

**EUR 259. d**

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT — EURATOM

**DIFFUSION VON EDELGASEN IN  
FESTKÖRPERN**

von

F. FELIX, P. SCHMELING und K.E. ZIMEN

1963



Abkommen über Zusammenarbeit EURATOM-VEREINIGTE STAATEN  
EURAEK-Bericht Nr. 526

abgefasst vom HAHN-MEITNER-INSTITUT FÜR KERNFORSCHUNG, BERLIN  
im Rahmen des Euratom-Vertrages Nr. 064-61-8 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 50 bfrs. verkauft. Bestellungen sind zu richten an : PRESSES ACADEMIQUES EUROPÉENNES 98, chaussée de Charleroi, Brüssel 6.

Die Zahlung ist zu leisten durch Überweisung

— an die BANQUE DE LA SOCIÉTÉ GÉNÉRALE (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 259.d = Diffusion von Edelgasen in Festkörpern».

Gedruckt von Ceuterick, Löwen,  
Brüssel September, 1963

EUR 259.d

**DIFFUSION VON EDELGASEN IN FESTKÖRPERN**  
von F. FELIX — P. SCHMELING — K.E. ZIMEN

Europäische Atomgemeinschaft — EURATOM  
Abkommen über Zusammenarbeit EURATOM-VEREINIGTE STAATEN  
EURAEK-Bericht N° 526 abgefasst vom  
HAHN-MEITNER-INSTITUT FÜR KERNFORSCHUNG BERLIN,  
im Rahmen des Euratom-Vertrages N°. 064-61-8 RDD.

Brüssel, September 1963 — Seiten 35 + 30 Figuren.

Der Schlußbericht gibt einen Überblick über die Arbeiten zur Diffusion von Edelgasen in Festkörpern, die am Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung Berlin im Rahmen des EURATOM-Kontraktes Nr. 064-61-8-RDD durchgeführt wurden.

EUR 259.d

**RARE-GAS DIFFUSION IN SOLIDS**  
by F. FELIX — P. SCHMELING — K.E. ZIMEN

European Atomic Energy Community — EURATOM  
EURATOM-UNITED STATES Agreement for Cooperation  
EURAEK-report N° 526 established by  
HAHN-MEITNER INSTITUT FÜR KERNFORSCHUNG BERLIN  
Euratom contract No. 064-61-8 RDD

Brussels, September 1963 — pages 35 + figures 30.

This annual report gives a summary of the work done at the Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung Berlin under the EURATOM-Contract No. 064-61-8 RDD on rare-gas diffusion in solids.

The evaluation of post activation diffusion (PAD) measurements, the experimental methods used for the diffusion measurements, and the assay of the radio-

EUR 259.d

**RARE-GAS DIFFUSION IN SOLIDS**  
by F. FELIX — P. SCHMELING — K.E. ZIMEN

European Atomic Energy Community — EURATOM  
EURATOM-UNITED STATES Agreement for Cooperation  
EURAEK-report N° 526 established by  
HAHN-MEITNER INSTITUT FÜR KERNFORSCHUNG BERLIN  
Euratom contract No. 064-61-8 RDD

Brussels, September 1963 — pages 35 — figures 30.

This annual report gives a summary of the work done at the Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung Berlin under the EURATOM-Contract No. 064-61-8 RDD on rare-gas diffusion in solids.

The evaluation of post activation diffusion (PAD) measurements, the experimental methods used for the diffusion measurements, and the assay of the radio-

EUR. 259.d

**RARE-GAS DIFFUSION IN SOLIDS**  
by F. FELIX — P. SCHMELING — K.E. ZIMEN

European Atomic Energy Community — EURATOM  
EURATOM-UNITED STATES Agreement for Cooperation  
EURAEK-report N° 526 established by  
HAHN-MEITNER INSTITUT FÜR KERNFORSCHUNG BERLIN  
Euratom contract No. 064-61-8 RDD

Brussels, September 1963 — pages 35 + figures 30.

This annual report gives a summary of the work done at the Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung Berlin under the EURATOM-Contract No. 064-61-8 RDD on rare-gas diffusion in solids.

The evaluation of post activation diffusion (PAD) measurements, the experimental methods used for the diffusion measurements, and the assay of the radio-

Die Auswertung von Postaktivierungs-Diffusion (PAD) und die experimentelle Methodik zur Durchführung der PAD-Messungen und der Messung radioaktiver Edelgase werden beschrieben. Die Resultate der experimentellen Untersuchungen an den Systemen  $\text{CaF}_2/\text{Ar}$ ,  $\text{KF}/\text{Ar}$ ,  $\text{KCl}/\text{Ar}$ ,  $\text{UO}_2/\text{Xe}$ ,  $\text{ThO}_2/\text{Xe}$  werden in Form typischer Kurven und Aktivierungsenergien für die Gitterdiffusion gegeben. Abweichungen vom Verlauf idealer Gitterdiffusion bei polykristallinem und gesintertem Material werden diskutiert in einem kurzen Überblick über die Parameter, welche die Edelgasabgabe aus Festkörpern beeinflussen können.

active rare-gases are described. Experimental results of PAD-measurements on the systems  $\text{CaF}_2/\text{Ar}$ ,  $\text{KF}/\text{Ar}$ ,  $\text{KCl}/\text{Ar}$ ,  $\text{UO}_2/\text{Xe}$ ,  $\text{ThO}_2/\text{Xe}$  are given in the form of release curves and activation energies. Deviations from the ideal case of pure volume diffusion are observed with polycrystalline and sintered material and are discussed in a short survey of parameters affecting the rare-gas release from solids.

active rare-gases are described. Experimental results of PAD-measurements on the systems  $\text{CaF}_2/\text{Ar}$ ,  $\text{KF}/\text{Ar}$ ,  $\text{KCl}/\text{Ar}$ ,  $\text{UO}_2/\text{Xe}$ ,  $\text{ThO}_2/\text{Xe}$  are given in the form of release curves and activation energies. Deviations from the ideal case of pure volume diffusion are observed with polycrystalline and sintered material and are discussed in a short survey of parameters affecting the rare-gas release from solids.

active rare-gases are described. Experimental results of PAD-measurements on the systems  $\text{CaF}_2/\text{Ar}$ ,  $\text{KF}/\text{Ar}$ ,  $\text{KCl}/\text{Ar}$ ,  $\text{UO}_2/\text{Xe}$ ,  $\text{ThO}_2/\text{Xe}$  are given in the form of release curves and activation energies. Deviations from the ideal case of pure volume diffusion are observed with polycrystalline and sintered material and are discussed in a short survey of parameters affecting the rare-gas release from solids

**EUR 259. d**

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT — EURATOM

**DIFFUSION VON EDELGASEN IN  
FESTKÖRPERN**

von

F. FELIX, P. SCHMELING und K. E. ZIMEN

1963



**Abkommen über Zusammenarbeit EURATOM-VEREINIGTE STAATEN  
EURAEK-Bericht Nr. 526**

**abgefasst vom HAHN-MEITNER-INSTITUT FÜR KERNFORSCHUNG, BERLIN  
im Rahmen des Euratom-Vertrages Nr. 064-61-8 RDD**



## INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
ZUSAMMENFASSUNG . . . . .	5
EINLEITUNG . . . . .	5
1 — AUSWERTUNG VON MESSUNGEN DER POST-AKTIVIERUNGS- DIFFUSION (PAD) . . . . .	6
2 — EXPERIMENTELLE METHODEN BEI PAD-MESSUNGEN . . . . .	7
2.1 — Diskontinuierliche Vakuummethode . . . . .	7
2.2 — Verfahren bei Atmosphärendruck . . . . .	9
2.3 — Bestimmung der Totalaktivität . . . . .	10
2.4 — Messung der Edelgase . . . . .	10
3 — EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNGEN AN MODELLSYSTEMEN . . . . .	13
3.1 — CaF <sub>2</sub> -Einkristalle/Argon . . . . .	13
3.2 — KF/Argon . . . . .	13
3.3 — KCl/Argon . . . . .	16
3.4 — Ag-Li/Helium . . . . .	16
4 — EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNGEN AN KERNBRENNSTOFFEN . . . . .	17
4.1 — Urandioxyd . . . . .	17
4.2 — Uranmonokarbid . . . . .	20
4.2.1 — Uranmonokarbid-Pulver (aus Material K-3) . . . . .	20
4.2.2 — Uranmonokarbid-Stückchen . . . . .	22
4.2.3 — Urankarbid in Graphitmatrix . . . . .	22
4.3 — Thoriumdioxyd . . . . .	24
4.3.1 — Thoriumdioxyd-Pulver (T-6) . . . . .	24
4.3.2 — Thoriumdioxyd-Kristalle . . . . .	26
5 — MECHANISMUS DER EDELGASABGABE AUS FESTKÖRPERN . . . . .	27
5.1 — Zeitbestimmende Gitterdiffusion . . . . .	27
5.2 — Gitterdiffusion nicht zeitbestimmend . . . . .	28
ANHANG I — Mitarbeiter am Diffusionsprogramm . . . . .	33
ANHANG II — List of reports established by HAHN-MEITNER-INSTITUTE, Berlin, under the EURATOM/UNITED STATES Agreement for Cooperation on Diffusion of Rare-Gases in Solids . . . . .	34
Literaturangaben . . . . .	30

## TABELLENVERZEICHNIS

	Seite
Tabelle 1 — Empfohlene Auswertungsmethode . . . . .	31
Tabelle 2 — Vorläufige Resultate von PAD-Messungen an UO <sub>2</sub> -Kristallen . . . . .	31
Tabelle 3 — Xe-Abgabe bei PAD-Versuchen an UC . . . . .	32

## FIGURENVERZEICHNIS

Fig. 1-4 — Konstruierte Beispiele für Edelgasabgabe aus einem Festkörper . . . . .	6
Fig. 5 — Diskontinuierliche Vakuumapparatur für PAD-Versuche . . . . .	8
Fig. 6 — Standardmeßkammer . . . . .	9
Fig. 7 — Zählabschirmung . . . . .	9
Fig. 8 — Zusammensetzung der Spaltedelgase (Experiment N-31-2) . . . . .	11
Fig. 9-11 — $\beta$ -Absorptionskurven einer Gasprobe aus Th-232( <i>nf</i> )(Experiment R-20-2b)	12
Fig. 12 — Ar-Diffusion in CaF <sub>2</sub> aus : Lagerwall, Nukleonik 4 (1962) 158 . . . . .	14
Fig. 13 — Ar-Diffusion in CaF <sub>2</sub> aus : Lagerwall , Nukleonik 4 (1962) 158. . . . .	15
Fig. 14 — Ar-Diffusion in KF-Einkristallen . . . . .	15
Fig. 15 — Ar-Abgabe aus einer KF-Tablette . . . . .	16
Fig. 16 — Ar-Diffusion in KCl-Einkristallen . . . . .	17
Fig. 17 — Vorläufige PAD-Resultate an UO <sub>2</sub> -Kristallen . . . . .	18
Fig. 18-19 — Xe-Abgabe aus UO <sub>2</sub> -Einkristallen . . . . . (Euratom-Kugeln Nr. 22, 30) (Experiment N-31-6 bzw. N-31-11)	19
Fig. 20-21 — Xe-Abgabe aus UC-Pulver (Experiment E-51) . . . . .	21
Fig. 22 — Zusammenstellung : UC-Pulver . . . . .	21
Fig. 23 — Xe-Abgabe aus UC-Stückchen (Experiment E-40) . . . . .	22
Fig. 24 — Zusammenstellung : UC-Stückchen . . . . .	22
Fig. 25-26 — Xe-Abgabe aus Urankarbid-Graphitproben (Experiment E-38 bzw. E-60)	23
Fig. 27-28 — Xe-Abgabe aus ThO <sub>2</sub> -«Specpure»-Pulver (Experiment N-31-13a bzw. N-31-12) . . . . .	25
Fig. 29 — Xe-Abgabe aus ThO <sub>2</sub> -Kristallen (Experiment N-20-4c) . . . . .	26
Fig. 30 — Die verschiedenen Diffusionstypen . . . . .	27

## DIFFUSION VON EDELGASEN IN FESTKÖRPERN

### ZUSAMMENFASSUNG

Der Schlußbericht gibt einen Überblick über die Arbeiten zur Diffusion von Edelgasen in Festkörpern, die am Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung Berlin im Rahmen des EURATOM-Kontraktes Nr. 064-61-8 RDD durchgeführt wurden.

Die Auswertung von Postaktivierungs-Diffusion (PAD) und die experimentelle Methodik zur Durchführung der PAD-Messungen und der Messung radioaktiver Edelgase werden beschrieben.

Die Resultate der experimentellen Untersuchungen an den Systemen  $\text{CaF}_2/\text{Ar}$ ,  $\text{KF}/\text{Ar}$ ,  $\text{KCl}/\text{Ar}$ ,  $\text{UO}_2/\text{Xe}$ ,  $\text{ThO}_2/\text{Xe}$  werden in Form typischer Kurven und Aktivierungsenergien für die Gitterdiffusion gegeben. Abweichungen vom Verlauf idealer Gitterdiffusion bei polykristallinem und gesintertem Material werden diskutiert in einem kurzen Überblick über die Parameter, welche die Edelgasabgabe aus Festkörpern beeinflussen können.

### SUMMARY

This annual report gives a summary of the work done at the Hahn-Meitner-Institut für Kernforschung Berlin under the EURATOM-contract No. 064-61-8 RDD on rare-gas diffusion in solids.

The evaluation of post activation diffusion (PAD) measurements, the experimental methods used for the diffusion measurements, and the assay of the radioactive rare-gases are described. Experimental results of PAD-measurements on the systems  $\text{CaF}_2/\text{Ar}$ ,  $\text{KF}/\text{Ar}$ ,  $\text{KCl}/\text{Ar}$ ,  $\text{UO}_2/\text{Xe}$ ,  $\text{ThO}_2/\text{Xe}$  are given in the form of release curves and activation energies. Deviations from the ideal case of pure volume diffusion are observed with polycrystalline and sintered material and are discussed in a short survey of parameters affecting the rare-gas release from solids.

## EINLEITUNG

Der vorliegende Bericht faßt die im Rahmen des Vertrages No. 064-61-8 RDD im Zeitraum vom 1.9.1961 bis 31.8.1962 gewonnenen Ergebnisse zusammen. Er schließt sich an den Schlußbericht für den vorausgehenden Vertrag (019-60-7 RDD) an, in dem die Arbeiten im Zeitraum vom 1.7.1960 bis 31.8.1961 besprochen wurden.

Beide Verträge werden in Euratoms «Quarterly Digest» unter No. I.1.11 referiert. Eine Liste aller Berichte und Veröffentlichungen im Rahmen der beiden Verträge findet sich als Anhang II zu diesem Jahresbericht.

Um eine zusammenhängende Darstellung unserer Ergebnisse über Edelgasabgabe aus Festkörpern geben zu können, wird im folgenden auch Bezug genommen auf eine Reihe von Arbeiten zum Thema Edelgasdiffusion, die nicht im Rahmen der Verträge mit Euratom durchgeführt wurden. Die am gesamten Programm beteiligten Mitarbeiter sind in Anhang I aufgeführt.

Während der Berichtszeit wurde über folgende Fragestellungen gearbeitet :

1. Auswertung von Messungen der Post-Aktivierungs-Diffusion (PAD)
2. Experimentelle Methoden bei PAD-Messungen
3. Experimentelle Untersuchungen an Modellsystemen
4. Experimentelle Untersuchungen an Kernbrennstoffen
5. Mechanismus der Edelgasabgabe aus Festkörpern

Eine kurze Darstellung einiger Ergebnisse wurde bereits gegeben auf der Tagung über keramische Kernbrennstoffe am 3.-5. Oktober 1962 in Brüssel (<sup>23</sup>). Die Arbeiten werden fortgesetzt.

## 1 — AUSWERTUNG VON MESSUNGEN DER POST-AKTIVIERUNGS-DIFFUSION (PAD)

Ideale Volumendiffusion führt bei isothermen PAD-Versuchen zu einer Edelgasabgabe, die durch die von INTHOFF und ZIMEN (1) abgeleiteten Gleichungen und Näherungsformeln beschrieben wird. Der allgemeinere Fall eines zeitabhängigen Diffusionskoeffizienten (z. B. durch eine stetige Temperaturänderung) wurde von GAUS (2) (3) behandelt. Zur Erleichterung der Auswertung experimenteller Meßkurven wurde für verschieden geformte Probekörper die Diffusionsgleichung mit Hilfe eines elektronischen Rechners exakt gelöst und tabelliert (4). Eine erweiterte Auflage dieser Tabellen ist im Erscheinen (4a).

Gegenüber dem idealen Fall zeitbestimmender Gitterdiffusion zeigen die meisten realen Systeme Abweichungen (vgl. Abschnitt 5), wodurch sich Einschränkungen für die Art der Auswertung ergeben. Verschiedene Typen von Abweichungen wurden von SCHMELING an konstruierten Beispielen diskutiert für den Fall, daß der freigesetzte Bruchteil an Edelgas kleiner als 0,25 ist (5), vgl. auch LAGERWALL (6).

Fig. 1-4 — Konstruierte Beispiele für Edelgasabgabe aus einem Festkörper.

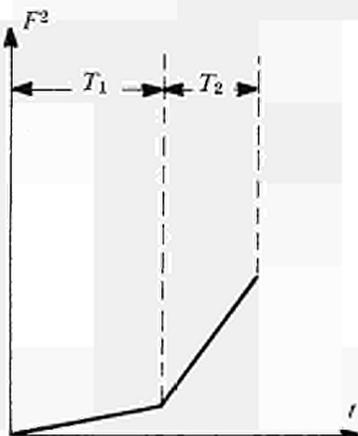


Fig. 1 — ideale Volumendiffusion.

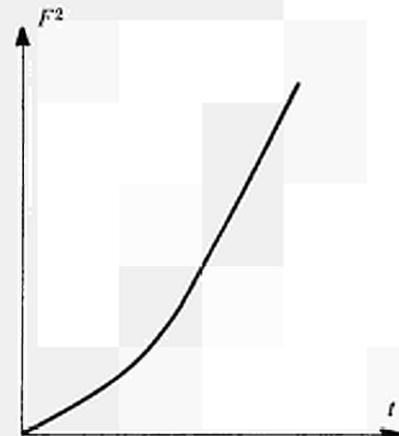


Fig. 2 — Verzögerung bei Temperatureinstellung

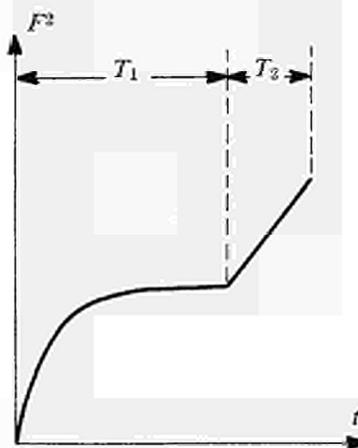


Fig. 3 — Zeitlich variable Diffusion.

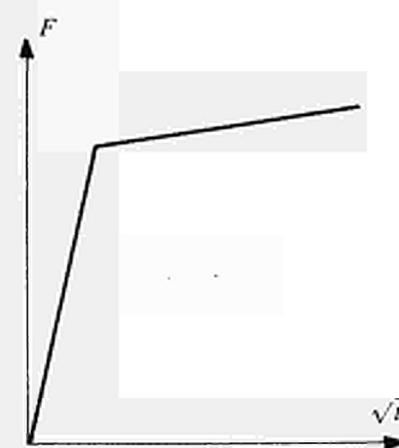


Fig. 4 — Überlagerung durch schnellablaufenden  
Vorgang

Die Figuren 1 bis 4 und Tabelle 1 geben eine Zusammenfassung der Ergebnisse dieser Überlegungen. Figur 1 zeigt einen idealen Diffusionsverlauf mit zwei Temperaturstufen; für jeden Teil ist der Zusammenhang zwischen  $F^2$  und  $t$  linear ( $F$ : abgegebener Bruchteil an Edelgas,  $t$ : Zeit). Falls sich die Temperatur der Probe langsam einstellt, wird für eine Volumendiffusion der Diffusionskoeffizient entsprechend bis zum isothermen Wert ansteigen (Figur 2). Ebenso ist denkbar, daß sich bei Versuchsbeginn ein höherer Diffusionskoeffizient zeigt (z. B. durch Veränderung der Probe durch die Bestrahlung), der durch Ausheilvorgänge auf den Gleichgewichtswert absinkt (Figur 3). In allen diesen Fällen ist aber die Steigung in jedem Punkt im  $F^2$ - $t$ -Diagramm proportional zum gerade herrschenden Diffusionskoeffizienten.

Der experimentell oft beobachtete Fall, daß beim ersten Erhitzen eine Edelgasmenge stoßweise abgegeben wird, bevor die eigentliche Volumendiffusion einsetzt, ist in Figur 4 dargestellt. Bei einer solchen Überlagerung von Prozessen kann gezeigt werden, daß man aus dem  $F^2$ - $t$ -Diagramm nicht den wahren Diffusionskoeffizienten erhält, sondern nur aus dem  $F \cdot \sqrt{t}$ -Diagramm. Falls der überlagerte Vorgang mit der ersten Erhitzung völlig abgelaufen ist, kann auch ein Versuch mit mehreren Temperaturstufen ausgewertet werden (vgl. Tabelle 1). Ist aber auch bei weiteren Temperaturerhöhungen die Volumendiffusion überlagert, so sollte man auf solche Experimente zugunsten von isothermen Versuchen verzichten.

## 2 — EXPERIMENTELLE METHODEN BEI PAD-MESSUNGEN

Über die im Lauf der vorliegenden Untersuchungen entwickelten sowie andere, in der Literatur beschriebene Apparaturen wurde von SCHMELING und FELIX berichtet (6).

Für sauerstoffempfindliche Substanzen ( $\text{UO}_2$ , UC) wurde durchweg die induktive Erhitzung durch Hochfrequenz im Hochvakuum angewandt. Die anderen Systeme wurden bei gewöhnlicher Erhitzung durch Ofen teils im Vakuum, teils unter zirkulierender Atmosphäre untersucht.

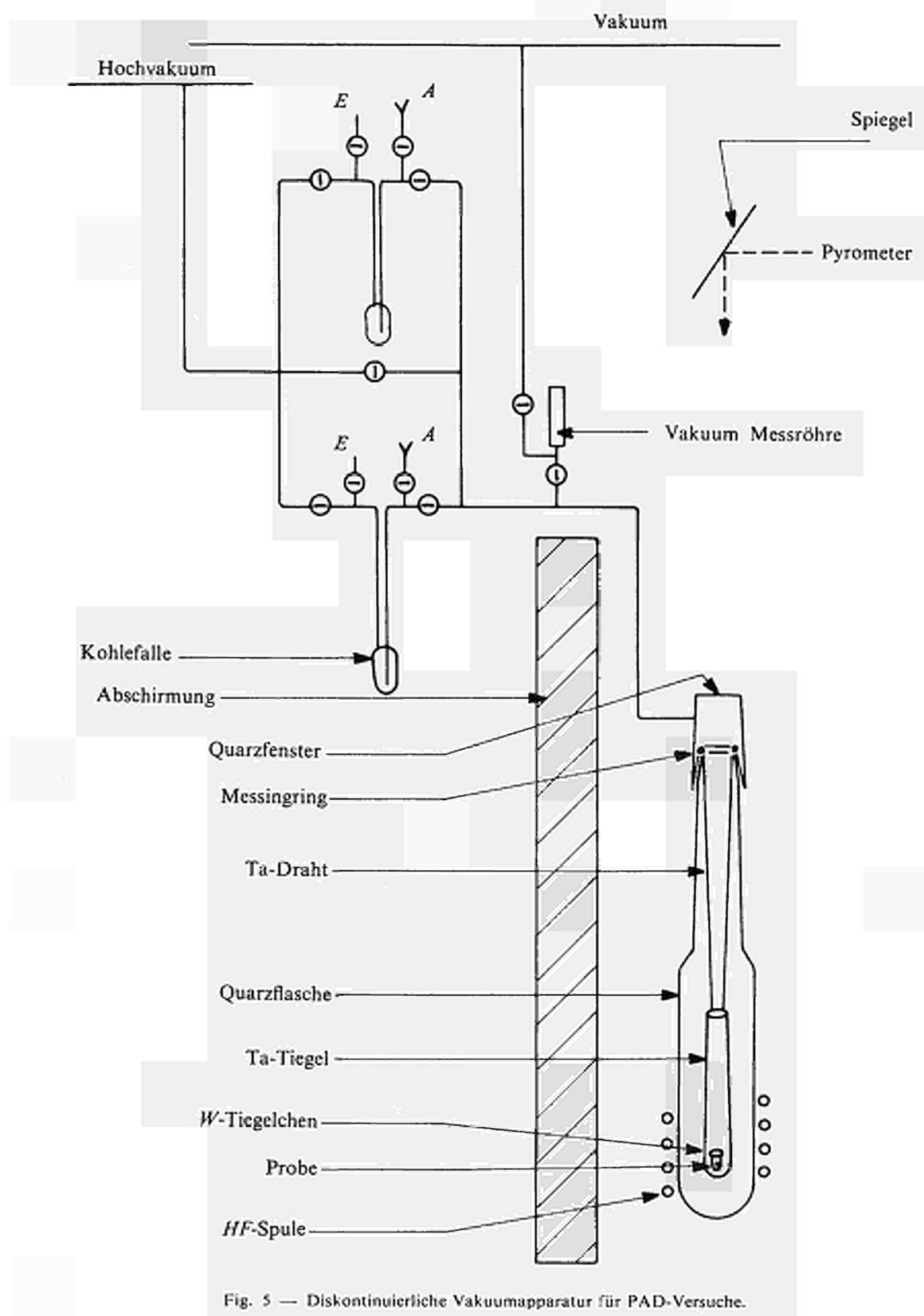
### 2.1 — Diskontinuierliche Vakuummethode

Diese Methode erlaubt ein praktisch korrosionsfreies Erhitzen sauerstoffempfindlicher Proben (6) (7) (8). Figur 5 zeigt schematisch die Anordnung, wie sie im Laufe des Berichtszeitraumes entwickelt wurde. Die Probe befindet sich in einem Wolframtiegelchen, eingesetzt in ein an Tantaldrähten aufgehängtes Tantalrohr. Das Tantal wirkt im glühenden Zustand auch als Sauerstofffänger. Das abgegebene Xenon wird in einer der beiden Fallen bei 80°K adsorbiert. Nach einer angemessenen Zeit wird die parallele Falle eingeschaltet und das Xenon in der ersten Falle desorbiert und in eine Standardmeßkammer mit dünnem Aluminiumfenster eingesogen. Die Messung erfolgt mit GM-Endfensterzählrohr oder Szintillationskristall.

Die Technik ist sehr zuverlässig, die Schnelligkeit kann so weit getrieben werden, daß etwa alle drei Minuten die Fallen gewechselt werden können vgl. (9). Experimentell wurde nachgeprüft, daß die Zugabe von inaktivem Träger-Xenon unnötig ist, daß die Aktivität vollständig adsorbiert wird und daß bei der Desorption 90 bis 99% der Aktivität ohne Kontamination durch andere Spaltprodukte, besonders Jod, in eine Meßkammer überführt werden können.

Ein Nachteil des Systems ist der Verdampfungseffekt bei flüchtigen Stoffen; außerdem wäre die kontinuierliche Registrierung der Aktivität der Kohlefalle wünschenswert. Eine solche Anordnung muß allerdings eine hohe Zählhausbeute aufweisen, um mit dem jetzt verwendeten Verfahren konkurrieren zu können. Versuche zum Aufbau einer solchen Anordnung sind im Gange.

Für die Durchführung der Messungen der Standardmeßkammern (Figur 6) mit einem Zählrohr wurde eine Stahlabschirmung konstruiert, in der alle Halbwertszeit- und  $\beta$ -Absorptionsbestimmungen durchgeführt wurden (vgl. Figur 7).



Die Probe kann von rechts her in die Innenbohrung der Abschirmung eingeschoben werden und ist dann allseitig von 65 mm Stahl abgeschirmt. Der mittlere Nulleffekt mit einem FHZ-15-c-Zählrohr (Frieske u. Hoepfner, Erlangen) beträgt 12 ipm. Zwischen Probe und Zählrohr kann ein Schieber aus PVC eingeschoben werden, der auswechselbare Filterscheiben aus Aluminium aufnimmt.

## 2.2 — Verfahren bei Atmosphärendruck

Für die Versuche mit KCl und KF wurde nach wie vor ein Zirkulationssystem verwendet (vgl. <sup>(6)</sup> S. 9). Das System konnte für KBr nicht verwendet werden, da aktives Brom nicht ohne starke Veränderung der Zirkulationseigenschaften des Systems aus der Gasphase abgetrennt werden konnte.

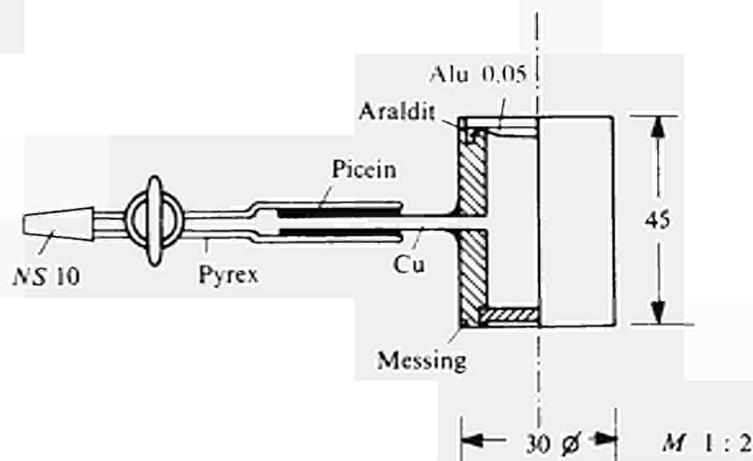


Fig. 6 — Standardmeßkammer

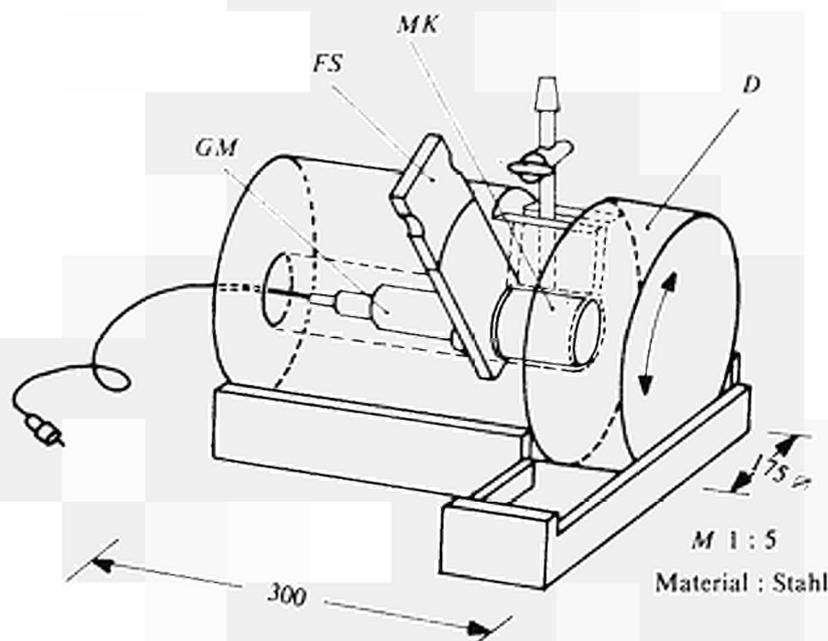


Fig. 7 — Zählabschirmung „Gargantua“

- GM Endfensterzählrohr in einschiebbarer Halterung
- FS Schieber für auswechselbare  $\beta$ -Absorptionsfilter
- MK Messkammer mit Gasprobe
- D Wegrollbarer Abschirmdeckel

Die automatisch arbeitende Anordnung mit Mischung der Gasphase durch eine Töplerpumpe (vgl. (6), S. 13) wurde für langsam verlaufende Diffusionsvorgänge benutzt.

Nachteile beider Systeme ist, daß störende Aktivitäten leicht das ganze System kontaminieren und daß kleine Lecks während des Versuchs nicht erkannt werden können.

### 2.3 — Bestimmung der Totalaktivität

Für alle untersuchten Systeme wurde die Totalaktivität an einer mitbestrahlten Vergleichsprobe bestimmt. Allerdings wurde festgestellt, daß für den Fall der Kaliumhalogenide bei der Messung in der Zirkulationsapparatur eine grössere Streuung der Totalaktivität erhalten wurde, wenn mitbestrahlte Kristalle in dieser Apparatur durch Wasser aufgelöst wurden, als wenn die eigentlichen Versuchsproben nach Ende des Diffusionsversuchs durch Schmelzen von allen Edelgasresten befreit werden.

Zur Bestimmung der Totalaktivität der Spaltedelgase in Uran- und Thoriumverbindungen wurde  $\text{UO}_2$  und  $\text{ThO}_2$  gelöst in festem Natriumpyrosulfat mitbestrahlt. Ein Bröckchen des Materials wurde in einer evakuierten kleinen Quarzampulle (ca. 1 ml) bestrahlt. Zur Bestimmung wurde die ganze Ampulle kurz auf  $800^\circ\text{C}$  erhitzt, um den Inhalt zu schmelzen. Nach Erkalten wurde die Ampulle in einem Vakuumsystem aufgeschlagen und das Edelgas an Aktivkohle adsorbiert und wie unter 2.1 weiterbehandelt. Das Verfahren ist äußerst einfach und läßt auch wenig radioaktiven Abfall entstehen. Experimentell wurde festgestellt, daß einmaliges Schmelzen das Edelgas vollständig austreibt und daß keine störenden gasförmigen Nebenaktivitäten gebildet werden. Bei der Verwendung von Kaliumpyrosulfat werden nach der Bestrahlung mit schnellen Neutronen merkliche Mengen von  $\text{Ar-39}$  ( $\text{av}_3 \text{K}^{39} (\text{n}, \text{p}) \text{Ar}^{39}$ ) festgestellt.

Rückstoßverluste, die Pulver während der Bestrahlung erlitten, wurden durch Aufschlagen der Ampullen im gleichen Vakuumsystem bestimmt.

### 2.4 — Messung der Edelgase

Prinzipiell bestehen keine Schwierigkeiten, die verwendeten Edelgase  $\text{Ar-39}$ ,  $\text{Xe-133}$  und  $\text{Kr-85}$  nachzuweisen, zu messen und auf radiochemische Reinheit zu prüfen.

Alle Versuche an Reaktorbrandstoffen wurden so durchgeführt, daß nach fünftägigem Abklingen  $\text{Xe-133}$  allein gemessen werden konnte. Durch Verfolgen der Totalaktivität über mehrere Monate wurde der Anteil an  $\text{Kr-85}$  für  $\text{U-235}$  und  $\text{Th-232}$ -Spaltung bestimmt (vgl. Figur 8). Es zeigt sich, daß für  $\text{ThO}_2$  der  $\text{Kr-85}$ -Anteil der Totalaktivität höher ist als für  $\text{UO}_2$ . Daraus ergeben sich Einschränkungen in der Wahl der Versuchsdauer für  $\text{ThO}_2$ -Versuche, wenn mit einem GM-Zählrohr gemessen wird. Während der  $\text{Kr-85}$ -Gehalt bei  $\text{UO}_2$ -Versuchen erst nach ca. 35 Tagen nach Bestrahlungsende 1% der Gasaktivität ausmacht, ist das für  $\text{ThO}_2$  schon nach 14 Tagen der Fall. Der absolute  $\text{Kr-85}$ -Gehalt war bei den verwendeten Bestrahlungsdaten zu gering, um im  $\gamma$ -Spektrometer nachgewiesen zu werden ( $\text{Kr-85}$  zerfällt zu 0,6% in  $\text{Rb-85}$ ;  $\gamma$  : 0,52 MeV). Dagegen war es möglich, durch Messung der  $\beta$ -Absorption den Unterschied der  $\beta$ -Energie ( $\text{Xe-133}$  : 0,345 MeV;  $\text{Kr-85}$  : 0,695 MeV) auszunutzen, um auch mit einem GM-Zählrohr die Zusammensetzung der Gasproben grob zu bestimmen, vgl. Figuren 9 bis 11, die deutlich zeigen, wie durch den Zerfall des  $\text{Xe-133}$  der  $\text{Kr-85}$ -Anteil immer deutlicher hervortritt. Die genaueste, aber langwierigste Bestimmung der Zusammensetzung bleibt aber die Verfolgung der Aktivität der Gasproben über etwa drei Monate.

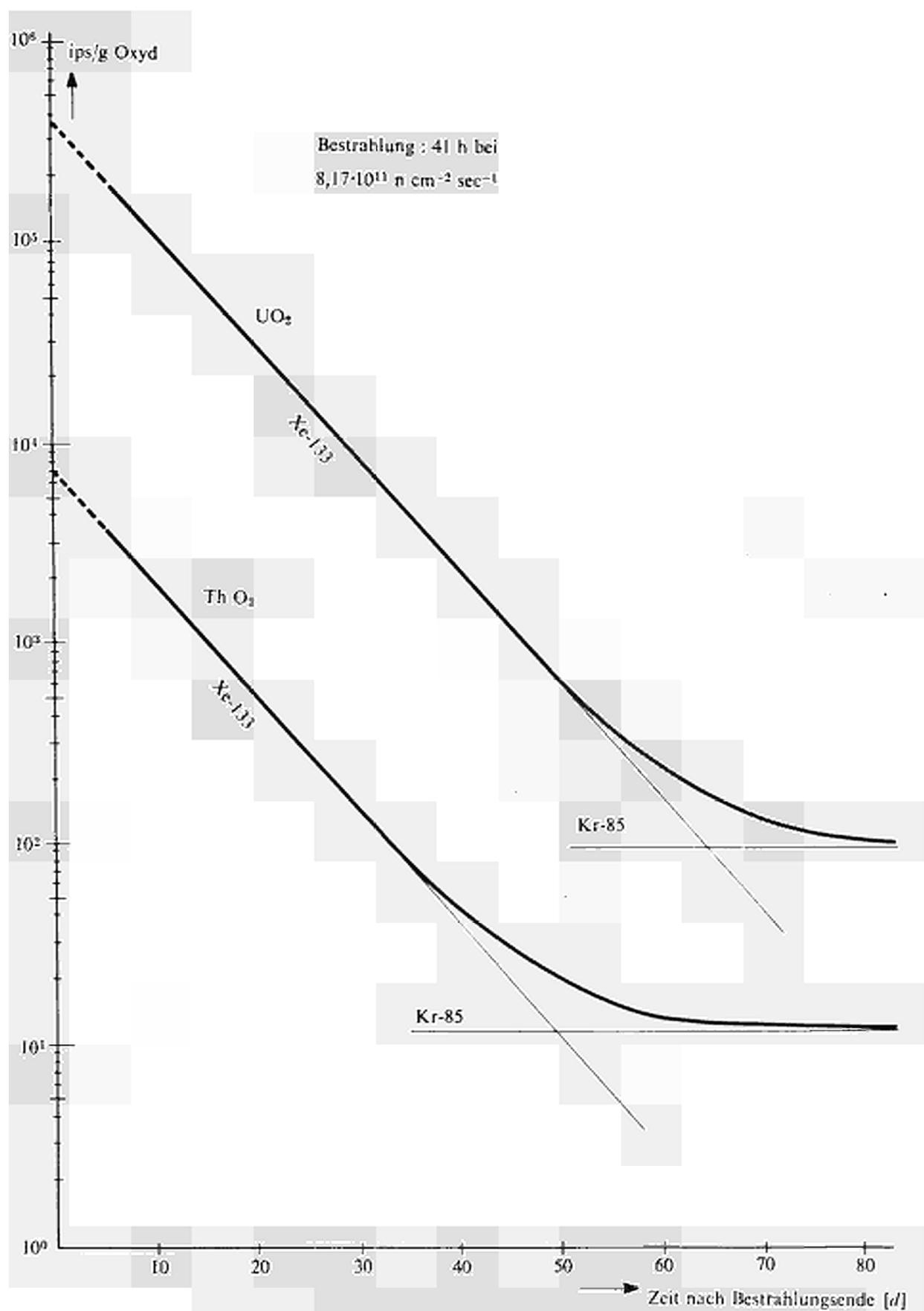


Fig. 8 — Zusammensetzung Spaltedelfgase (Experiment N-31-2).

Bestrahlung : 41 h bei  $8,17 \cdot 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$

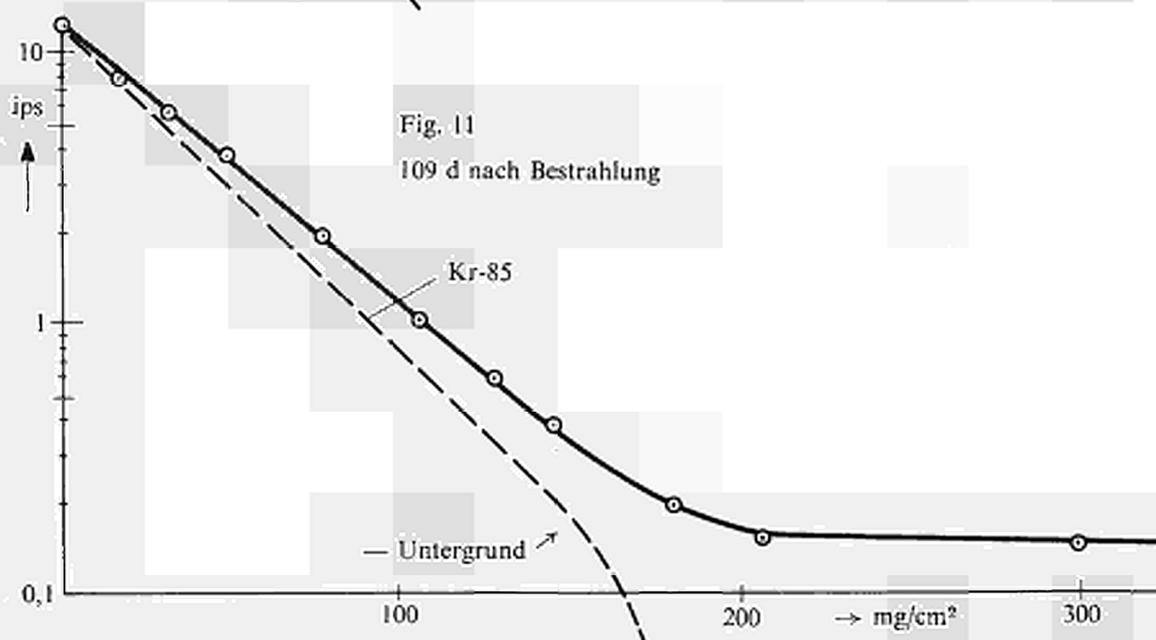
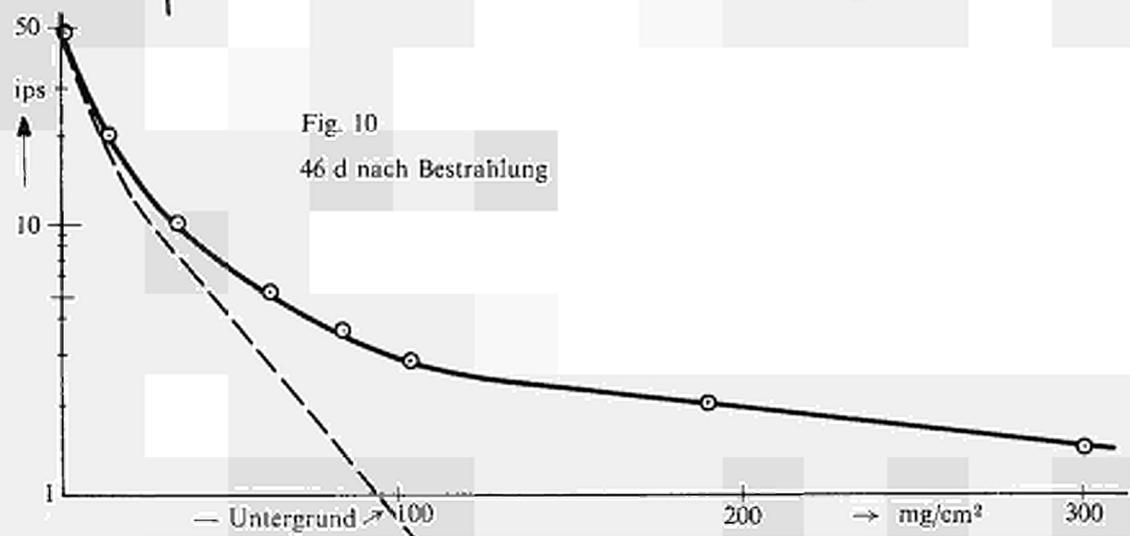
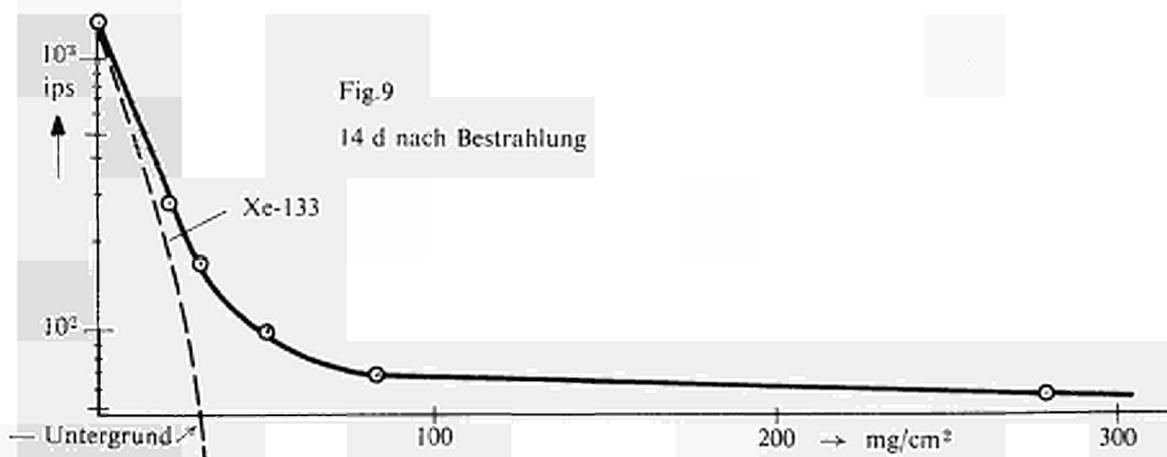


Fig. 9-11 —  $\beta$ -Absorptionskurven einer Gasprobe aus Th-232(nf) Experiment R-20-2b).

### 3 — EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNGEN AN MODELLSYSTEMEN

Die Herstellung von keramischen Kernbrennstoffen in der Weise, daß verschiedene Proben des gleichen Materials ein reproduzierbares Verhalten in bezug auf die Diffusion und Abgabe der Spaltgase zeigen, ist äußerst schwierig. Das Diffusionsverhalten reagiert außerordentlich empfindlich auf geringe, unvermeidbare Unterschiede der Feinstruktur, d.h. der Fehlbau- und Fehlordnungszustände im Gitter sowie des Gefüges, also der Sekundärstruktur der diskret- oder kompakt dispersen Stoffe. (Zur Charakterisierung der Struktur und Gefügeparameter fester Stoffe, vgl. ZIMEN<sup>(10)</sup>.) Diese empfindliche Reaktion der Edelgas-«Sonde» ermöglicht einerseits die Anwendung der Aktivierungs-Diffusion für Struktur- und Gefüge-Untersuchungen, bedeutet andererseits aber eine Komplikation bei der Aufklärung der Zusammenhänge zwischen der Kinetik der Edelgasabgabe und dem Strukturparameter sowie ihrem thermischen Verhalten.

Aus diesem Grund wurden neben den Untersuchungen an Kernbrennstoffen (vgl. Abschnitt 4) auch Untersuchungen an Modellsystemen in Angriff genommen in der Hoffnung, an diesen einfachen und in reproduzierbarer Weise herstellbaren Systemen die Zusammenhänge zwischen der Kinetik der Edelgasabgabe und definierten Änderungen der Struktur- und Gefügeparameter aufklären zu können.

#### 3.1 — CaF<sub>2</sub>-Einkristalle/Argon

Als erstes Modellsystem wurde CaF<sub>2</sub> gewählt, das die gleiche kubische-flächenzentrierte Struktur und den gleichen Fehlordnungstyp (Antifrenkel) besitzt wie die einfachste UO<sub>2</sub>-Phase.

Die von LAGERWALL<sup>(9)</sup> erhaltenen Resultate sind in den Figuren 12 und 13 wiedergegeben. Natürliche CaF<sub>2</sub>-Kristalle optischer Qualität sowie synthetische Einkristalle der Firma Leitz, Wetzlar, von der Größe 10 × 10 × 5 mm wurden hinter Cadmium 2 Stunden mit 10<sup>11</sup> schnellen Neutronen/cm<sup>2</sup>. sec bestrahlt. Die Abgabekurven des durch *n*, *α*-Prozeß gebildeten Ar-41 verlaufen entsprechend der Kinetik für reine Volumendiffusion bis zu *F* = 1 (Figur 12). Die zwischen 800 und 1300°C gemessenen Diffusionskoeffizienten lassen sich beschreiben durch die Gleichung.

$$D = 2,5 \cdot 10^4 \exp(-67.400/RT).$$

Die Aktivierungsenergie von 67,4 kcal/Mol oder 2,92 eV/Atom ist etwas größer als die aus den Leitfähigkeitsmessungen von URE<sup>(11)</sup> resultierende Aktivierungsenergie für die Diffusion der Fluorionen (2,0 eV/Atom), und die *D*-Werte liegen im bestrahlten Temperaturbereich um ein bis zwei Größenordnungen niedriger (Figur 13). Für die weiteren Schlußfolgerungen sei auf die Publikation verwiesen.

Die in Abschnitt 2 beschriebenen Notwendigkeiten bei der Auswertung von PAD-Kurven bei schrittweiser Temperaturerhöhung konnten an diesen Modellsystemen klar demonstriert werden (vgl. Figur 12).

Diese Untersuchungen an reinem CaF<sub>2</sub> werden zur Zeit ergänzt durch Untersuchungen an heterotypen Mischphasen, bei denen die Fehlordnung in definierter Weise verändert worden ist.

#### 3.2 — KF/Argon

KF-Einkristalle optischer Qualität wurden im BER bestrahlt und das durch *n*, *p*-Reaktion gebildete Ar-41 in einer Zirkulationsapparatur (vgl. 2.2) mit Luft als Strömungsgas gemessen.

Bei den durchgeführten Experimenten wurde die Totalaktivität der Proben bestimmt entweder durch Auflösen oder durch Schmelzen der Probe in der Strömungsapparatur nach Beendigung des Diffusionsversuches.

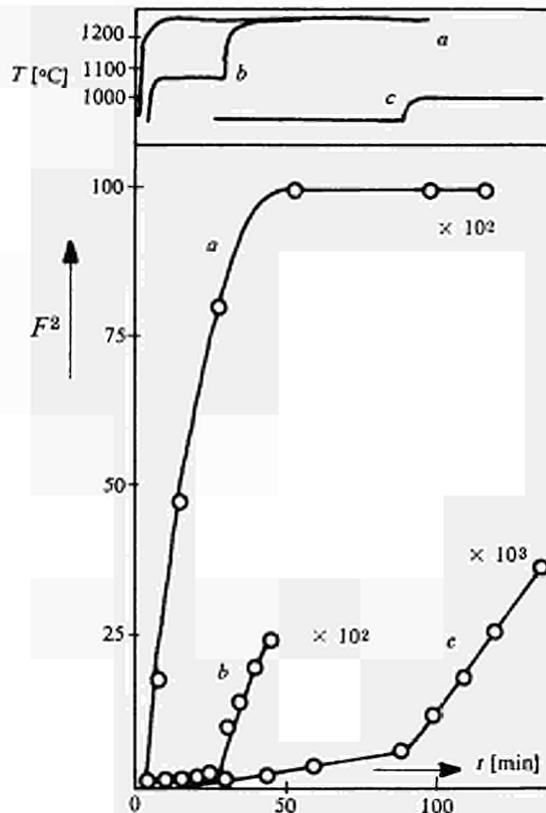


Fig. 12 — Ar-Diffusion in  $\text{CaF}_2$  aus : Lagerwall, Nukleonik 4 (1962) 158.

$(s/v)^2[\text{cm}^{-2}]$   
 a = 247  
 b = 53,9  
 c = 67,5

Trotz großer Bemühungen um reproduzierbare Bestrahlungsbedingungen ergaben sich dabei unerwartet große Schwankungen der spezifischen Totalaktivität von  $\pm 15\%$ .

Die Edelgasabgabe verlief bei den Einkristallen wie nach der Theorie zu erwarten war, d.h. ohne stoßweise Abgabe und bis zum Leerlaufen der Kristalle ( $F = 1$ ). Die genannte Unsicherheit bei der Bestimmung der Totalaktivität und vielleicht noch weitere, noch nicht klargestellte Ursachen führten aber zu einer wesentlich größeren Streuung der Meßresultate als bei den  $\text{CaF}_2$ -Versuchen, trotz der bedeutend höheren Ar-Aktivität.

In Figur 14 sind die Ergebnisse zusammengestellt. Die eingezeichnete Gerade wird durch

$$D = 8,9 \exp(-36.800/RT)$$

beschrieben. Wie aus der Figur ersichtlich, ist die Unsicherheit sowohl in  $D_0$  wie in der Aktivierungsenergie beträchtlich.

Im Gegensatz zu den Einkristallen zeigten aus KF-Pulver gepreßte Tabletten beim ersten Erhitzen einen ausgeprägten Aktivitätsstoß und bei schrittweisem Nacherhitzen resultieren typische Treppenkurven : Figur 15.

Nach erneuter Bestrahlung und wiederholtem Erhitzen waren die Aktivitätsstöße geringer und verschwanden schließlich bei genügend langer Vorerhitzung ganz. Dies zeigt, daß die Rekristallisation, wie sie in einem gepreßten Pulver beim Erhitzen vor sich geht, einen Anlaß zu den auch bei Kernbrennstoffen gewöhnlich beobachteten Aktivitätsstößen darstellt.

Die Versuche mit KF werden fortgesetzt, um mit besserer Methodik besser reproduzierbare Ergebnisse zu erhalten und um den Einfluß der Rekristallisation genauer zu untersuchen.

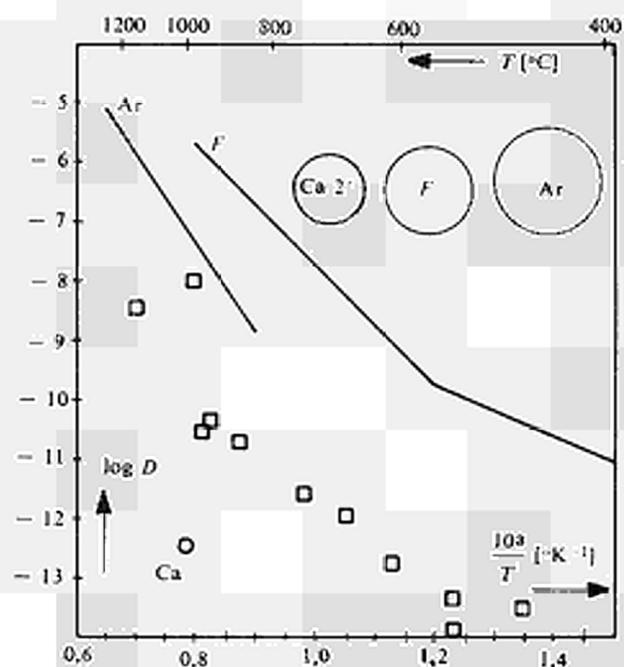


Fig. 13.

Ar-Diffusion in  $\text{CaF}_2$  aus : Lagerwall, Nukleonik 4 (1962) 158

Ar  $\circ$  Ar<sup>39</sup> in Ca F<sub>2</sub>

F  $\square$  F in Ca F<sub>2</sub>

Ca  $\triangle$  Ca in Ca F<sub>2</sub>

$\circ$  Ar in Flußspat

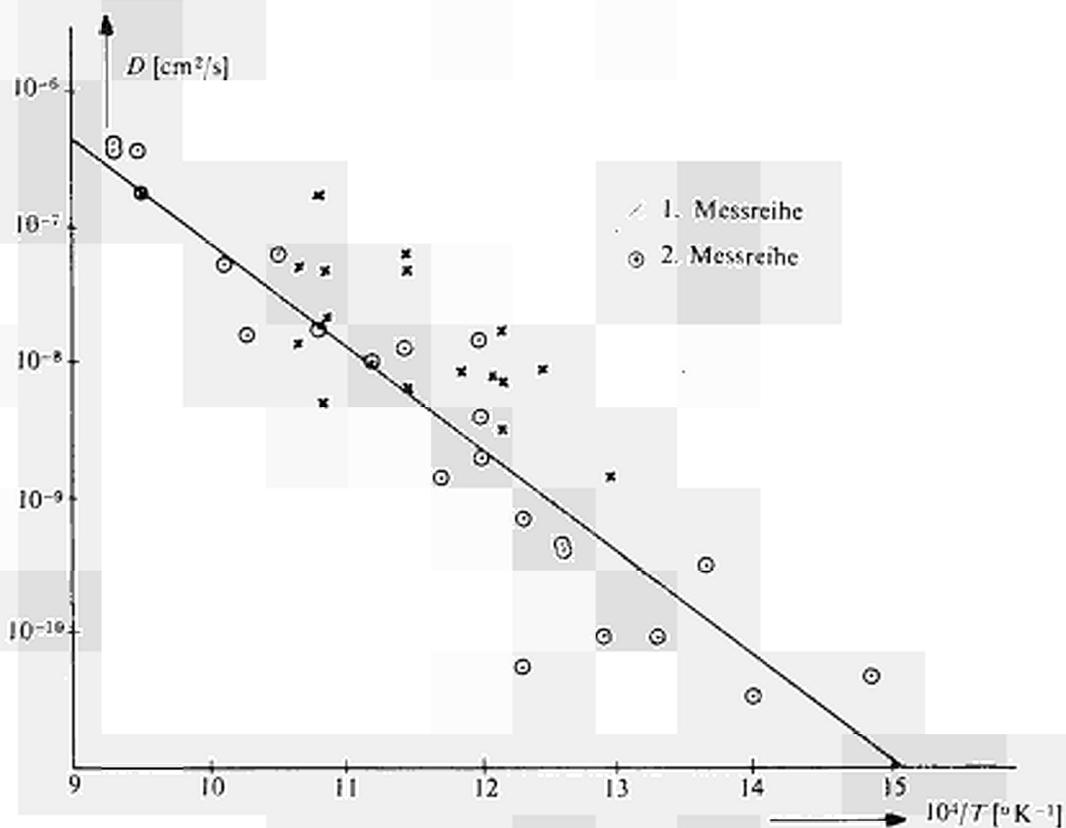


Fig. 14 — Ar-Diffusion in KF-Einkristallen.

### 3.3 — KCl/Argon

Die Untersuchungen mit KCl-Einkristallen aus doppelt gereinigtem, analysenreinem KCl (Fa. Korth, Kiel) ergaben ebenfalls Schwierigkeiten bei der Bestimmung der Totalaktivitäten und eine unerwartet große Streuung der Ergebnisse : Figur 16. Die gewählte Gerade entspricht der Gleichung

$$D = 1,0 \exp (-21.000/RT).$$

Die Versuche an Einkristallen wurden auch bei KCl durch Versuche mit gepreßten Tabletten ergänzt. Im Gegensatz zu dem Verhalten der Einkristalle zeigten auch die KCl-Tabletten keinen reiner Volumendiffusion entsprechenden Verlauf der Edelgasabgabe. Beispielsweise geben KCl-Einkristalle beim Erhitzen auf 700°C alles Argon in rund 70 Minuten ab. Bei einer gepreßten Tablette (Preßdruck 8 t, Korngröße + 250/ - 400 Maschen cm<sup>-2</sup>) war dagegen bei gleicher Temperatur nach einer Stunde erst ein Wert von  $F = 0,35$  erreicht. Diese Ergebnisse weisen auf einen Mechanismus hin, bei dem die Edelgasatome sich in geschlossenen Poren ansammeln und weder durch Korngrenzendiffusion noch durch Lösung und Diffusion im Kristallgitter nach außen gelangen können.

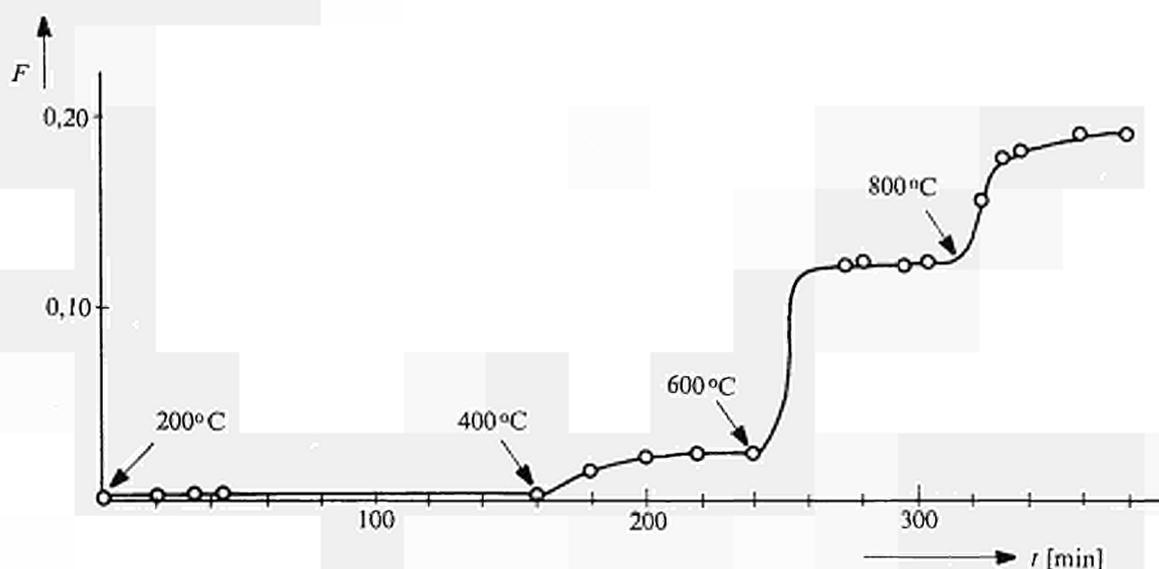


Fig. 15 — Ar-Abgabe aus einer KF-Tablette.

Außer reinem KCl wurden auch heterotype Mischkristalle untersucht, nämlich KCl dotiert mit 0,03 Mol % K<sub>2</sub>S und KCl dotiert mit 0,025 Mol % SrCl<sub>2</sub>. Diese Mischkristalle sind nach der Bestrahlung im Reaktor tiefviolett und zwar die SrCl<sub>2</sub>-haltigen etwas dunkler, die K<sub>2</sub>S-haltigen etwas matter. Die Verfärbungen verschwinden bei 260°C in wenigen Sekunden.

Die erwartete Beeinflussung des Diffusionskoeffizienten für Ar-41 konnte nicht beobachtet werden, wie Figur 16 zeigt. Dies spricht dafür, daß auch bei den «reinen» KCl-Kristallen eine chemische, irreversible Fehlordnung vorhanden ist, die so groß ist, daß der Einfluß der durch die Dotierung hervorgerufenen Fehlordnung daneben zu gering ist. Weitere Versuche werden zeigen, ob diese Schwierigkeiten behoben werden können.

### 3.4 — Ag-Li/Helium

Silberproben mit geringem Li-Gehalt wurden im BER bestrahlt und die Diffusion des durch Li ( $n, \alpha$ )-Reaktion gebildeten Heliums mittels Massenspektrometer gemessen. Im Berichts-

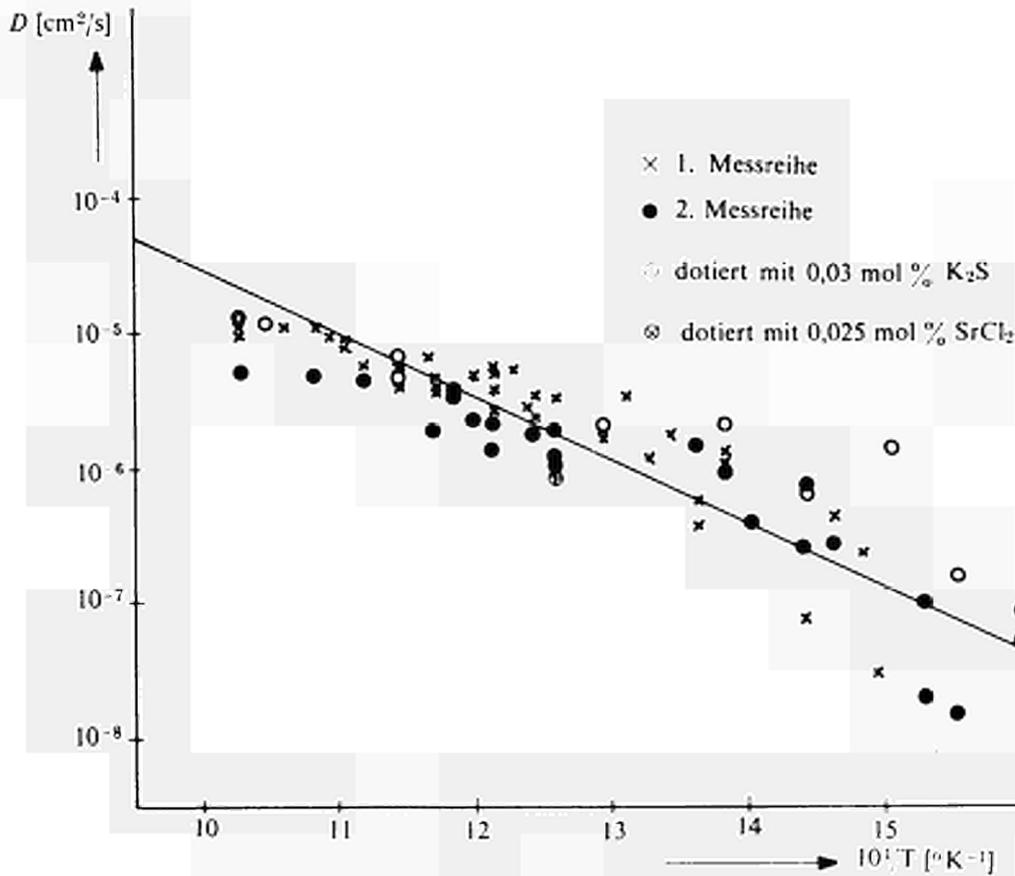


Fig. 16 — Ar-Diffusion in KCl-Einkristallen.

zeitraum wurden die Apparatur aufgebaut, die Proben hergestellt und eine Reihe von Vorversuchen durchgeführt, die zeigen, daß es aussichtsreich ist, in diesen und ähnlichen Systemen die Edelgasdiffusion in metallischen Phasen zu untersuchen. Die metallischen Systeme hätten gegenüber den Salzen den Vorteil, daß hier der Einfluß genau definierter Veränderungen (Rekristallisation, Sinterung, Phasenumwandlungen, Korrosion) auf die Kinetik der Edelgasabgabe untersucht werden könnte.

#### 4 — EXPERIMENTELLE UNTERSUCHUNGEN AN KERNBRENNSTOFFEN

##### 4.1 — Urandioxyd

Im Berichtszeitraum wurde eine Reihe von kristallinen, teilweise sogar monokristallinen Proben untersucht.

0-11 (Euratom) : 3 kugelförmig geschliffene Einkristalle Nr. 21, 22 und 30.

0-15 (Battelle Memorial Institute, Columbus, USA) : 3 Einkristalle, nämlich eine Kugel S-1 und zwei Plättchen A-III-3 bzw. A-III-4.

0-5 (Westinghouse Electric Comp., Pittsburgh, USA) : lichtbogengeschmolzene Stücke älteren Datums.

Vor der Bestrahlung wurden die Proben 2 bis 3 Stunden bei 650°C im Wasserstoffstrom reduziert. Die Proben wurden in evakuierten Quarzampullen bis zu einer Neutronendosis von  $10^{17} \text{ } \varnothing \text{ t}$  bestrahlt. Die PAD-Versuche wurden in der diskontinuierlichen Vakuumapparatur teils durch isotherme, teils durch mehrstufige Erhitzung im Bereich von 1000 bis 1700°C und Erhitzungszeiten von 1 bis 14 Tagen durchgeführt. Nach der Bestrahlung wurden Verdampfungsverluste durch Wägung bestimmt. Durch nochmalige Reduktion unter den gleichen Bedingungen wie vorher wurde festgestellt, daß die Proben nicht oxydiert waren. Als Behältermaterial dienten Wolframtiegel, die augenscheinlich bis 1700°C nicht mit den Proben reagierten.

Die Verdampfungsverluste waren oberhalb 1500°C merklich, und weitere Versuche müssen zeigen, inwieweit diese Verdampfung die Auswertung der Diffusionsversuche beeinflusst. Die Einkristalle erschienen nach der Erhitzung etwas heller in der Farbe und wiesen glitzernde Kristallflächen auf.

Nach einer Abklingzeit von 3 bis 4 Monaten wurden die verwendeten Einkristalle nochmals bestrahlt und zur Wiederholung der Diffusionsversuche verwendet.

In der Tabelle 2 sind die vorläufigen Ergebnisse der ersten Versuche angegeben.

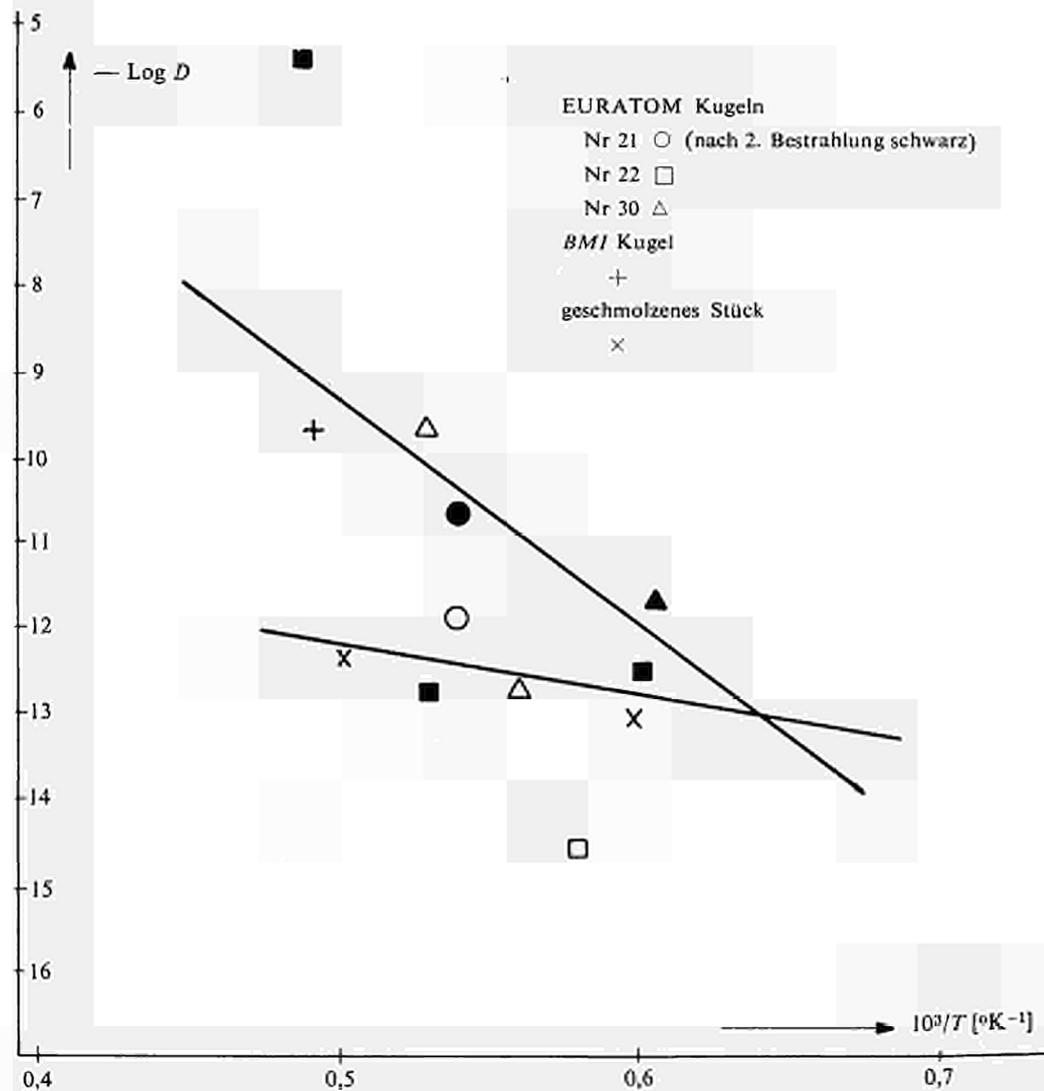


Fig. 17 — Vorläufige PAD-Resultate an  $\text{UO}_2$ -Kristallen.

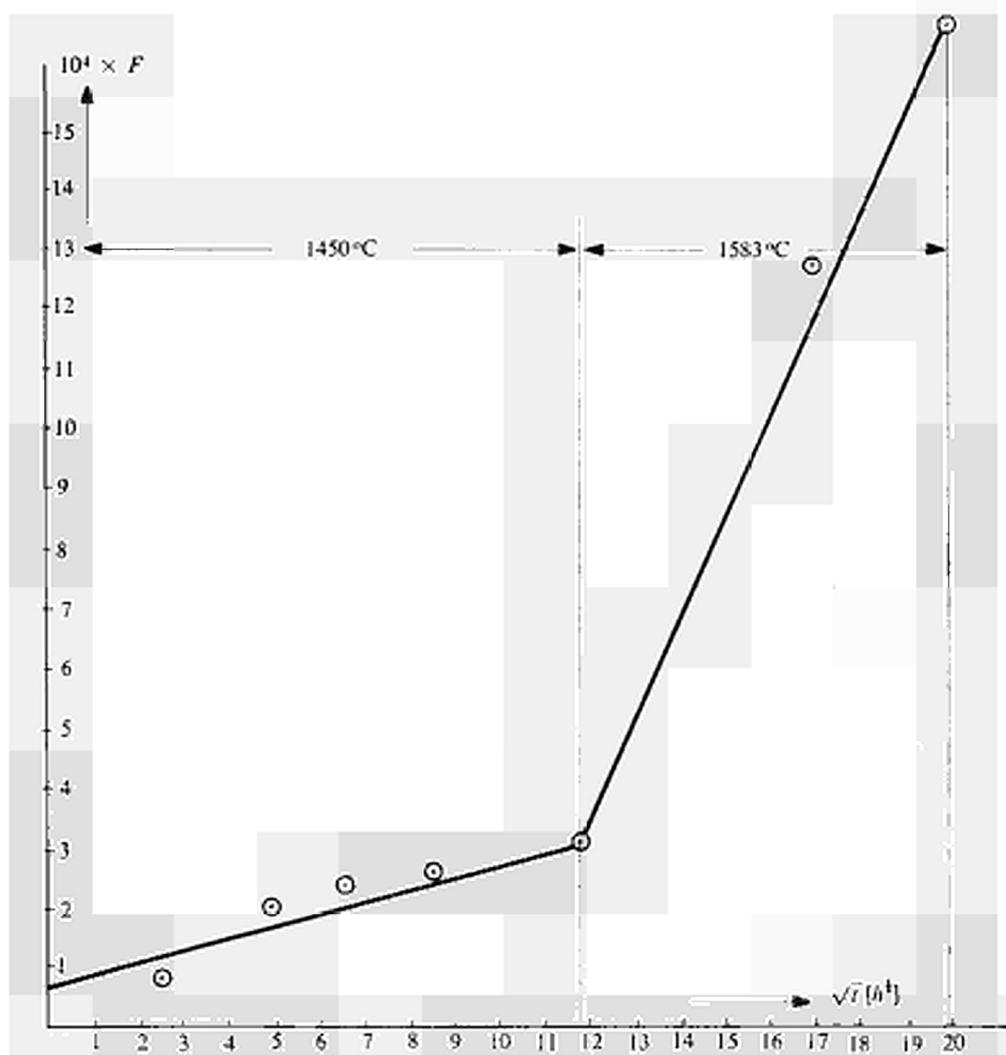


Fig. 18.

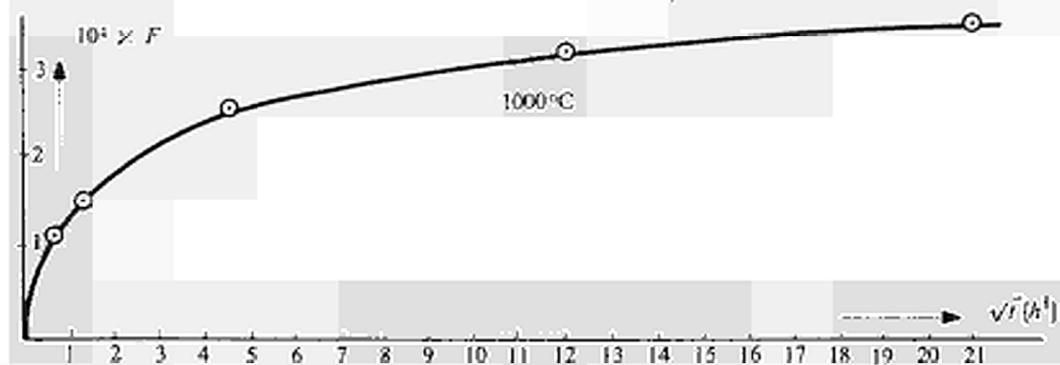


Fig. 19.

Fig. 18-19 — Xe-Abgabe aus  $UO_2$ -Einkristallen (Euratom-Kugeln Nr. 22,30) Experiment N-31-6 bzw. N-31-11

Die Auftragung der Werte nach Arrhenius zeigt eine sehr starke Streuung, vgl. Figur 17. Der extreme Wert bei 1737°C konnte bisher nicht reproduziert werden und ist vielleicht einer Oxydation zuzuschreiben. Ein Vergleich der Werte der ersten und zweiten Bestrahlung zeigt ein Ansteigen des  $D$ -Wertes bei der zweiten Bestrahlung. Anscheinend liegt ein Einfluß der Bestrahlungszeit vor. Für weitere Experimente ist es deshalb wünschenswert, an einer größeren Zahl gleichartiger Kristalle die Aktivierungsenergie genauer zu bestimmen, bevor die Proben mehrfach bestrahlt werden.

Die Xenonabgabe folgt im allgemeinen dem theoretisch erwarteten Verlauf, vgl. Figur 18. Bei tieferen Temperaturen wurde dagegen ein geringer Aktivitätsstoß beobachtet, vgl. Figur 19. Bei 1000°C wurde ein geringer Bruchteil freigesetzt mit einer oberen Grenze von etwa  $F = 3,5 \times 10^{-4}$ . Diese freigesetzte Menge ist einer Oberflächenschicht von  $5 \mu$  proportional. Der Aktivitätsstoß könnte also seinen Grund in einem Oberflächeneffekt haben, sei es in einer Ausheilung der strahlengeschädigten Oberfläche, sei es in dem Beitrag der normalen Oberflächenrauigkeit. Bei höheren Temperaturen wurde dieser Effekt nicht mehr beobachtet, da er dann vernachlässigbar klein gegenüber der normalen Xenonabgabe war.

Für die Fortsetzung der Versuche ist geplant, mehr gleichartige Kristalle unter vergleichbaren Bedingungen zu untersuchen, für höhere Temperaturen den Verdampfungseinfluß zu messen und bei tieferen Temperaturen die Kinetik des Aktivitätsstoßes zu bestimmen.

## 4.2 — Uranmonokarbid

Im Berichtszeitraum standen noch keine Einkristalle zur Verfügung. Die Untersuchungen wurden deshalb an folgenden Materialien durchgeführt, die alle durch Schmelzen im Lichtbogen in polykristalliner Form hergestellt wurden :

*K-3* (Battelle Memorial Institute, Ohio, USA) : dichtes, grobkörniges Material, Kristallitgröße ca. 0,1 mm, 5,0 Gew.% Kohlenstoff, metallisch-grauer Glanz

*K-2* (Numecc, Apollo, Pennsylvania, USA) : dichtes, grobkörniges Material, leicht trennbare Kristallite, gelblich-metallischer Glanz, exakter Kohlenstoffgehalt unbekannt

*K-7* (Nukem, Wolfgang, DBR) : dichtes, glasiges Material mit hohem Gehalt an  $UC_2$ -Einschlüssen, genauer Kohlenstoffgehalt noch unbekannt.

Die Proben wurden in evakuierten Quarzampullen bis zu einer Neutronendosis von ca.  $10^{17} \text{ } \varnothing \text{ t}$  bestrahlt. Die Erhitzungsversuche wurden in der diskontinuierlichen Vakuumanlage durchgeführt. Da die Oberfläche noch nicht nach BET gemessen werden konnte, ist die Angabe von Diffusionskoeffizienten noch nicht möglich; die Aktivierungsenergie kann dagegen geschätzt werden.

### 4.2.1 — Uranmonokarbid-Pulver (aus Material *K-3*)

Das massive Material *K-3* wurde unter Alkohol gemahlen und anschließend in drei Siebfraktionen getrennt, und unter Annahme von kugelförmigen Körnern wurde aus der Dichte und dem mittleren Gewicht eines Kornes der mittlere Kornradius berechnet.

Mit diesen Fraktionen wurden Versuche mit mehreren Temperaturstufen durchgeführt, als Beispiel vgl. Figur 20 und 21.

Bei der ersten Temperaturerhöhung wurde immer eine stoßweise Abgabe beobachtet. Weitere Aktivitätsstöße wurden bei folgenden plötzlichen Temperaturerhöhungen bis etwa 1400°C nicht mehr beobachtet. Oberhalb dieser Temperatur traten wieder Stöße auf, die wahrscheinlich durch Sintervorgänge verursacht werden, da bei 1760°C ein leichtes Haften der Körner aneinander festgestellt wurde. Aus der Darstellung in Figur 22 kann für die Diffusion des Xenons in Uranmonokarbidpulver eine Aktivierungsenergie von ca. 67 kcal/Mol abgeschätzt werden.

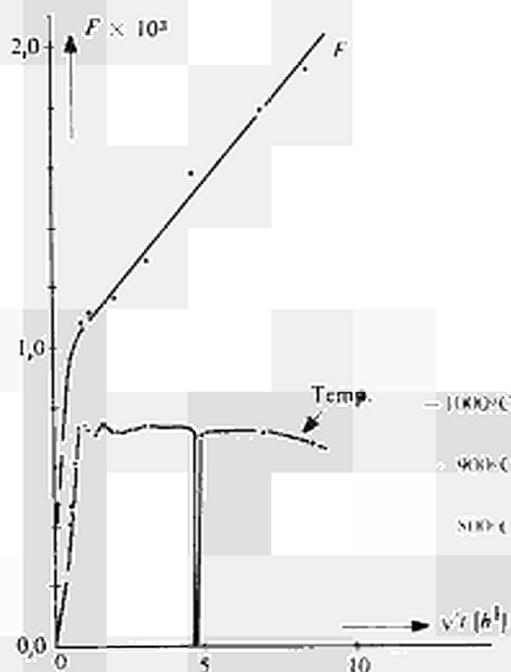


Fig. 20.

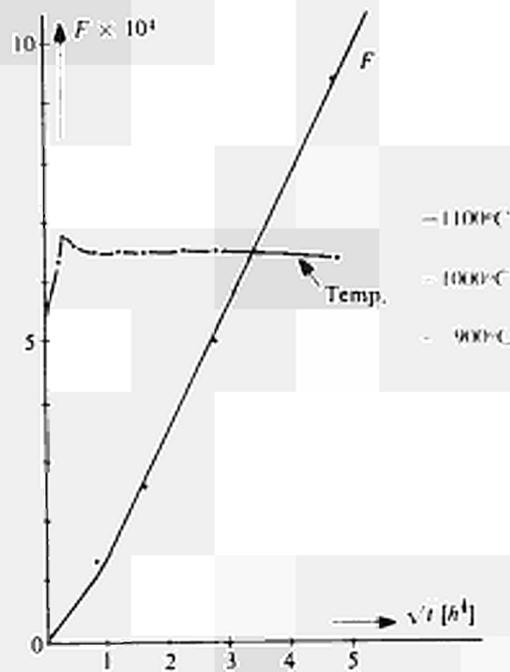


Fig. 21.

Xe-Abgabe aus UC-Pulver (Experiment E-51).

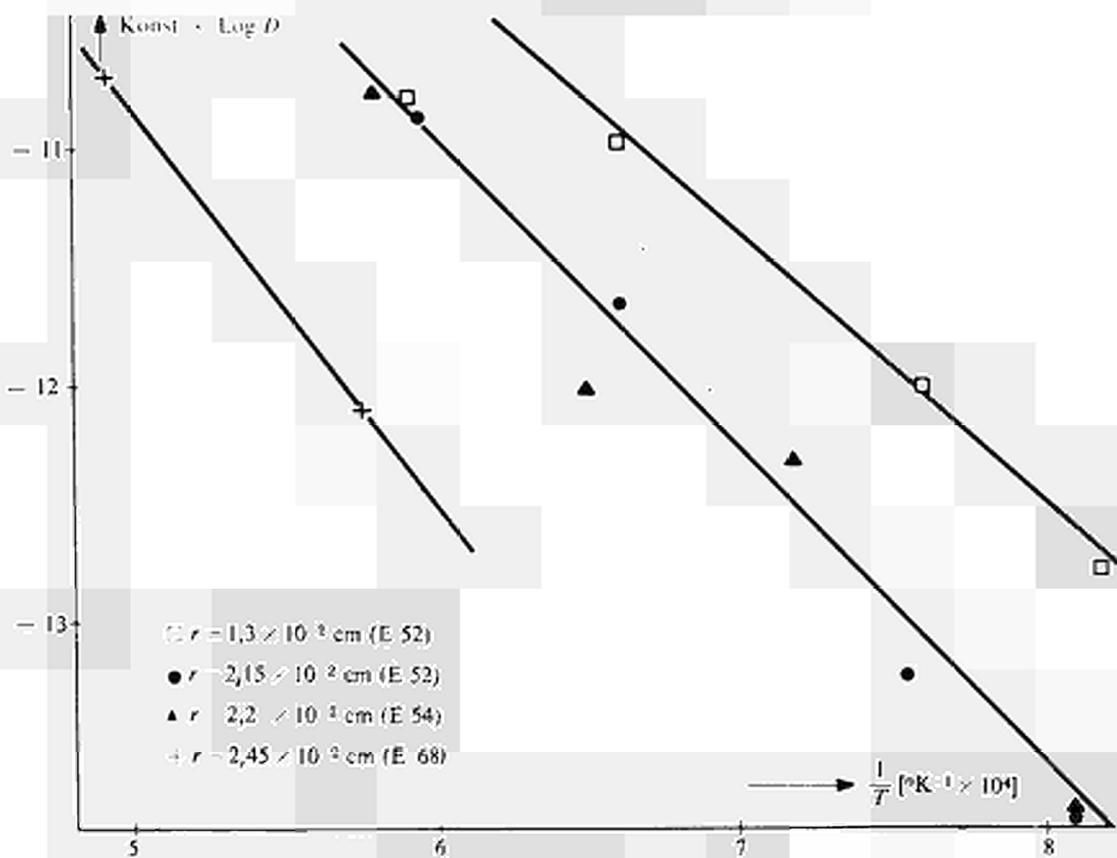


Fig. 22 — Zusammenstellung: UC-Pulver.

#### 4.2.2 — Uranmonokarbid-Stückchen

Die meisten Versuche wurden mit Material K-3 durchgeführt. Im Gegensatz zum Pulver war die Art der Edelgasabgabe komplizierter und der gesamte Verlauf nicht reproduzierbar. Bei allen Temperaturerhöhungen traten Aktivitätsstöße auf, die nicht immer reproduzierbar waren. Figur 23 gibt ein Beispiel für den Verlauf der Edelgasabgabe. Wegen der Unkenntnis der Oberfläche wurden in Figur 24 die Steigungen der einzelnen Abgabekurven im  $F\sqrt{t}$ -Diagramm eingetragen; die Aktivierungsenergie kann grob zu 70 kcal/Mol abgeschätzt werden.

Die Xenon-Abgabe aus den Materialien K-2 und K-7 war bedeutend höher; vgl. Tabelle 3.

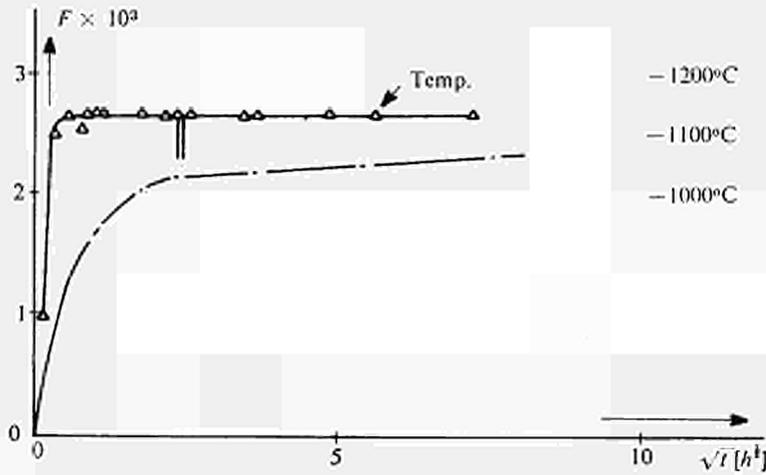
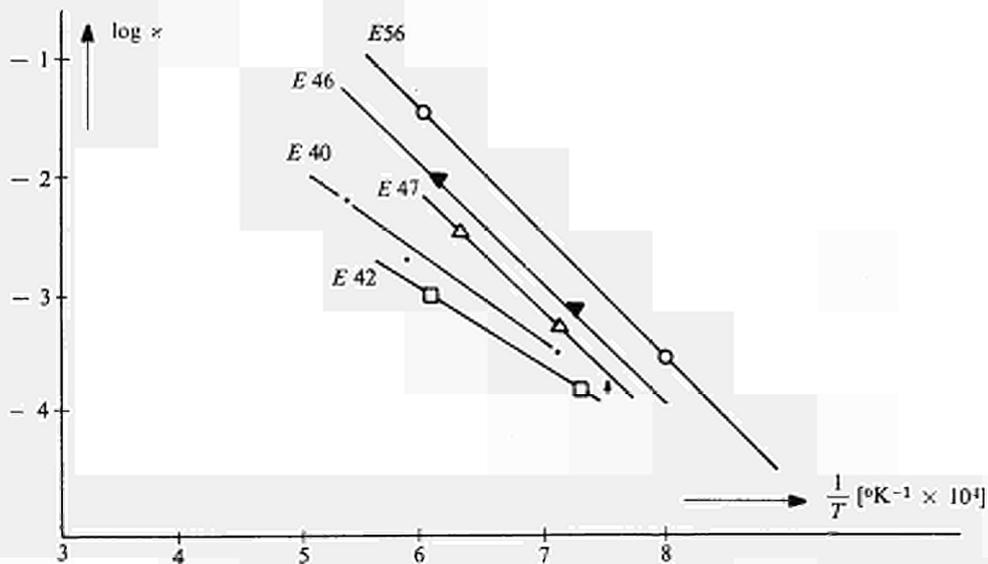


Fig. 23 — Xe-Abgabe aus UC-Stückchen (Exp. E-40).



Zusammenstellung :

Fig. 24 — Zusammenstellung : UC-Stückchen.

#### 4.2.3 — Urankarbid in Graphitmatrix

Die Proben wurden von der Firma Nukem in ähnlicher Form geliefert, wie sie für das AVR-Reaktorprojekt hergestellt werden. Das Karbid liegt als  $UC_2$  vor, gemischt mit Graphit zu einer Zusammensetzung « $UC_{31}$ » (12).

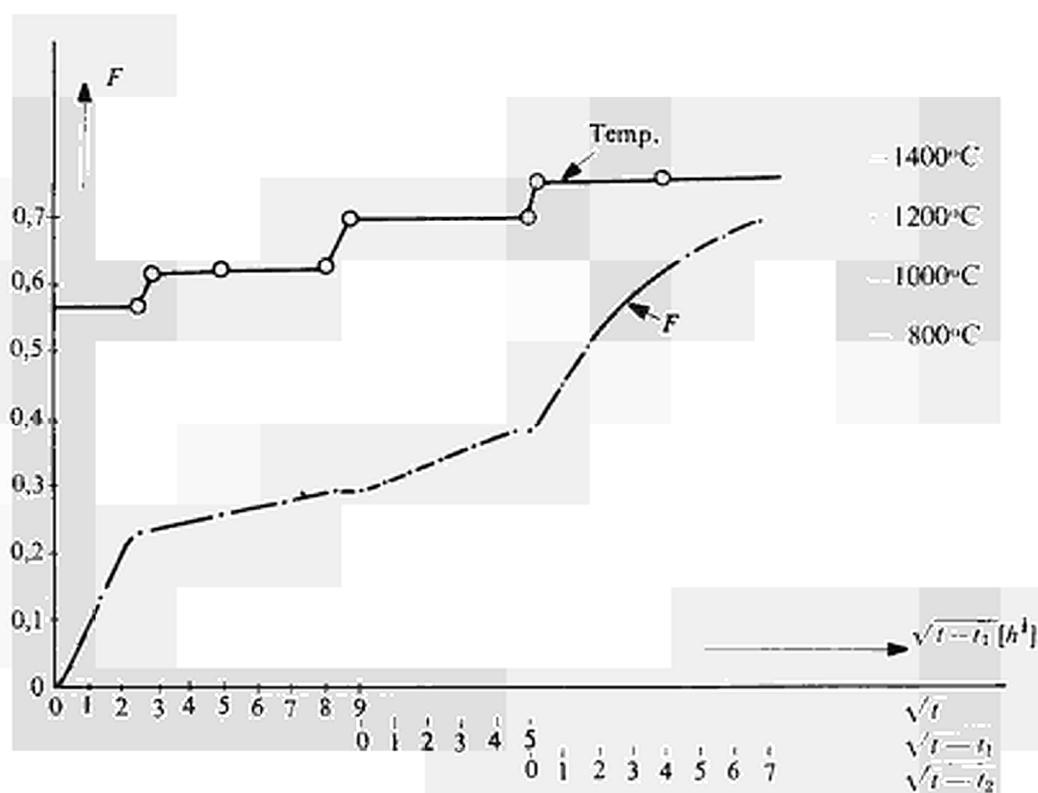


Fig. 25

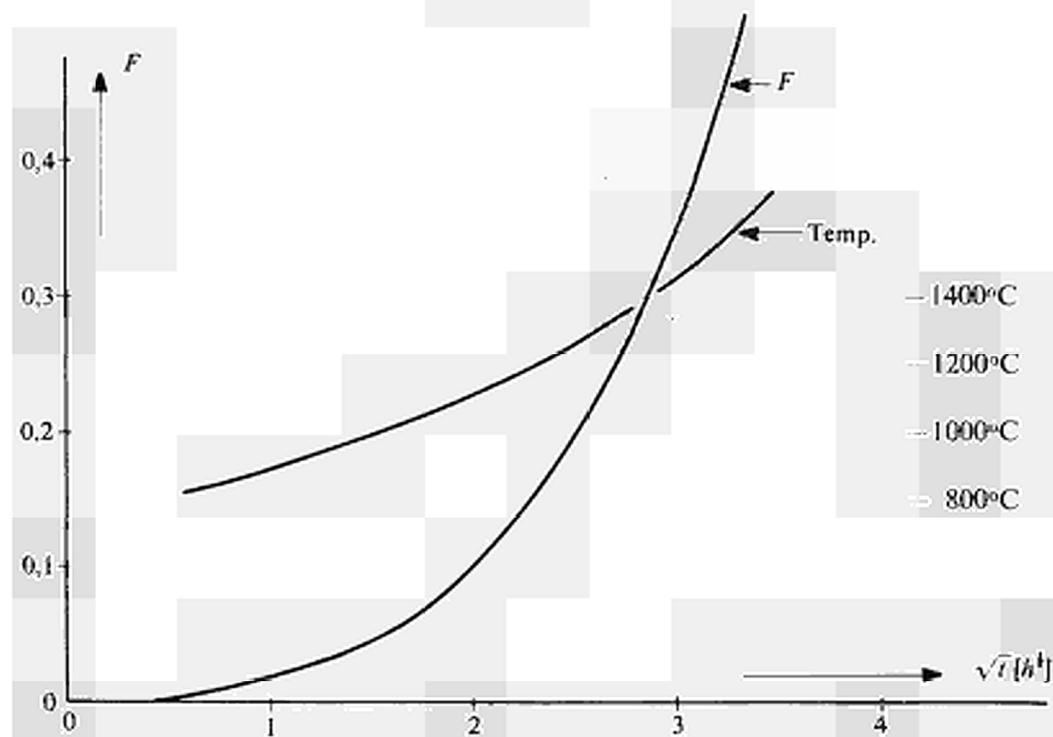


Fig. 26

Fig. 25-26 — Xe-Abgabe aus Urankarbid-Graphitproben (Exp. E-38 bzw. E-60).

Zur Korngrößenverteilung ist angegeben, daß 70% der UC<sub>2</sub>-Körner Korngrößen von 7 bis  $10 \times 10^{-3}$  mm aufweisen. Die Proben wurden bei 1900°C im Vakuum ausgeheizt.

Im Berichtszeitraum wurden PAD-Versuche zwischen 800 und 1800°C in der diskontinuierlichen Vakuumapparatur durchgeführt. Als Probenrohr diente nicht ein Tantal-, sondern ein Graphitrohr.

Figur 25 und Figur 26 geben zwei typische Beispiele für die Ergebnisse der Versuche für stufenweis bzw. kontinuierlich ansteigende Temperatur. Es wurde festgestellt, daß der Abgabeprozess zu kompliziert verläuft, um sicher ausgewertet werden zu können. Diese Tatsache ist nicht erstaunlich, wenn man bedenkt, daß Xenon während der Bestrahlung durch Rückstoß in die Graphitmatrix gelangt, vgl. (13). Erst ein besseres Verständnis des Mechanismus der Edelgasabgabe aus komplexen Systemen (vgl. Abschnitt 5) wird eine nützliche Auswertung derartiger Meßergebnisse ermöglichen.

### 4.3 — Thoriumdioxid

Als Material wurde verwendet :

T-6 (Matthey Ltd., London, England) : spektralreines Pulver, BET-Oberfläche ca. 6 m<sup>2</sup>/g, vorerhitzt an Luft 24 h bei 1000°C.

T-9 (Spencer Chemical Comp., Pittsburg, Kansas) : Kristallkonglomerate, die schwarze Farbe scheint von Kohlenstoff oder Thoriumkarbid herzurühren. Eine Reinigung war bisher nicht möglich. Das Material konnte durch rasches Erhitzen in Einzelkristalle zerteilt werden.

Die Proben wurden in evakuierten Quarzampullen bei ca.  $0,3 \times 10^{11}$  schnellen Neutronen/cm<sup>2</sup>. sec 30 bis 100 Stunden bestrahlt. Die PAD-Versuche wurden teilweise durchgeführt in der Anlage mit Mischung durch Töplerpumpe (vgl. 2.2) und teilweise in der diskontinuierlichen Vakuumapparatur mit Ofenheizung oder mit Hochfrequenzheizung. Für alle Versuche mit Ofenheizung wurden als Probenbehälter Prokorundrohre (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Rohre der Staatlichen Porzellanmanufaktur Berlin) verwendet, die bis 1700°C nicht mit den Proben reagierten und die bei vorsichtiger Erhitzung vakuumdicht waren. Bei HF-Erhitzung wurden Wolframtiegel verwendet.

#### 4.3.1 — Thoriumdioxid-Pulver (T-6)

In keinem Fall wurde eine Xenonabgabe gefunden, die sich als Gitterdiffusion beschreiben ließ. Die Xenonabgabe strebte im untersuchten Bereich, d.h. bis 1300°C einem temperaturabhängigen Sättigungswert zu; vgl. Figur 27 und Figur 28 als typische Beispiele :

$F_{\text{sätt}}$	$t^{\circ}\text{C}$
0,08	1047
0,27	1135

Es werden also größere Mengen Xenon im Pulver zurückgehalten. Diese Messungen weichen stark ab von den Resultaten die LINDNER und MATZKE (14,15) über das gleiche Material publizierten. Diese Autoren erhalten eine um Größenordnungen höhere Abgabe, allerdings nach einer 10<sup>4</sup> höheren Bestrahlungsdosis.

Auffallend ist weiter, daß die Abgaberate bei Versuchsbeginn ziemlich temperaturunabhängig zu sein scheint :

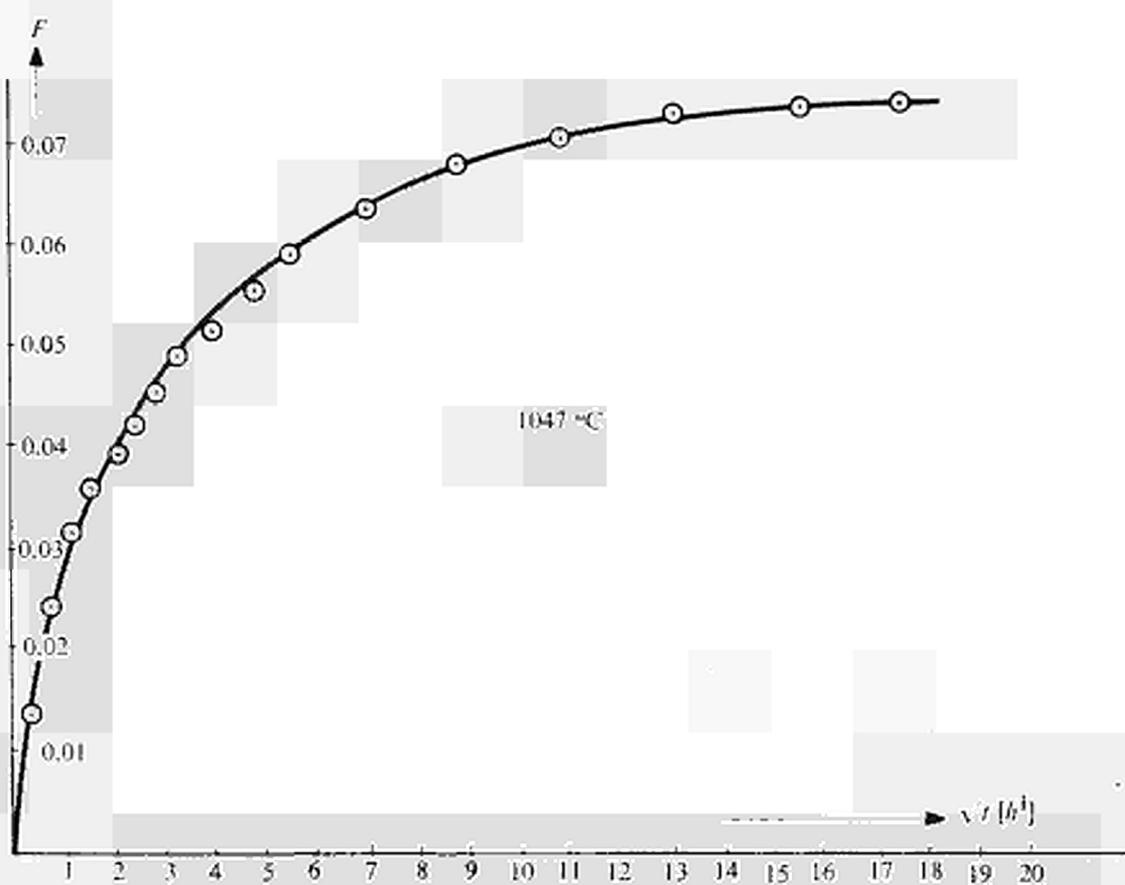


Fig 27

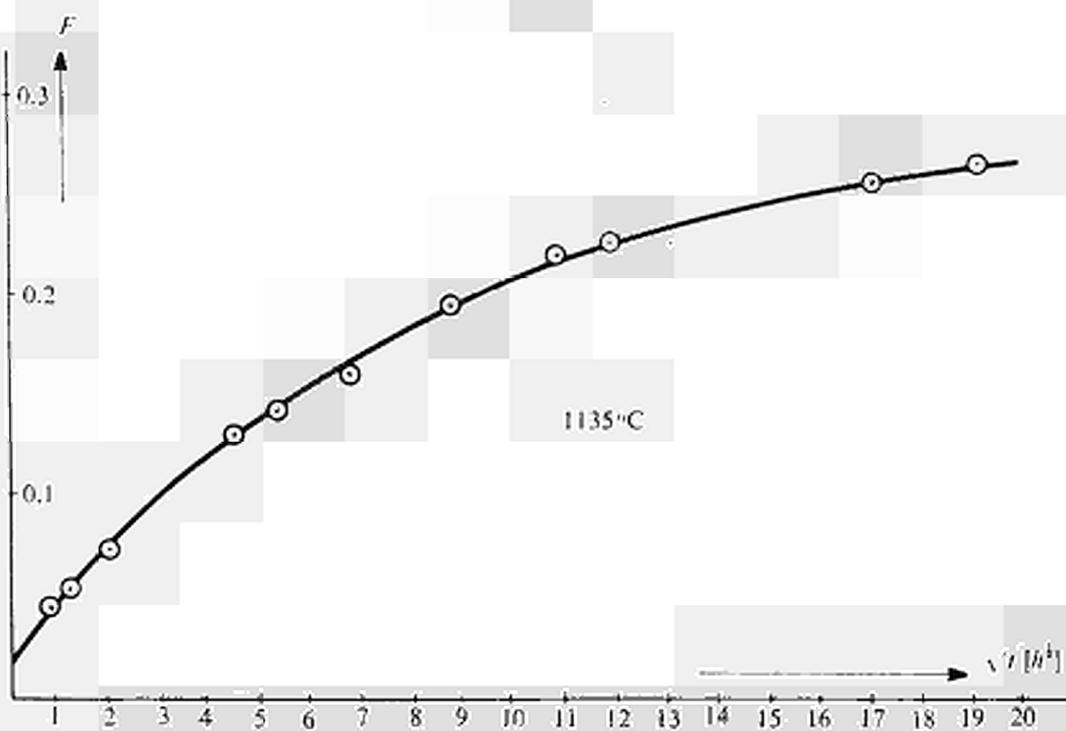


Fig 28

Fig. 27-28 — Xe-Abgabe aus ThO<sub>2</sub>-«Specpure»-Pulver (Exp. N-31-13a bzw. N-31-12).

$t^{\circ}\text{C}$	$F/\sqrt{t} \text{ [h}^{-1/2}\text{.]}$
657	0,03
1047	0,03
1135	0,025
1294	0,037

Wie unter 2.4 beschrieben, wurde versucht, den Kr-85-Gehalt der Gasproben zu bestimmen und mit dem entsprechenden Gehalt der Totalaktivität zu vergleichen, um Unterschiede in der Abgabe von Krypton und Xenon festzustellen. Ein definitiver Schluß ließ sich aber nicht ziehen, da der Kryptongehalt für diese Zwecke nicht genügend genau bestimmt werden konnte.

#### 4.3.2 — Thoriumdioxid-Kristalle

Die Kristalle zeigten den gleichen Verlauf in der Xenonabgabe wie Pulver, d.h. größere Mengen Edelgas scheinen im Kristall festgehalten zu werden; vgl. Figur 29, in der  $F_{\text{sätt}} = 0,1$  erreicht wird. Der Grund dafür könnte in den Verunreinigungen liegen, da die Kristalle vorläufig so wie geliefert verwendet wurden.

Für die Fortsetzung der Versuche ist geplant, die Kinetik zu untersuchen, die zur Einstellung der  $F_{\text{sätt}}$ -Werte führt, und an Kristallen besonderer Reinheit festzustellen, ob auch hier Abweichungen von idealer Volumendiffusion auftreten.

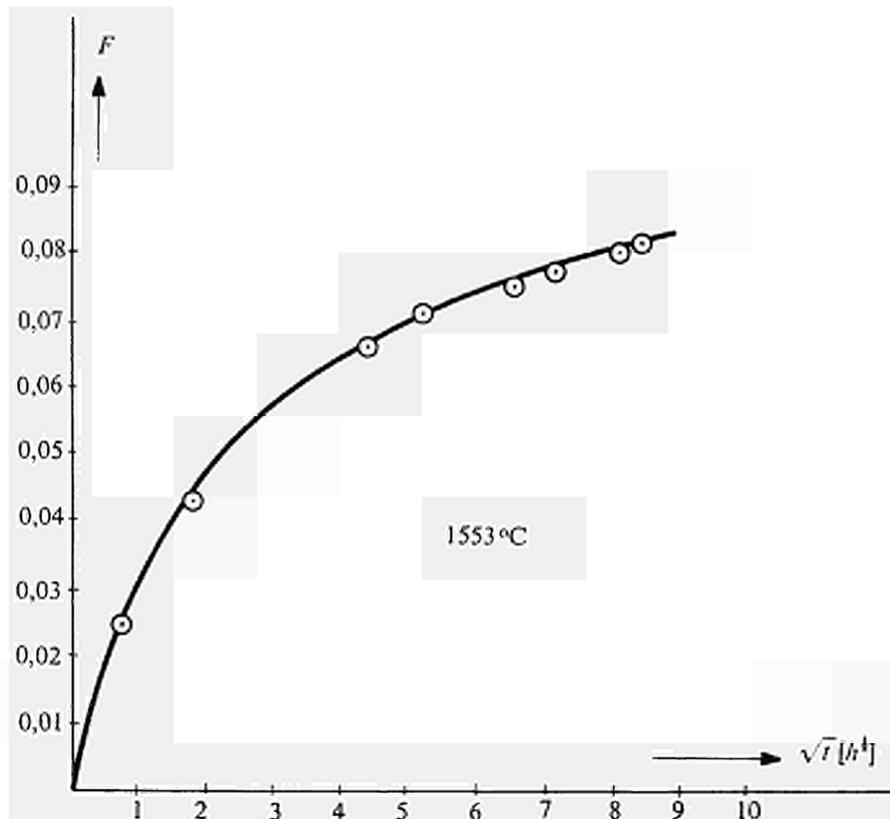


Fig. 29 — Xe-Abgabe aus  $\text{ThO}_2$ -Kristallen (Exp. N-20-4c).

## 5 — MECHANISMUS DER EDELGASABGABE AUS FESTKÖRPERN

Das Ziel unserer Untersuchungen ist ein quantitatives Verständnis der verschiedenen Mechanismen bei der Abgabe von durch Kernreaktionen in festen Körpern gebildeten Edelgasen und Spaltprodukten.

### 5.1 — Zeitbestimmende Gitterdiffusion

Bei zeitbestimmender Gitterdiffusion (vgl. Figur 30) erhält man stetige  $F^2-t$ -Kurven, aus denen der Diffusionskoeffizient ( $D$ ) des Edelgases im Gitter des Festkörpers nach dem Vorgang von INTHOFF und ZIMEN<sup>(1)</sup> und gegebenenfalls unter Zuhilfenahme der Tabellen<sup>(4)</sup> (4a) einfach ermittelt werden kann, falls das Verhältnis von Oberfläche ( $S$ ) zu Volumen ( $V$ ) bekannt und unveränderlich ist. Aus der Temperaturabhängigkeit von  $D$  ergibt sich auch die Aktivierungsenergie ( $Q$ ) für die Edelgasdiffusion

$$D = D_0 e^{-Q/RT}$$

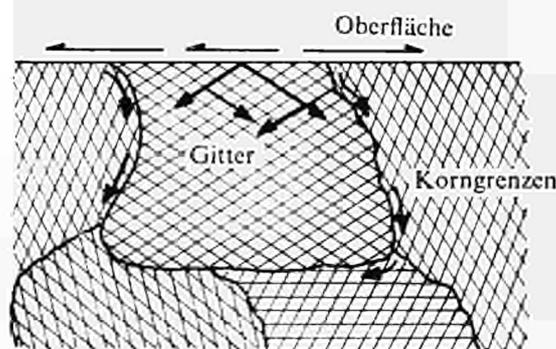


Fig. 30 — Die verschiedenen Diffusionstypen.

Der Frequenzfaktor  $D_0$  ist nach dem gaskinetischen Modell einfach  $D_0 = \frac{1}{3} v l$ , wobei  $v = (8kT/\pi m)^{1/2}$  die mittlere Geschwindigkeit der Edelgasatome der Masse  $m$  bei der Temperatur  $T$  bedeutet. Die freie Weglänge  $l$  ist im Kristallgitter bis auf einen Zahlenfaktor der Größenordnung 1 mit der Gitterkonstanten gleichzusetzen. Nach diesem Ansatz hätte  $D_0$  bei 20°C die Größenordnung  $10^{-1} \text{ cm}^2/\text{sec}$ . In zweiter Näherung sind die Schwingungen der Gitterbausteine und anderes zu berücksichtigen, wie es ZENER (16) tut, wobei sich ergibt, daß  $D_0$  auch um einige Größenordnungen größer als  $10^{-1} \text{ cm}^2/\text{sec}$  sein kann. Auch die Aktivierungsenergie ist modellmäßig keine einfache Größe. Bei der Diffusion der Edelgasatome tritt eine Behinderung der Bewegung dadurch ein, daß bei der Zurücklegung jeder freien Weglänge eine Potentialschwelle zu überwinden ist, deren Höhe gegeben ist durch die Fehlordnungsenergie der Gitterbausteine und die Platzwechselenergie der Edelgasatome. Da für die Edelgasatome je nach dem Fehlordnungstyp des Wirtgitters verschiedene Platzwechselschritte möglich sind, ist außer der Bestimmung von  $Q$  eine Ermittlung des dominierenden Fehlordnungstyps erforderlich. Nach dem Vorgang von C. WAGNER läßt sich die thermodynamische Fehlordnung eines Kristallgitters durch heterotype Mischkristallbildung in definierter Weise beeinflussen<sup>(17)</sup> (18). Falls ein meßbarer Einfluß auf den Diffusionskoeffizienten zu beobachten ist, sind eindeutige Rückschlüsse auf den Fehlordnungstyp und den Wanderungsmechanismus der Edelgasatome möglich. Die praktische Schwierigkeit dieser Konzeption liegt in der Tatsache, daß die meisten Substanzen durch Verunreinigung bei der Herstellung eine chemische Fehlordnung besitzen, die wesentlich größer als die thermodynamische ist. Erschwerend wirkt bei relativ tiefen Temperaturen auch die Tatsache, daß die

Geschwindigkeit der Einstellung des Fehlordnungsgleichgewichts bei tiefen Temperaturen naturgemäß langsam ist, so daß beim Abkühlen eine Fehlordnung entsprechend einer «Einfriertemperatur» erhalten bleibt. Diese Tatsache erklärt die häufige Erscheinung, daß bei relativ niedrigen Temperaturen hohe  $D$ - und niedrige  $Q$ -Werte beobachtet werden und somit im Vergleich zu höheren Temperaturen ein flacherer Verlauf der Kurve im  $\lg D-1/T$ -Diagramm vgl. hierzu FLUGGE und ZIMEN (19).

Bei zeitbestimmender Gitterdiffusion kann man somit aus PAD-Messungen an reinen und dotierten Kristallen Aussagen gewinnen über den Mechanismus und die Geschwindigkeit der Edelgasdiffusion. Aus der experimentell bestimmten Einfriertemperatur kann man außerdem auch die Selbstdiffusionskonstante und ihre Aktivierungsenergie abschätzen, wie von FLUGGE und ZIMEN gezeigt wurde (19).

Die vollständige Untersuchung eines Systems nach diesem Programm ist bisher nirgends erfolgt; die oben geschilderten Versuche mit  $\text{CaF}_2$  sollen aber mit diesem Ziel fortgeführt werden. Zusätzlich sind Versuche und Überlegungen im Gange, um zu klären, in welchen Fällen die Edelgase als Atome und wann sie als Ionen im Kristallgitter wandern. Vorläufige energetische Überlegungen zeigen, daß bei Edelgasen mit großen Atomradien und Gitterbausteinen mit relativ kleinen Ionenradien die freie Enthalpie für den Übergang von Edelgasatomen in Edelgasionen infolge der zur Aufweitung des Gitters erforderlichen Energie hinreichend groß ist.

## 5.2 — Gitterdiffusion nicht zeitbestimmend

Die bisherigen Betrachtungen bezogen sich auf den Fall, daß die Volumendiffusion im Gitter des Festkörpers zeitbestimmend ist für die gemessene Edelgasabgabe. Da die Edelgase normalerweise homogen verteilt gebildet werden, und da die Gitterdiffusion normalerweise langsamer ist als Korngrenzen- und Oberflächendiffusion (vgl. Figur 30), sollte die in 5.1 gemachte Voraussetzung auch dann noch zutreffen, wenn die Probe kein Einkristall ist, sondern ein von Korngrenzen durchzogener, aus vielen Primärkristalliten zusammengesetzter Kristall oder ein zusammengesinterter oder gepreßter Körper. De facto beobachtet man aber bei derartigen Körpern, die für die Praxis die interessantesten sind, daß zumeist die Edelgasabgabe nicht den zeitlichen Verlauf entsprechend einer Gitterdiffusion nimmt. Vielmehr erhält man häufig unstetige Kurven, die oftmals weit unterhalb von  $F = 1$  parallel zur Zeitachse werden, oder man beobachtet schnelle Aktivitätsstöße, treppenförmige Kurven bei stufenweiser Temperaturerhöhung und andere Abweichungen vom idealen Verlauf. Die Gründe hierfür sind vielfacher Art. Nach den bisherigen Erfahrungen dürfte eine Veränderung des idealen Verlaufs vor allem durch folgende Einflüsse zustande kommen :

### (1) *Polydispersität*

Ist die Probe ein polydisperses Pulver, so überlagern sich viele Funktionen  $F = f(D/r^2, t)$  mit verschiedenen  $r$ -Werten (z.B.  $r = \text{Radius}$  bei kugelförmigen Körnern). Der Einfluß der Korngrößen-Verteilungskurve bei diskret- oder kompaktdispersen Stoffen auf den zeitlichen Verlauf von  $F$  muß geprüft werden.

### (2) *Rekristallisation*

Tritt während der thermischen Behandlung ein Kornwachstum ein, so wird der Verlauf von  $F(t)$  geändert einmal durch die kontinuierliche Verringerung von  $S/V$  bei den wachsenden Körnern, zum anderen durch die kontinuierliche Ausscheidung von Edelgasatomen aus den verschwindenden kleinen Körnern an die Korngrenze.

### (3) Geschlossene Poren

Liegen geschlossene Poren vor (\*), so werden Edelgasatome durch Diffusion oder Ausscheidung in diese Hohlräume gelangen. Wegen der äußerst geringen Löslichkeit von Edelgasen in Festkörpern findet eine Wiederaufnahme in das Gitter auch bei langer Erhitzung praktisch nicht statt, und der entsprechende Anteil an Edelgasatomen trägt zur gemessenen Edelgasabgabe nichts bei, wird aber bei der Bestimmung der Totalaktivität mitgemessen.

### (4) Rückstoß-Störbereiche

Bei ihrer Entstehung während der Bestrahlung erhalten die Edelgasatome eine beträchtliche Rückstoßenergie. Die entsprechenden Rückstoßreichweiten liegen je nach Art der Kernreaktion zwischen  $10^{-6}$  und  $10^{-4}$  cm (vgl. BIRSACK und ZIMEN<sup>(20)</sup>, ZIMEN und ERTEL<sup>(21)</sup>). Die Gitterbereiche entlang der Rückstoßbahnen werden stark gestört sein, da die Rückstoßteilchen ihre Energie an die Gitterbausteine abgeben (vgl. FLÜGGE und ZIMEN<sup>(19)</sup>). Eine Reihe experimenteller Erfahrungen spricht dafür, daß die Diffusion der Edelgasatome in diesen Störbereichen, solange sie nicht durch eine Temperaturbehandlung ausgeheilt sind, viel schneller erfolgt als im ungestörten Gitter (vgl. ZIMEN<sup>(22)</sup>). Aus allen Rückstoß-Störbereichen, die eine Korngrenze passieren, können dann die Edelgasatome wesentlich schneller herausdiffundieren.

### (5) Strahlungsschädigung des Gitters

Bei hohen  $\Phi t$ -Werten, bei Kernbrennstoffen also bei hohem Abbrand, tritt zu den stets vorhandenen Rückstoß-Störbereichen eine allgemeine Störung des Gitters durch die Strahlung, z.B. die Erzeugung von Frenkeldefekten, in solchem Ausmaß, daß die Gitterdiffusion der Edelgase dadurch merklich beeinflußt wird.

### (6) Temperaturgradient

Im Reaktor bildet sich in den Brennelementen ein Temperaturgradient aus, und in extremen Fällen kann der Brennstoff, z.B.  $UO_2$ , im Innern zum Schmelzen kommen. Der Einfluß eines solchen Temperaturgefälles, demzufolge die Edelgasabgabe im Innern der Brennelemente größer ist als in den äußeren Bereichen, wird für verschiedene Systeme (Gitterdiffusion zeitbestimmend, andere Prozesse zeitbestimmend) verschieden sein.

Zu den genannten Effekten treten noch der Einfluß von Verdampfungsverlusten, von reversiblen oder irreversiblen Strukturänderungen bei Phasenübergängen, von Änderungen der stöchiometrischen Zusammensetzung, von Oberflächenreaktionen mit der Gasphase u. ä.

Neben den notwendigen empirischen Testversuchen an interessierenden Kernbrennstoff-Prototypen unter Betriebsbedingungen müssen systematische Untersuchungen über den Einfluß der genannten Effekte auf die Kinetik der Edelgasabgabe treten mit dem Ziel, den Mechanismus der Edelgasabgabe auch in komplizierteren Systemen (Gitterdiffusion nicht zeitbestimmend) verstehen und quantitativ beschreiben zu können.

---

(\*) Zur Bestimmung der Porosität und des Anteils an geschlossenen Poren, vgl. ZIMEN<sup>(10)</sup>.

## LITERATUR

- (1) INTHOFF, W., ZIMEN, K. E. : Kinetik der Diffusion radioaktiver Edelgase aus festen Stoffen nach Bestrahlung. *Trans. Chalmers Univ. Techn.* No. 176 (1956), AEC-tr-3289.
- (2) GAUS, H. : Zur Berechnung der Diffusion von radioaktiven Gasen I. *Z. Naturforschg.* **16a** (1961) 1130-5.
- (3) GAUS, H. : Zur Berechnung der Diffusion von radioaktiven Gasen II. *Z. Naturforschg.* **17a** (1962) 297-305.
- (4) ZIMEN, K. E. : Tabellen für die Auswertung von Messungen der Diffusion radioaktiver Edelgase aus festen Stoffen nach Bestrahlung. *HMI-B16*, 1961.
- (4<sup>a</sup>) ZIMEN, K. E., LAGERWALL, T. : Tabellen für die Auswertung von Messungen der Post-Aktivierungs-Diffusion von Edelgasen aus Festkörpern. *HMI-B25*, 1963.
- (5) SCHMELING, P. : Evaluation of gas release curves attained during PAD experiments. I. Multitemperature anneals with  $F < 0,2$ . *EURAECE* 359, 1962.
- (6) SCHMELING, P., FELIX, F. : Experimental methods and equipment for diffusion measurements of radioactive rare-gases in solids. a) *HMI-B19*, 1961, b) *EUR* 111.e 1962.
- (7) SCHMELING, P. : Release of fission rare-gases during PAD heating as a result of chemical interactions and its false interpretation as being diffusion. *EURAECE* 360, 1962.
- (8) HMI-Euratom Program, Quarterly Report No. 7. *EURAECE* 296, 1962.
- (9) LAGERWALL, T. : Diffusion of Argon-41 in Calcium Fluoride. *Nukleonik*, **4** (1962) 158-61.
- (10) ZIMEN, K. E. : Hdb. der Katalyse Bd. IV p. 214, Wien (Springer) 1943.
- (11) URE jr., R. W. : Ionic Conductivity of Calcium-Fluoride Crystals. *J. Chem. Phys.* **26** (1957) 1363.
- (12) VON DER DECKEN, C. B. : Untersuchungen von Brennstoffelementen in einem heißen Kreislaufexperiment. *Techn. Mittlg. KRUPP*, 19 (1961) 173.
- (13) SCHMELING, P., PÜSCHEL-EMDEN, W. : Vorläufige Resultate über die Abgabe von Xe-133 aus Urankarbid-Graphit-Mischungen. *EURAECE*-363, 1962.
- (14) MATZKE, H., LINDNER, R. : Diffusion von Xe-133, Rn-222 und J-131 in Thoriumoxyd. *Z. Naturforschg.* **15a** (1960) 647.
- (15) MATZKE, H. : Diffusion von Kr-85 in ThO<sub>2</sub>. *Z. Naturforschg.* **16a** (1961) 1255.
- (16) ZENER, C. : Theory of D<sub>0</sub> for Atomic Diffusion in Metals. *J. Appl. Physics* **22** (1951) 372.
- (17) KOCH, E., WAGNER, C. : Der Mechanismus der Ionenleitung in festen Salzen auf Grund von Fehlordnungsvorstellungen. I. *Z. phys. Chem. (B)* **38** (1937) 295.
- (18) WAGNER, C., ZIMEN, K. E. : Löslichkeit und Löslichkeitsbeeinflussung in AgCl-Kristallen als Lösungsmittel der Bildung heterotyper Mischphasen. *Acta Chemica Scandinavica* **1** (1947) 539.
- (19) FLÜGGE, S., ZIMEN, K. E. : Die Bestimmung von Korngrößen und von Diffusionskonstanten aus dem Emaniervermögen (Die Theorie der Emaniermethode). *Z. phys. Chem. (B)* **42** (1939) 179.
- (20) BIRSACK, J., ZIMEN, K. E. : Austrittswahrscheinlichkeit von Rückstoßkernen bei  $\alpha$ ,  $\gamma$ -Reaktionen. *Z. Naturforschg.* **16a** (1961) 849.
- (21) ZIMEN, K. E., ERTEL, D. : Kernrückstoß in Festkörpern 2. Die Reaktion  $A1^{27}(n, p) Mg^{27}$ . *Nukleonik* **4** (1962) 231
- (22) ZIMEN, K. E. : Oberflächenbestimmungen und Diffusionsmessungen mittels radioaktiver Edelgase III : Der Vorgang der Emanationsabgabe aus dispersen Systemen. Folgerungen für die Auswertung von EV-Messungen und für die Deutung der Ergebnisse. *Z. phys. Chem.*, 192 (1943) 1.
- (23) Euratom-United States Agrément for Cooperation Board : Minutes of Ceramic Fuels Meeting held in Brussels, 3-5 October, 1962.

TABELLE 1

## EMPFOHLENE AUSWERTUNGSMETHODEN

I	Vorgang	Diagramm	Auswertung nach $D$
	Ideale Volumendiffusion bei mehrstufiger Erhitzung	$F^2/t$	Neigung jedes Kurventeils proportional $D$ , vgl. Figur 1
	Ideale, aber zeitlich veränderliche Volumendiffusion, z.B. durch verzögerte Einstellung der Versuchstemperatur z.B. durch veränderlichen Diffusionskoeffizienten bei Ausheilprozessen	$F^2/t$	Neigung des linearen Teils proportional $D$ , vgl. Figur 2 vgl. Figur 3
	Überlagerung der Volumendiffusion durch stoßweise Abgabe bei Erhitzungsbeginn	$F/\sqrt{t}$	Neigung im linearen Teil proportional $\sqrt{D}$ vgl. Figur 4.
	Mehrstufige Erhitzung mit Überlagerung der Diffusion bei der ersten Temperaturerhöhung	$F/\sqrt{t - t_i}$	$T_1$ : Neigung im linearen Teil proportional $\sqrt{D}$ $T_2$ bis $T_1$ : Neigung der Assymptote an die Kurve proportional $\sqrt{D}$
	Mehrstufige Erhitzung mit überlagerten Vorgängen bei jeder Temperaturänderung	$F/\sqrt{t_i}$	$T_1$ : Neigung im linearen Teil proportional $\sqrt{D}$ $T_2$ bis $T_1$ : Keine brauchbare Auswertung möglich

Bezeichnungen:  $F$  abgegebener Edelgas-Bruchteil  
 $D$  Diffusionskoeffizient  
 $t, t_i$  Versuchszeit  
 $T, T_i$  Temperatur

TABELLE 2

VORLÄUFIGE RESULTATE VON PAD-MESSUNGEN AN  $UO_2$ -KRISTALLEN

Probe	Bestrahlung	mittlere Temperatur [°C]	Heizzeit [h]	Diffusionskoeffizient [cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> ]
Kugel	1.	1565	17	$1,4 \times 10^{-12}$
21	2.	1533	23	$1,2 \times 10^{-11}$
Kugel	1.	1450	67	$3,6 \times 10^{-15}$
22	1.	1583	31	$2,1 \times 10^{-13}$
	2.	1390	164	$3,5 \times 10^{-13}$
	2.	1737	2	$5,5 \times 10^{-6}$
Kugel	1.	1470	139	$2,0 \times 10^{-13}$
30	1.	1605	79	$2,9 \times 10^{-12}$
	2.	1367	67	$2,6 \times 10^{-12}$
BMI Kugel	1.	1700	52	$2,3 \times 10^{-10}$
Lichtbogen- geschmolzene Kristalle	1.	710		—
		1387		$5,3 \times 10^{-12*}$
		1667		$4,0 \times 10^{-11*}$

(\* ) Oberflächenmessung noch nicht erhältlich, die Resultate sind als  $4D/r^2$  ausgedrückt

TABELLE 3

## Xe-ABGABE BEI PAD-VERSUCHEN AN UC

Probe	Erhitzungszeit [h]	Temperatur [°C]	F
K-2	46	1230	0,07
	46	1350	0,21
K-7	70	1380	0,12
	46	1530	0,41
	46	1600	0,31
K-3	56	1130	0,002
	24	1440	0,03
	14	1600	0,04

## ANHANG I

### MITARBEITER AM DIFFUSIONSPROGRAMM

#### Wissenschaftliche Mitarbeiter

Prof. Dr. K. E. Zimen  
Dr. F. Felix  
W. Püschel-Emden  
A. Richter  
Dr. P. Schmeling  
Dr. H. Gaus (\*)  
T. Lagerwall (\*)  
H. Migge (\*)  
Dr. W. Wagener (\*)

#### Technische Mitarbeiter

G. Albrecht, Chemieingenieur (\*\*)  
H. Hager, Chemotechnikerin (\*\*)  
R. Maxelon, Chemotechniker (\*\*)  
H. Müller-Kauter, Chemielaborant  
P. Schubert, Chemotechniker (\*\*)  
H. Seelig, Chemotechnikerin  
H.-D. Volkmann, Chemielaborant  
A. Kirchhoff, Glasbläsermeister  
G. Müller, Feinmechaniker  
W. Müller, Feinmechaniker

#### Administration

Dr. H. Brunner, Geschäftsführer  
Frau C. Richter, Büroangestellte

(\*) Mitarbeiter die am Hahn-Meitner-Institut außerhalb des EURATOM-Kontraktes am Diffusionsproblemen arbeiten und in dem vorliegenden Bericht zitiert werden.

(\*\*) Mitarbeiter die während dem Berichtszeitraum vorzeitig ausschieden, bzw. nachträglich eingestellt wurden

ANHANG II

List of reports established by  
 HAHN-MEITNER-INSTITUTE, Berlin, under the  
 EURATOM/UNITED STATES Agreement for Cooperation  
 (Euratom contracts denoted in «Quarterly Digest» by No. I. 1. 11) on  
 DIFFUSION OF RARE-GASES IN SOLIDS(\*)

HMI No. Date	Title	EURATOM No.	«Quarterly Digest» Reference
EU-B1 19.7.1960	Kurzbericht gemäß Art. 7-1	—	—
EU-B2 26.10.1960	1. Quartalsbericht (1.7. — 30.9.1960)	EURAEC 17	Vol. 1 No. 1 p. 33
EU-B3 23.1.1961	2. Quartalsbericht (1.10. — 31.12.1960)	EURAEC 18	Vol. 1 No. 1 p. 33
EU-B4 13.2.1961	Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse für die Zeit vom 1.7. — 31.12.1960	—	—
EU-B5 24.4.1961	3. Quartalsbericht (1.1. — 31.3.1961)	EURAEC 65	Vol. 1 No. 2 p. 22
HMI-B16 Mai 1961	K. E. Zimen : Tabellen für die Auswertung von Messungen der Diffusion radioaktiver Edelgase aus festen Stoffen nach Bestrahlung (Edelgasdiffusion in Festkörpern 5) [Technischer Einzelbericht Nr. 1]	EURAEC 122	Vol. 1 No. 3 p. 19
EU-B6 12.7.1961	4. Quartalsbericht (1. 4. — 30.6.1961)	EURAEC 121	Vol. 1 No. 3 p. 19
EU-B7 30.10.1961	5. Quartalsbericht (1.7. — 30.9.1961)	EURAEC 183	Vol. 1 No. 4 p. 12
EU-B8 25.9.1961	Kurzbericht gemäß Art. 7-2a	—	—
HMI-B19 Nov. 1961	P. Schmeling, F. Felix : Experimental Methods and Equipment for Diffusion Measurements of Radioactive Rare-Gases in Solids (Rare-Gas Diffusion in Solids 7). [Technischer Einzelbericht Nr. 2]	EUR 111.e (1962)	—
EU-B9 Jan. 1962	Vierteljährlicher Bericht Nr. 6 (1. 10. — 31.12.1961)	EURAEC 250	Vol. 1 No. 5 p. 23
EU-B10 19.2.1962	Kurzbericht zum Schlußbericht für die Zeit vom 1.7.60 — 31.8.1961	—	—
EU-B11 17.4.1962	Schlußbericht für die Zeit vom 1.7.60 — 31.8.1961	EURAEC 312	Vol. 2 No. 3 p. 22
EU-B12 April 1962	Vierteljährlicher Bericht Nr. 7 (1.1. — 31.3.1962)	EURAEC 296	Vol. 2 No. 1 p. 5
EU-B13 March 1962	P. Schmeling : Evaluation of Gas Release Curves Attained during PAD Experiments. I. Multi-Temperature Anneals with $F < 0.2$ [Technischer Einzelbericht Nr. 3]	EURAEC 359	Vol. 2 No. 2 p. 24
EU-B14 March 1962	P. Schmeling : Release of Fission Rare-Gas during PAD Heating as a Result of Chemical Interactions and its false Interpretation as being Diffusion [Technischer Einzelbericht Nr. 4]	EURAEC 360	Vol. 2 No. 2 p. 24
EU-B15 March 1962	P. Schmeling : Preliminary Results on the Release of Xenon-133 from Uranium Monocarbide Powder [Technischer Einzelbericht Nr. 5]	EURAEC 361	Vol. 2 No. 2 p. 24
EU-B16 March 1962	P. Schmeling : Preliminary Results on the Release of Xenon-133 from Uranium Monocarbide [Technischer Einzelbericht Nr. 6]	EURAEC 362	Vol. 2 No. 2 p. 24
EU-B17 March 1962	P. Schmeling, W. Püschel-Erden : Vorläufige Resultate über die Abgabe von Xenon-133 aus Urancarbid-Graphit-Mischungen [Technischer Einzelbericht Nr. 7]	EURAEC 363	Vol. 2 No. 2 p. 25
EU-B18 15.7.1962	Vierteljährlicher Bericht Nr. 8 (1.4. — 30.6.1962)	EURAEC 385	Vol. 2 No. 2 p. 25
EU-B19 25.10.1962	Vierteljährlicher Bericht Nr. 9 (1.7. — 30.9.1962)	EURAEC 457	Vol. 2 No. 3 p. 22

EU-B20	22.11.1962	Kurzbericht gemäß Art. 7-1	—	—
EU-B21	28.11.1962	Kurzbericht zum Schlußbericht für die Zeit vom 1.9.61 — 31.8.62	—	—
EU-B22	Dez. 1962	Schlußbericht für die Zeit Sept. 1961 — August 1962	—	—
			EURAEC 526	EUR 259 d (1963)

(\*) Reports may be requested if denoted by a HMI-B number from the Hahn-Meitner-Institute for Nuclear Research, 1 Berlin 39, if denoted by a EURATOM number from EURATOM, CID, Rue Belliard, 51-53, Brussels.





CDNA00259DEC