

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM**

**KARLSRUHE**

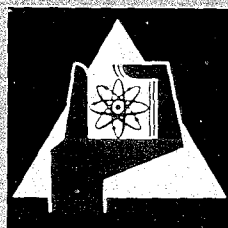
März 1968

KFK 745  
EUR 3711 d

Institut für Material- und Festkörperforschung

Untersuchung von Strahlenschäden in  $ZrO_2$ ,  $ZrN$ ,  $ZrC$  und  $UO_2$ ,  
UN, UC durch Röntgenstrahlenbeugung

W. Dienst, D. Brucklacher



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE

März 1968

KFK 745  
EUR 3711 d

Institut für Material- und Festkörperforschung

Untersuchung von Strahlenschäden in  
ZrO<sub>2</sub>, ZrN, ZrC und UO<sub>2</sub>, UN, UC durch  
Röntgenstrahlenbeugung

von

W.Dienst, D.Brucklacher

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

---

Diese Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe, auf dem Gebiet der schnellen Reaktoren durchgeführt.



## Inhaltsverzeichnis

### Zusammenfassung

1. Versuchsergebnisse aus der Literatur
  - 1.1. UC und UN
  - 1.2.  $UO_2$
  - 1.3. Röntgenreflexverbreiterung durch Spaltfragment-schäden
  - 1.4. Nicht spaltbare keramische Materialien
2. Versuchsbedingungen
3. Versuchsergebnisse nach Bestrahlung
  - 3.1.  $ZrO_2$ , ZrN, ZrC
  - 3.2. UN, UC
4. Diskussion der Versuchsergebnisse
  - 4.1.  $ZrO_2$ , ZrN, ZrC
  - 4.2.  $UO_2$ , UN, UC
5. Schlußfolgerungen

### Zusammenfassung

Pulverproben aus  $ZrO_2$  (kub.stabil.),  $ZrN$ ,  $ZrC$  und  $UN$ ,  $UC$  wurden im Reaktor FR 2 (Karlsruhe) bei Temperaturen unterhalb  $150^\circ C$  bis zu integrierten schnellen Neutronenflüssen von  $2,5 \cdot 10^{19} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 100 \text{ keV}$ ) bzw. bis zu Spaltungsdichten von  $6,4 \cdot 10^{18} \text{ f/cm}^3$  bestrahlt. Mit einem Röntgen-Zählrohrgoniometer für radioaktive Proben wurden die durch Bestrahlung verursachten Änderungen der Gitterkonstanten ( $\Delta a/a \approx 1-5 \cdot 10^{-3}$ ) und der Röntgenreflexbreiten bestimmt.

Die Unterschiede im  $\Delta a/a$ -Sättigungsverlauf für die Zirkon-Verbindungen ließen sich in den Zusammenhang bringen, daß der Widerstand gegen die Bildung von großen Zwischengitteratom-Clustern beim Übergang von überwiegend ionarer zu kovalenter Bindung zunimmt.

Die Ergebnisse für  $UN$ ,  $UC$  wurden mit Literaturergebnissen für  $UO_2$  verglichen. In allen Fällen ergab sich nach der anfänglichen Sättigung der Gitterkonstanten-Vergrößerung ein vorübergehender Abfall, dem sich anscheinend bei den höchsten hier erreichten Spaltungsdichten ein erneuter Anstieg der Gitterkonstanten anschließt. Bei der ersten Sättigung der Gitterkonstanten-Vergrößerung setzte eine starke Röntgenreflexverbreiterung ein, die wahrscheinlich auf die Bildung von großen Zwischengitteratom-Clustern zurückzuführen ist. Alle Bestrahlungseffekte zeigten sich an den  $UN$ -Proben am stärksten ausgeprägt.

Die bisherigen Untersuchungsergebnisse lassen vermuten, daß die Beweglichkeit der Punktdefekte im Gitter der Uran-Verbindungen in der Reihenfolge  $UO_2 \rightarrow UC \rightarrow UN$  abnimmt.

Es ist das Ziel dieser Arbeit, die durch Spaltfragmente verursachten Gitterdefekte in Kernbrennstoffen durch Röntgenfeinstrukturanalyse zu untersuchen. In diesem Rahmen sollten vor allem  $\text{UO}_2$ , UN und UC bezüglich ihrer Defektanfälligkeit miteinander verglichen werden. Weiterhin erschien es wünschenswert, zum Vergleich eine Gruppe isotyper Verbindungen eines anderen Metalles heranzuziehen, um Aufschlüsse über den Einfluß des Kristallgittertyps und der Bindungsverhältnisse im Gitter auf die Defektstruktur zu erhalten. Chemische Verwandtschaft, kernphysikalische Eigenschaften und Beschaffungsmöglichkeit entschieden für die Gruppe  $\text{ZrO}_2$  (kubisch stabilisiert), ZrN, ZrC. Die Zirkonverbindungen wurden in erster Linie mit Neutronen und versuchsweise mit Spaltfragmenten bestrahlt.

## 1. Versuchsergebnisse aus der Literatur

Zur Aufstellung eines sinnvollen Bestrahlungsversuchsprogrammes wurden die in der Literatur vorliegenden Angaben über die Erzeugung von Gitterdefekten durch Spaltfragmente oder schnelle Neutronen in  $\text{UO}_2$ , UN und UC bzw. in nichtspaltbaren keramischen Materialien isotypen oder ähnlichen Kristallgitterbaus herangezogen.

### 1.1. UC und UN

Die relativ wenigen Ergebnisse von Röntgenfeinstrukturuntersuchungen an bestrahlten Kernbrennstoffen geben für UC und UN ein einheitlicheres Bild als für  $\text{UO}_2$ . Alle Messungen an UC wurden nach Bestrahlung bei Temperaturen unterhalb  $250^\circ\text{C}$ , meistens sogar unterhalb  $100^\circ\text{C}$  durchgeführt. Die Gitterkonstante  $a$  stieg etwa proportional mit der Spaltungsdichte bis  $1 \cdot 10^{16} \text{ f/cm}^3$  um 0,8% an; bei höheren Spaltungsdichten wurde der Anstieg schwächer und führte bei  $1 - 5 \cdot 10^{17} \text{ f/cm}^3$  und 1,5 - 1,6% zur Sättigung (1, 2, 3). Auch noch nach  $7 \cdot 10^{19} \text{ f/cm}^3$  wurde in UC für  $\Delta a/a$  dieser Sättigungswert erhalten (4). Röntgenreflexbreiten wurden nur für Spaltungsdichten oberhalb  $3 \cdot 10^{18} \text{ f/cm}^3$  gemessen (4) und zeigten dort einen deutlichen Anstieg mit der Spaltungsdichte, der sich

oberhalb von  $5 \cdot 10^{19}$  f/cm<sup>3</sup> erheblich zu verstärken schien. Für UN deckte sich der Verlauf von  $\Delta a/a$  bis zur Sättigung (1,6 - 1,7% bei etwa  $5 \cdot 10^{17}$  f/cm<sup>3</sup>) innerhalb der Schwankung der Versuchsergebnisse mit den Meßwerten für UC (1).

Bei Erholungsglühungen nach einer Bestrahlung bis zur Sättigung von  $\Delta a/a$  ging die Gitterkonstantenänderung für UC in drei Stufen bei 100 - 250°C, 400 - 550°C und 750 - 1000°C zu etwa 65%, 20% bzw. 15% zurück (2, 5); im Bereich des linearen Anstieges von  $\Delta a/a$  mit der Spaltungsdichte fand dagegen die gesamte Ausheilung noch in der ersten Stufe statt. Für UN lagen die beiden ersten Ausheilungsstufen bei etwas höheren Temperaturen und waren weniger wirksam (150 - 250 und 500 - 650°C bzw. 30 und 40%), die restliche Ausheilung bei höheren Temperaturen (30%) wurde noch nicht untersucht (5).

Die drei Erholungsstufen wurden der Rekombination von isolierten -evtl. auch in kleinen Clustern vorliegenden- Zwischengitteratomen und Leerstellen, der Umformung von komplexen Defektclustern bzw. der Ausheilung isolierter Leerstellen durch Leerstellendiffusion zugeordnet (2, 5).

## 1.2. UO<sub>2</sub>

Die Ergebnisse von Röntgenfeinstrukturuntersuchungen an bei tiefen Temperaturen (meistens < 100°C) bestrahltem UO<sub>2</sub> reichen bis zu höheren Spaltungsdichten und zeigen einen bewegteren Verlauf der Gitterkonstantenänderung durch Bestrahlung an. Offenbar erreicht hier  $\Delta a/a$  bereits zwischen  $1 \cdot 10^{16}$  und  $1 \cdot 10^{17}$  f/cm<sup>3</sup> einen Sättigungswert von maximal nur etwa 1,0% (6, 7, 8). Während in einigen Versuchsreihen (6, 7) über einen breiten Bereich der Spaltungsdichte -nach (6) bis oberhalb  $5 \cdot 10^{20}$  f/cm<sup>3</sup>-  $\Delta a/a$ -Sättigungswerte von etwa 1,0% beobachtet wurden, ergaben andere schon bei etwa  $10^{17}$  f/cm<sup>3</sup> einen Wiederabfall auf  $\Delta a/a = 0,5 - 0,6\%$  (8) bzw. bei  $2-3 \cdot 10^{18}$  f/cm<sup>3</sup> nur  $\Delta a/a$ -Werte von 0,2 - 0,5% (9, 10).



Im ersten Fall erschienen die Röntgenreflexe nur geringfügig, im letzten dagegen stark verbreitert. Diese Kombination -relativ niedriger  $\Delta a/a$ -Wert mit starker Reflexverbreiterung- scheint durch erhöhte Bestrahlungstemperatur begünstigt zu werden (8, 10). Der Beginn deutlich nachweisbarer Reflexverbreiterung mit steigender Spaltungsdichte dürfte bei etwa  $1 \cdot 10^{17}$  f/cm<sup>3</sup> liegen (8, 11).

Die Erholung der Gitterkonstanten durch Glühung nach Bestrahlung lief in einer Stufe, die bei 200°C begann und in einer Gruppe unscharfer Stufen zwischen 400 und 800°C je zu etwa 50% ab und war meistens bei 800 - 1000°C vollständig (7, 8).

### 1.3. Röntgenreflexverbreiterung durch Spaltfragmentschäden

Die Vergrößerung der Gitterkonstanten bei niedrigen Spaltungsdichten ( $< 5 \cdot 10^{17}$  f/cm<sup>3</sup>) wird im allgemeinen auf die Bildung von isolierten oder in kleinen ungeordneten Clustern vorliegenden Zwischengitteratomen und Leerstellen in einer sich schnell sättigenden Konzentration zurückgeführt. Die später einsetzende starke Röntgenreflexverbreiterung wird dagegen mit dem Aufbau von Mikrospannungen und/oder der Verkleinerung der Kohärenzlänge durch Bildung von Versetzungen und Versetzungszellstrukturen (Kornfragmentation) in Zusammenhang gebracht (4, 6, 8, 9, 10, 11). Diese Deutung wird durch elektronenmikroskopische Beobachtungen stark gestützt (12, 13). Danach werden in UO<sub>2</sub> bei etwa  $3 \cdot 10^{17}$  f/cm<sup>3</sup> erste Versetzungsschleifen nachweisbar, deren Dichte zunächst näherungsweise linear mit der Spaltungsdichte zunimmt. Nach etwa  $10^{18}$  f/cm<sup>3</sup> beginnen die Versetzungen ein Netzwerk zu bilden. Die Zunahme der Versetzungsdichte mit der Spaltungsdichte hält auch bei  $10^{19}$  f/cm<sup>3</sup> noch an.

Diese Hinweise führen zu der Folgerung, daß sich ein Zusammenhang zwischen den Gitterschäden in bestrahlten Kernbrennstoffen und dem Verlauf der Spaltproduktausscheidung sowie einem entsprechenden Anteil der mechanischen Eigenschaftsänderungen unter Bestrahlung vor allem durch Auswertung der Röntgenreflexverbreiterung finden lassen sollte. Über die Vergrößerung der Rönt-

genreflexbreiten von  $\text{UO}_2$ , UN und UC unter Neutronenbestrahlung liegen bisher nur wenige, meistens qualitative Angaben vor; ihre thermische Erholung wurde bisher nicht näher beschrieben.

#### 1.4. Nicht spaltbare keramische Materialien

Das keineswegs geschlossene Bild, das die Ergebnisse von Röntgenfeinstrukturuntersuchungen an bestrahltem  $\text{UO}_2$ , UN und UC vermitteln, legte einen Vergleich mit derartigen Ergebnissen für bestrahlte nicht spaltbare Materialien nahe. Auch im Hinblick auf die im folgenden beschriebenen Untersuchungen an bestrahltem  $\text{ZrO}_2$  (kubisch stabil.), ZrN und ZrC ist ein Hinweis auf entsprechende Angaben in der Literatur erforderlich. Zum Vergleich kommen hier nur Bestrahlungsversuche mit schnellen Neutronen in Frage, deren Bestrahlungsdosis im allgemeinen durch den integrierten Fluß von Neutronen mit Energiewerten oberhalb 1 MeV bezeichnet ist.

Die in der Literatur vorliegenden Angaben über Bestrahlungsversuche an nichtspaltbaren keramischen Materialien beziehen sich meistens auf die Oxide BeO, MgO und  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Von diesen sollen hier nur die Ergebnisse für das nach dem NaCl-Typ kristallisierende MgO herangezogen werden, die im übrigen vom Bestrahlungsverhalten der BeO- und  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Proben unter den hier hervorgehobenen Gesichtspunkten nicht entscheidend abweichen.

Durch Neutronenbestrahlung von MgO bei niedrigen Temperaturen (50 - 150°C) stieg  $\Delta a/a$  etwa proportional mit dem integrierten Neutronenfluß auf 1,4% bei  $7 \cdot 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup>, sättigte sich bei etwa 2,1% und  $1 - 2 \cdot 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> und fiel oberhalb von  $2 \cdot 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> wieder -auf etwa 0,5% bei  $4,5 \cdot 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup>- ab (14, 15). Dieser Verlauf wurde durch Agglomeration von zunächst isoliert vorliegenden Punktdefekten bei hinreichend hoher Konzentration gedeutet. Bei Sättigung von  $\Delta a/a$  (oberhalb  $1 \cdot 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup>) begann eine starke Verbreiterung der Röntgenreflexe, die sich wahrscheinlich bis mindestens  $4 \cdot 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> fortsetzt (16).

Bei Glühbehandlungen der Proben nach Bestrahlung erholte sich die Gitterkonstante bei Temperaturen bis etwa  $1000^{\circ}\text{C}$  ( $\Delta a/a \rightarrow 0$ ). Die Erholung der Röntgenreflexbreite wurde nicht direkt untersucht (für BeO erfolgte sie bei  $1000 - 1400^{\circ}\text{C}$ ). Da die Reflexverbreiterung jedoch in engem Zusammenhang mit der durch Bestrahlung erzeugten Versetzungsstruktur steht (s. z.B. [17]), dürfte sich ihr Ausheilungstemperaturbereich etwa mit dem anderer Versetzungseffekte (anteilige Volumenvergrößerung, elektronenmikroskopischer Kontrast [14, 16, 18]) decken; dieser liegt zwischen  $1200$  und  $2000^{\circ}\text{C}$  und wird mit steigendem integrierten Neutronenfluß ( $3 \cdot 10^{19} - 4 \cdot 10^{20} \text{ n/cm}^2$ ) zu höheren Temperaturen hin verschoben.

Über Feinstrukturuntersuchungen an bestrahlten Zirkonverbindungen, die zum unmittelbaren Vergleich mit Ergebnissen dieser Arbeit herangezogen werden könnten, liegen nur sehr wenige Angaben vor. Nach diesen ergab sich für kubisch stabilisiertes  $\text{ZrO}_2$  nach  $1 \cdot 10^{20} \text{ n/cm}^2$   $\Delta a/a = 3\%$  (15).  $\text{ZrC}$  zeigte nach Bestrahlung mit  $1,4 \cdot 10^{21} \text{ n/cm}^2$  eine Gitteraufweitung  $\Delta a/a = 5,3\%$  (19); die vergleichsweise viel höhere äußere Probenvolumenvergrößerung ( $\Delta V/V = 2,6\%$ ) deutet darauf hin, daß der Sättigungsbereich von  $\Delta a/a$  erreicht war.

## 2. Versuchsbedingungen

Als Kernbrennstoffproben wurden Pulver aus natürlichem, fast stöchiometrischem UC (4,83 Gew.-% C, 0,03 Gew.-% N,  $a = 4,960 \pm 0,001 \text{ \AA}$ ) und UN (5,52 Gew.-% N, 0,04 Gew.-% C,  $a = 4,889 \pm 0,001 \text{ \AA}$ ) verwendet. Der Einsatz von  $\text{UO}_2$ -Proben ist erst später für höhere Spaltungsdichten vorgesehen, weil in dem hier untersuchten Spaltungsdichtebereich hinreichend zuverlässig erscheinende Literaturergebnisse aus Bestrahlungsversuchen an  $\text{UO}_2$  zur Verfügung standen. Die nicht spaltbaren Proben bestanden aus handelsüblichen  $\text{ZrC}$ -,  $\text{ZrN}$ - und  $\text{ZrO}_2$  (mit 4,8% CaO kubisch stabilisiert)-Pulvern mit Gitterkonstanten  $a = 4,692, 4,575$  bzw.  $5,111 \pm 0,001 \text{ \AA}$ .

Die Pulverproben wurden in Mengen von je 0,05 - 0,2 g in entsprechend sehr flache, runde Näpflchen aus Aluminium oder Titan mit 15 mm Innendurchmesser gepreßt. Zur Bestrahlung im Reaktor FR 2 (Karlsruhe) wurden die scheibenförmigen Probenträger unter Helium in Aluminiumkapseln eingeschweißt. Die Bestrahlungstemperatur lag für die Uranverbindungen unterhalb 130°C, für die Zirkonverbindungen unterhalb 150°C.

Die Uranverbindungen wurden mit einem thermischen Neutronenfluß von  $2 \cdot 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>.s bestrahlt; der schnelle Neutronenfluß (E>100keV) betrug etwa  $7 \cdot 10^{11}$  n/cm<sup>2</sup>.s. Die Proben wurden mit solchen aus den entsprechenden Zirkonverbindungen so gepaart (UC mit ZrC, UN mit ZrN), daß sich die Probenoberflächen während der Bestrahlung mit 0,2 mm Abstand (durch einen Al-Zwischenring) gegenüberlagen. Auf diese Weise wurde auch eine maximal 10 µm dicke Schicht (entspr. Reichweite der Spaltfragmente) unter der Probenoberfläche der Zirkonverbindungen mit Spaltfragmenten bestrahlt; der Spaltfragment"fluß" durch die Probenoberfläche betrug etwa  $5 \cdot 10^8$  ff/cm<sup>2</sup>.s. Zur Untersuchung der durch Neutronenbestrahlung verursachten Gitterschäden wurden Proben aus den Zirkonverbindungen einzeln bestrahlt; in diesen Fällen betrug thermischer und schneller Neutronenfluß  $9 \cdot 10^{13}$  bzw.  $4 \cdot 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>.s.

Die für die Bestrahlungsversuche gewählten integrierten Neutronenflüsse entsprachen in den Uranverbindungen Spaltungsdichten von  $7 \cdot 10^{15}$  bis  $6,4 \cdot 10^{18}$  f/cm<sup>3</sup>. Die Einzelproben aus den Zirkonverbindungen wurden mit integrierten schnellen Neutronenflüssen von  $6 \cdot 10^{18}$ ,  $1,3 \cdot 10^{19}$  und  $2,5 \cdot 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> (E>100 keV) bestrahlt. Integrierte Neutronenflüsse in der Größenordnung von  $10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> hätten im FR 2 Bestrahlungszeiten von etwa 1 Jahr und mehr erfordert, die für diese Untersuchungen nicht tragbar erschienen.

Die bestrahlten Proben wurden -unter Vergleich mit unbestrahlten Proben- auf einem fernbedienbaren Röntgenstrahlengoniometer untersucht, das eine Knickung des gebeugten Strahlenganges durch Reflexion an einem LiF-Kristall und eine starke Bleiabschirmung zwischen Probe und Proportionalzählrohr (mit nachgeschaltetem Impuls-

diskriminator) aufwies. Proben mit einer Radioaktivität bis zu etwa 1 Ci konnten ohne wesentliche Schwierigkeiten verwendet werden. Die relative Ungenauigkeit der bestimmten Gitterkonstantenänderungen betrug  $\pm 1,5 \cdot 10^{-4}$ . Die Meßapparatur und das Auswertungsverfahren wurden an anderer Stelle beschrieben (20).

Da ein Vergleich der Röntgenreflexverbreiterung zwischen den verschiedenen Probensubstanzen erforderlich war, wurde die scheinbare Gitterverzerrung  $\eta$  über die bekannte Beziehung  $\eta = \beta / \tan \theta$  berechnet, in der  $\beta$  die Vergrößerung der Röntgenreflex-Halbwertsbreite (bezüglich des Glanzwinkels  $\theta$ ) gegenüber Vergleichsproben mit praktisch fehlerfreier Kristallstruktur bedeutet. Die Fehlergrenze für die angegebenen  $\eta$ -Werte liegt bei  $\pm 20\%$  relativer Abweichung. Eine wesentliche Reflexverbreiterung durch Kornfragmentation unter Bestrahlung wurde nach den hier gewählten niedrigen Spaltungsdichten und Neutronendosen als ausgeschlossen angesehen.

### 3. Versuchsergebnisse nach Bestrahlung

#### 3.1 ZrO<sub>2</sub>, ZrN und ZrC

In Bild 1 sind die Änderung der Gitterkonstanten und die scheinbare Gitterverzerrung von ZrO<sub>2</sub>, ZrN und ZrC durch Neutronenbestrahlung in Abhängigkeit vom integrierten schnellen Neutronenfluß dargestellt. Dieses Verfahren erscheint berechtigt, weil auch in dem relativ weichen Neutronenspektrum des FR 2 die durch (n,  $\gamma$ )-Rückstöße je Zeiteinheit übertragene Translationsenergie für alle Gitteratome mindestens um den Faktor 100 (etwa für Zr) niedriger liegt als diejenige aus elastischen Neutronenstößen. Allerdings muß für ZrN bei Diskussion der Ergebnisse noch die Gitterdefekterzeugung durch die N 14 (n, p) C 14-Reaktion berücksichtigt werden.

Zur Ermittlung der in Bild 1 verwendeten Werte wurden für ZrO<sub>2</sub> die Reflexe der Indizierung (600, 442) und (620), für ZrN (511, 333) und (440), für ZrC (531) und (600, 442) herangezogen. Die

Reflexbreitenmessung erfolgte für  $\text{ZrO}_2$ -(620),  $\text{ZrN}$ -(511, 333) und  $\text{ZrC}$ -(531);  $\text{ZrN}$ -(440) und  $\text{ZrC}$ -(600, 442) waren in dieser Beziehung nicht mehr befriedigend auswertbar.

Aus Bild 1 läßt sich im einzelnen entnehmen, daß die Gitterkonstantenvergrößerung  $\Delta a/a$  für alle drei Zirkonverbindungen bei  $2,5 \cdot 10^{19} \text{ n/cm}^2$  gesättigt erscheint. Die Anfangsanstiege von  $\Delta a/a$  mit dem integrierten Neutronenfluß stimmen näherungsweise überein, aber die Sättigungswerte nehmen in der Reihenfolge  $\text{ZrO}_2 \rightarrow \text{ZrN} \rightarrow \text{ZrC}$  zu und stehen etwa im Verhältnis 1:3:4,8. Lokale Gitterverzerrungen durch die Bestrahlung sind in  $\text{ZrO}_2$  bis  $2,5 \cdot 10^{19} \text{ n/cm}^2$  nicht sicher nachweisbar. Dagegen ergibt sich für  $\text{ZrN}$  und  $\text{ZrC}$  gleichzeitig mit der Vergrößerung der Gitterkonstanten eine sehr deutliche Verbreiterung der Röntgenreflexe.

Für die Ergebnisse nach Spaltfragment-Bestrahlung von  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{ZrN}$  und  $\text{ZrC}$  wurde die "scheinbare Spaltungsdichte" aus der Geometrie der Bestrahlungsanordnung und einer Spaltproduktreichweite in den Zirkonverbindungen von 6 - 8  $\mu\text{m}$  abgeschätzt. Die Auswertung der Röntgenreflexe war hier durch die Tatsache erschwert, daß die begrenzte und je nach Energie verschiedene Eindringtiefe der Spaltfragmente ein kompliziertes Schädigungsprofil über der Probentiefe ergibt, das zu einem entsprechenden Röntgenreflexprofil der bestrahlten Proben führt; denn die Eindringtiefe der verwendeten  $\text{CuK}\alpha$ -Röntgenstrahlung ist etwas größer als die der Spaltfragmente. Dieses Profil ist nur für  $\text{ZrC}$  erkennbar, weil es hier durch die sehr großen  $\Delta a/a$ -Werte stark gespreizt wird; Bild 2 zeigt als Beispiel den  $\text{ZrC}$  (531)-Reflex nach  $5,1 \cdot 10^{17} \text{ f/cm}^3$ . Für  $\text{ZrN}$  und  $\text{ZrO}_2$  führt dieses Profil nur zu einer scheinbaren Reflexverbreiterung, die den ermittelten  $\Delta a/a$ -Anstieg mit der scheinbaren Spaltungsdichte verringert und eine  $\eta$ -Bestimmung unmöglich macht.

Nur  $\text{ZrC}$  bietet eine auswertbare vordere Reflexflanke (entsprechend maximalem  $\Delta a/a$ ), die der Gitterstruktur der am stärksten geschädigten Probenschicht entspricht. Die aus der Lage und Form dieser Flanke bestimmten  $\Delta a/a$ -Werte sind als brauchbar anzusehen. Ferner sollten auch die  $\Delta a/a$ -Sättigungswerte für  $\text{ZrN}$  und

ZrO<sub>2</sub> zutreffend sein; sie werden jedoch bei zu hoch angegebener scheinbarer Spaltungsdichte erreicht. Die  $\Delta a/a$ -Sättigungswerte ordnen sich auch hier in der Reihenfolge ZrO<sub>2</sub> → ZrN → ZrC von 1,0% bis 5,4% steigend. Der anfängliche  $\Delta a/a$ -Anstieg im ZrC beträgt etwa  $1 \cdot 10^{-19} / \text{"f/cm}^3\text{"}$ .

### 3.2. UN, UC

Bild 3 zeigt die Änderung der Gitterkonstanten und die scheinbare Gitterverzerrung von UN und UC in Abhängigkeit von der Spaltungsdichte. Hier liegt die Gitterdefekterzeugungsrate durch Stöße schneller Neutronen und (n,  $\gamma$ )-Rückstöße sowie durch N 14 ( $n_{th,p}$ ) C 14-Rückstöße in UN größenordnungsmäßig um Faktoren  $10^3$ - $10^4$  niedriger als die Defekterzeugungsrate durch Spaltfragmente. Zur Ermittlung der in Bild 3 verwendeten Werte wurden die Reflexe (531), (600, 442) und (620), z.T. auch (440) herangezogen.

Die graphische Darstellung der Ergebnisse (bis  $5 \cdot 10^{16} \text{ f/cm}^3$  mit gedehntem Spaltungsdichte-Maßstab) ergibt einen übersichtlichen Zusammenhang.  $\Delta a/a$  zeigt einen bis etwa  $1 \cdot 10^{16} \text{ f/cm}^3$  linearen Anstieg mit der Spaltungsdichte. Die anschließend erkennbare Sättigungstendenz führt für UC bei ca.  $1 \cdot 10^{17}$ , für UN bei ca.  $8 \cdot 10^{17} \text{ f/cm}^3$  zur Sättigung der Gitterkonstantenvergrößerung bei  $\Delta a/a$ -Werten von etwa 1,4 bzw.  $2,1 \cdot 10^{-3}$ . Oberhalb dieser Spaltungsdichten nimmt  $\Delta a/a$  wieder ab, erreicht nach  $2-4 \cdot 10^{18} \text{ f/cm}^3$  ein Minimum und steigt anschliessend an.

Die Vergrößerung der scheinbaren Gitterverzerrung setzt für UN erst bei weit fortgeschrittener Sättigung von  $\Delta a/a$  ab  $1 \cdot 10^{17} \text{ f/cm}^3$  ein. Sie verläuft dann zunächst sehr steil, sättigt sich jedoch schon im Bereich des  $\Delta a/a$ -Minimums ( $3-4 \cdot 10^{18} \text{ f/cm}^3$ ). Die scheinbare Gitterverzerrung von UC zeigt -nach einer sprunghaften anfänglichen Vergrößerung- einen viel gleichmäßigeren Anstieg, der allerdings ebenfalls mit steigender Spaltungsdichte abnimmt.

Insgesamt zeigten die UN- und UC-Proben ähnliche Effekte, die jedoch für UN viel ausgeprägter in Erscheinung treten.

#### 4. Diskussion der Versuchsergebnisse

##### 4.1. ZrO<sub>2</sub>, ZrN, ZrC

Für die folgenden Erörterungen wird von vornherein angenommen, daß die Punktdefekt-Erzeugungsrate im Metallatom-Gitter der drei Zirkonverbindungen bei gleichem Neutronen- oder Spaltfragmentfluß gleich ist. Dasselbe gilt später auch für die untersuchten Uran-Verbindungen. Diese Annahme ist durch die hohe Wahrscheinlichkeit gerechtfertigt, daß die relativen Abweichungen zwischen den Defekterzeugungsraten der verschiedenen Zirkon- (bzw. Uran-) Verbindungen kleiner sind als die möglichen Fehler im Anfangsanstieg der  $\Delta a/a$ -Kurven und die relativen gegenseitigen Abweichungen der  $\Delta a/a$ -Sättigungswerte für die verschiedenen Proben-substanzen, auf die sich die folgende Analyse der gemessenen Kurven stützt. Diese Wahrscheinlichkeit wiederum ergibt sich dadurch, dass hier 1) die Stoßenergie-Übertragung über die Nichtmetall-Gitteratome vernachlässigt werden kann (s.a. S.14), 2) die Verlagerungsschwellenergie für die Metallatome aller untersuchten Verbindungen etwa zu  $12 \text{ eV} \pm 20\%$  gewählt werden kann (21) und 3) die spontane Rekombinationsrate in erster Näherung als gleich anzunehmen ist.

Die  $\Delta a/a$ -Kurven für ZrO<sub>2</sub>, ZrN und ZrC in Bild 1 zeigen einen Verlauf, dessen Anfangsteil sich bei Punktdefektausheilung durch Rekombination im Stoßkaskadenbereich (21) oder an festen Senken durch eine zeitliche Defektkonzentrationsänderung

$$dc/dt = K (1 - c/c_{\text{Sätt.}})$$

und damit durch einen Konzentrationsverlauf

$$c = c_{\text{Sätt.}} [1 - \exp(-Kt/c_{\text{Sätt.}})]$$

beschreiben läßt; K ist hier die Defekterzeugungsgeschwindigkeit. Die folgenden Schlüsse treffen übrigens auch auf die Lösung einer Gleichung  $dc/dt = K(1 - kc^2)$  zu, wie sie sich für homogene Rekombination oder Ausheilung an Defektclustern ergibt, deren Anzahl der Defektkonzentration proportional ist.

Wenn die Unterschiede in den  $\delta a (= \Delta a/a)$ -Sättigungswerten nur durch einen verschiedenen Volumenbedarf der durch Bestrahlung er-



zeugten Frenkel-Paare in den verschiedenen Substanzen bedingt wären, d.h. wenn  $K$  und  $c_{\text{Sätt.}}$  gleich wären, würden die Kurven

$$\delta a = \delta a_{\text{Sätt.}} \cdot (1 - \exp[-(d\delta a/dt)_0 \cdot t / \delta a_{\text{Sätt.}}])$$

wegen gleichem  $(d\delta a/dt)_0 / \delta a_{\text{Sätt.}}$  untereinander ähnlich sein. Dem widersprechen jedoch der anfänglich näherungsweise deckende Verlauf und die nicht übereinstimmenden Halbwertsneutronendosen der drei Kurven in Bild 1.

Viel zwangloser ergibt sich -bei einer durchaus möglichen Verlegung der  $\Delta a/a_{\text{ZrN}}$ -Kurve in etwas stärker konvexer Form- eine Kurvenfolge, in der die Halbwertsneutronendosen etwa im Verhältnis der  $\Delta a/a$ -Sättigungswerte stehen (ca. 4,8:3:1). Dann würden sich gleiche  $(d\delta a/dt)_0$ -Werte ergeben -was dem tatsächlichen Kurvenverlauf gut entspricht- und damit gleicher Volumenbedarf (in Atomvolumen) je Frenkelpaar. Die unterschiedlichen  $\Delta a/a$ -Sättigungswerte sind dann auf verschiedene Sättigungskonzentrationen an isolierten Punktdefekten zurückzuführen.

Die Unterschiede in der Defektkonzentration überwiegen hier demnach in ihrem Einfluß auf die Einstellung der verschiedenen  $\Delta a/a$ -Sättigungswerte gegenüber dem Einfluß verschiedenen Defektvolumenbedarfes. Das heißt aber, daß sich in den Zirkonverbindungen in der Reihenfolge  $\text{ZrO}_2 \rightarrow \text{ZrN} \rightarrow \text{ZrC}$  steigende Punktdefekt-Sättigungskonzentrationen einstellen, die durch eine abnehmende Tendenz zur Defektcluster-Bildung bedingt sein dürften<sup>\*)</sup>. Diese kann mit dem in der gleichen Folge gegebenen Übergang von ionarer zu kovalenter Bindung zusammenhängen (einige Vergleichsmessungen an  $\text{CeO}_2$  und VN ergaben  $(\Delta a/a)_{\text{Sätt.}} \approx 2 \cdot 10^{-3}$  bzw.  $\geq 3 \cdot 10^{-3}$ ).

---

\*) Der  $\Delta a/a$ -Verlauf entspricht im wesentlichen einer Sättigung der Zwischengitteratom-Konzentration. Nach den vorliegenden Kenntnissen erfolgt die Ausheilung der Zwischengitteratome bei weit fortgeschrittener  $\Delta a/a$ -Sättigung überwiegend durch Cluster-Bildung (s.a. Abschnitt 1.3).

Wahrscheinlich macht die gerichtete kovalente Bindung die Keimbildung und das Wachstum von geordneten Zwischengitteratom-Clustern (evtl. handelt es sich sogar um Zwischengitter"moleküle") viel schwieriger als die weniger starre ionare Bindung.

Die beobachtete Folge läßt keinen eindeutigen Schluß darüber zu, ob neben dem deutlichen Einfluß des Bindungscharakters noch der Gittertyp eine wesentliche Rolle spielt. Der aus der Literatur entnommene  $(\Delta a/a)_{\text{Sätt.}}$ -Wert von MgO liegt mit  $2,1 \cdot 10^{-3}$  relativ hoch und könnte darauf hindeuten, daß auch bei überwiegend ionarer Bindung die Defektclusterbildung im NaCl-Gittertyp relativ zum  $\text{CaF}_2$ -Gittertyp stärker behindert ist.

Die scheinbare Gitterverzerrung  $\eta$  scheint einen Hinweis auf die Größe der ersten Defektcluster zu geben. In  $\text{ZrO}_2$  dürfte die Defektausheilung anfänglich überwiegend durch Rekombination oder -bei leichter Keimbildung- Bildung vieler kleiner, nur schwach geordneter Cluster ablaufen, die noch keine nachweisbare Gitterverzerrung ergeben. In ZrN und ZrC erfolgt die Ausheilung dagegen unter Bildung relativ weniger großer Cluster, die sehr schnell zu einer starken Gitterverzerrung führen.

Aus dem Anfangsanstieg von  $\Delta a/a$  mit dem Wert  $(d\Delta a/dt)_0 = 0,9 - 1 \cdot 10^{-3} / 10^{18} n_s / \text{cm}^2$  läßt sich die Frenkelpaar-Erzeugungsrates für die Zirkonverbindungen bei Bestrahlung mit schnellen Neutronen ( $E > 100 \text{ keV}$ ) abschätzen. Wenn ein durch verschiedene experimentelle und theoretische Abschätzungen in der Literatur wahrscheinlich gemachter mittlerer zusätzlicher Volumenbedarf von drei Gitterplatzvolumen je Frenkelpaar angenommen wird, so ergibt sich eine Erzeugungsrates von etwa 140 Frenkelp./Neutronenstoß (mit  $\sigma_{\text{elast.}} \approx 7 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$  für Zr). Da für die Zirkonatome mit einer mittleren Energieübertragung von etwa 30 keV je Neutronenstoß und der folgenden Bildung von etwa 800 Frenkelpaaren zu rechnen ist, hat also innerhalb jeder Stoßkaskade im Zirkongitter im Mittel eine etwa 80%ige spontane Ausheilung der erzeugten Frenkelpaare stattgefunden.

In diesem Zusammenhang kann aus dem Ergebnis, daß der  $\Delta a/a$ -Anstieg für ZrN keine Beschleunigung in Bezug auf die Abhängigkeit vom integrierten Neutronenfluß zeigt, auf einen vernachlässigbar geringen Anteil der N 14 ( $n_{th}$ , p) C 14-Reaktion an der Defekterzeugung im Zr-Teilgitter geschlossen werden. Dieses Ergebnis dürfte auf die hohe Ionisierung und Ionisierungswirkung des Rückstoß-C-Atoms, die nur einen geringen Anteil der Rückstoßenergie zur Übertragung in Atomstößen übrig lassen, und auf die relativ schlechte Stoßenergieübertragung auf die schweren Zr-Atome zurückzuführen sein.

Aus den Ergebnissen nach Spaltfragment-Bestrahlung der Zirkonverbindungen läßt sich wegen der früher erwähnten abflachenden Verzerrung des  $\Delta a/a$ -Anstieges von  $ZrO_2$  und ZrN nur für ZrC ein Vergleich der Frenkelpaar-Erzeugungsraten bei Neutronen- und Spaltfragmentbestrahlung ziehen. Aus den anfänglichen  $\Delta a/a$ -Anstiegen von  $1 \cdot 10^{-21}/n_s/cm^2$  und ca.  $1 \cdot 10^{-19}/f/cm^3$  kann abgeschätzt werden, daß in ZrC durch ein Spaltfragment im Mittel 10 bis 15-mal so viele Frenkelpaare erzeugt wurden, wie durch den Stoß eines schnellen Neutrons. Die Sättigungswerte von  $\Delta a/a$  und damit die maximalen Punktdefektkonzentrationen erreichen ähnliche Werte wie unter Neutronenbestrahlung.

#### 4.2. $UO_2$ , UN, UC

Aus dem anfänglichen Anstieg der  $\Delta a/a$ -Kurven für  $UO_2$ , UN und UC (Bild 3 und 4) läßt sich ebenfalls die entsprechende Frenkelpaar-Erzeugungsrates abschätzen. Sie beträgt etwa  $7 \cdot 10^{-20}/f/cm^3$ , wenn ein zusätzlicher Volumenbedarf von drei Atomvolumen je Frenkelpaar angenommen wird. Sie stimmt für alle drei Brennstoffe innerhalb der Meßwertschwankungen überein (für UC s.a. [2]) und entspricht etwa 2100 Frenkelp./Spaltung. Wird nun für diese Defekte der gleiche Anteil spontaner Ausheilung angenommen, wie er für die Zirkonverbindungen unter Neutronenbestrahlung abgeschätzt wurde, so ergibt sich (mit einem mittleren Energieaufwand von 40 eV je Frenkelpaar) eine Energie von etwa 0,5 MeV je Spaltung,

die zur Erzeugung von Gitterdefekten verbraucht wird, d.h. also nur 3% der Spaltfragmentenergie.

Die obigen Betrachtungen über die  $\Delta a/a$ -Kurvenformen der Zirkonverbindungen sind hier sinngemäß zutreffend. Aus Literaturangaben (1, 2, 3, 7, 8) und den Kurven in Bild 3 und 4 lassen sich für  $UO_2$ , UC und UN die folgenden mittleren  $\Delta a/a$ -Halbwerts-Spaltungsdichten und  $\Delta a/a$ -Maximalwerte entnehmen:  $7 \cdot 10^{15}$  f/cm<sup>3</sup> und  $0,85 \cdot 10^{-3}$ ,  $1,3 \cdot 10^{16}$  f/cm<sup>3</sup> und  $1,5 \cdot 10^{-3}$  bzw.  $1,4 \cdot 10^{16}$  f/cm<sup>3</sup> und  $1,9 \cdot 10^{-3}$ . Auch hier läßt sich die Folgerung ziehen, daß die beobachteten Unterschiede in den  $\Delta a/a$ -Sättigungswerten überwiegend auf verschiedene Sättigungskonzentrationen der isolierten Punktdefekte zurückzuführen sind. Dieser Schluß wird hier zusätzlich durch die Beobachtung gestützt, daß die Spaltungsdichten, bei denen die Maximalwerte von  $\Delta a/a$  erreicht werden, eine noch breitere Auffächerung zeigen als die Halbwerts-Spaltungsdichten. Sie betragen nach den oben erwähnten Angaben für  $UO_2$ , UC und UN im Mittel  $4 \cdot 10^{16}$ ,  $1 \cdot 10^{17}$  bzw.  $5 \cdot 10^{17}$  f/cm<sup>3</sup>.

Im Anschluß an die Diskussion der Ergebnisse für  $ZrO_2$ , ZrN und ZrC ergibt sich die Folgerung, daß die Geschwindigkeit der Defektclusterbildung in der Reihenfolge  $UO_2 \rightarrow UC \rightarrow UN$  abnimmt. Diese Folge läßt sich hier jedoch nicht mit einem eindeutigen Übergang des Gitterbindungstyps in Zusammenhang bringen, weil sich die Gitterbindung in diesen Uranverbindungen in recht komplizierter Weise aus ionaren, kovalenten und metallischen Anteilen zusammensetzt. Es verbleibt -zunächst ohne weitere Deutung- der Schluß, daß wahrscheinlich die Beweglichkeit der Defekte im Gitter in der Reihenfolge  $UO_2 \rightarrow UC \rightarrow UN$  abnimmt. Unterschiede in der Keimbildungswahrscheinlichkeit für Defektcluster dürften hier keine entscheidende Rolle spielen, weil kleine Defektcluster bald durch die "thermal spikes" nachfolgender Spaltfragmente überlappt und "verdampft" werden. Dadurch stellt sich für die Uranverbindungen zwangsläufig eine gewisse Mindestgröße der als Punktdefekt-Senken wirksamen Defektcluster ein.

Interessanterweise nimmt in der Reihenfolge  $UO_2 \rightarrow UC \rightarrow UN$  die Größe des relativen  $\Delta a/a$ -Abfalles nach Überschreiten des Maxi-

malwertes (bis zum folgenden Minimalwert) zu, der relativ 30%, 40% bzw. 110% beträgt (Bild 3 und 4). Er kann durch zunehmende Rekombinationswahrscheinlichkeit für die Zwischengitteratome bei weiter steigender Leerstellen-Konzentration und -wie die negativen Werte von  $\Delta a/a$  für UN zeigen- u.U. auch durch einen negativen zusätzlichen Volumenbeitrag von isolierten Leerstellen erklärt werden<sup>\*)</sup>. Die Unterschiede im relativen  $\Delta a/a$ -Abfall nach Überschreiten des Maximalwertes sind dann wesentlich durch die verschiedene Verzögerung der Leerstellencluster-Bildung gegenüber der Zwischengitteratomcluster-Bildung bestimmt.

Der folgende Wiederanstieg von  $\Delta a/a$  kann durch Vergrößerung der Zwischengitteratomcluster, aber auch durch die Leerstellencluster-Bildung unter Abbau der Leerstellen-Übersättigung bedingt sein.

Der Verlauf der Röntgenreflexbreite und damit der in Bild 3 dargestellten scheinbaren Gitterverzerrung  $\eta$  entspricht -im besonderen für UN- der Vorstellung, daß die durch das Maximum von  $\Delta a/a$  angezeigte Bildung großer Zwischengitteratomcluster (wahrscheinlich in Form von durch Versetzungsschleifen begrenzten Zwischengitterteilenebenen) zu starken Gitterverzerrungen führt, die bei Sättigung der Clusterzahl ihr Maximum erreichen und dann durch Clusterwachstum wieder abnehmen. Dabei wird anscheinend die maximale Gitterverzerrung und damit die Anzahl der Cluster desto größer, je geringer die Beweglichkeit der Punktdefekte ist.  $\Delta \eta_{\max}$  ist, ausgehend vom  $\eta_0$ -Wert, für  $UO_2$  ca.  $2 \cdot 10^{-3}$  (8), für UC  $\geq 3,5 \cdot 10^{-3}$ , für UN  $5,5 \cdot 10^{-3}$ .

Allerdings stimmt für UC der Verlauf von  $\eta$  -auch bei Berücksichtigung des breiten Fehlerintervalles- nur in grober Näherung mit der oben entwickelten Vorstellung überein. Möglicherweise spielen hier Abweichungen von der Stöchiometrie, mit denen gerade bei UC gerechnet werden muß, und die im Verlauf der Bestrahlung verschiedene Mischungszustände ergeben können, eine Rolle.

---

\*) Zunächst bilden die leichter beweglichen Zwischengitteratome geordnete Cluster; der in jedem Fall positive zusätzliche Volumenbeitrag isolierter Zwischengitteratome kann dadurch nicht mehr steigen. Die schwerer beweglichen Leerstellen bleiben noch isoliert (oder in sehr kleinen ungeordneten Clustern) und bilden erst später geordnete Cluster.

## 5. Schlußfolgerungen

Zusammenfassend können folgende Schlüsse gezogen werden:

1. Der Widerstand gegen die Defektclusterbildung und damit die Sättigungskonzentration an isolierten Punktdefekten hängt vom Charakter der Gitterbindung ab und nahm hier beim Übergang von ionarer zu kovalenter Bindung zu.
2. Die Defekterzeugungsrate durch Spaltfragmente in den hier untersuchten Verbindungen beträgt 1000 - 2000 Frenkelpaare je Spaltfragment. Die Sättigungskonzentration isolierter Punktdefekte bei Spaltfragment-Einwirkung stimmt im wesentlichen mit der bei Neutronenbestrahlung beobachteten überein.
3. Der Widerstand gegen die Defektcluster-Bildung im Gitter der untersuchten Brennstoffe scheint in der Reihenfolge  $UO_2 \rightarrow UC \rightarrow UN$  zu steigen. Er hängt hier jedoch nicht eindeutig mit dem Gitterbindungstyp zusammen und kann zunächst nur auf eine abnehmende Beweglichkeit der Defekte im Gitter zurückgeführt werden.
4. Das Ziel weiterer Bestrahlungsversuche muß es sein, bei höheren Spaltungsdichten die Gleichgewichtsverteilung der Gitterdefekte (isolierte Punktdefekte, Versetzungen, Subkorngrenzen) in den untersuchten Kernbrennstoffen zu ermitteln und damit eine Annäherung an den für den Reaktorbetrieb technisch interessanten Gefügezustand zu erreichen.

---

Die zahlreichen Röntgengoniometer-Aufnahmen wurden von Herrn H.-D.Gottschalg durchgeführt und ausgewertet. Seine sachkundige und exakte Mitarbeit hat diese Untersuchung sehr erleichtert.

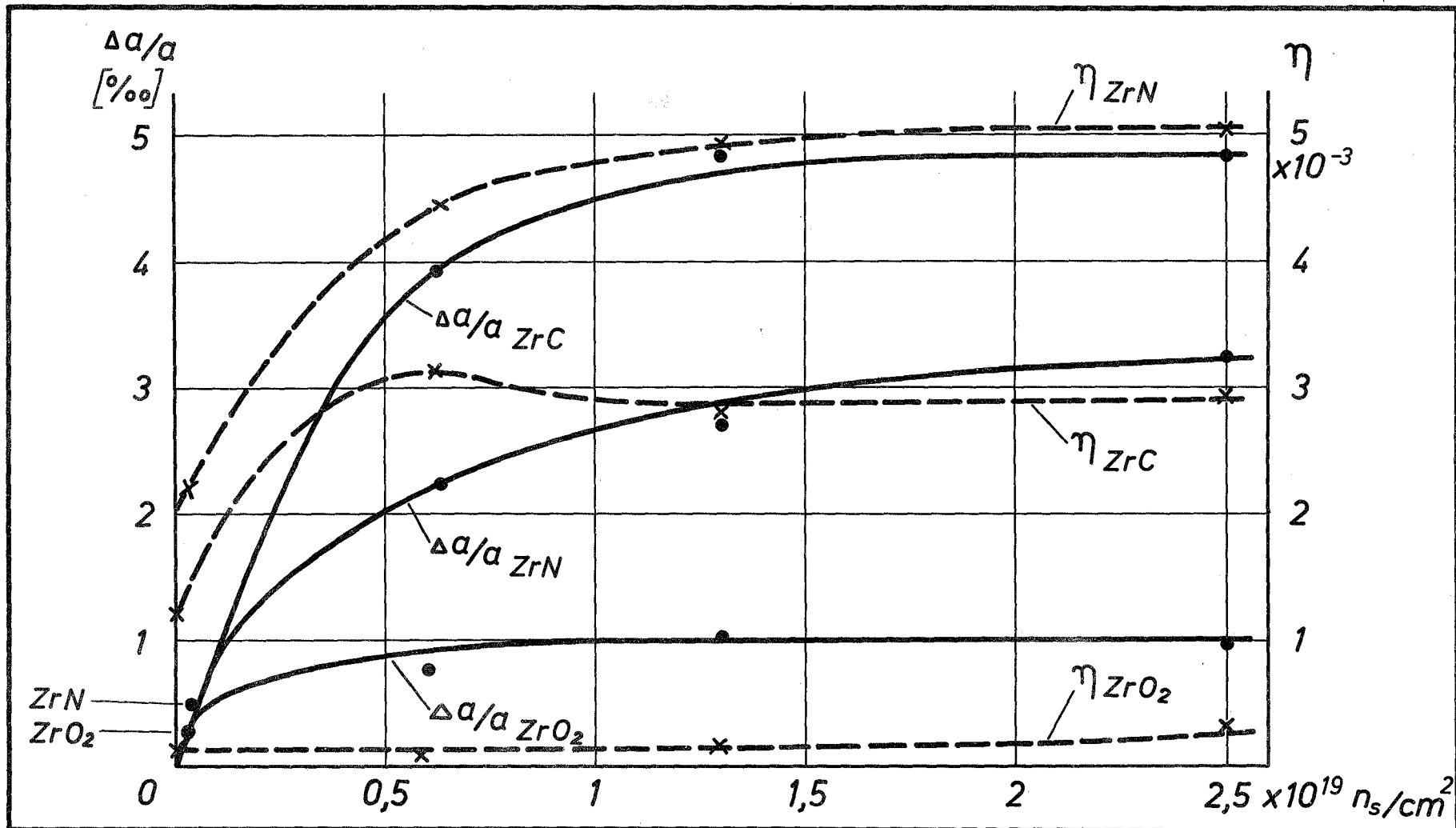
Literaturverzeichnis

- (1) Adam, J.; Rogers, M.D.  
X-ray diffraction studies of fission fragment damage  
in uranium carbide and nitride  
J.Nucl.Energy A/B (Reactor Sci.Techn.) 14 (1961)  
S.51 - 53
- (2) Bloch, J.; Mustelier, J.P.  
Variation du paramètre du monocarbure d'uranium  
faiblement irradié  
J.Nucl.Mat.17 (1965), S.350
- (3) Childs, B.G.; Buxton, K.  
High precision density measurements on irradiated  
uranium carbides  
TRG-Rep. 862, 1964
- (4) Freas, B.G.; Austin, A.E.; Rough, F.A.  
Mechanism of irradiation damage in uranium monocarbide  
ASTM Spec.Techn.Publ.No.306, 1962, S.131 - 45
- (5) Rogers, M.D.; Adam, J.  
Radiation damage and its thermal recovery in uranium  
monocarbide and uranium mononitride  
AERE-R 4046, 1962
- (6) Berman, R.M.  
X-ray diffraction study of irradiated fluorite type  
materials  
WAPD-BT-21, 1960, S.33 - 42
- (7) Bloch, J.  
Thermal restoration of the lattice parameter of  
weakly irradiated  $UO_2$   
J.Nucl.Mat.3 (1961), S.237 - 38

- (8) Roberts, L.E.J. u.a.  
The behaviour of  $UO_2$  and of  $(U, Pu)O_2$   
fuel materials under irradiation  
3<sup>rd</sup> Geneva Conf., P/155
- (9) Boyko, E.R.; Eichenberg, J.D.; Roof, R.B.;  
Haltemann, E.K.  
X-ray examination of irradiated uranium dioxide  
WAPD-BT-6, 1958, S.64 - 74
- (10) Eichenberg, J.D.; Frank, P.W.; Kisiel, T.J.; u.a.  
Effects of irradiation on bulk uranium dioxide  
TID-7546, Book 2, 1958, S.616 - 716
- (11) Tucker, Ch.W.; Senio, P.  
An X-ray study of the effect of fission events  
on the crystal structure of solids  
KAPL - 749, 1957
- (12) Whapham, A.D.; Sheldon, B.E.,  
Radiation damage in uranium dioxide  
Phil.Mag. 12 (1965), S.1179
- (13) Golyanov, V.M.; Pravdyuk, N.F.  
Behaviour of thin  $UO_2$  layers under irradiation  
3<sup>rd</sup> Geneva Conf., 1964, Paper Nr.338
- (14) Hickman, B.S.; Walker, D.G.  
Growth of magnesium oxide during neutron irradiation  
Phil.Mag. 11 (1965), S.1101
- (15) Elston, J.  
Structure cristalline et comportement des oxydes  
sous irradiation neutronique à 80°C  
Revue Hautes Temp.2 (1965), S.323



- (16) Desport, J.A.; Smith, J.A.G.  
Irradiation-induced growth in oxides of beryllium,  
magnesium and aluminium  
J.Nucl.Mat.14 (1964), S.135 - 40
- (17) Walker, D.G.; Hickman, B.S.  
X-ray line broadening in neutron irradiated  
magnesium oxide  
Phil.Mag.12 (1965), S.445
- (18) Bowen, D.H.; Clarke, F.J.P.  
The growth of neutron irradiated magnesium oxide  
Phil.Mag.9 (1964), S.413 - 21
- (19) Keilholtz, G.W.; Moore, R.E.; Osborne, M.F.  
Behaviour of refractory-metal carbides under irradiation  
ORNL-3913, S.104 - 05
- (20) Dienst, W.; Krautwedel, H.L.  
Zählrohr-Goniometer für Röntgenfeinstruktur-Unter-  
suchungen an neutronenbestrahlten Werkstoffen  
Kerntechnik 10 (1968), S.46 - 50
- (21) Balarin, M.; Hauser, O.; Schenk, M. u.a.  
Zum Einfluß einiger Faktoren auf die strahleninduzierten  
Eigenschaftsänderungen in Festkörpern  
ZfK-WF 29, 1966



W. Dienst  
1967

Gitterkonstanten-Vergrößerung und Gitterver-  
zerrung von Zr-Verbindungen in Abhängigkeit  
vom integrierten schnellen Neutronenfluß

GfK / IMF  
Karlsruhe

- Bild 1 -

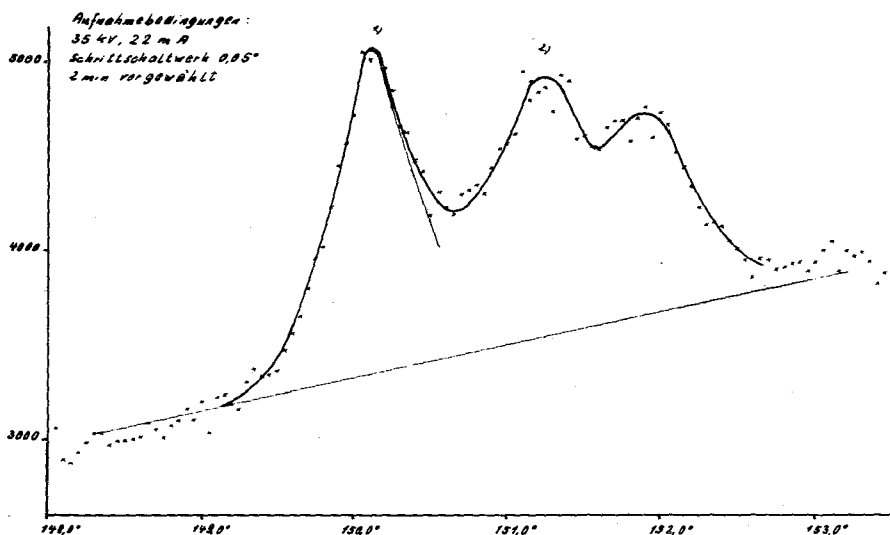


Bild 2: Profil des (531)-Reflexes von ZrC nach  $5,1 \cdot 10^{17}$  "f/cm<sup>3</sup>" (in Imp./2 min über 2  $\theta$ ).

Bild 3: s.folgende Seite

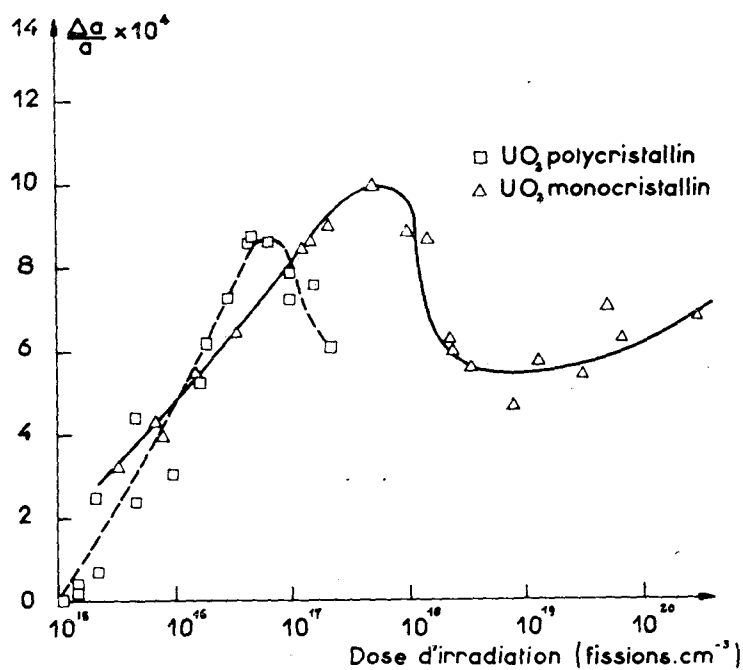
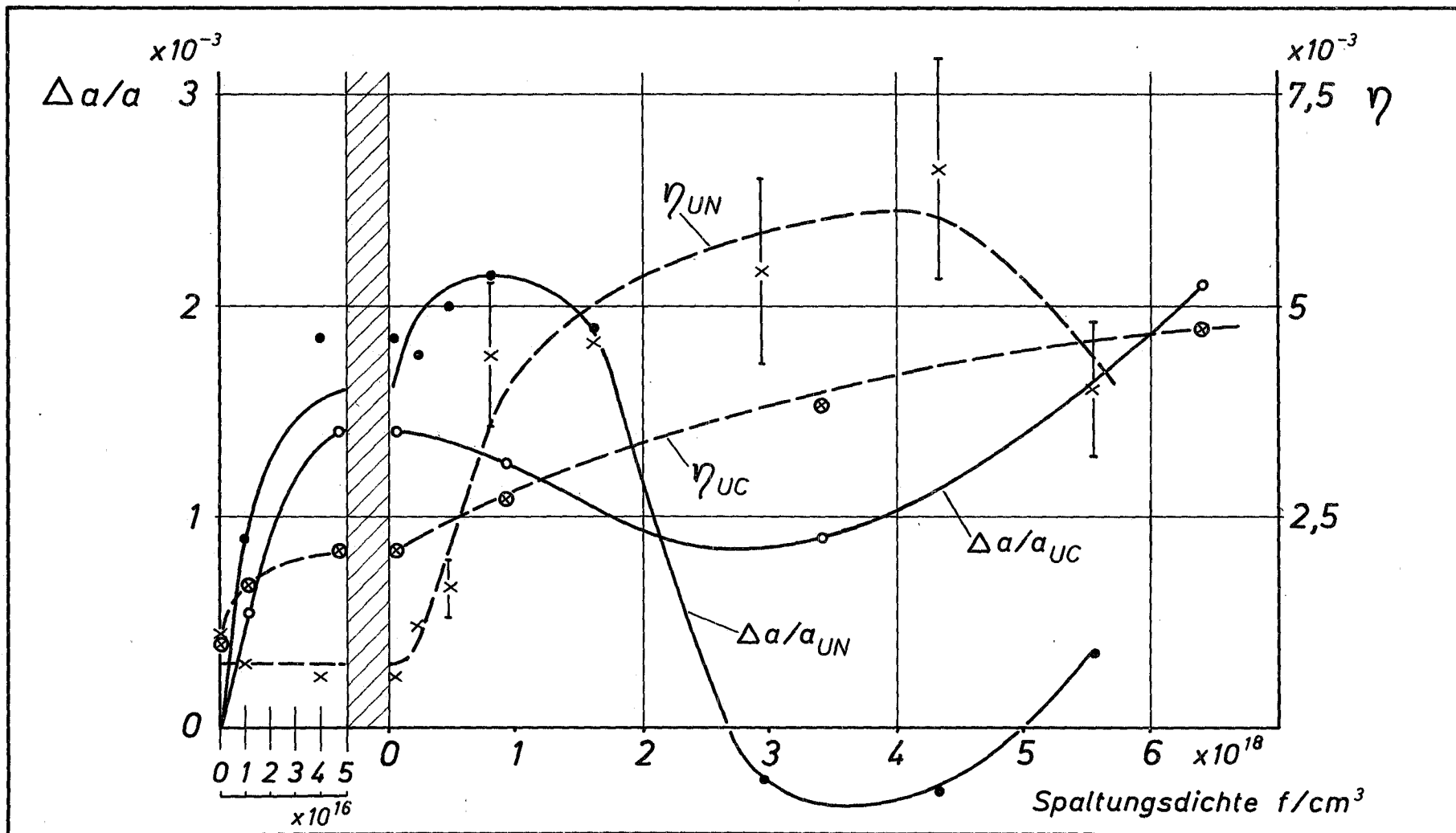


Bild 4: Gitterkonstanten-Vergrößerung  $\Delta a/a$  von  $UO_2$  in Abhängigkeit von der Spaltungsdichte bei einer Bestrahlungstemperatur von 70°C (nach [8]).



W. Dienst  
1968

Gitterkonstanten - Änderung  $\Delta a/a$  und Gitter-  
verzerrung  $\eta$  von UN und UC in Abhängigkeit von  
der Spaltungsdichte

GfK / IMF  
Karlsruhe