

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

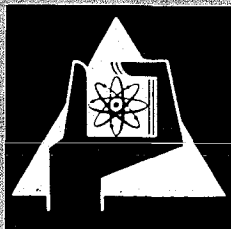
März 1972

KFK 1556

Institut für Material- und Festkörperforschung

**Konzeptstudie einer Bestrahlungseinrichtung für die
Untersuchung von Hochtemperatur-Thermoelementen
bei Temperaturen um 2000 °C**

D. Piel



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

Institut für Material- und Festkörperforschung

März 1972

KFK 1556

Konzeptstudie einer Bestrahlungseinrichtung für die
Untersuchung von Hochtemperatur-Thermoelementen
bei Temperaturen um 2000 °C

von

D. Piel

Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe

Kurzfassung

Neben allgemeinen Angaben über W/Re-Thermoelemente und die Ziele eines Hochtemperatur-Bestrahlungsprogramms beschreibt der Bericht eine Bestrahlungseinrichtung. Diese ermöglicht es, bei kontinuierlicher Temperaturmessung mit Hilfe eines Gasthermometers, das Verhalten von Hochtemperatur-Thermoelementen im Strahlenfeld eines Reaktors zu untersuchen. Die wichtigsten Instabilitätseffekte der Thermoelemente werden erläutert und als Versuchsparameter formuliert. Die Auslegung der Bestrahlungskapsel wurde für den Einsatz im BR2-Reaktor/Mol und für Temperaturen um 2000 °C durchgeführt. Die einzelnen Wärmetransportmechanismen, die der Berechnung der Temperaturverteilung zu Grunde gelegt wurden, sind beschrieben.

Abstract

In addition to general indications with respect to W/Re thermocouples and the aims pursued in a high-temperature irradiation program an irradiation rig is described in this report. This rig allows to investigate the behavior of high-temperature thermocouples in the radiation field of a reactor, using a gas thermometer. The most important instability effects of thermocouples are discussed and given as experimental parameters. The irradiation capsule has been designed for insertion into the BR2 reactor Mol and for temperatures of about 2000 °C. The individual heat transport mechanisms are described which underly the calculation of temperature distribution.

Inhaltsverzeichnis

1. Allgemeines über Hochtemperatur-Thermoelemente
2. Ziel eines Hochtemperatur-Bestrahlungsprogramms
3. Beschreibung der Instabilitätseffekte
 - 3.1 Versetzungen und Leerstellen-Cluster im Metallgitter
 - 3.2 Veränderung der Zusammensetzung der Thermoelement-Drähte in der heißen Zone
 - 3.3 Veränderung der Zusammensetzung der Thermoelement-Drähte an der Meßstelle
 - 3.4 Veränderung des Isolationswiderstandes über die Thermoelementlänge
 - 3.5 Einfluß der γ -Wärmeerzeugung im Strahlenfeld
4. Parameter der Experimente
5. Beschreibung der Versuchseinrichtung
6. Temperaturverteilung in der Bestrahlungskapsel
 - 6.1 Wärmeleitung in zylindrischen Schichten mit inneren Wärmequellen
 - 6.2 Wärmeübertragung durch Gasspalte infolge Wärmeleitung und Strahlungsaustausch
 - 6.3 Wärmeübertragung zum Reaktorkühlwasser
 - 6.4 Ergebnisse der Rechnungen
7. Meßwerte während des Betriebes
8. Literaturverzeichnis

1. Allgemeines über Hochtemperatur-Thermoelemente

In der Kerntechnik wird es immer wichtiger hohe Temperaturen ($>1700^{\circ}\text{C}$) über längere Zeit genau zu messen. Dies gilt insbesondere bei Bestrahlungsexperimenten für die Messung der Temperatur im Brennstoff.

Solche Messungen lassen sich praktisch nur mit ummantelten Thermoelementen durchführen. Die Thermoelemente erfahren dabei während ihrer Einsatzdauer bei hohen Temperaturen durch chemische, thermische und nukleare Einflüsse eine Veränderung der Temperatur/EMK-Relation. Eine genaue Temperaturenaussage läßt sich deshalb nur durch entsprechende Korrektur der Meßwerte erreichen, wenn die einzelnen Auswirkungen hinreichend bekannt sind.

Zur Messung hoher Temperaturen ($> 1700^{\circ}\text{C}$) haben sich in den letzten Jahren als geeignete Thermoelement-Materialien immer mehr die W/Re-Legierungen herausgestellt. In [1, 3, 4] wird eine zusammenfassende Darstellung über die bisherige Entwicklung dieser Thermoelemente und die noch vorhandenen Probleme wiedergegeben.

Die drei gebräuchlichsten W/Re-Thermoelementpaarungen sind W/W-26Re, W-5Re/W-26Re und W-3Re/W-25Re. Der Kombination W/W-26Re kommt nur noch wenig Bedeutung zu, da die Sprödigkeit des unlegierten Wolframschenkels ein großes Hindernis für den Einsatz dieses Thermoelementes darstellt. Durch Rhenium-Zusätze läßt sich die Versprödungstemperatur wesentlich erhöhen. So wurde z.B. bei W-5Re erst dann eine vollständige Versprödung festgestellt, wenn es kurzzeitig einer Temperatur von 2325°C ausgesetzt war [1]. Im Gegensatz dazu blieb W-26Re nach gleicher Einsatzdauer duktil. Durch ein besonderes Herstellungsverfahren (Beigabe von Kalium, Silikon und Aluminiumverbindungen zum Wolframoxidpulver vor der Reduktion) wurden W-3Re-Drähte hergestellt, bei denen auch nach einer Einsatzdauer von 50 h bei 2330°C keine Abnahme der Duktilität festgestellt wurde [1, 2].

Bei längeren Einsatzzeiten tritt aber im allgemeinen abhängig von der Temperatur eine Versprödung der W/Re-Legierungen ein, wodurch die Lebensdauer dieser Thermoelemente beeinflusst wird. Besondere Bedeutung kommt in diesem Zusammenhang der heißen Verbindungsstelle der Thermoelementadern zu, die konstruktiv so auszuführen ist, daß die mechanische Beanspruchung der Drähte (z.B. durch relative thermische Dehnungen, Biegungen, Schwingungen usw.) auf ein Minimum beschränkt bleibt.

Ein weiteres Problem bei Hochtemperaturmessungen mit Thermoelementen ist die Wahl des keramischen Isolationsmaterials, da genaue Kenntnisse ihrer elektrischen Hochtemperatureigenschaften nicht vorliegen. Insbesondere werden diese Eigenschaften durch geringe Verunreinigungen sehr stark verändert. Die gebräuchlichsten Isolationsmaterialien für Temperaturen oberhalb 1700°C sind Berylliumoxid und Thoriumoxid. Abbildung 1 zeigt den Verlauf des spezifischen elektrischen Widerstandes von BeO und ThO_2 in Abhängigkeit von der Temperatur [14].

BeO ist ein guter Isolator, besitzt eine relativ hohe Wärmeleitfähigkeit, hat aber mit 2570°C einen verhältnismäßig niedrigen Schmelzpunkt. Außerdem ist BeO giftig und reagiert bei 2000°C [4] bzw. 2100°C [1, 5] mit Wolfram. Andere Versuche [1, 6] zeigen jedoch, daß BeO mit W-3Re/W-25Re bis zum Schmelzpunkt von BeO kompatibel ist.

ThO_2 ist das keramische Oxid mit dem höchsten Schmelzpunkt (3267°C), hat aber eine schlechtere Isolations- und Wärmeleitfähigkeit als BeO und ist ebenfalls giftig. Die Charakteristik des elektrischen Widerstandes nach langer Bestrahlung bei hoher Temperatur ist unbekannt, und ThO_2 besitzt eine schlechte Widerstandsfähigkeit gegen Thermoschocks [4]. Außerdem ist es radioaktiv und besitzt einen ausreichenden Wirkungsquerschnitt für thermische Neutronen, um bei mittleren Neutronenflüssen eine Selbsterhitzung zu bewirken. Eine Reaktion mit Wolfram findet bei 2300°C [1, 6] statt.

2. Ziele eines Hochtemperatur-Bestrahlungsprogramms

Das Verhalten von Hochtemperatur-Thermoelementen ist bisher wenig erforscht. In der Literatur läßt sich keine Einheitlichkeit der Testmethoden und Testergebnisse erkennen, da die durchgeführten Untersuchungen fast ausschließlich auf spezielle Problemstellungen ausgerichtet waren. Insbesondere ist es unmöglich, Driftwerte aus der Literatur miteinander zu vergleichen, da die Anzahl der Variablen, die die Stabilität der EMK beeinflussen, sehr groß ist.

Die durchgeführten Untersuchungen über das Verhalten von Hochtemperatur-Thermoelementen unter Bestrahlung brachten ebenfalls keine vergleichbaren Ergebnisse, da die einzelnen Einflüsse für eine EMK-Veränderung schwer zu erfassen sind. So ist z.B. nur ein Experiment bekannt [7], bei dem die Temperatur mit einem Referenz-Thermoelement während der Bestrahlung zeitweilig gemessen werden konnte.

Ziel der hier vorgeschlagenen Versuche soll nun sein, bei kontinuierlicher Temperaturmessung mit Hilfe eines Gasthermometers und durch Messung bzw. Variation der wichtigsten Parameter eine detaillierte Aussage über das Verhalten von Hochtemperatur-Mantelthermoelementen im Strahlenfeld eines Reaktors bei Temperaturen um 2000°C zu gewinnen. Die Einflüsse der Brennstoffumgebung, d.h. alle Korrosionseinflüsse, Verunreinigungen durch Brennstoff, Spaltgase usw. werden eliminiert.

Die Versuche sollen unter Bestrahlung und out of pile durchgeführt werden, wobei die Bestrahlungsparameter durch die out-of-pile-Parallelversuche und eventuell durch Nacheichungen erfaßt werden. Die Wärmeerzeugung im Reaktor soll ausschließlich nuklear erfolgen, während out of pile ein Ofen mit elektrischer Heizung benutzt wird.

Im folgenden Abschnitt werden die Einflüsse beschrieben, die die EMK-Stabilität eines Thermoelementes im Reaktor beeinträchtigen. Diese Einflüsse lassen sich grob wie folgt einteilen:

- Einfluß der heißen Länge, d.h. der Thermoelementlänge, die sich in einem Temperaturbereich oberhalb 1700°C bis Testtemperatur befindet.
- Einfluß der Widerstandsänderung der Isolation über die Bestrahlungszeit.
- Einfluß des axialen Temperaturgradienten, d.h. Art und Lage des Temperaturabbaus über die Thermoelement-Länge.
- Einfluß des Neutronenfluß-Spektrums.
- Einfluß der Selbsterhitzung der Meßstelle durch γ -Wärme.
- Einfluß der Neutronendosis.

3. Beschreibung der Instabilitätseffekte

Die Instabilität von Thermoelementen bei hohen Temperaturen wird durch eine Vielzahl von Einflüssen hervorgerufen. Mehrere dieser Einflüsse treten gleichzeitig auf und bewirken eine in Richtung und Größenordnung unterschiedliche Drift. Die wichtigsten Auswirkungen und ihre Ursachen werden im folgenden kurz beschrieben.

3.1 Versetzungen und Leerstellen-Cluster im Metallgitter

Sie bewirken ähnlich wie bei einer Kaltverformung eine Veränderung der Beweglichkeit der Elektronen und damit des Seebeck-Koeffizienten, d.h. der EMK des Thermoelementes zu geringeren Werten. Die Ursachen sind eine Dehnungshärtung beim erstmaligen Aufheizen sowie eine Schädigung durch schnelle Neutronen. Die Dehnungshärtung ist ein Kurzzeiteffekt, der schon bei der Kalibrierung erfaßt wird, während sich die Schädigung durch schnelle Neutronen erst oberhalb 10^{20} nvt bemerkbar macht. Durch einen Glühvorgang bei ca. 60% der absoluten Schmelztemperatur [47] läßt sich dieser Effekt auf ein Minimum begrenzen. Eine weitgehende Beseitigung der Versetzungen und Leerstellen hat jedoch eine Versprödung zur Folge.

3.2 Veränderung der Zusammensetzung der Thermoelement-Drähte in der heißen Zone:

Abhängig vom Temperaturniveau und vom Flußverlauf entsteht über die Thermoelementlänge eine Inhomogenität, die dann zu einer Thermoelementdrift führt, wenn gleichzeitig ein Temperaturgradient vorhanden ist. Die Ursachen sind erstens Materialumwandlungen durch thermische und epithermische Neutronen, deren Verlauf über die Länge des Thermoelementes dem Flußprofil entspricht. Zum zweiten tritt eine Veränderung der chemischen Zusammensetzung der Thermoelement-Drähte ein. Die daraus resultierende Inhomogenität kann durch folgende Mechanismen verursacht werden: (1) Diffusion von Feststoffen, (2) Diffusion von Gasen, die durch Verdampfung des Materials im Hochtemperaturbereich entstehen können und anschließend in einem kühleren Bereich kondensieren sowie durch (3) selektive Verdampfung eines Legierungsbestandteiles aus den Thermoelementdrähten.

3.3 Veränderung der Zusammensetzung der Thermoelement-Drähte an der Meßstelle:

Dadurch tritt nach dem gleichen Mechanismen wie unter 3.2) eine Veränderung der EMK der Meßstelle ein.

3.4 Veränderung des Isolationswiderstandes über die Thermoelement-Länge (Shunting):

Sie bewirkt abhängig von der Länge der heißen Zone eine Verminderung der EMK. Dieser Effekt wird durch Strahlenschädigung des Isolationsmaterials sowie durch Abfall der Isolationseigenschaften bei hohen Temperaturen verursacht und durch Verunreinigungen begünstigt.

3.5 Einfluß der γ -Wärmeerzeugung im Strahlenfeld:

Durch die Selbsterhitzung der Thermoelementdrähte über Umgebungstemperatur wird eine Erhöhung der EMK verursacht.

4. Parameter der Experimente

In Abhängigkeit von der Neutronendosis bzw. der Zeit beim out-pile-Parallelversuch soll die EMK-Änderung der eingesetzten Thermoelemente bei konstanter Temperatur gemessen werden. Um aber detaillierte Aussagen über das Gesamtverhalten der Thermoelemente machen zu können, müssen bei der Vielzahl der Instabilitätseinflüsse auch umfangreichere Parameteruntersuchungen durchgeführt werden. Im einzelnen sollen dabei folgende Parameter erfaßt bzw. variiert werden:

- Heiße Länge der Thermoelemente:

In der nachfolgend beschriebenen Versuchseinrichtung lassen sich zwei Längen von Thermoelementen einbauen, die sich innerhalb der heißen Zone um den Faktor 3 unterscheiden. Damit axiale Flußverschiebungen keine Einflüsse vortauschen, befinden sich alle Meßstellen in einer Ebene gleicher Temperatur, z.B. im Flußmaximum. Die Thermoelemente werden dann so angeordnet, daß sie in der heißen Zone entsprechend ihrer Länge einmal bzw. dreimal dem gleichen Flußgradienten ausgesetzt sind, (siehe Abbildung 2).

- Axialer Temperaturgradient und seine Lage im Flußprofil:

Die Länge und Lage des axialen Temperaturgradienten kann nur durch die Konstruktion der Bestrahlungskapsel beeinflusst werden. Es ist daher sehr aufwendig diesen Parameter exakt zu erfassen, da mehrere Versuchsreihen unter sonst gleichen Bedingungen durchgeführt werden müßten. Außerdem ist es sehr schwierig im Reaktor und im out-pile-Parallelversuch gleiche Temperaturgradienten zu erzeugen. Die Länge des Gradienten wird deshalb zunächst möglichst klein gewählt.

- Flußspektrum:

Durch Einbau eines Cd-Schildes in einen Parallel- oder Folgeinsatz kann bei kleinerem Kapseldurchmesser, aber sonst gleichen Bedingungen der Einfluß des Neutronenflußspektrums auf die Drift der Thermoelemente erfaßt werden.

- Isolation der Meßstelle:

Zur Erfassung der Selbsterhitzung der Thermoelement-Meßstelle im Strahlenfeld, werden die Drähte einiger Thermoelemente direkt mit dem Mantel verschweißt, der seinerseits in gutem Wärmekontakt mit der Umgebung steht.

- Temperaturniveau:

Das Temperaturniveau wird während eines Versuches konstant gehalten und geregelt. Will man die Abhängigkeit der EMK-Drift vom Temperaturniveau untersuchen, so müssen weitere Versuchsreihen durchgeführt werden.

- Spezifikation der Thermoelemente:

Hier bietet sich ein breites Feld von Einzelparametern wie Materialien, Geometrie, Toleranzen und Herstellungsverfahren, die in ihrer Auswirkung auf die Drift der Thermoelemente nur in einem umfangreichen Programm untersucht werden können. Man wird sich daher zunächst auf die nach heutigem Stand der Technik am besten geeignete Spezifikation beziehen und weitere Untersuchungen späteren Versuchen vorbehalten. Eine solche Spezifikation gibt z.B. das Schrifttum [16] wieder.

5. Beschreibung der Versuchseinrichtung

Die Konzipierung der Bestrahlungseinrichtung wurde für den BR2-Reaktor durchgeführt, da er wegen seines relativ hohen Neutronenflusses (ca. $2,5 \cdot 10^{14}$ n/cm²sek thermisch/ca. $4,5 \cdot 10^{14}$ n/cm²sek schnell, $E > 100$ keV) und seiner hohen γ -Wärmeerzeugung (ca. 13 W/g Al) gute Voraussetzungen bietet. Damit ist die Möglichkeit vorhanden, in relativ kurzer Zeit eine hohe Neutronendosis zu erreichen und außerdem ohne elektrische Zusatzheizungen auszukommen.

Die Bestrahlungseinsätze entsprechen in ihrem prinzipiellen Aufbau den im BR2 bereits vielfach eingesetzten Ausführungen.

Deshalb soll sich die Beschreibung auf die eigentliche in-pile-Sektion beschränken, die in Abbildung 2 schematisch dargestellt ist. Sie ist als druckdichte Kapsel aus austenitischem Cr-Ni-Stahl ausgebildet (äußere Kapsel) und wird vom Reaktorkühlwasser umströmt. Eine zweite innere Kapsel aus einer Molybdän-Legierung (z.B. TZM) nimmt die zu testenden Thermoelemente auf und bildet gleichzeitig das Meßvolumen des Gasthermometers. Zwischen äußerer und innerer Kapsel befindet sich eine zylindrische Gasführungsglocke aus einer Niob-Legierung (z.B. Nb-1Zr). Dadurch entstehen zwei definierte Gasspalte, so daß sich mit Hilfe einer Gasgemischregelung die Temperatur in der Kapsel beeinflussen läßt. In der inneren Kapsel wird zur Erzeugung der hohen Temperaturen durch γ -Heizung ein Hohlzylinder aus einer Molybdän-Wolfram-Legierung (z.B. Mo-30W) eingebaut, der durch einen weiteren Gasspalt vom Kapselrohr getrennt ist. Der Hohlzylinder ist zur Aufnahme der Thermoelemente auf seinem mittleren Durchmesser als Teilkreis axial mehrfach durchbohrt (TE-Träger) und soll nur die aus Stabilitätsgründen erforderlichen minimalen Wandstärken (z.B. 1 mm) aufweisen. Der TE-Träger ist an seinen Enden durch Strahlungsschilde abgegrenzt, um axiale Wärmeverluste weitgehend zu verhindern.

Als Werkstoffe der einzelnen Kapselschichten kommen mit Ausnahme des gut gekühlten äußeren Kapselrohres aus Stahl ausschließlich hochschmelzende Metalle zur Anwendung. Die Eigenschaften der hochschmelzenden Metalle ($t_G > 2000$ °C) Niob, Tantal und Molybdän sowie ihrer Legierungen als Hochtemperaturwerkstoffe sind in [8] angegeben. Das Schrifttum [9, 10] liefert auch über Wolfram und dem System Molybdän-Wolfram weitere Angaben. Tantal ist wegen seiner hohen Dichte für die äußeren Kapselschichten ungeeignet und läßt sich auch als TE-Träger in der inneren Kapsel (Gasthermometer) nicht verwenden, da es die Eigenschaft hat, bei hohen Temperaturen Gase zu absorbieren. Niob besitzt eine hervorragende Duktilität, läßt sich gut verarbeiten und schweißen, verliert aber bei Temperaturen oberhalb 1200 °C sehr schnell seine Festigkeitseigenschaften. Molybdän-Mehrstofflegierungen hingegen weisen noch bei höheren Temperaturen (bis 1650 °C) relativ gute

Festigkeitswerte auf, sind jedoch im Rekristallisationszustand spröde und lassen sich somit nicht sicher verschweißen. Aus diesem Grunde wird die dichte Verbindung zwischen Kapselrohr und Endstopfen der inneren Kapsel durch Hochtemperaturlöten hergestellt. Für Temperaturen oberhalb 1650°C , wie sie insbesondere im Testraum auftreten, sind die binären Molybdän-Wolfram-Legierungen wegen ihrer höheren Schmelzpunkte den Mehrstofflegierungen überlegen.

Der Außendurchmesser der Bestrahlungskapsel ist möglichst groß zu wählen. Er kann im BR2 maximal 34 mm (Kapseltyp A) betragen und liefert gegenüber der Standardabmessung von 25,4 mm (Kapseltyp B) ein um den Faktor 3 bis 4 größeres Meßvolumen des Gasthermometers. Auch die Zahl der zu testenden Thermoelemente erhöht sich bezogen auf einen Thermoelement- \emptyset von 2,5 mm von 9 auf 14 Stück. In der nachfolgend wiedergegebenen thermodynamischen Auslegung wurde auch die Standardabmessung untersucht, da bei Einbau eines Cd-Schildes nur ein Kapsel-Außendurchmesser von ca. 25 mm zur Verfügung steht. Die Querschnittsabmessungen beider Kapseltypen sind in Abbildung 3 wiedergegeben.

Die Durchführung der Thermoelemente aus dem Testraum erfolgt durch die oberen Kapselendstopfen, mit denen sie durch geeignete Hochtemperaturlötungen dicht verbunden sind. Die Gasspalte werden am Ende des TE-Trägers auf wenige μm Heißspalt reduziert, so daß sich als Betriebstemperatur der Kapselmaterialien in dieser Zone Temperaturen unterhalb 1000°C ergeben. Um eine sichere Handhabung und Verlegung der Thermoelemente außerhalb der heißen Zone zu gewährleisten, wird hier als Mantelmaterial eine Niob-Legierung verwendet. Den Übergang vom spröden W/Re-Mantel zum sehr duktilen Niob-Mantel erreicht man durch eine Thermoelementverbindungsmuffe, die im kälteren Teil der inneren Kapsel in einem Niob-Körper eingebettet ist. Sie verbindet die beiden Materialien durch eine Hochtemperaturlötung. Der Niobkörper muß konstruktiv so gestaltet sein, daß sich im Meßraum

ein möglichst kleines Totvolumen ergibt. Eine weitere Thermoelementmuffe befindet sich am Corerand in der kalten Zone der äußeren Kapsel und soll den Übergang zur stahlummantelten Ausgleichsleitung herstellen.

Außerhalb der Bestrahlungskapsel wird im Wasserraum des Einsatzes ein induktiver Druckaufnehmer eingebaut, der über ein Kapillarrohr mit dem oberen Endstopfen der inneren Kapsel druckdicht verbunden ist. Dadurch wird an der Thermoelementdurchführung eine Position belegt. Druckaufnehmer, Kapillarrohr und innere Kapsel bilden ein System, das hohen Dichtheitsforderungen genügen muß.

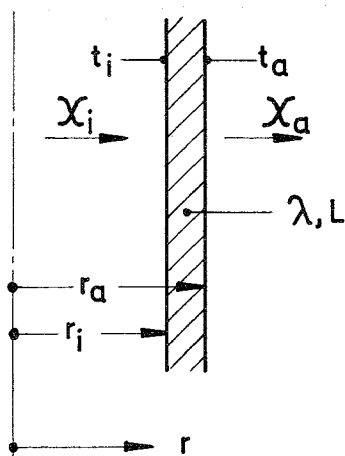
Um die thermisch hoch belastete innere Kapsel von Kriechvorgängen durch mechanische Spannungen freizuhalten, muß eine sicher funktionierende Druckregelung für das Gasgemisch in den Regelspalten vorhanden sein, die den auftretenden Meßdruck kompensiert. Dieser Gasdruck stellt gleichzeitig einen Referenzdruck für die Messung dar, so daß der Meßbereich des Druckaufnehmers relativ klein gewählt werden kann.

6. Temperaturverteilung in der Bestrahlungskapsel

Die Wärmezeugung in der Bestrahlungskapsel erfolgt ausschließlich durch nukleare Heizung. Bei der Berechnung der vorstehend beschriebenen Kapselanordnung treten drei Fälle von Wärmetransportmechanismen auf: (1) Wärmeleitung durch eine zylindrische Schale aus einem bestimmten Werkstoff mit inneren Wärmequellen, (2) Wärmeübertragung durch einen Gasspalt infolge Wärmeleitung des Gases und durch Strahlungsaustausch der Oberflächen, (3) Wärmeübergang durch Konvektion zwischen Kapseloberfläche und Reaktorkühlwasser.

6.1 Wärmeleitung in zylindrischen Schichten mit inneren Wärmequellen

Unter der Annahme konstanter, d.h. einer vom Radius unabhängigen Wärmequellendichte und Wärmeleitfähigkeit soll in Anlehnung an /-11_7 die Ableitung der benutzten Beziehung kurz angegeben werden. Dazu werden folgende Bezeichnungen verwendet:



- | | |
|---|------------------------------------|
| t [$^{\circ}\text{C}$] | Temperatur |
| χ [W/cm] | Wärmeleistung je cm Länge |
| λ [$\text{W}/\text{cm Grad}$] | Wärmeleitfähigkeit |
| L [W/cm^3] | Leistungsdichte, Wärmequell-dichte |
| r [cm] | Radius |
- Indizes: i = Innenwand
 a = Außenwand

Unter Benutzung der Fourierschen Gleichung für die Wärmestromdichte

$$q = - \lambda \frac{dt}{dx} \quad (1)$$

ergibt sich durch die Wärmebilanz an einem Volumenelement die Differentialgleichung der Wärmeleitung für zylindrische Geometrie, die sich im eindimensionalen, stationären Fall folgendermaßen darstellt:

$$\frac{d^2t}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dt}{dr} + \frac{L}{\lambda} = 0 \quad (2)$$

Diese Gleichung kann auch wie folgt geschrieben werden:

$$\frac{1}{r} \cdot \frac{d}{dr} \left(r \cdot \frac{dt}{dr} \right) = - \frac{L}{\lambda} \quad (3)$$

Nach Multiplikation mit $r \cdot dr$ ergibt sich die folgende Gleichung, die sich erstmals integrieren läßt:

$$\int d \left(r \cdot \frac{dt}{dr} \right) = - \frac{L}{\lambda} \int r \cdot dr$$

Die Integration liefert:

$$r \cdot \frac{dt}{dr} = - \frac{L}{\lambda} \cdot \frac{r^2}{2} + C \quad (4)$$

Multipliziert man beide Seiten mit $\frac{dr}{r}$, so läßt sich nochmals integrieren und es ergibt sich als bestimmtes Integral:

$$\int_{t_i}^{t_a} dt = -\frac{L}{2\lambda} \int_{r_i}^{r_a} r \cdot dr + C \int_{r_i}^{r_a} \frac{dr}{r}$$

Die Integration liefert:

$$t_a - t_i = -\frac{L}{4\lambda} (r_a^2 - r_i^2) + C \cdot \ln \frac{r_a}{r_i} \quad (5)$$

Die Bedeutung der Konstanten C kann mit Hilfe der Fouriergleichung (1) gefunden werden. Danach gilt an der Außenwand der Zylinderschale ($r=r_a$):

$$q(r_a) = \frac{\chi_a}{2\pi r_a} = -\lambda \frac{dt}{dr}$$

Durch Vergleich mit Gleichung (4) folgt daraus für $r=r_a$:

$$r_a \cdot \frac{dt}{dr} = -\frac{L}{\lambda} \cdot \frac{r_a^2}{2} + C = -\frac{\chi_a}{2\pi\lambda}$$

Daraus ergibt sich dann:

$$C = \frac{1}{2\lambda} \left(L \cdot r_a^2 - \frac{\chi_a}{\pi} \right) \quad (6)$$

Setzt man Gleichung (6) in Gleichung 5 ein, so erhält man:

$$t_a - t_i = \frac{\chi_a}{2\pi\lambda} \ln \frac{r_a}{r_i} - \frac{L}{2\lambda} \left(r_a^2 \ln \frac{r_a}{r_i} - \frac{r_a^2 - r_i^2}{2} \right) \quad (7)$$

Mit Hilfe dieser Beziehung (7) wurden die Temperaturdifferenzen der einzelnen Festkörperschichten der Bestrahlungskapsel berechnet. Da jedoch die Wärmeleitfähigkeit λ temperaturabhängig ist, muß mit dem Mittelwert $\bar{\lambda}(t_a, t_i)$ in einem Iterationsprozeß gerechnet werden.

Die Wärmeerzeugung in den Kapselschichten geschieht durch Neutroneneinfang, elastische und inelastische Neutronenstreuung und zum überwiegenden Teil durch γ -Strahlung. Für die γ -Aufheizung ist die je Volumeneinheit absorbierte Energie und damit der Energieabsorptionskoeffizient maßgebend, der bei den verwendeten Materialien nur geringe Unterschiede aufweist. Streng genommen müßte auch die Schwächung der γ -Strahlung, die in erster Näherung mit $e^{-\mu_m \cdot x}$ abklingt, berücksichtigt werden. Der Massenschwächungskoeffizient $\mu_m(E)$ ist im Bereich von 1 bis 2 MeV für alle Materialien nahezu gleich, und da es sich nur um relativ dünne Schichtdicken x handelt, wurde bei den durchgeführten Rechnungen mit konstanter nuklearer Heizung w_{gr} gerechnet. Die Wärmequellendichte L ist demnach nur von der Dichte ρ der Schicht abhängig und beträgt: $L = w \cdot \rho$.

6.2 Wärmeübertragung durch Gasspalte infolge Wärmeleitung und Strahlungsaustausch:

Wegen der relativ geringen Dichte eines Gases gegenüber Feststoffen können die inneren Wärmequellen vernachlässigt werden, so daß für den Wärmeleitungsanteil nur der 1. Term der Gleichung (7) angesetzt werden muß. Somit ergibt sich die je cm Länge durch Wärmeleitung übertragene Wärmeleistung χ_L

$$\chi_L = \frac{2\pi\lambda}{\ln \frac{r_a}{r_i}} \cdot \Delta t \quad (8)$$

Die Wärmeübertragung durch Strahlung folgt dem Stefan-Boltzmannschen Gesetz [12]

$$\chi_{St} = \epsilon \cdot c_s \cdot d_i \cdot \pi \cdot \Delta t \cdot B \quad (9)$$

mit ϵ als dem Emissionsvermögen, das sich bei zylindrischer Geometrie folgendermaßen bestimmt:

$$\xi = \frac{1}{\frac{1}{\epsilon_i} + \frac{r_i}{r_a} \left(\frac{1}{\epsilon_a} - 1 \right)} \quad (10)$$

C_s ist die Strahlungszahl des absolut schwarzen Körpers und beträgt $5,77 \cdot 10^{-4} \text{ W/cm}^2 \text{ Grad}^4$. Der Temperaturfaktor β bestimmt sich aus

$$\beta = \frac{\left(\frac{T_i}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_a}{100} \right)^4}{t_i - t_a} \quad (11)$$

Für die insgesamt durch den Gasspalt übertragene Wärmeleistung je cm Länge läßt sich zusammenfassend folgende Beziehung angeben, die den durchgeführten Berechnungen zugrunde liegt:

$$\chi = \chi_L + \chi_{ST} = \pi \cdot \Delta t \left(\frac{2\lambda}{\ln \frac{r_a}{r_i}} + \epsilon C_s d_i \beta \right)$$

Für die Temperaturdifferenz ergibt sich dann:

$$t_a - t_i = \frac{\chi}{\pi \left(\frac{2\lambda}{\ln \frac{r_a}{r_i}} + \epsilon C_s d_i \beta \right)} \quad (12)$$

Wegen der Temperaturabhängigkeit von λ , ϵ und β lassen sich die Rechnungen nur in einem Iterationsverfahren durchführen. Dabei ist auch zu berücksichtigen, daß die Spaltbreite durch unterschiedliche Wärmeausdehnungen der Kapselwandungen ebenfalls eine Temperaturfunktion ist.

6.3 Wärmeübergang zum Reaktorkühlwasser

Der konvektive Wärmeübergang zwischen Kapseloberfläche und Reaktorkühlwasser ist abhängig von den Strömungsverhältnissen im Kühlkanal. Bei Normalbetrieb treten keine Änderungen der Wärmeabfuhr

auf, so daß mit einer konstanten Wärmeübergangszahl α gerechnet werden kann. Sie wurde für die Verhältnisse im BR2 mit 3 W/cm^2 Grad angesetzt. Damit läßt sich bei gegebener Wärmeerzeugung über die Wärmestromdichte q der Temperatursprung zwischen Kühlwasser und Kapseloberfläche berechnen:

$$\Delta t = \frac{q}{\alpha} \quad (13)$$

Die Wärmestromdichte wurde bei einer maximalen nuklearen Heizung von 13 W/gr für den Kapseltyp A mit $73,7 \text{ W/cm}^2$ und für Typ B mit $59,9 \text{ W/cm}^2$ errechnet. Im Rahmen gesonderter Störfallbetrachtungen muß noch sichergestellt werden, daß diese Werte des stationären Betriebes auch bei bestimmten Störfällen nicht zu unzulässigen Temperaturerhöhungen führen können. So ist z.B. nachzuweisen, daß bei Ausfall der Kühlung kein Filmsieden an der Kapseloberfläche auftreten kann.

6.4 Ergebnisse der Rechnungen

Ausgehend von einer Kühlwassertemperatur von 50°C wurden die Wandtemperaturen der Kapselschichten beider Kapseltypen für eine nukleare Heizung von $7, 10$ und 13 W/gr berechnet. Die Rechnung liefert die in Abbildung 4 (Typ A) und Abbildung 5 (Typ B) dargestellte radiale Temperaturverteilung ohne Berücksichtigung axialer Wärmeverluste. Als Füllgas der inneren Kapsel wurde Neon angenommen, während in den Regelspalten mit Neon und Helium gerechnet wurde. Die Stoffwerte für Wärmeleitfähigkeit, Emissionsvermögen und Wärmedehnung wurden [9] und [13] entnommen. Um festzustellen, wie sich die Fertigungstoleranzen (Isatoleranzfeld h6 bzw. H7) auf das Temperaturprofil auswirken, sind die Berechnungen beim Kapseltyp A für das Zusammentreffen der beiden ungünstigsten Paarungen (größte/kleinste Spalte) durchgeführt worden.

7. Meßwerte während des Betriebes

Während des Betriebes werden Temperatur, EMK, Isolationswiderstand und Schleifenwiderstand kontinuierlich gemessen und registriert. Die Thermospannung der Thermoelemente sowie deren

Isolations- und Schleifenwiderstand lassen sich relativ einfach und sehr genau erfassen (Meßgenauigkeit $< 0,1 \%$). Entscheidende Bedeutung kommt aber der Temperaturmessung zu, die hier näher beschrieben werden soll.

Meßverfahren

Die Messung erfolgt mit einem Gasthermometer, bei dem Neon als Meßgas verwendet wird. Die Temperatur in der Kapsel ist eine Funktion des gemessenen Druckes. Zur Regelung der Temperatur dient eine He/Ne-Gasmischung, die die beiden Gasspalte zwischen Meßraum und Reaktorkühlwasser durchströmt. Der Meßdruck wird durch einen Referenzdruck kompensiert, der durch die He/Ne-Gasmischung erzeugt wird und geregelt werden muß. Erfasst wird die Differenz zwischen Meßdruck und Referenzdruck durch Auslenkung einer Membrane des induktiven Druckaufnehmers, dessen Meßbereich 0.....1000 mm WS beträgt. Damit ist auch die max. Regelabweichung der Druckregelung festgelegt. Der Referenzdruck seinerseits wird mit einem Feinmeßmanometer der Klasse 0,1 (Meßbereich 0....10 ata) gemessen.

Eichung

Die Eichung des Gasthermometers erfolgt beim erstmaligen Beheizen der Kapsel, d.h. beim Anfahren des Reaktors mit Hilfe der zu testenden Thermolemente. Da die Einflüsse, die eine Veränderung der EMK bewirken, überwiegend Langzeiteffekte sind, wirkt sich nur der Abfall des Isolationswiderstandes bei hohen Temperaturen als Fehler aus. Der Isolationswiderstand wird jedoch gemessen, so daß der auftretende Fehler rechnerisch berücksichtigt werden kann [-15_7].

Die Kalibrierung ergibt den Zusammenhang zwischen Temperatur und Druck. Dieser Zusammenhang wird in einem gewissen Maße durch die Temperaturverteilung im Meßraum beeinflusst, d.h. durch die Reaktorleistung, axiale Leistungsverteilung und die Gaszusammensetzung in den Regelspalten. Zur Ermittlung dieses Einflusses wird die Eichkurve bei verschiedenen Reaktorleistungen (z.B. 50, 75, 100%) und verschiedenen Gaszusammensetzungen (z.B. 0/100, 25/75, 50/50, 75/25, 100/0 % Ne/He) aufgenommen. Um eine ungefähre Aussage der Temperatur/Druck-Funktion zu bekommen, wurde

der Zusammenhang für eine bestimmte Kapselkonstruktion vom Kapseltyp A abhängig von der Gasmischung und der nuklearen Heizleistung rechnerisch ermittelt und in Abbildung 6 dargestellt. Sie zeigt, daß eine Druckänderung von 100 mm WS einer Temperaturänderung von etwa 3°C gleichkommt.

Zur Kontrolle auf Gasverluste aus dem Meßvolumen soll nach jedem Reaktorzyklus eine Nacheichung des Gasthermometers bei konstanter Kapseltemperatur (entsprechend Reaktorkühlmitteltemperatur) durchgeführt werden.

Meßgenauigkeit

Es wird hier die Meßgenauigkeit, bezogen auf die zu Beginn der Bestrahlung ermittelte Temperatur/Druck-Eichkurve der Kapsel betrachtet. Dabei müssen folgende Einzelfehler berücksichtigt werden:

(1) Fehler durch axiale Verschiebung des Flußprofils:

Aus Messungen am Zyklus 5/71 des BR2, bei dem extreme Flußverschiebungen auftraten, würde sich ein Fehler von 1,5% ergeben. Derart grobe Flußverschiebungen lassen sich aber erkennen, und der Fehler kann im ungünstigsten Fall mit 1% angesetzt werden. Bei einer Bestrahlungstemperatur von 2000°C ergibt sich somit ein Fehler

$$R_f = 20^{\circ}\text{C}$$

(2) Fehler bei der Messung des Differenzdruckes:

Der Fehler kann unter Annahme einer max. Nullpunktverschiebung von 10% des Meßbereiches (0...1000 mm WS) mit 100 mm WS angenommen werden, d.h.

$$R_d = 3^{\circ}\text{C}$$

(3) Fehler bei der Messung des Referenzdruckes:

Für die Meßgeräte-Klasse 0,1 (Meßbereich 0...10 ata) beträgt der maximale Fehler 100 mm WS, d.h.

$$R_r = 3^{\circ}\text{C}$$

Damit ergibt sich während des Betriebes eine fehlerbedingte Abweichung vom anfänglichen Eichwert von

$$R = \sqrt{R_f^2 + R_d^2 + R_r^2} = 24 \text{ } ^\circ\text{C}$$

8. Literaturverzeichnis

- /-1_7 T.M. Anderson and P.Bliss, Pratt and Whitney Aircraft, United Aircraft Corporation, East Hartford, Connecticut: "Tungsten-Rhenium Thermocouples Summary Report" (1971)
- /-2_7 G.W. Burns and W.S. Hurst: "An Investigation of W-3Re/ W-25Re-Thermoelements in Vacuum, Argon and Hydrogen", NASA CR-73639 (March 10, 1970)
- /-3_7 High Temperature Thermometry, AEC Report WASH-1067, (March 1966)
- /-4_7 J.F. Boland, "Nuclear Reactor Instrumentation (In-Core)", (1970)
- /-5_7 I.E. Campbell, E.M. Sherwood, "High Temperature Materials and Technology", John Wiley and Sons Inc. (1967)
- /-6_7 R.R. Asamoto, P.E. Novak, "Tungsten-Rhenium Thermocouples for use at High Temperatures", Rev. Sc.Instr. 38,8 (1967)
- /-7_7 J.D. Heckelmann and R.P. Kozar, "Measured Drift of Irradiated and Unirradiated W-3%Re/W-25%Re Thermocouples at a Nominal 2000°K", (1971)
- /-8_7 K.H. Wiedemann, "Metallwissenschaft und Technik", 24. Jahrgang, Heft 2 und Heft 7 (1970)
- /-9_7 Landolt-Börnstein, 6. Auflage, Band IV/2b
- /-10_7 Molybdän-Dienst 24/25, (Dezember 1963)
- /-11_7 D. Smidt, "Reaktortechnik", (1971)

- [-12_7 VDI-Wärmeatlas
- [-13_7 Thermophysical Properties of Matter, Band 1, 3 u. 7.
- [-14_7 Y.S.Touloukian, "Thermophysical Properties of High Temperature Solid Materials", Volume 4, Part 1, (1967)
- [-15_7 J.Stiff, "High Temperature Thermocouples for Nuclear Irradiation Experiments", PET/Inter 542, (August 1970)
- [-16_7 EUR/PET/3375/71/e., "Manufacturing Spezifikation for High Temperature Thermocouples for use in Nuclear Irradiation Experiments", (1971).

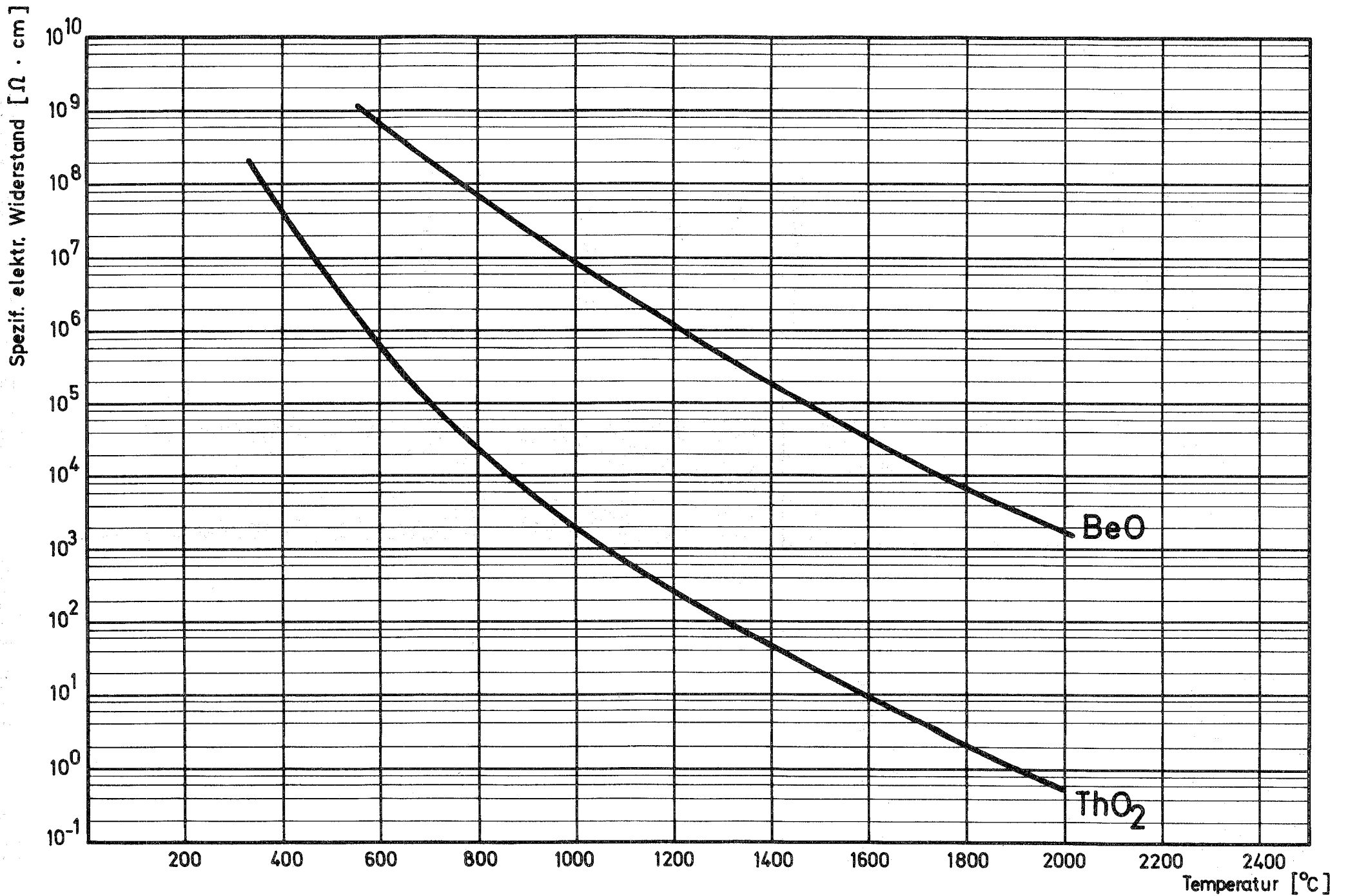


Abb. 1: Spezif. elektr. Widerstand von BeO und ThO₂ als Funktion der Temp. [14]

Referenzdruck:

He/Ne von Druckregelung
Messung mit Feinmeß-
manometer Kl. 0,1
Meßbereich 0 - 10 ata

Induktiver Druckaufnehmer
zur Druckkompensations-
Messung
Meßbereich 0 - 1000 mm WS

Meßdruck

Gasgemischregelung:
He/Ne von Druckregelung

Äußere Kapsel

H₂O

Gasführungsglocke

Innere Kapsel

TE - Träger

Meßgas: Ne

Thermoelemente

H₂O

Abb. 2: Schematische Darstellung der in - pile - Sektion

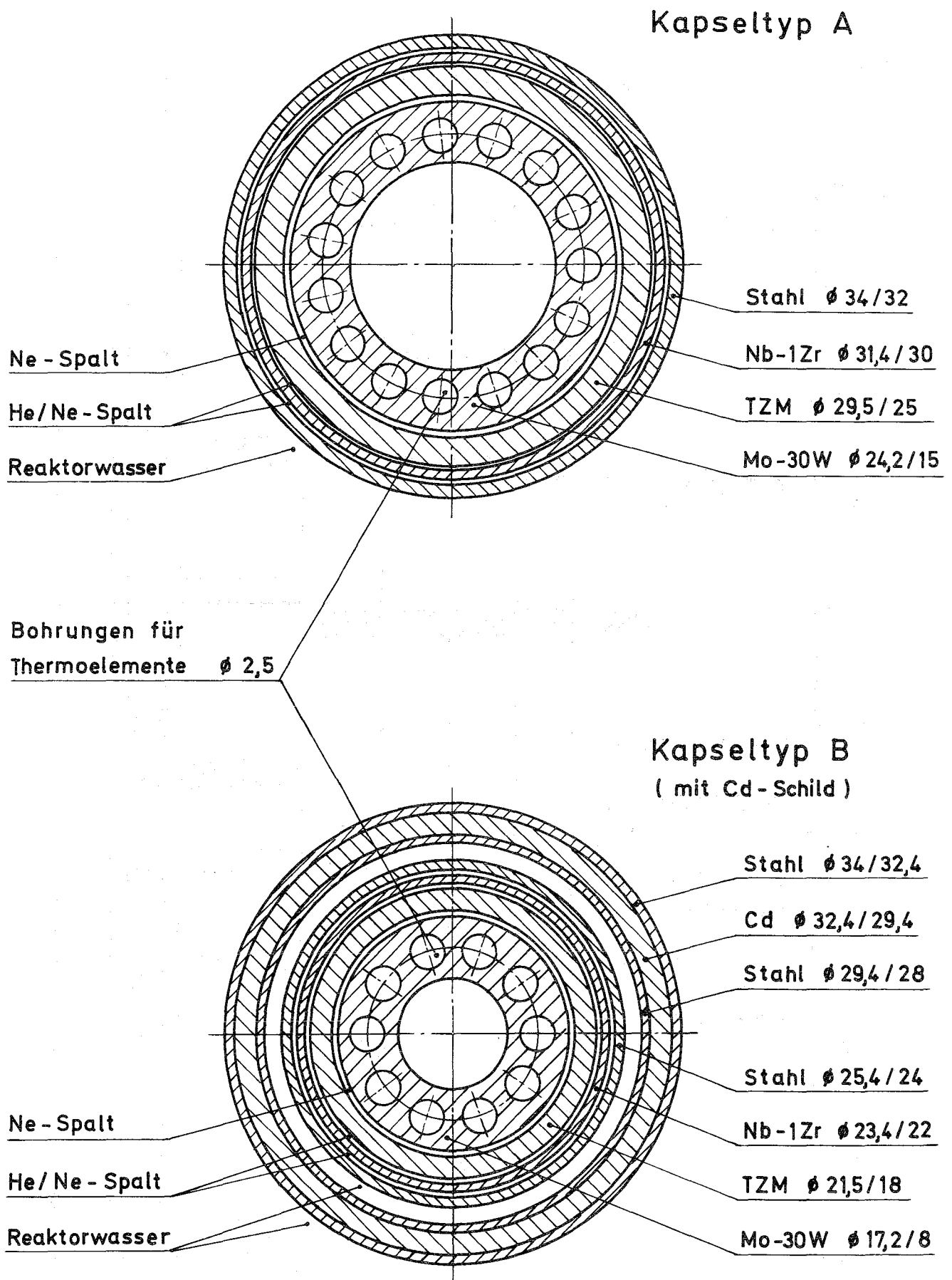


Abb. 3: Querschnittsabmessungen der Bestrahlungskapseln

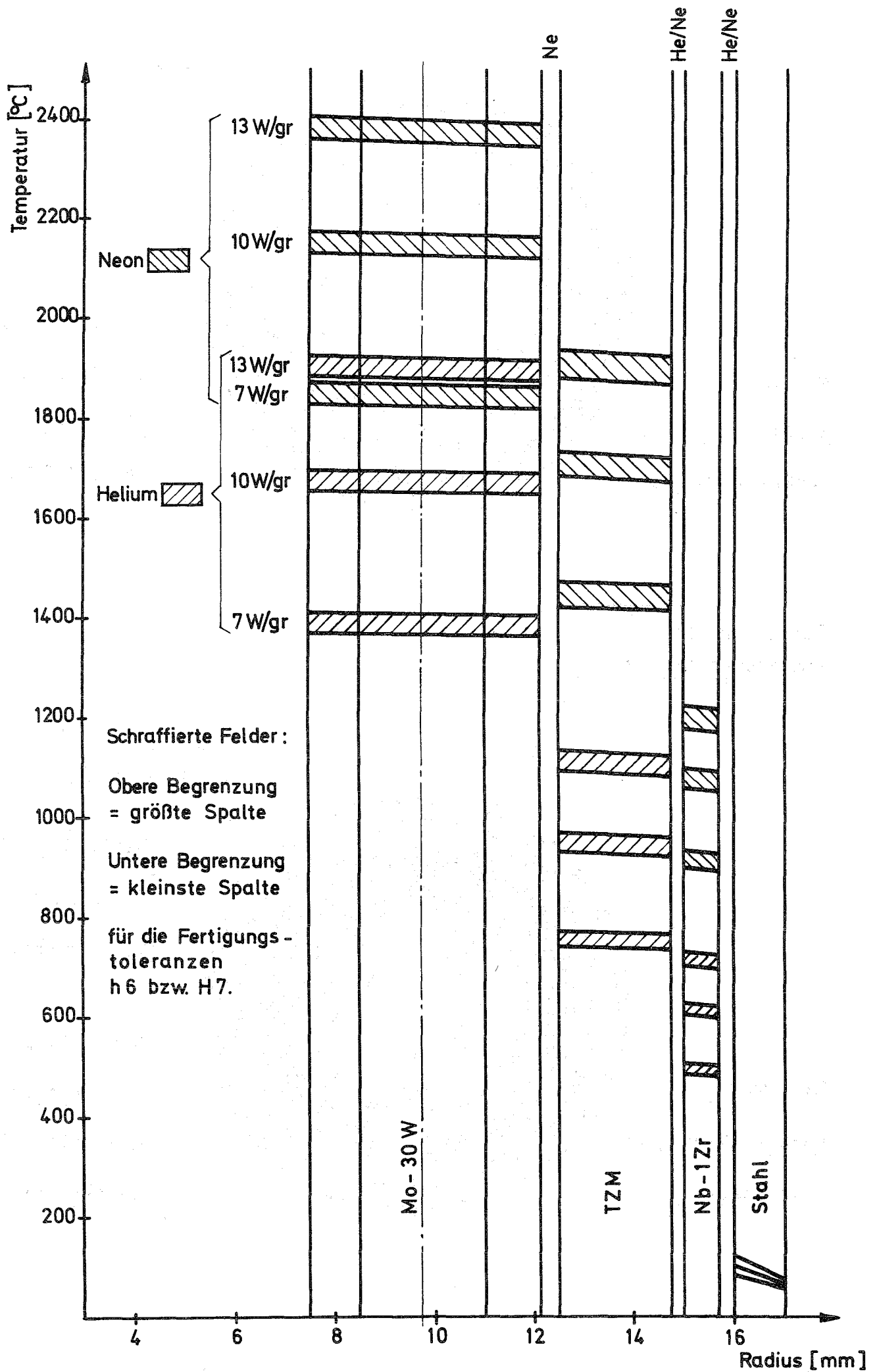


Abb.4: Radiale Temperaturverteilung in der Kapsel (Typ A)

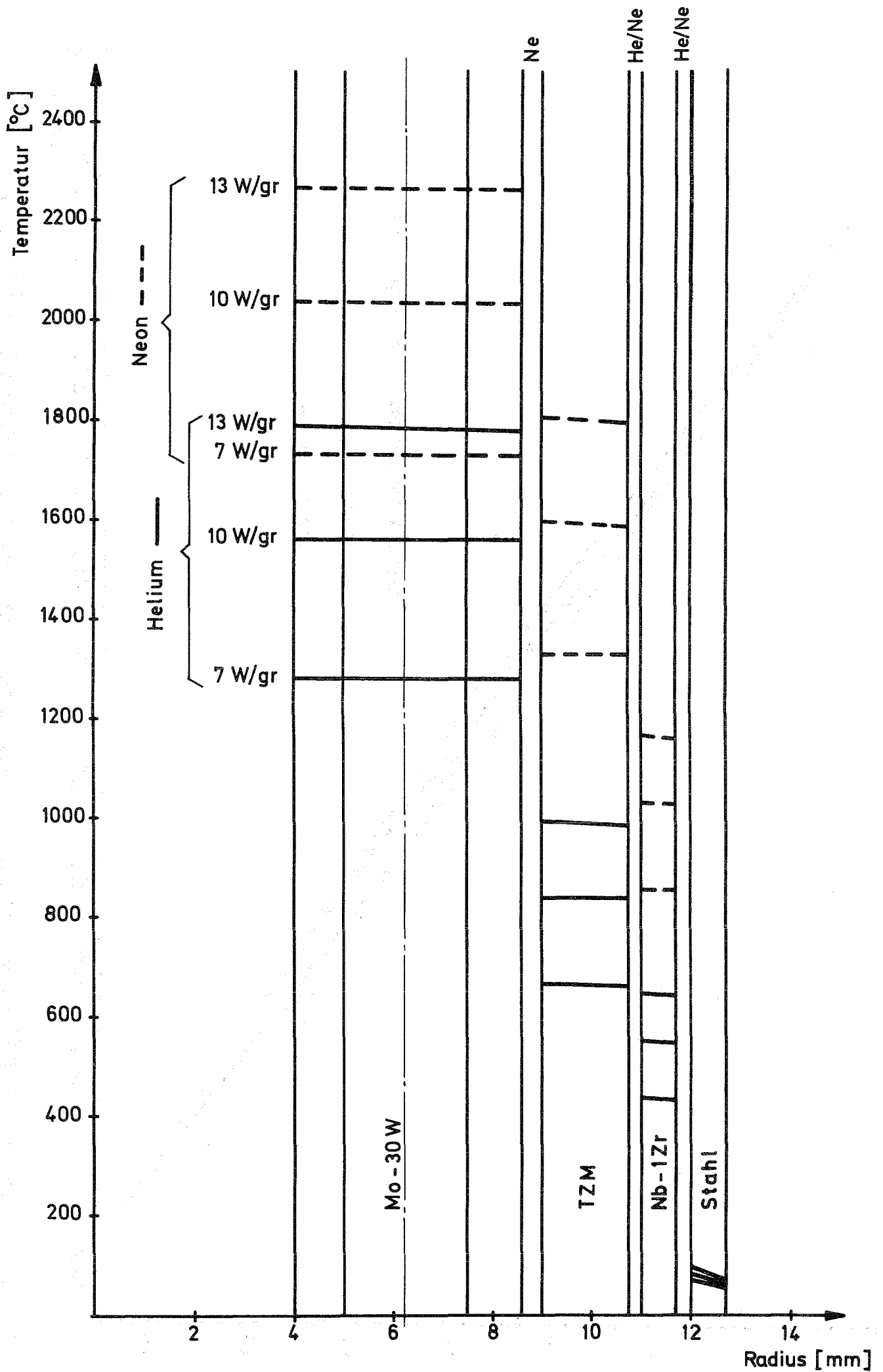


Abb. 5: Radiale Temperaturverteilung in der Kapsel (Typ B)

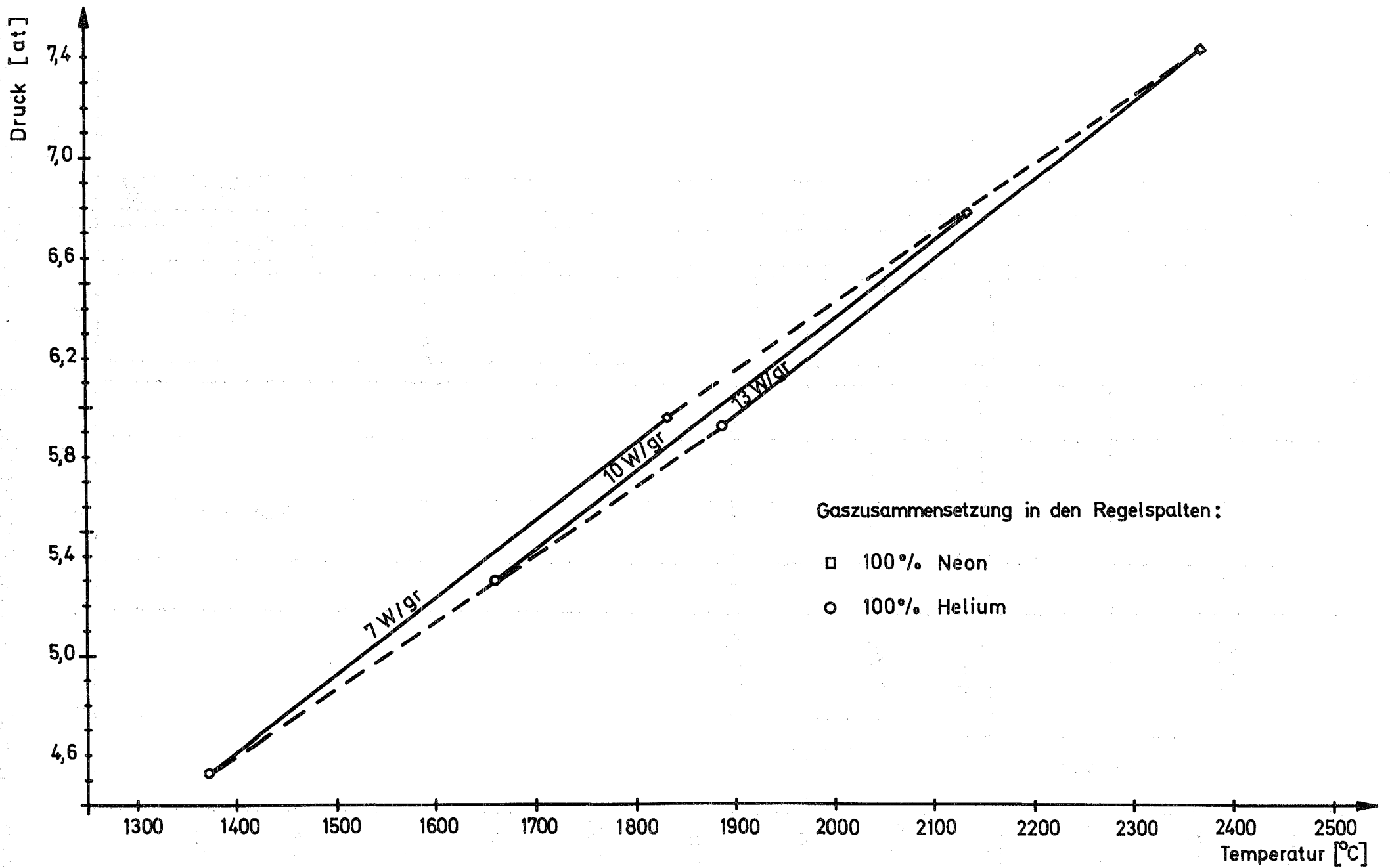


Abb.6: Temperatur / Druck - Funktion für eine bestimmte Kapsel (Typ A)