefundenen Aktivitätsunterschiede ebenfalls nur 10 - 20% betragen. Die Fehler sind hauptsächlich auf die Ungenauigkeit der Uranbestimmung ( + 11 % in den  $UO_2$ -Proben ( 10-200  $\gamma$   $UO_2$  ) zurückzuführen.

( 11 Literaturhinweise )

J.L.Bates J.A.Christensen, W.E.Roake

HW-SA-2778 (1962) 12 Seiten

"FISSION FRAGMENT AND PLUTONIUM MIGRATION IN  $UO_2$ -FUEL"

Die Wanderung des Plutoniums und bestimmter Spaltprodukte in  $UO_2$  wurden untersucht. In fünf stabförmigen Brennstoffproben ( $\phi$  1.3-3,5 cm) mit Abbränden zwischen 300 und 23700 MWD/T wurden in radialem Abstand Proben entnommen und auf  $Pu^{239}$ ,  $Zr^{95}$ ,  $Ru^{106}$ ,  $Cs^{137}$ , und  $Ce^{144}$ , analysiert. Die so erhaltenen Aktivitätsprofile zeigten bei den verschiedenen Brennstoffproben eine unterschiedliche Struktur. Gemeinsam war ihnen ein leichtes Minimum in der Säulenkristall-Zone. Bei der 23700 MWD/T-Probe war das  $Cs^{137}$  aus den Mittelzonen weitgehend herausdestilliert und in einer dünnen Randzone stark angereichert. Erstaunlicherweise waren die Entmischungserscheinungen, mit Ausnahme des Cs, bei hohen Abbränden kleiner als bei niederen.  $Pu^{239}$  zeigte ein dem  $Ce^{144}$  ähnliches Verhalten.

( 7 Literaturhinweise )



J. Belle (mit 41 Koautoren)

USAEC, US Government Printing Office

"URANIUM DIOXIDE: PROPERTIES AND NUCLEAR APPLICATIONS"

Der Autor hat in dem 726 Seiten umfassenden Buch alle bis zum Anfang des Jahres 1961 einschlägigen Veröffentlichungen verarbeitet. Die 9 Kapitel behandeln:

- 1.) Anwendung von  $UO_2$  für Leistungsreaktoren
- 2.) Herstellung von  $UO_2$
- 3.) Charakterisierung des  $UO_2$
- 4.) Fabrikation von  $UO_2$
- 5.) Physikalische Eigenschaften
- 6.) Phasenbeziehung im Uran-Sauerstoff- und binären Oxidsystemen
- 7.) Reaktion des  $UO_2$  im festen Zustand
- 8.) Oxydation und Korrosion
- 9.) Bestrahlungseffekte.

Das Buch birgt eine Fülle von Informationen, die durch zahlreiche Abbildungen, Diagramme und Tabellen vertieft werden. Für die meisten Fälle erübrigt sich daher die Heranziehung der Originalliteratur.

(830 Literaturhinweise)

R.M. Berman

Nuclear Science and Engineering 16, 315-328 (1963)

"FISSION FRAGMENT DISTRIBUTION IN IRRADIATED  $UO_2$ "

Vier bestrahlte  $UO_2$ -Proben wurden gemahlen und anschließend in 3 n  $HNO_3$  fraktioniert gelöst. Die einzelnen Säure-Fractionen wurden auf Uran sowie auf die Spaltprodukte  $Cs^{137}$ ,  $Ce^{144}$ ,  $Zr^{95}$ ,  $Sr^{90}$  und  $Eu^{155}$  analysiert. Dabei zeigten sich bei den einzelnen Fraktionen erhebliche Unterschiede in der spezifischen Aktivität (bezogen auf Uran) der Spaltprodukte. Eine Anreicherung wurde in den ersten und in den letzten Fraktionen beobachtet, während die mittleren Fraktionen eine Verarmung aufwiesen. Bei einer nur kurz bestrahlten Probe war eine Anreicherung im Innern der Körner nicht zu beobachten. Aus den Ergebnissen der Versuche wird geschlossen, dass die Spaltprodukte nicht in fester Lösung im  $UO_2$  verbleiben, sondern zu Korngrenzen und Gitter-Fehlstellen hin wandern.

(7 Literaturhinweise)

M.L.Bleiberg, W.Yeniscavich, R.G.Gray

ASTM Special Techn.Publ.No 306 (June 1961) Seite 64-83

"EFFECTS OF BURNUP ON CERTAIN CERAMIC FUEL MATERIALS"

Die Bestrahlungseffekte an  $UO_2$ ,  $UO_2$  in BeO-Matrix und  $UO_2$  in  $Al_2O_3$ -Matrix bei hohem Abbrand werden miteinander verglichen. Dazu wurden plattenförmige Brennelemente bis zu einem Abbrand von 13,7 % im Reaktor belassen. Die Volumenvermehrung und die Spaltgasfreisetzung wurden untersucht. Bei einem Abbrand von ca. 10 % wurden Volumenvermehrungen bis zu 100 % festgestellt. Es wird gezeigt, daß die Spaltgasfreisetzung mit der Zerstörung des  $UO_2$ -Kristallgitters eng verknüpft ist.

( 18 Literaturhinweise )

M.L.Bleiberg, R.M.Berman, L.Lustman

WAPD-T-1455

(März 1962)

135 Seiten

"EFFECTS OF HIGH BURNUP ON OXIDE CERAMIC FUELS"

Plattenförmige Brennelemente mit Zircaloy-2-Mantel wurden bis zu  $30-40 \times 10^{20} \text{Sp/cm}^3$  bestrahlt. Es wurden reines  $UO_2$ ,  $UO_2 + ZrO_2$  in fester Lösung, ferner  $UO_2$  in  $Al_2O_3$  und BeO-Matrix eingesetzt. Nach Bestrahlung wurde der Volumenzuwachs, die Spaltgasfreigabe und die Struktur des Brennstoffes untersucht. Dabei zeigte sich für reines  $UO_2$  eine Zuwachsrate von 0,16 % pro  $10^{20} \text{Sp/cm}^3$  für Abbrände bis zu ca.  $17 \times 10^{20} \text{Sp/cm}^3$  und darüber hinaus eine Zuwachsrate von 0,7 % pro  $10^{20} \text{Sp/cm}^3$ .

Die  $ZrO_2$ -haltigen Mischbrennstoffe nahmen um 0,7 % pro  $10^{20} \text{Sp/cm}^3$  zu.

Ebenso die BeO-Matrix. Beim  $Al_2O_3$  wurde schon unterhalb eines Abbrandes von  $10^{20} \text{Sp/cm}^3$  eine Volumenvermehrung von 19 % beobachtet.

Die Spaltgasfreigabe wurde auf zwei wesentliche Ursachen zurückgeführt: Stark überhöhte Temperaturen und hoher Abbrand. Unter Extrembedingungen wurden bis zu 57 % freies Spaltgas gemessen, während normalerweise nur 1 - 11 % des Spaltgases frei vorlagen. Unter dem Mikroskop wurden bei hohem Abbrand und überhöhter Temperatur im Brennstoff weiße Knöllchen beobachtet, von denen man annimmt, daß sie z.Teil aus Spaltprodukten bestehen. Die Knöllchenbildung unterbleibt bei niedrigerer Temperatur. An der Grenzfläche Brennstoff-Mantel wurden graue Zonen festgestellt, die vermutlich aus  $ZrO_2$  bestehen, das durch Reaktion mit dem Sauerstoff des gespaltenen  $UO_2$  entstanden ist.

(32 Literaturhinweise)

W.B.Cottrell, H.N.Culver, J.L.Scott, M.M.Yarosh

ORNL-2935

(Sept.1960)

138 p.

"FISSION PRODUCT RELEASE FROM  $UO_2$ "

Alle Informationen über die Spaltprodukt-Freigabe im bestrahlten  $UO_2$ -Brennstoff wurden bis zum Herbst 1959 ausgewertet. Die bis dahin vorliegenden experimentellen Daten wurden unter dem Gesichtspunkt verschiedener Mechanismen der Spaltgas-Freigabe interpretiert. Aus diesen Betrachtungen heraus versucht man etwas über den Druckaufbau in  $UO_2$ -Brennelementen vorauszusagen.

Weiter wird das Brennstoff-Bestrahlungsprogramm des ORNL skizziert. Einige Parameter-Studien werden beschrieben, die einen Einfluß auf das Verhalten der Brennelemente in EGCR haben.

( 82 Literaturhinweise )

R.C.Daniel, M.L.Bleiberg, H.B.Meieran, W.Yeniscavich

WAPD-263

( Sept.1962 )

285 Seiten

"EFFECTS OF HIGH BURNUP ON ZIRKALOY-CLAD  
BULK  $UO_2$ , PLATE FUEL ELEMENT SAMPLES"

Über zahlreiche Bestrahlungsteste, durchgeführt an plattenförmigen  $UO_2$ -Brennelementen mit Zirkaloy-Hülle wird berichtet. Die Lebensdauer der Brennelemente wird danach im wesentlichen durch die Betriebstemperatur und durch Brennstoffspannungen bestimmt. Beide Faktoren führen zu einer Verformung und schließlich zum Bruch der Hülle. Als Schwellraten wurden für das  $UO_2$  bis zu einem Abbrand von  $17 \cdot 10^{20} \text{ Sp/cm}^3$   $0,16 \% \Delta V$  pro  $10^{20} \text{ Sp/cm}^3$  und darüber hinaus  $0,5 - 0,7 \% \Delta V$  pro  $10^{20} \text{ Sp/cm}^3$  angegeben. Die Spaltgasfreisetzung nimmt mit höherem Abbrand zu und erreicht bei  $32 \cdot 10^{20} \text{ Sp/cm}^3$  etwa  $10 \%$ . In den Schliffbildern sind in der  $UO_2$ -Struktur weiße Knöllchen sichtbar, von denen angenommen wird, dass sie aus nicht flüchtigen Spaltprodukten bestehen. Die Zusammenballung der Spaltprodukte zu Knöllchen ist erst bei höherer Temperatur zu beobachten. Der Bericht zeigt auf ca. 200 Seiten Abbildungen von Brennstoffschliffen.

( 25 Literaturhinweise )

J.M.Gerhart, J.N.Siltanen, J.S.Cochran

ASTM Special Techn.Publ. No. 306, Juni 1961, Seite 154-177

"THE IRRADIATION AND EXAMINATION OF A PLUTONIUM-URANIUM  
OXIDE FAST REACTOR FUEL"

Kurzfassung des Berichtes GEAP-3833, Nov.1961, 113 Seiten  
(näheres siehe dort)

( 9 Literaturhinweise )

J.M.Gerhart

GEAP-3833

(Nov.1961)

113 Seiten

"THE POST-IRRADIATION EXAMINATION OF A PuO<sub>2</sub> FAST REACTOR FUEL"

Ein großes Bestrahlungsprogramm zur Untersuchung des Verhaltens von PuO<sub>2</sub> - UO<sub>2</sub>- Reaktor-Brennstoff wurde durchgeführt. 40 stabförmige Test-Brennelemente mit 5,5 mm Innen-Ø wurden in GETR bis zu 99000 MWD/T abgebrannt. Der zugehörige Wärmefluß schwankte zwischen 150 und 500 Watt/cm<sup>2</sup> bei einer Wandtemperatur bis zu 650°C. Trotz der hohen Beanspruchung trat bei keiner der Proben ein Hüllen-Bruch auf. Nach der Bestrahlung wurden die Test-Brennelemente nach folgenden Richtungen untersucht:

- 1.) Messung der äußeren Dimensionen
- 2.) γ-Scanning
- 3.) Bestimmung des freien Spaltgases
- 4.) Visuelle Untersuchung des Brennstoffes
- 5.) Messung des Zentralkanals
- 6.) Metallographische Untersuchung

Der Abbrand der Proben wurde, nachdem zunächst zum Vergleich einige radiochemische Bestimmungen ausgeführt wurden, nur noch aus kalorischen Daten bestimmt. Als in dieser Reihe höchster Abbrand wurden 99000 MWD/T erreicht. Bei dieser Probe lagen 48,1 % des Spaltgases in freier Form vor.

( 10 Literaturhinweise )

F.J.Leitz

GEAP-3981 3<sup>rd</sup> Quarterly Report (April-June 1962)

"SODIUM-COOLED REACTOR PROGRAM.  
FAST CERAMIC REACTOR DEVELOPMENT PROGRAM"

Es wird über Entwicklungsarbeiten am FCR-Reaktorprojekt berichtet. Im Vordergrund steht hier die Erprobung der zukünftigen Brennelemente. Für eine mögliche Plutonium-Wanderung werden drei verschiedene Mechanismen diskutiert. Ausgehend von einem Brennstoff aus 73,6 %  $UO_2$  und 18,4 %  $PuO_2$  wird die Änderung des Doppler-Koeffizienten für die maximalen Entmischungen errechnet. Experimentell untersuchte man die axiale Wanderung von Plutonium in das  $UO_2$ -Blanket. Die Analyse der 0,2 mm dicken Kontaktzone ergab innerhalb der Fehlergrenzen (+ 20 % keine Anzeichen für eine Wanderung des Pu. In radial entnommenen Proben wurde die bereits bekannte Wanderung des  $Cs^{137}$  in die kalte Außenzone beobachtet. Der Abbrand der analysierten Brennelemente betrug ca. 64000 MWD/T. Der Autor kommt auf Grund der theoretischen und experimentellen Daten zu dem Schluß, daß die radiale Wanderung von  $PuO_2$  nur einen sehr geringen Einfluß auf den Doppler-Koeffizienten des FCR hat.

(21 Literaturhinweise)

F.J.Leitz

HW-75007 (Dez.1962)

"PLUTONIUM AS A FUEL FOR THE FAST CERAMIC REACTOR"

Es wird über Abbrandversuche mit stabförmigen  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennelementen berichtet. Die Stäbe (0,5 cm  $\phi$ ) erreichten bei einer Wärmeleistung bis zu 60 Watt/cm Abbrände bis zu 100.000 MWD/T. 20-70 % des Spaltgases wurden freigesetzt, jedoch war keine Korrelation zwischen Abbrand oder Wärmeleistung und Spaltgasfreigabe festzustellen. Eine radiale Wanderung des Plutoniums, auf die in früheren Berichten hingewiesen wurde, war innerhalb der Fehlergrenzen ( $\pm$  20 %) nicht zu beobachten. In axialer Richtung wurde die Verteilung der Spaltprodukte Sr-90, Zr-95, Ce-144, Cs-137 und Cs-134 untersucht. Während Zr-95 und Ce-144 am Ort ihrer Bildung verblieben, zeigte sich bei Sr-90, Cs-137 und Cs-134 eine deutliche Wanderung in Richtung der Pellet-Berührungsflächen. Die gegenüber dem Cs-137 beim Cs-134 festgestellte erhöhte Wanderungsneigung wird auf die Beweglichkeit eines Vorläufers des Cs-134 ( $Xe-133$  HWZ 5,3 d) zurückgeführt.

( 12 Literaturhinweise )

W.B.Lewis

AECL-1402 DL-45 (Nov.1961) 36 Seiten

"BEHAVIOR OF FISSION GASES IN UO<sub>2</sub> FUEL"

Die Mechanismen, die zur Spaltgasfreisetzung führen können, werden diskutiert.

Es sind dies:

- 1.) Diffusion
- 2.) Stöchiometrische Äquilibration
- 3.) thermische Äquilibration
  - a) Porenwanderung
  - b) Kornwachstum
  - c) Plastische Deformation
  - d) Diffusion zu geschlossenen Poren
- 4.) Oberflächenverdampfung
- 5.) Spaltungs-Rückstoß
- 6.) Knock-out.

Aufgrund der bisher bekannten experimentellen Ergebnisse kommt der Autor zu dem Schluß, daß bei Abbränden  $< 20\ 000$  MWD/t das Spaltgas praktisch keinen Druck auf die Hülle ausüben sollte. Erst bei der Zerstörung des Oxidgefüges ist mit einem starken Innendruck zu rechnen.

M.Lounsbury R.G.Hart, R.W.Jones

AECL-1609 CRC-1095 (Sept.1962) 16 Seiten

"AXIAL AND RADIAL DISTRIBUTION OF URANIUM AND PLUTONIUM ISOTOPES IN NRX-ROD-45"

In einem metallischem Uran-Brennstab mit 3,7 cm  $\phi$  wurde nach der Bestrahlung (6200 MWD/T) auf chemischem Wege das U/Pu-Verhältnis in einer Reihe von Proben bestimmt. (Die Proben wurden nach dem Durchsägen des Brennstabes in verschiedenen, radialen Abständen entnommen.) Weiter wurde die isotopische Zusammensetzung des Pu darin massenspektrometrisch bestimmt und mit den Theoretisch errechneten Werten verglichen. Es ergab sich folgendes Bild:

Durch die Fluxdepression im Innern des Stabes erniedrigte sich der Anteil der höheren Pu-Isotope in der Innenzonen.

Zusammensetzung einer Innenprobe:

Pu-239 = 83,3 %; Pu-240 = 14,8 %; Pu-241 = 1,68 %; Pu-242 = 0,216 %;

Zusammensetzung einer Außenprobe:

Pu-239 = 78,1 %; Pu-240 = 18,5 %; Pu-241 = 2,8%; Pu-242 = 0,506%.

Die Werte stimmen mit den errechneten gut überein. Eine Wanderung des Plutoniums in Brennstoff wurde nicht festgestellt. Das Pu-U-Verhältnis entsprach ebenfalls der Theorie.

W.W.Morgan, R.G.Hart, R.W.Jones, W.J.Edwards

AECL-1249

CRDC - 1027

(April 1961)

"A PRELIMINARY REPORT ON RADIAL DISTRIBUTION OF  
FISSION PRODUCT XENON AND CESIUM IN UO<sub>2</sub> FUEL ELEMENTS"

UO<sub>2</sub>- Pellets von 0,5 - 1 inch  $\phi$  mit natürlichem und etwa 8 % angereichertem Uran wurden bei einer Wärmeleistung von 30-40 Watt/cm bestrahlt. Anschließend wurden aus drei radialen Zonen (Zentral-, Mittel- und Außenzone) Proben entnommen und auf Pu, Spalt-Xenon und Spalt-Cäsium analysiert. In der Zone mit starkem Kornwachstum (Mittelzone) stellte man eine Abreicherung von Pu, Cs und Xe fest.

Außerdem zeigte sich dass die Isotopenverhältnisse Xe<sup>136</sup> - Xe<sup>134</sup> und Cs<sup>137</sup> - Cs<sup>134</sup> in den Proben verschiedener Zonen nicht konstant waren.

Damit wurde die These widerlegt, dass die Spaltgase während der Bestrahlung frei sind und während der Abkühlung nach Bestrahlungsende wieder vom Brennstoff absorbiert werden. Im Anhang wird die analytische Methode für die Bestimmung des Spalt-Xenon beschrieben.

(13 Literaturhinweise)

G.W. Parker, G.E.Creek, W.J.Martin

TID-7622

(Okt.1961)

Seite 149-159

"RELEASE OF FISSION PRODUCTS FROM REACTOR-GRADE  
UO<sub>2</sub> BY DIFFUSION, OXIDATION, AND MELTING"

Bestrahlte UO<sub>2</sub>-Proben wurden unter Luftzutritt stufenweise erhitzt und die herausdiffundierenden Spaltelemente bestimmt. Dabei zeigte sich, dass bei Temperaturen bis zu 900°C zunächst Jod und die Spaltgase im geringem Maße freigesetzt werden. Bei Temperaturen von 1400°C dagegen werden 100 % des Spalt-Ru und 30 % des Spalt-Te frei, während die entsprechenden Prozentzahlen für Jod und Spaltgas zwischen 10 und 20 liegen. In einer Helium-Atmosphäre sind Tellur und Jod die flüchtigsten Spaltelemente. Bei 2200°C werden unter den Versuchsbedingungen auch 35 % Spalt-Sr freigesetzt. Der beim Schmelzen des UO<sub>2</sub> freigesetzte Anteil der Spaltelemente ist abhängig vom Abbrand. Höherer Abbrand bedeutet erhöhte Freisetzung der Spaltelemente Jod, Tellur, Cäsium, Ruthen.

( 9 Literaturhinweise )

B.F.Rider, C.P.Ruitz, J.P.Peterson jr.

GEAP-4137

Dez.1962

29 Seiten

"ACCURATE NUCLEAR FUEL BURNUP ANALYSES"  
Fourth Quarterly Progress Report Sept.-Nov.

Näher beschrieben auf Seite 8.



W.E.Roake

HW-73072

(März 1962)

56 Seiten

"IRRADIATION ALTERATION OF URANIUM DIOXIDE"

Die bei Bestrahlung im Brennstoff  $UO_2$  auftretenden Änderungen der Wärmeleitfähigkeit, der elektrischen Leitfähigkeit, der Mikrohärtigkeit, Porosität und Kristallstruktur werden beschrieben. Um einen besseren Einblick in die Ursachen dieser Änderungen zu bekommen, wurden Experimente in drei Temperaturbereichen, unter  $1000^\circ C$ , von  $500 - 17.0^\circ C$  und über  $1600^\circ C$  durchgeführt. Weiter wurde die Wanderung der Spaltprodukte in stabförmigen Test-Brennelementen untersucht. Bei allen untersuchten Radionukliden ( $Zr^{95}$ ,  $Ru^{103}$ ,  $Ru^{106}$ ,  $Cs^{137}$ ,  $Ce^{144}$ ) wurden Entmischungen festgestellt. Das Pu zeigt ähnliche, allerdings schwächere Entmischungserscheinungen. Einige Vorschläge für die Deutung dieser Erscheinungen werden gemacht.

(18 Literaturhinweise)

J.A.L.Robertson, A.M.Ross M.J.F.Notley, J.R.MacEwan

Journal of Nuclear Materials 7, Nr.3 (1962) 225-262

"TEMPERATURE DISTRIBUTION IN  $UO_2$  FUEL ELEMENTS"

Das Problem der Temperaturverteilung in  $UO_2$ -Brennelementen wird eingehend behandelt. Frühere Untersuchungsergebnisse werden neu interpretiert und man gelangt nun zu einem klaren Bild über die Temperaturverteilung für Brennelemente, bei denen das  $UO_2$  unter Druck mit dem Hüllmaterial in Verbindung steht. Die Temperaturverteilung ist vorhersagbar. Aus den Untersuchungsergebnissen geht hervor, daß nur bei Temperaturen unter  $600^\circ C$  bei Bestrahlung ein deutliches Absinken der thermischen Leitfähigkeit stattfindet und zwar bis zu einem Abbrand von 40 000 MWD/T Uran. Die zahlreichen Faktoren, die den Wärmeübergang zwischen Brennstoff und Hülle beeinflussen, wurden geprüft. Dabei zeigte sich, dass Risse im  $UO_2$  offenbar kein besonderes thermisches Hindernis darstellen. Der größte Teil der Wärme fließt, auch bei eng anliegendem Brennstoff, nicht über Berührungspunkte der Feststoffe, sondern vielmehr durch einen Gasfilm nach außen.

( 100 Literaturhinweise )

Mark T. Robinson

Nuclear Science and Engineering 4, 263-269 (1958)

"ON THE CHEMISTRY OF THE FISSION PROCESS  
IN REACTOR FUELS CONTAINING  $UF_4$  AND  $UO_2$ "

Die Wertigkeiten der Spaltelemente in den Kernbrennstoffen  $UO_2$  und  $UF_4$  werden theoretisch untersucht. Unter bestimmten Annahmen wird die mittlere Spaltproduktwertigkeit für verschiedene Bestrahlungszeiten errechnet. Für das  $UO_2$  ist aus einem Diagramm ersichtlich, daß bei Bestrahlungszeiten  $> 1$  h der Bedarf der Spaltprodukte an Sauerstoff so groß ist, daß im Brennstoff kein freier Sauerstoff vorhanden sein kann. Bei  $UF_4$  wird eine mittlere Spaltproduktwertigkeit von 2 erst nach ca. einem Tag erreicht.

( 6 Literaturhinweise )

D.F. Torner, J.L. Scott

ASTM Special Techn-Pbl. 306, Juni 1961 Seite 86-97

"STUDY OF FACTORS CONTROLLING THE RELEASE OF  $Xe^{133}$  FROM BULK  $UO_2$ "

Die Spaltgasabgabe von  $UO_2$ -Pellets mit 95 % theoretischer Dichte wurde untersucht. Nach der Bestrahlung wurden die Proben auf  $1000-2000^{\circ}C$  erhitzt und das austretende  $Xe^{133}$  gemessen: Unter  $1600^{\circ}C$  kann die Spaltgas-Abgaberate durch das "equivalent sphere model" erklärt werden. Darüber hinaus wird mehr Spaltgas freigesetzt, als aufgrund der Diffusion vorausgesagt wurde. Die Ergebnisse zeigen, daß bis zu einem Abbrand von 16 400 MWD/T  $UO_2$  die Spaltgas-Abgaberate unabhängig vom Abbrand ist.

( 17 Literaturhinweise )

L.V.Shiryayeva, Yu.M.Tolmachev

Atomnaya Energiya 6, 528 (1959)

"CHEMICAL BEHAVIOR OF Mo<sup>99</sup> FORMED BY THE  
IRRADIATION OF URANIUM OXIDE WITH SLOW NEUTRONS"

Die Verflüchtigung von Spalt-Molybdän in bestrahlten U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> -und UO<sub>2</sub>-Brennstoffproben bei Temperaturen bis zu 1200°C wurde untersucht. Die Proben (Größe unbekannt) wurden nach der Bestrahlung (Bestrahlungsdaten unbekannt) in verschiedenen Gas-Atmosphären sowie im Vakuum erhitzt und die Aktivität des herausdestillierten Mo<sup>99</sup> gemessen. Bei U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> betrug der mit der Temperatur stark ansteigende Verflüchtigungsgrad bei 1000°C in Argon 80 %, Vakuum 40%, Wasserstoff 20 %, und Sauerstoff 15 %. Der UO<sub>2</sub> Brennstoff zeigte insgesamt einen höheren Verflüchtigungsgrad. Bei 1000°C wurden im Sauerstoff 97 %, im Vakuum 75 %, im Argon 20 % und im Wasserstoff 10 % des Mo verflüchtigt.

Das Spalt-Mo liegt nach Ansicht der Autoren in oxidiert Form vor. Die Mechanismen, die zur Verflüchtigung führen können, werden erläutert.

(14 Literaturhinweise )

T.J.Slosek, B.Weidenbaum

GEAP-3108 (Pt.2) (1960) 53 Seiten

"IRRADIATION AND EXAMINATION OF VIBRATORY PACKED UO<sub>2</sub>  
HIGH BURNUP PROGRAM FUEL ELEMENTS"

Stabförmige Brennelemente mit auf 22 % angereichertem UO<sub>2</sub> werden bei einer Wärmeleistung von 110 W/cm<sup>2</sup> etwa 5 Monate bestrahlt, wobei ein Abbrand von bis zu 2 % erzielt wurde. Nach der Bestrahlung zeigte der ursprünglich als Pulver eingerüttelte Brennstoff folgende Struktur: Im Zentrum des Stabes hatten sich lange zigarrenförmige Hohlräume gebildet, die miteinander nicht in Verbindung standen. Daran anschließend wurden radial gerichtete Säulenkristalle vorgefunden, die sich bis an die Randzone erstreckten, die aus unverändertem UO<sub>2</sub> bestand. Radiale Spalten durchsetzen diese Struktur. Die Zentralkanäle können nicht durch Schmelzen der des UO<sub>2</sub> gebildet worden sein. Man nimmt an, daß eine Sublimation für ihre Bildung verantwortlich ist. Die Bildung der Radialen Spalten wurde durch Zusätze von TiO<sub>2</sub> zurückgedrängt. In den Hohlräumen wurden 50-100% der Spaltgase vorgefunden. Der Abbrand der Proben wurde über die Spaltprodukte Cs<sup>137</sup> und Ce<sup>144</sup> bestimmt. Während beim Cer auch für kleine Proben die Analyseergebnisse zufriedenstellend waren, fand man, daß das Cs<sup>137</sup> in die Randzone gewandert war und nun bei der Entnahme von groben Proben eine Übereinstimmung mit den Ce<sup>144</sup>-Werten erzielt werden konnte.

IV. Tabellen und Diagramme über Spaltprodukte.

J.O.Blomeke, Mary F. Todd

ORNL-2127 Pt.1, Vol.1 and Vol.2, (Nov.1958) 425 Seiten

"U<sup>235</sup>-FISSION PRODUCT PRODUCTION AS A FUNCTION OF THERMAL NEUTRON FLUX, IRRADIATION TIME, AND DECAY TIME"

1. ATOMIC CONCENTRATIONS AND GROSS TOTALS

Für die thermische Spaltung von U<sup>235</sup> im Reaktor-Brennstoff wurde der Spaltprodukt-Pegel über eine weite Spanne von Reaktor- Betriebsbedingungen und Zerfallzeiten errechnet. Die Werte für etwa 300 Spaltprodukte werden in grafischen Darstellungen präsentiert. Für die Gesamt-Spaltprodukte werden Aktivität, Strahlungsleistung und Neutronen-Giftwirkung angegeben. Das Gesamt- $\gamma$ -Spektrum wurde in vier Energiegruppen aufgeteilt, um Abschirmberechnungen zu erleichtern. Alle Berechnungen gehen von einer, während der Bestrahlung konstant bleibenden Menge an U<sup>235</sup> aus.

Ira G.Dillon, Leslie Burris jr.

Nuclear Science and Engineering 2, 567-581 (1957)

"ESTIMATION OF FISSION PRODUCT SPECTRA IN DISCHARGED FUEL FROM FAST REACTORS"

Die Isobaren-Spaltausbeuten für die schnelle Spaltung von U<sup>235</sup> ( 1 MeV Neutronen) und Pu<sup>239</sup> ( ca. 2 MeV Neutronen) wurden errechnet. Für 30 Tage lang bestrahltes U<sup>235</sup> wird in einer ausgedehnten Tabelle die Spaltprodukt-Zusammensetzung nach bestimmten Abklingzeiten (0 Tage bis  $\infty$ ) angegeben.

Weitere Tabellen für 10, 85, 135, 365 und 1000 Tage Bestrahlungsdauer werden für U<sup>235</sup> und Pu<sup>239</sup> von den Autoren auf Wunsch zur Verfügung gestellt. In vier grafischen Darstellungen sind die Energieabgabe (  $\gamma$ -Watt,  $\beta$ -Watt,  $\beta$ - $\gamma$ -Watt) und die Aktivität verschiedener Spaltproduktgemische als Funktion der Abkühlzeit aufgetragen. Die der Errechnung dieser Kurven zugrunde gelegten Formeln werden angegeben.

( 12 Literaturhinweise )

J.M. Fletcher

Progress in Nuclear Energy, Ser.III, Process Chemistry, Vol.1 (1956)  
Appendix III, 380-397

"RADIOACTIVITY OF FISSION PRODUCTS IMPORTANT IN PROCESSING"

Eine Reihe von Formeln für die Berechnung der Spaltproduktaktivitäten in bestrahltem Uran werden angegeben, Eingestreut sind mehrere wichtige Umrechnungsfaktoren.

Elf ganzseitige Diagramme zeigen den Anstieg der Spaltproduktaktivitäten mit der Bestrahlungszeit (bis 1000 Tage) und den Abfall der wichtigsten Spaltprodukte bei Bestrahlungszeiten von 50, 100, 200, 300, 400, und 600 Tagen.

E. Glueckauf

Atomic Energy Waste Interscience Publ. Inc. New York 1961

Pt.1 "THE WASTE MATERIALS OF ATOMIC ENERGY" by G.N.Walton

Der Artikel von G.N.Walton enthält eine Zusammenstellung zahlreicher Tabellen und Diagramme über die Zusammensetzung und Aktivität verschiedener Spaltprodukt-Gemische.

Er enthebt den Besitzer des Buches der Mühe, die zum Teil schwer zugängliche Originalliteratur zu beschaffen.

Bei der Übertragung der Originaltabellen ist dem Autor in Tabelle 11 beim Spalt-Cäsium ein Fehler unterlaufen. Der wichtige Hinweis auf die Existenz des Cs<sup>134</sup> wurde nicht in das Buch mitübernommen.

C.J.L.Lock

REF C/R 1715 ( 1956 )

41 Seiten

"FISSION PRODUCT FORMATION IN A HOMOGENEOUS POWER REACTOR"

Die aus 1 kg natürlichem Uran bei einem thermischen Flux von  $10^{15}$  n/cm<sup>2</sup> sec. gebildeten Spaltproduktaktivitäten wurden für 90, 180, 270 und 360 Tage Bestrahlungsdauer errechnet. Für die gleichen Bestrahlungszeiten wurden außerdem die Mengen Spaltnuklide und die der Spaltelemente bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tabellenform ( 14 Seiten ) wiedergegeben. Weitere Tabellen enthalten die Spaltelemente gruppiert nach Aktivitäten, Massen und Einfangsquerschnitten. Für die wichtigsten Spaltnuklide sind außerdem die Aktivitäten nach 30 Tagen, 1 Jahr und 20 Jahren aufgeführt.

John Moteff

REF-134

"FISSION PRODUCT DECAY GAMMA ENERGY SPECTRUM"

In 46 Diagrammen wird die  $\gamma$ -Aktivität verschiedener Spaltproduktgemische in Abhängigkeit von bestimmten Parametern wiedergegeben.

Die  $\gamma$ -Strahlen werden in Energiegruppen zusammengefaßt und die Aktivität als Funktion der Abklingzeit aufgetragen. Für eine Bestrahlungszeit von 1000 Tagen werden die  $\gamma$ -Spektren des Spaltproduktgemisches nach 1-240 Tagen Abklingzeit angegeben. Die Zerfallsschemata der  $\gamma$ -Strahlen emittierenden Spaltnuklide werden ausführlich angegeben und diskutiert.

(15 Literaturhinweise)

Jan Prawitz, Jan Rydberg

Acta Chemica Scandinavica 12, 377-398 (1958)

"COMPOSITION OF PRODUCTS FORMED BY THERMAL  
NEUTRON FISSION OF U-235"

Die Arbeit enthält 15 ganzseitige Tafeln, von denen die ersten 8 die Abhängigkeit der Spaltelementaktivitäten von der Abkühlzeit für verschiedene Bestrahlungszeiten (1 Tag, 7 Tage...) zeigen. Die Angaben gelten für Neutronenflüsse von  $10^{12}$ ,  $10^{13}$  und  $10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>sec. In den weiteren 7 Tafeln ist für die gleichen Bestrahlungszeiten das Molverhältnis der Spaltelemente gegen die Abkühlzeit aufgetragen.

Für Spaltprodukte mit Halbwertszeiten größer als  $10^4$  Jahre sind die Aktivitäten pro g Spaltproduktgemisch in einer Tabelle aufgeführt.

Die Berechnungen stützen sich auf Kerndaten, die bis zum Juli 1957 in der Literatur erschienen sind.

( 10 Literaturhinweise auf weitere  
Diagramme und Tabellen.)

G.N.Walton, J. Wright

AERE C/R 1231 ( 1953)

"THE SPECTIFIC ACTIVITY OF SEPARATED FISSION  
PRODUCTS FROM REACTOR FUELS"

Die Arbeit besteht im wesentlichen aus einer umfangreichen Tabelle, in der die Zusammensetzung von 100 g Spaltproduktgemisch ( Bestrahlungsdauer 150 Tage, Abkühldauer 30 Tage) angegeben wird. Neben dem Gewicht und der Aktivität jedes Einzelnuclides ist die spezifische Aktivität und das Gewicht der Spaltelemente aufgeführt.