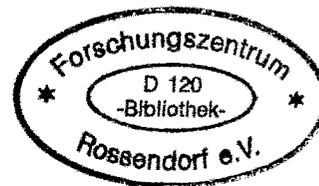


WISSENSCHAFTLICH-TECHNISCHE BERICHTE

FZR-376

April 2003

ISSN 1437-322X



Archiv-Ex.:

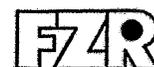
*Ingrid Stephan, Friedrich Prokert, Andrea Scholz,
Jürgen Böhmert*

Bestimmung der Bestrahlungstemperatur im Bestrahlungsprogramm Rheinsberg II

Herausgeber:
Forschungszentrum Rossendorf e.V.
Postfach 51 01 19
D-01314 Dresden
Telefon +49 351 26 00
Telefax +49 351 2 69 04 61
<http://www.fz-rossendorf.de/>

Als Manuskript gedruckt
Alle Rechte beim Herausgeber

FORSCHUNGSZENTRUM ROSSENDORF



WISSENSCHAFTLICH-TECHNISCHE BERICHTE

FZR-376

April 2003

*Ingrid Stephan, Friedrich Prokert, Andrea Scholz,
Jürgen Böhmert*

**Bestimmung der Bestrahlungstemperatur im
Bestrahlungsprogramm Rheinsberg II**

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Methode der Temperaturbestimmung mit Diamantpulver	1
3. Experimentelle Ausführung	3
3.1 Bestrahlungsexperimente	3
3.2 Präparation des bestrahlten Diamantpulvers	3
3.3 Bestimmung der Gitterkonstanten	3
4. Messergebnisse und Bestimmung der Bestrahlungstemperatur	4
5. Diskussion der Ergebnisse	5
6. Schlussfolgerungen	7
Literatur	7
Tabellen	
Abbildungen	

Zusammenfassung

Im Bestrahlungsprogramm Rheinsberg II wurden zur Temperaturbestimmung Temperaturmonitore aus Diamantpulver verwendet. Das Verfahren nutzt den Einfluss der Temperatur auf die bestrahlungsbedingte Änderung der Gitterkonstanten des Diamantgitters und ist in einer russischen Prüfvorschrift standardisiert. Zur Ermittlung der Temperatur wurde die Gitterkonstante mit einem Röntgen-Diffraktometer nach Bestrahlung und anschließenden Ausheilglühungen in isochronen Temperaturstufen von 50 – 100 K bestimmt. Der Unstetigkeitspunkt auf dem linearisierten Temperaturverlauf der Gitterkonstanten liefert einen Wert für die Bestrahlungstemperatur, der gemäß der Prüfvorschrift neutronenflussabhängig zu korrigieren ist. Es werden starke Messwertstreuungen festgestellt, die die Genauigkeit der Bestimmung des Unstetigkeitspunktes erheblich beeinträchtigen. Darüber hinaus treten systematische Fehler auf. Insgesamt ist die Temperaturbestimmung mit Diamantpulver im Bestrahlungsprogramm Rheinsberg II als nicht zufriedenstellend einzuschätzen. Der wahrscheinlichste Wert liegt im Bereich von 255 – 265 °C und somit nahe dem Wert, der aus den thermischen Randbedingungen der Experimente abgeschätzt werden kann.

Abstract

The temperature monitoring within the irradiation programme Rheinsberg II was performed by diamond powder monitors. The method bases on the effect of temperature on the irradiation-induced increase of the diamond lattice constant. The method is described by a Russian code. In order to determine the irradiation temperature, the lattice constant is measured by means of a X-ray diffractometer after irradiation and subsequent isochronic annealing. The kink of the linearized temperature-lattice constant curves provides a value for the irradiation temperature. It has to be corrected according to the local neutron flux. The results of the lattice constant measurements show strong scatter. Furthermore there is a systematic error. The results of temperature monitoring by diamond powder are not satisfying. The most probable value lays within 255 °C and 265 °C and is near the value estimated from the thermal condition of the irradiation experiments.

1 Einleitung

Zur Charakterisierung der Einflussparameter auf das Materialverhalten unter Bestrahlungsbedingungen ist auch die Kenntnis der Bestrahlungstemperatur erforderlich. Vor allem die Absorption der γ -Strahlung [1] bewirkt im Bestrahlungsgut eine Temperaturerhöhung, die deutlich über die Temperatur des durch die Bestrahlungskanäle fließenden Kühlmittels hinausgehen kann. Dabei spielen die Art und die Menge des bestrahlten Materials sowie die aus Probenanordnung und Konstruktion der Bestrahlungskapsel resultierenden Bedingungen des Wärmeüberganges eine entscheidende Rolle. Gut konzipierte Bestrahlungsexperimente verwenden zur Temperaturmessung Thermoelemente, die jedoch aufwändige Konstruktionen der Bestrahlungseinsätze erfordern und sich als stör anfällig erwiesen haben. Im Rahmen der Versprödungsüberwachungsprogramme der Leistungsreaktoren werden Schmelzmonitore [2,3] verwendet, die die maximal aufgetretene Temperatur auf mindestens ± 10 °C genau nachweisen können. Damit lässt sich aber die für die Belastung relevantere mittlere Bestrahlungstemperatur nicht bestimmen. Russische Arbeiten [4] zielten auf die Entwicklung einer Methode, die mit Hilfe von Präzisionsmessungen der Gitterkonstanten von Diamantpulver die Temperaturbestimmung in Bestrahlungsexperimenten ermöglicht. Die Methode versprach temperatur- und zeitintegrierend zu arbeiten, einen geringen Raumbedarf zu benötigen und sich problemlos in ein Bestrahlungsexperiment einfügen zu lassen. Deshalb wurde nach Durchführung eigener Voruntersuchungen [5] für das Bestrahlungsprogramm Rheinsberg II [6] auf diese Methode der Temperaturbestimmung zurückgegriffen.

Die Arbeit stellt die Methode vor, beschreibt ihre Anwendung im Rahmen des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg und zeigt die damit erhaltenen Ergebnisse.

2 Methode der Temperaturbestimmung mit Diamantpulver

Diamant als Prototyp einer kovalenten Kristallstruktur zeigt - wie seit langem bekannt ist [7] - Eigenschaftsänderungen unter dem Einfluss von Neutronenbestrahlung, die bei Temperaturerhöhung langsam und selbst bei hohen Temperaturen nur partiell ausheilen. Unter anderem wird eine deutliche Dichteänderung bzw. Änderung der Gitterparameter nachgewiesen. Das Phänomen besitzt einen Sättigungscharakter und ist von der Neutronenflussdichte und von der Bestrahlungstemperatur abhängig. Das Ausheilverhalten ist mehrstufig, woraus abgeleitet werden kann, dass bei der Bestrahlung verschiedene Arten von Gitterdefekten entstehen.

Trotz der Komplexität des Befundes ist von russischer Seite sehr früh versucht worden, auf dieser Grundlage ein Temperaturmonitoringverfahren für Bestrahlungsexperimente und Surveillance-Programme in Leistungsreaktoren zu entwickeln. Die Bemühungen haben ihren Niederschlag in einer Richtlinie der sowjetischen Atomenergiebehörde [8] und einem normativ-technischen Dokument von Interatomenergie [9] gefunden.

Das Verfahren beruht auf der Annahme, dass die gemessene relative Dichteänderung

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_0} = \frac{\Delta V}{V_0} = 3 \frac{\Delta a}{a_0} \quad (1)$$

$\Delta\rho$, ΔV , Δa – Änderung der Dichte, des Volumens bzw. der Gitterkonstanten,
 ρ_0 , V_0 , a_0 – Ausgangswerte vor Bestrahlung für Dichte, Volumen bzw. Gitterkonstante

die Folge von zwei miteinander konkurrierenden Teilprozessen ist:

- die Erzeugung von Gitterdefekten durch Neutronenbestrahlung
- die Selbstheilung durch Relaxations- bzw. Rekombinationsprozesse.

Der erste Prozess ist abhängig von der Neutronenfluenz, möglicherweise auch von der Neutronenflussdichte, der zweite ist temperaturabhängig. Für jede Bestrahlungstemperatur stellt sich ein Gleichgewichtswert ein. Wird nach der Bestrahlung das bestrahlte Diamantpulver isochron geglüht, dann wird ein weiterer Ausheileneffekt erst dann auftreten, wenn die Glühtemperatur die Temperatur der vorangegangenen Bestrahlung überschreitet. Man erwartet so einen konstanten Verlauf der $(\Delta\rho/\rho_0)$ -Temperaturkurve im unteren Temperaturbereich und einen linear abfallenden Verlauf im oberen Temperaturbereich. Der Schnittpunkt zwischen beiden Geraden liefert die Bestrahlungstemperatur, die hier nicht als Maximaltemperatur, sondern als eine für das Quasi-Gleichgewicht unter Bestrahlung repräsentative „mittlere“ Temperatur aufzufassen ist.

Abb. 1 zeigt beispielhaft die Ergebnisse eines Experimentes mit im Rossendorfer Forschungsreaktor (RFR) bestrahltem Diamantpulver [5].

Die Vorschrift nach [8] berücksichtigt zusätzlich einen flussabhängigen Korrekturterm ΔT_φ

$$T_{\text{irr}} = T_m - \Delta T_\varphi \quad (2)$$

$$\Delta T_\varphi / \text{K} = 43 \cdot 10^4 \cdot (\varphi / \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1})^{-1/3} \quad (2a)$$

T_{irr} – Bestrahlungstemperatur

T_m – Temperatur am Schnittpunkt der Ausheilgeraden

φ – Neutronenflussdichte ($E > 0,5 \text{ MeV}$)

Gültigkeitsgrenze: $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} \leq \varphi \leq 6 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$

Zur Illustration sind in Abb. 2 die experimentellen Befunde ausgewiesen, auf deren Grundlage die Korrekturfunktion als Näherungsgleichung bestimmt worden ist. Streubreiten von 70 °C um diese Näherung verdeutlichen, dass eine Temperaturbestimmung mit dieser Prozedur keine befriedigende Genauigkeit erwarten lässt.

In [9] wurde ergänzend der Gültigkeitsbereich der Prozedur auf Fluenzen zwischen $\approx 2 \cdot 10^{19} \text{ n/cm}^2$ bis $3 \cdot 10^{21} \text{ n/cm}^2$ [$E > 0,5 \text{ MeV}$] begrenzt. Damit wird berücksichtigt, dass das oben erwähnte Gleichgewicht erst nach größeren Fluenzen erreicht wird.

Der zeit- und flussabhängige Gleichgewichtszustand kann schneller erreicht werden, wenn das Diamantpulver vorher bei niedrigerer Bestrahlungstemperatur bis zu hoher Fluenz bestrahlt worden ist. Der Einfluss der Flussdichte oder der Bestrahlungszeit lässt sich auf diese Weise verringern oder gar vollständig eliminieren. Diese Verfahrensmodifikation wurde deshalb vorrangig für das Temperaturmonitoring im Bestrahlungsprogramm Rheinsberg II angewandt [6].

3 Experimentelle Ausführung

3.1 Bestrahlungsexperimente

Die Bestrahlungsexperimente des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg sind in [6] ausführlich erläutert. Eine Übersicht über die einzelnen Experimente gibt Tab. 1. Aus Abb. 3 sind die Bestrahlungspositionen ersichtlich.

Alle Bestrahlungskapseln wurden mit Diamantpulver als Temperaturmonitore bestückt. Das Diamantpulver aus sowjetischer Produktion wurde in kleinen Kapseln aus AlMgSi1 eingeschlossen, die wiederum in Beilagen aus AlMgSi1 eingepresst wurden. Die Beilagen sichern den guten Wärmekontakt zwischen Kapselwand und Bestrahlungsproben. Die konstruktive Gestaltung der Temperaturmonitorkapseln ist in Abb. 4 dargestellt.

Diamantpulver wurde vor allem in den späteren Experimenten überwiegend bzw. ausschließlich im vorbestrahlten Zustand eingesetzt. Die Vorbestrahlung erfolgte im Hochflusskanal HK1 des RFR bei einer Flussdichte von ca. $10^{14}/\text{cm}^2\text{s}$ ($E > 0,5$ MeV) bis zu einer Fluenz von $(1,3 - 2,0) 10^{20}/\text{cm}^2$. Die Kühlmitteltemperatur im RFR betrug ca. 60 °C, so dass eine Temperatur < 100 °C für die Vorbestrahlung angenommen werden kann. Die Anzahl der in den einzelnen Bestrahlungsexperimenten eingesetzten Temperaturmonitore ist in Tab. 2 zusammengestellt. Die Temperaturmonitore der Experimente RH 2-4 wurden bereits vor längerer Zeit ausgewertet, die Ergebnisse sind in [10] dargestellt.

3.2 Präparation des bestrahlten Diamantpulvers

Die Wiedergewinnung der Temperaturmonitore erwies sich als schwierig, so dass nicht aus allen Kapseln Temperaturmonitore zur Auswertung zur Verfügung standen. Außerdem waren die eingesetzten Pulvermengen z.T. sehr gering und nicht für eine Auswertung ausreichend.

Die Aluminiumkapseln wurden zur Gewinnung des Diamantpulvers in einer speziellen Trenneinrichtung geöffnet und das Pulver in ein Quarzglas-Markröhrchen von 1 mm Durchmesser, 0,01 mm Wandstärke und 40 mm Länge überführt. In diesem Röhrchen wurden die Pulver jeweils ausgemessen und geglüht. Die Glühungen erfolgten isochron bei einer Haltezeit von 2 h in einem Muffelofen Labotherm L3/S der Fa. Nabertherm. Der programmierbare Controller S 27 gestattet die Einhaltung der Glühzeit mit ± 1 min und der Temperatur auf ± 2 °C.

Für die Experimente RH 5 und RH 6 wurden Glühungen bei Ausheiltemperaturen T_A im Bereich von 125 °C – 425 °C und für das Experiment RH 8 im Bereich von 150 °C – 550 °C jeweils in Stufen von 50 K durchgeführt. Für das Experiment RH 7 wurden anfangs größere Stufenwerte von 100 K bzw. 75 K und ein breiterer Glühbereich von 100 °C – 650 °C gewählt.

3.3 Bestimmung der Gitterkonstanten

Die Bestimmung der Gitterkonstanten a des Diamantpulvers erfolgt durch Röntgendiffraktionsmessungen an einem Standard-Diffraktometer D 5000 (Siemens-Bruker AXS). Das Diffraktometer arbeitet in Θ_T - Θ_D -Geometrie mit fester Probenposition.

Der Streuwinkel 2Θ ergibt sich in dieser Konstruktion aus der Summe des durch die Position der Probe vorgegebenen Einfallswinkels Θ_T und des durch die Detektorposition bestimmten Winkels Θ_D zu $2\Theta = \Theta_T + \Theta_D$. Schlitzblenden am Göbelspiegel und vor dem Detektor begrenzen den Strahlquerschnitt bzw. die Divergenz der de-

tektierten Strahlung. Eine Streustrahlblende hinter der Probe dient zur Verringerung der Untergrund-Streustrahlintensität.

Somit ergibt sich folgender Strahlengang:

Röhre (Cu-Anode) → Schlitzblende 1 mm (horizontal) → Göbelspiegel/Schlitzblende 1 mm (horizontal) → Probenkapillare (horizontal in den Träger eingesetzt) → Streustrahlblende 2 mm → Detektorblende 0.1 mm → Detektor.

Durch den gebogenen, direkt an der Röhre angebrachten Göbelspiegel wird die erfasste divergente Strahlung aus dem Strichfokus der Röntgenröhre als Parallelstrahl auf die Probe gerichtet. Dadurch werden sowohl die Intensität, als auch das Winkelauflösungsvermögen des Instrumentes verbessert. Weiterhin verringert sich der Fehler in der Reflexlagenbestimmung, der in der Bragg-Brentano-Geometrie ($\Theta_T = \Theta_D$) bei Abweichung des Probenortes von der Bezugslage (gemeinsame horizontale Drehachse der beiden Θ -Kreise) auftritt. Die Messanordnung ist in Abb. 5 schematisch dargestellt.

Eine geeignete Halterung der Probenkapillaren ermöglicht auch bei dem erforderlichen mehrfachen Probenwechsel eine weitgehend reproduzierbare und hinreichend genaue Positionierung der Proben.

Vorversuche haben gezeigt, dass die erforderliche hohe Genauigkeit der Gitterkonstantenbestimmung nur durch Auswertung der Reflexlagen bei großem Streuwinkel zu erreichen ist. Für die vorliegende, auf eine Röhre mit Cu-Anode ausgelegte Anordnung sind für Diamant mit $a \approx 0.357$ nm bei einer Wellenlänge von $\lambda = 0.154$ nm ($\text{Cu}_{K\alpha 1}$) für einen maximal erreichbaren Streuwinkel von $2 \Theta_{\max} \leq 150^\circ$ die Diamantreflexe bis zu $(hkl) = (400)$ messbar.

Zur Bestimmung der Gitterkonstanten wurden für die einzelnen Proben nach jeder Glühung jeweils drei Peaks (400), (311) und (331) bzw. (222) mit hinreichender statistischer Genauigkeit gemessen. Bei Winkelschritten von $0,02^\circ$ waren Messzeiten von 150 - 300 min für jede einzelne Probe erforderlich.

Die Peaklagen für die $\text{Cu}_{K\alpha 1}$ -Wellenlänge wurden direkt im Auswerteprogramm EVA (Siemens) durch eine Fitprozedur bestimmt. Ausgehend von diesen Werten erfolgte die Berechnung des Gitterparameters a mittels des Auswerteprogrammes METRIC (Siemens) und die Überführung der Ergebnisdaten in die entsprechenden Origin-Datenblätter.

Die Diamantpulver wurden zunächst im Ausgangszustand untersucht. Die Ausheilbehandlungen wurden dann bevorzugt an den Indikatorpulvern durchgeführt, die einen hohen Δa -Effekt im Ausgangszustand aufwiesen. Der hohe Messzeitaufwand für eine Messreihe erlaubt nicht, alle wiedergewonnenen Temperaturmonitore auszumessen. Nicht vorbestrahlte Pulver wurden nur für das Bestrahlungsexperiment RH 6 zum Vergleich mit ausgemessen.

4 Messergebnisse und Bestimmung der Bestrahlungstemperatur

Die im Ausgangszustand und nach isochroner Ausheilung gemessenen Gitterkonstanten der Temperaturmonitore aus den Bestrahlungsexperimenten RH 5 – RH 8 sind in den Tabellen 3 – 6 zusammengestellt und in den Abbildungen 6 – 13 veranschaulicht.

Grundsätzlich ist bei der Mehrzahl der Experimente der erwartete Trend festzustellen, dass die Gitterkonstante im Bereich niedriger Ausheiltemperaturen konstant bleibt und erst bei höheren Ausheiltemperaturen geringer wird. Allerdings ist dieser Trend durch starke Streuungen der Einzelwerte nicht immer zu erkennen. Das gilt

besonders für die Temperaturmonitore aus den Bestrahlungsexperimenten RH 5 und RH 6. Hier ist die Spannweite der Einzelwertstreuungen für eine Ausheiltemperatur etwa 0,06 %. Diese Spannweite ist von ähnlicher Größenordnung wie der bis zu Ausheiltemperaturen von 500 °C auftretende Messeffekt.

Durch messtechnische Verbesserungen konnte die Einzelwertstreuung für die Experimente 7 und 8 etwa um den Faktor 2 reduziert werden, wodurch auch der charakteristische Δa -T-Verlauf klarer sichtbar wird. Die Anfangswerte aller Monitorsätze eines Experimentes sind innerhalb des typischen Messwertstreubandes identisch.

Die Vorbestrahlung liefert einen Monitorzustand mit deutlich höherem Anfangswert, wie aus Abb. 8 ersichtlich. Allerdings wird das Ausheilverhalten durch die Vorbestrahlung nicht beeinflusst.

Unterschiede im Verhalten der Temperaturmonitore aus unterschiedlichen Bestrahlungskapseln eines Bestrahlungsexperimentes können nicht erkannt werden. Deshalb werden zur Ermittlung der beiden charakteristischen Geraden jeweils alle Messungen eines Bestrahlungsexperimentes zusammengefasst. Dieses Ergebnis ist für die Bestrahlungsexperimente RH 5 und RH 8 in den Abbn. 14 und 15 gezeigt. Für RH 6 steht jeweils nur ein Monitor mit unterschiedlich vorbehandeltem Pulver zur Verfügung. Hier ist ein Abfall der Gitterkonstante nicht festzustellen. Für das Bestrahlungsexperiment RH 7 konnten ebenfalls nur 2 Monitore ausgemessen werden. Die Ausgleichsgeraden sind in Abb. 9 miteingetragen.

Als Schnittpunkt wurden die folgenden Temperaturen bestimmt:

RH 5	300 °C
RH 6	kein Schnittpunkt
RH 7	255 °C
RH 8	325 °C.

5 Diskussion

Das Temperaturmonitoring der Bestrahlungsexperimente RH 5 - RH 8 wird durch 3 experimentelle Gegebenheiten wesentlich beeinträchtigt:

- die geringe Diamantpulvermenge, die jeweils zur Auswertung zur Verfügung steht,
- die mechanische Empfindlichkeit der Probenkapillare, die eine Ausheilung bei höheren Temperaturen verbietet,
- die unzureichende Messgenauigkeit der Gitterkonstantenbestimmung in der vorhandenen Messanordnung.

Die Temperaturen aus dem Schnittpunkt der beiden Geraden liegen für die einzelnen Bestrahlungsexperimente in einem weiten Temperaturbereich, der von 255 °C im Targetkanal bis > 400 °C für das Experiment RH 6 reicht. Für das Experiment RH 2 wurde in einer länger zurückliegenden Auswertung mit einer völlig anderen Messanordnung 324 °C bestimmt [5].

Wie in Abschnitt 2 ausgeführt, ist ein Einfluss der Neutronenflussdichte zu berücksichtigen. Die Neutronenflussdichten unterscheiden sich für die verschiedenen Experimente und Kapseln. Typische mittlere Werte liegen zwischen $0,195 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ und $0,204 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [$E > 0,5 \text{ MeV}$] für die Bestrahlungskapseln 10 und 11 in RH 5 und zwischen $0,234 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ und $0,390 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [$E > 0,5 \text{ MeV}$] für die Bestrah-

lungskapseln 17 bzw. 21 im Bestrahlungsexperiment RH 8 [12]. Damit ergeben sich nach Gleichung (2, 2a) Korrekturglieder von 73 – 74 K für RH 5 oder 59 – 70 K für RH 8. Im Bestrahlungsexperiment RH 7 werden wesentlich höhere Neutronenflussdichten von $3,0 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ in coreferner und $5,20 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ in corenaher Position erreicht. Das entsprechende Korrekturglied liegt dann zwischen ca. 25 und 30 K. Ein Einfluss der Neutronenflussdichte auf die Lage der Schnittpunkttemperatur ist für RH 7 aber nicht nachzuweisen (Abb. 9).

Unter Berücksichtigung der Korrekturgleichungen (2, 2a) werden dann Bestrahlungstemperaturen von

225 – 230 °C für RH 5

225 – 230 °C für RH 6

255 – 265 °C für RH 7

ermittelt.

RH 6 hat mit ca. $0,15 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ die niedrigste Neutronenflussdichte. Die Temperaturkorrektur von $\approx 80 \text{ K}$ liefert immer noch eine Bestrahlungstemperatur $> 320 \text{ °C}$.

Die Bestrahlungskapseln werden sowohl in den Surveillancekanälen als auch in den Targetkanälen vom eintretenden Reaktorkühlwasser umströmt. Das Temperaturniveau des Reaktorkühlwassers liegt zwischen 245,5 °C am Eintritt und 262 °C bei Austritt. Eine Abschätzung der Bestrahlungstemperatur unter diesen Bedingungen ergab eine mittlere Bestrahlungstemperatur von $(255 \pm 5) \text{ °C}$.

Bestrahlungstemperaturen weit unter der Eintrittstemperatur des Reaktorkühlwassers sind in einer solchen Anordnung nicht möglich, ebenso wie auch Temperaturen weit über 300 °C bei den gegebenen innigen Kontakt zwischen Kühlwasserkapselwand und Kapselbesatz unwahrscheinlich sind.

Somit ist festzustellen, dass das Temperaturmonitoring mit Diamantpulver nicht den an ein Bestrahlungsexperiment zu stellenden Anforderungen genügt. Neben subjektiven Fehlern, die in der Auslegung und Auswertung der Monitore gemacht wurden, wird dies durch systematische Fehlereinflüsse verursacht. Ein wesentlicher Einfluss der Neutronenflussdichte ist dabei zu vermuten, der aber nicht mit einer einfachen Korrektur nach Gleichung (2, 2a) zu beschreiben ist. Die extremen Streuungen, die der Ermittlung der Korrekturgleichung zugrunde liegen, weisen bereits auf diese konzeptionelle Schwäche hin.

Es ist allerdings zu bezweifeln, ob mit einer verbesserten Kalibrierungsprozedur auch eine substantielle Verbesserung der Methode erreicht werden kann. Prinzipiell setzt die Methode einen singularen Ausheilmechanismus mit einer einheitlichen Aktivierungsenergie voraus. Stattdessen liegen aber der Verringerung der Gitterkonstanten komplexe Prozesse zugrunde, deren Komplexität und thermische Aktivierung bereits von der Art der Strukturschädigung während der Bestrahlung abhängt. Diese wird ihrerseits wiederum von solchen Parametern wie Neutronenfluenz und -spektrum, dem γ -Strahlenfeld, der Bestrahlungszeit und eben auch der Bestrahlungstemperatur beeinflusst.

Schließlich sei darauf hingewiesen, dass die Schnittpunktlage klar glühzeitabhängig ist. Zunehmende Glühzeit verringert die Temperatur am Schnittpunkt [10].

Berücksichtigt man frühere Erfahrungen, dass für das Neutronenflussdichteniveau der Targetkanäle der Korrekturterm verschwindet und dass das Ergebnis von RH 5 infolge der hohen Messwertstreuung und des niedrigen Ausheiltemperaturmaximums

irrelevant ist, so erhält man Bestrahlungstemperaturen im Bereich von 255 – 265 °C, die sich in Anbetracht der prinzipiellen Mängel der Methode überraschend gut mit dem abgeschätzten Temperaturbereich decken.

6 Schlussfolgerungen

Die Bestimmung der Bestrahlungstemperatur im Bestrahlungsexperiment Rheinsberg II erfolgte mit Diamantpulver, das vorwiegend vorbestrahlt war. Nach Beendigung des Bestrahlungsexperimentes wird die Gitterkonstante des Pulvers im Ausgangszustand und nach stufenweiser isochroner Ausheilung gemessen. Der Schnittpunkt zwischen dem temperaturunabhängigen Verlauf der Gitterkonstante bei niedrigen Ausgangstemperaturen und einer Ausgleichsgeraden, an den nach Ausheilung bei hohen Temperaturen gemessenen Werten der Gitterkonstanten, liefert einen Ansatz zur Definition der Bestrahlungstemperatur.

Das Verfahren ist sehr zeitaufwändig und verlangt hohe Anforderungen an die Genauigkeit der Gitterkonstantenbestimmung. In einigen Fällen tritt im berücksichtigten Temperaturbereich keine Erholung der Gitterkonstanten auf; in anderen Fällen ist die Streuung der Einzelmessung so groß, dass der Korrelationskoeffizient sehr klein ist. Eine vertretbare Schätzung der Schnittpunktlage kann nur über die Mittelwertbildung aus allen in den jeweiligen Bestrahlungsexperimenten gemessenen Monitoren gewonnen werden.

Die Schnittpunkte liegen bei Temperaturen, die sich nicht aus den thermischen Bedingungen im Bestrahlungsexperiment erklären lassen. Eine Berücksichtigung einer Neutronenflusskorrektur beseitigt diese Schwäche nicht.

Die Methode des Temperaturmonitoring mit Diamantpulverindikatoren muss in der für das Bestrahlungsprogramm Rheinsberg benutzten Ausführung als ungeeignet zur Bestimmung der Bestrahlungstemperatur eingeschätzt werden. Für eine solche Anwendung tritt sowohl ein zu hoher systematischer Fehler als auch eine zu große Streubreite auf.

Bei gut definierten Bestrahlungsbedingungen mit geringer Variationsbreite von Neutronenflussdichte und -spektrum lässt sich bei sorgfältiger Kalibrierung mit dem Verfahren möglicherweise ein Monitoring erreichen, das einen geringen Installationsaufwand erfordert und das die Bestrahlungstemperatur auch im Falle nicht konstanter Temperaturverläufe vernünftig charakterisiert. Ein solcher Einsatz erfordert umfangreiche Voruntersuchungen.

Literatur

- [1] J. Weisman, Elements of Nuclear Reactor Design, Elsevier, Amsterdam, 1977, pp. 174
- [2] A. L. Lowe, Jr., Role and Experience with Thermal Monitors in Reactor Vessel Surveillance Capsules, in: "Effects of Radiation on Materials: 18th International Symposium, ASTM STP 1325, R. K. Nanstad, M. L. Hamilton, F. A. Garner, A. S. Kumar, Eds., American Society for Testing and Materials, 1999, pp. 485
- [3] KTA 3203, Überwachung des Bestrahlungsverhaltens von Werkstoffen der Reaktordruckbehälter von Leichtwasserreaktoren, Fassung 6/01
- [4] V. I. Karpuchin, V. A. Nikolayenko, Temperature Measuring by Irradiated Diamonds, Atomizdat, Moscow, 1971

- [5] H.-P. Schützler, Temperaturbestimmung bei Bestrahlungsexperimenten im RFR durch Messung von Gitterparameteränderungen an neutronenbestrahltem Diamant, Jahresbericht 1983, Bereich Kernbrennstoffforschung, ZfK-544, S. 148-149
- [6] K. Popp, H.-P. Schützler, H.-W. Viehrig, Bestrahlungsexperimente zur Untersuchung der Neutronenversprödung von Reaktordruckbehälterstählen, ZfK-679, September 1989, S. 14-15
- [7] D. S. Billington, J. H. Crawford: Radiation Damage in Solids, Princeton, 1961, pp. 216
- [8] Bestimmung der Bestrahlungstemperatur mit Hilfe von Diamantfühlern bei verschiedenen Neutronenflussdichten (in russ.), Staatliches Komitee für Atomenergieerzeugung der UdSSR, Moskau, 1986
- [9] INTERATOMENERGO: Methode zur Bestimmung der maximalen Bestrahlungstemperatur von Proben mittels Diamantpulver-Indikation, NTD 38.443.Gg-86, Anhang 1 (in russ.), abgestimmter Entwurf, Moskau 1997
- [10] K. Popp, Untersuchung zur Eignung zerstörungsfreier Methoden für die Versprödungscharakteristik neutronenbestrahlter Reaktordruckbehälterstähle und zur thermischen Ausheilung, G4-Abschlussbericht, Rossendorf 1985, S. 58
- [11] K. Popp, Charakterisierung des Versprödungszustandes neutronenbestrahlter und thermisch ausgeheilte Reaktordruckbehälterstähle, G4-Abschlussbericht, Rossendorf, 1989, Teil 1, S. 58-63
- [12] I. Stephan, B. Böhmer, Neutronendosimetrie im Bestrahlungsprogramm Rheinsberg II, Forschungszentrum Rossendorf, FZR-360, November 2002

Tabelle 1: Experimente des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg II

Experiment	Einsatzort	Bestrahlungs- zeitraum	Effektive Voll- leistungstage	Effektive Bestrah- lungszeit in s
RH 1	S 11, 12, 19, 20	15.7.83 – 29.2.84	206	1.78 + E7
RH 2	T 6	19.9.84 – 6.7.85	268	2.36 + E7
RH 3	S 10, 11, 12	19.9.84 – 6.7.85	268	2.36 + E7
RH 4	S 10, 11, 12	19.8.85 – 5.3.86	194	1.66 + E7
RH 5	S 10, 11	6.10.87 – 1.6.90	792	6.84 + E7
RH 6	S 5, 6, 7, 8	6.10.87 – 1.6.90	792	6.84 + E7
RH 7	T 6	6.10.87 – 19.8.88	297	2.56 + E7
RH 8	S 9, 17, 18, 21, 22	5.11.89 – 1.6.90	199	1.72 + E7

Tabelle 2: Bestückungsplan der Bestrahlungsexperimente mit Temperaturmonitoren und Anzahl der wiedergewonnenen Temperaturmonitore

Experiment	Kanal	Anzahl der eingesetzten Temperaturmonitore		Anzahl der wiedergewonnenen Temperaturmonitore	
		ohne Vorbestrahlung	mit Vorbestrahlung	ohne Vorbestrahlung	mit Vorbestrahlung
RH 5	BK 10	7	7	4	4
RH 5	BK 11	7	7	7	7
RH 5	BK 12	7	7	-	-
RH 6	BK 5	3	3	1	1
RH 6	BK 6	3	3	-	-
RH 6	BK 7	3	3	1	1
RH 6	BK 8	3	3	-	-
RH 8	BK 9	3	6	3	3
RH 8	BK 17	3	6	3	3
RH 8	BK 18	3	6	1	1
RH 8	BK 21	3	6	3	3
RH 8	BK 22	3	6	3	3
RH 7	TK 6	-	8	-	2

BK – Bestrahlungskanal, TK – Targetkanal

Tabelle 3: Ergebnisse der Messung der Gitterkonstante a aus RH 5

Bestrahlungskanal 10							
Kapsel	172	173	175	176			
T_A [°C]	a [nm]	a [nm]	a [nm]	a [nm]			
23	0.35798	0.35816	0.35817	0.35823			
125	0.35814	0.35835	0.35808	0.35824			
175	0.35806	0.35819	0.35820	0.35843			
225	0.35833	0.35801	0.35805	0.35820			
275	0.35807	0.35822	0.35811	0.35816			
325	0.35814	0.35813	0.35804	0.35807			
375	0.35790	0.35815	0.35789	0.35785			
425	0.35811	0.35803	0.35819	0.35815			
525	0.35789	-	0.35777	0.35803			
Bestrahlungskanal 11							
Kapsel	157	158	159	160	161	162	163
T_A [°C]	a [nm]						
23	0.35806	0.35805	0.35805	0.35822	0.35814	0.35825	0.35823
125	0.35818	0.35837	0.35840	0.35825	0.35807	0.35817	0.35822
175	0.35819	0.35828	0.35814	0.35812	0.35813	0.35805	0.35825
225	0.35808	0.35829	0.35793	0.35824	0.35816	0.35807	0.35808
275	0.35812	0.35825	0.35821	0.35808	0.35831	0.35818	0.35818
325	0.35802	0.35796	0.35805	0.35822	0.35817	0.35832	0.35810
375	0.35819	0.35835	0.35823	0.35817	0.35791	0.35811	0.35829
425	0.35806	0.35832	0.35833	0.35811	0.35823	0.35806	0.35810
525	0.35772	-	-	-	-	-	-

a - Gitterkonstante, T_A - Glühtemperatur

Tabelle 4: Ergebnisse der Messung der Gitterkonstanten a aus RH 6

Kapsel	Bestrahlungskanal 5		Bestrahlungskanal 7	
	nv	v	nv	v
	29	29	17	17
T_A [°C]	a [nm]	a [nm]	a [nm]	a [nm]
23	0.35656	0.35820	0.35645	0.35807
125	0.35657	0.35827	0.35663	0.35827
175	0.35757	0.35829	0.35639	0.35822
225	0.35657	0.35825	0.35643	0.35832
275	0.35657	0.35820	0.35656	0.35835
325	0.35651	0.35818	0.35643	0.35821
375	0.35673	0.35821	0.35668	0.35839
425	0.35668	0.35816	0.35662	0.35835

a - Gitterkonstante, T_A - Glühtemperatur, nv - nicht vorbestrahltes Diamantpulver, v - vorbestrahltes Diamantpulver

Tabelle 5: Ergebnisse der Messung der Gitterkonstante a aus RH 8

Kapsel	Bestrahlungskanal 21			Bestrahlungskanal 22			
	71	75	59	84	78	82	
T_A [°C]	a [nm]	a [nm]	a [nm]	a [nm]	a [nm]	a [nm]	
23	0.35921	0.35921	0.35925	0.35921	0.35921	0.35925	
150	0.35929	0.35919	0.35919	0.35928	0.35914	0.35924	
200	0.35920	0.35916	0.35921	0.35922	0.35928	0.35918	
250	0.35931	0.35910	0.35918	0.35923	0.35927	0.35910	
300	0.35921	0.35912	0.35911	0.35920	0.35916	0.35916	
350	0.35918	0.35907	0.35909	0.35921	0.35918	0.35913	
400	0.35903	0.35898	0.35898	0.35900	0.35896	0.35897	
450	0.35882	0.35882	0.35880	0.35879	0.35881	0.35878	
500	0.35873	0.35873	0.35867	0.35866	0.35869	0.35867	
550	0.35852	0.35853	0.35849	0.35850	0.35850	0.35853	
Bestrahlungskanal	9			17			18
Kapsel	46	41	37	47	56	51	64
T_A °C	a [nm]	a [nm]	a [nm]	a [nm]	a [nm]	a [nm]	a [nm]
23	0.35916	0.35923	0.35920	0.35912	0.35916	0.35926	0.35931
150	0.35922	0.35917	0.35929	0.35914	0.35914	0.35915	0.35942
200	0.35923	0.35916	0.35928	0.35917	0.35919	-	0.35927
250	0.35919	0.35914	0.35930	0.35916	0.35907	0.35920	0.35924
300	-	0.35917	0.35924	0.35917	0.35924	0.35920	0.35923
350	0.35906	0.35902	0.35912	0.35915	0.35923	0.35912	0.35913
400	0.35911	0.35899	0.35902	0.35897	0.35894	0.35890	0.35902
450	0.35880	0.35882	0.35890	0.35880	0.35877	0.35880	0.35881
500	0.35863	0.35867	0.35865	0.35862	0.35866	0.35870	0.35868
550	0.35847	0.35853	0.35849	0.35849	0.35850	0.35860	0.35850

a - Gitterkonstante, T_A - Glühtemperatur

Tabelle 6: Ergebnisse der Messung der Gitterkonstante a aus RH 7

Targetkanal 6		
Position	2. Etage corefern	3. Etage corenah
T_A [°C]	a [nm]	a [nm]
23	0.358440	0.358190
100	0.358395	0.358329
200	0.358509	0.358263
275	0.358187	0.358034
350	0.358227	0.358093
450	0.358148	0.357968
500	0.358010	0.357880
550	0.357885	0.357790
600	0.357754	0.357691
650	0.357702	0.357374

a - Gitterkonstante, T_A - Glühtemperatur

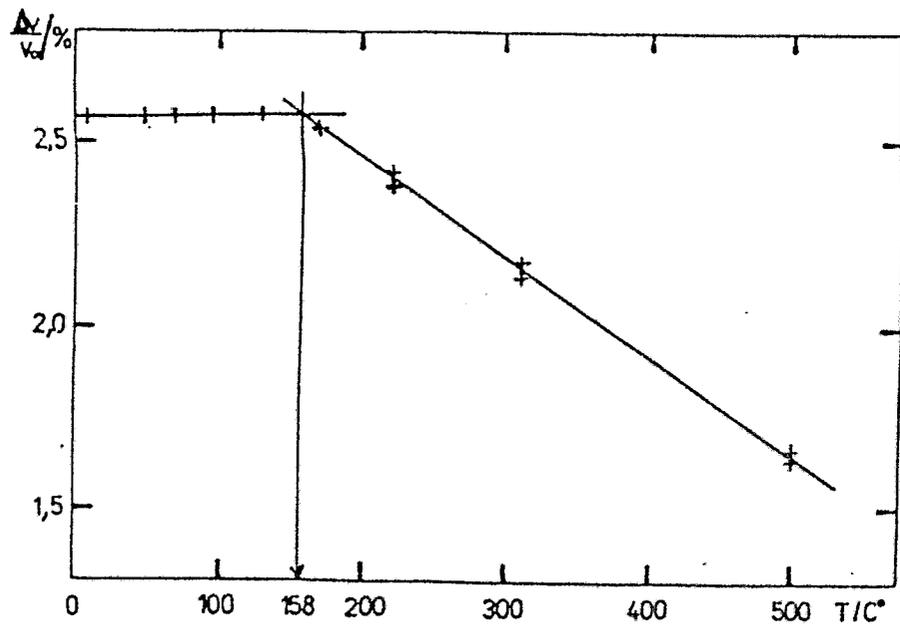


Abb. 1: Relative Volumenänderung $\Delta v/v_0 = 3 \Delta a/a_0$ von n-bestrahltem Diamantpulver in Abhängigkeit von der Glühtemperatur [5]

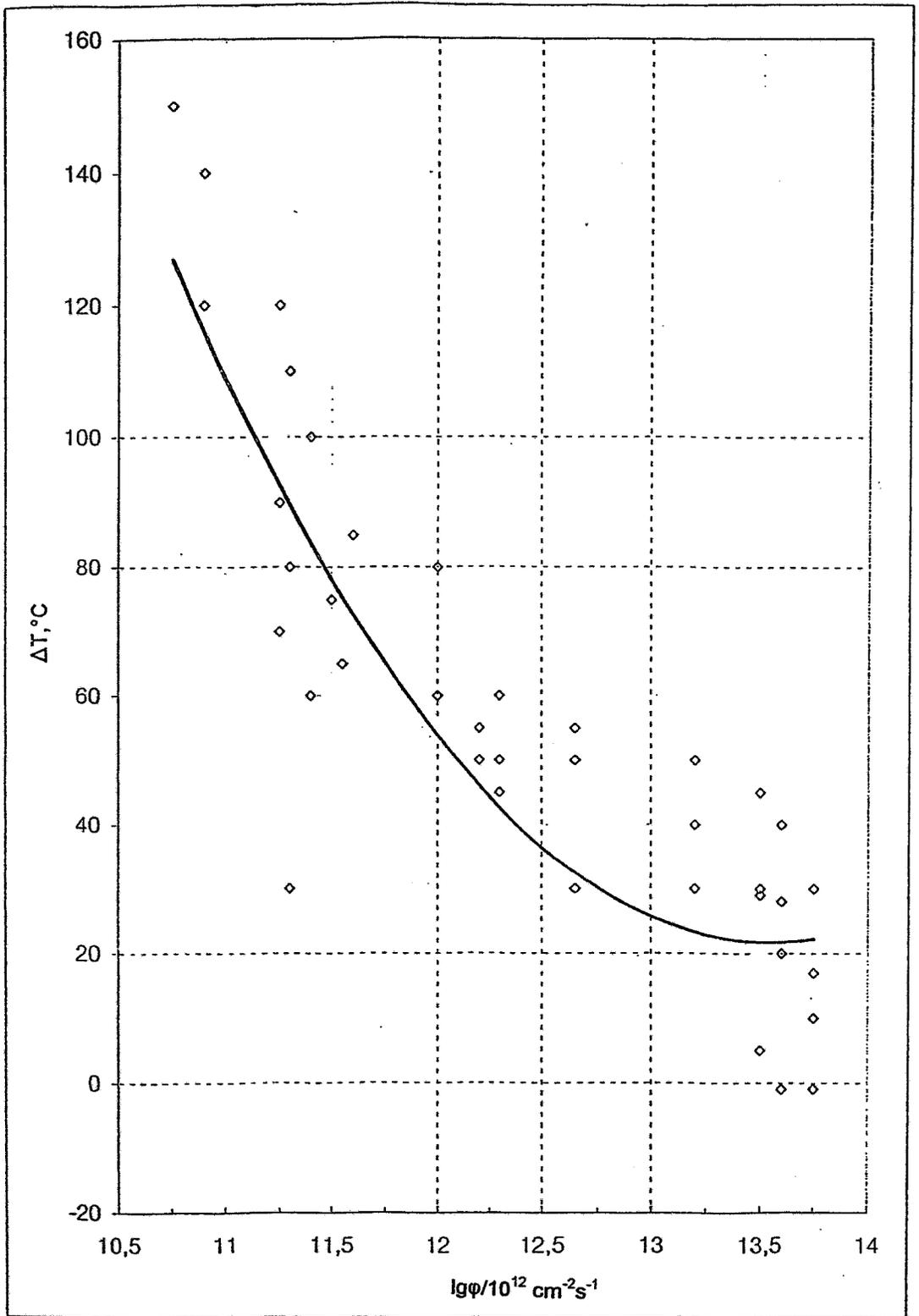


Abb. 2: Temperaturkorrekturwerte in Abhängigkeit von der Neutronenflussdichte nach [8]

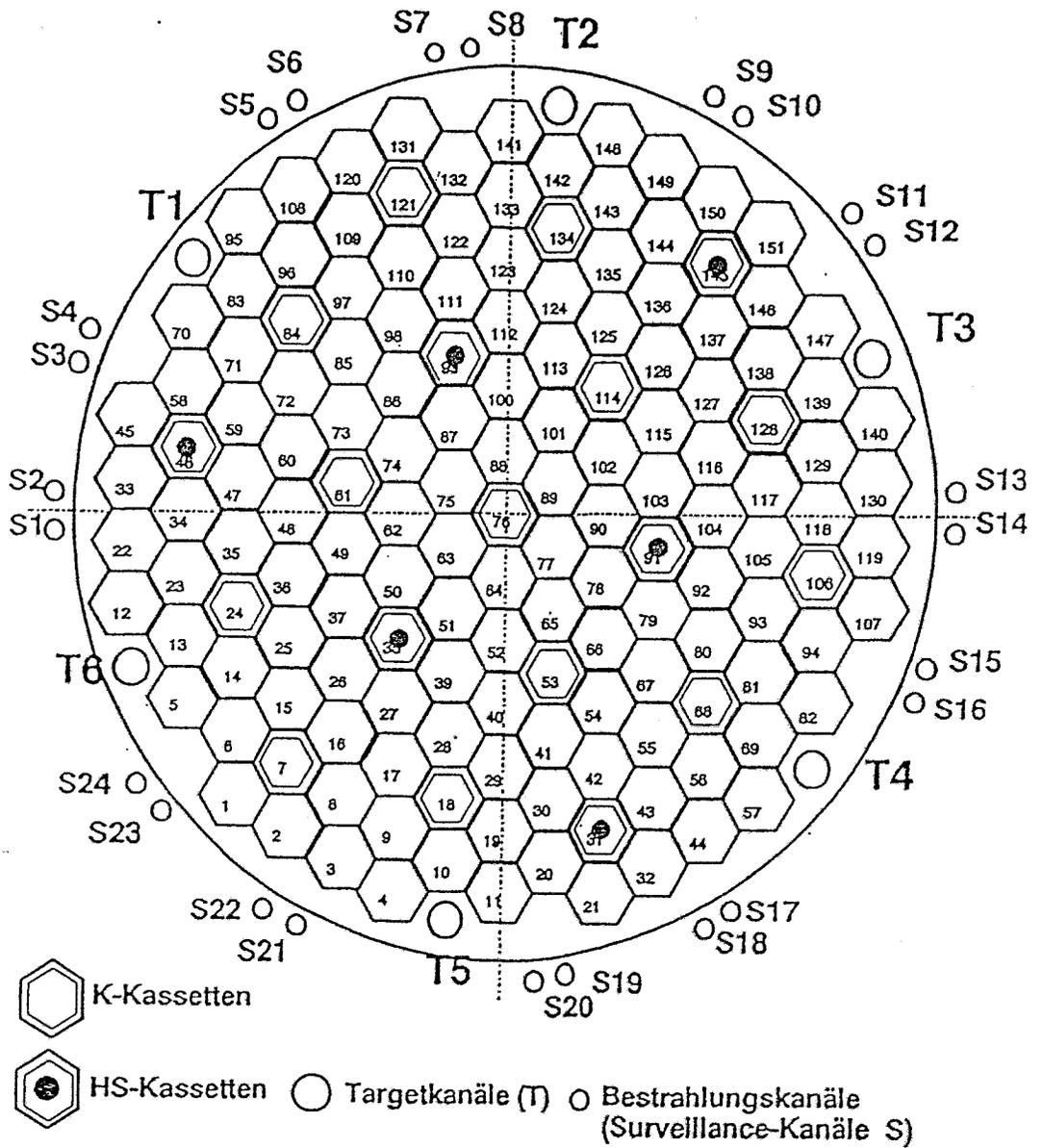
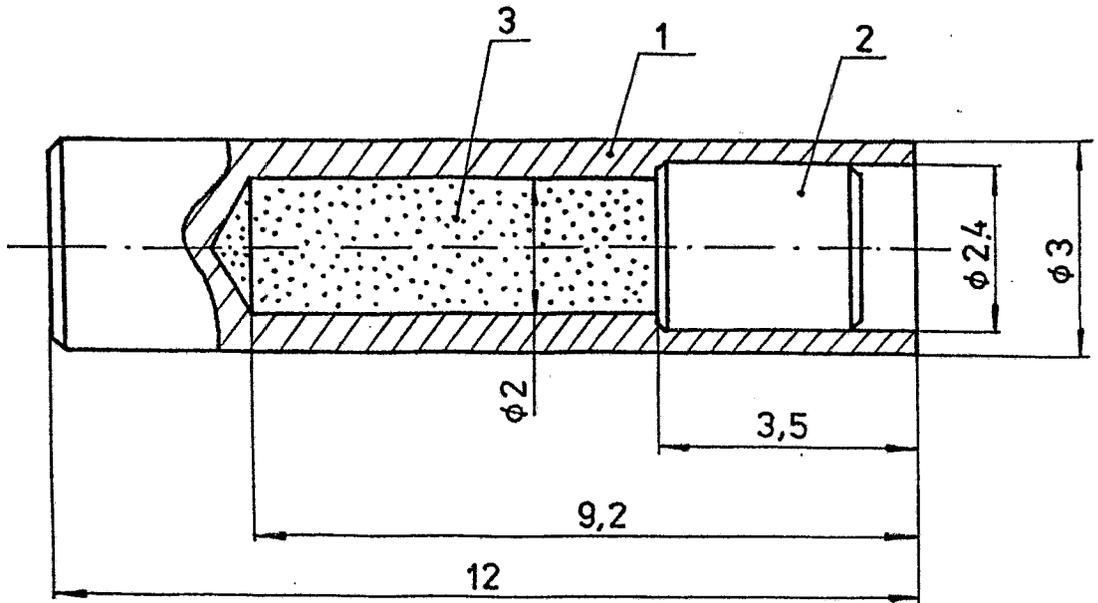


Abb. 3: Bestrahlungspositionen im WWER-2 Rheinsberg



- 1 Hülle
- 2 Stopfen
- 3 Diamantpulver

Abb. 4: Konstruktive Gestaltung einer Temperaturmonitorkapsel

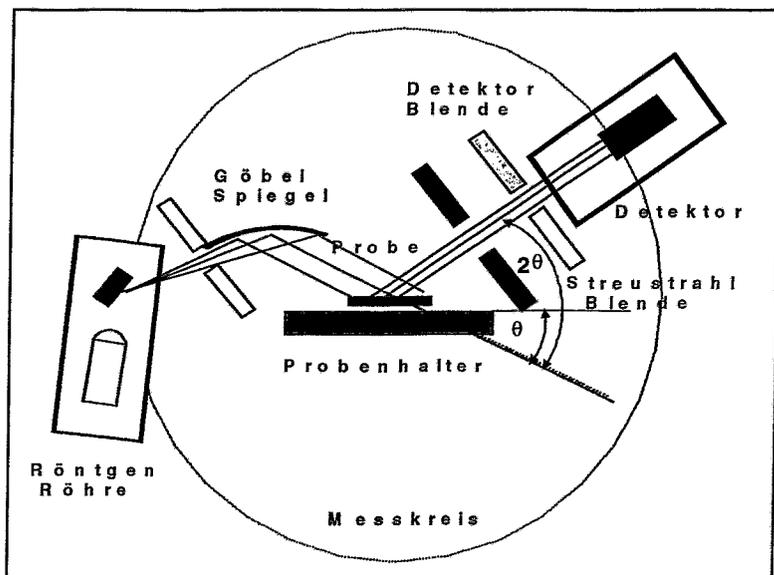
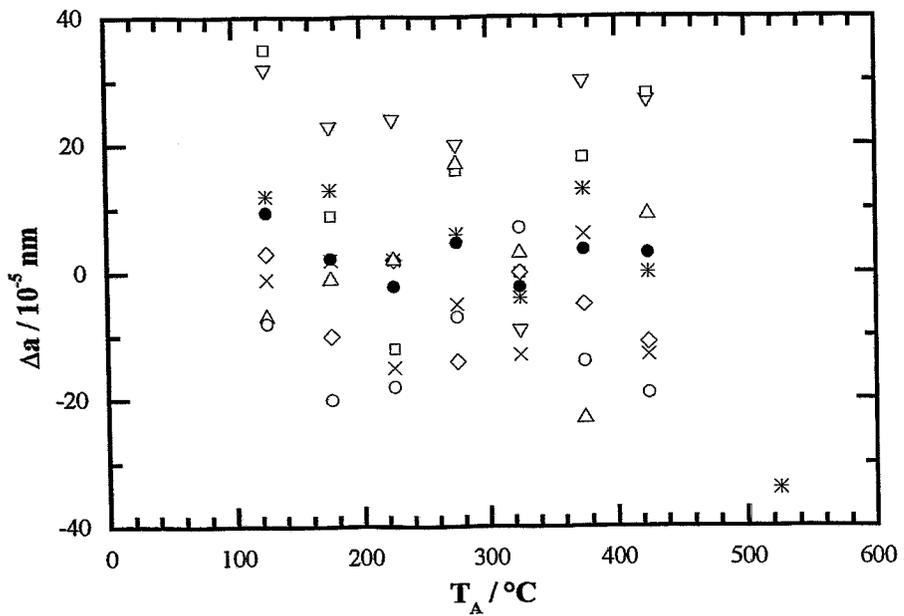
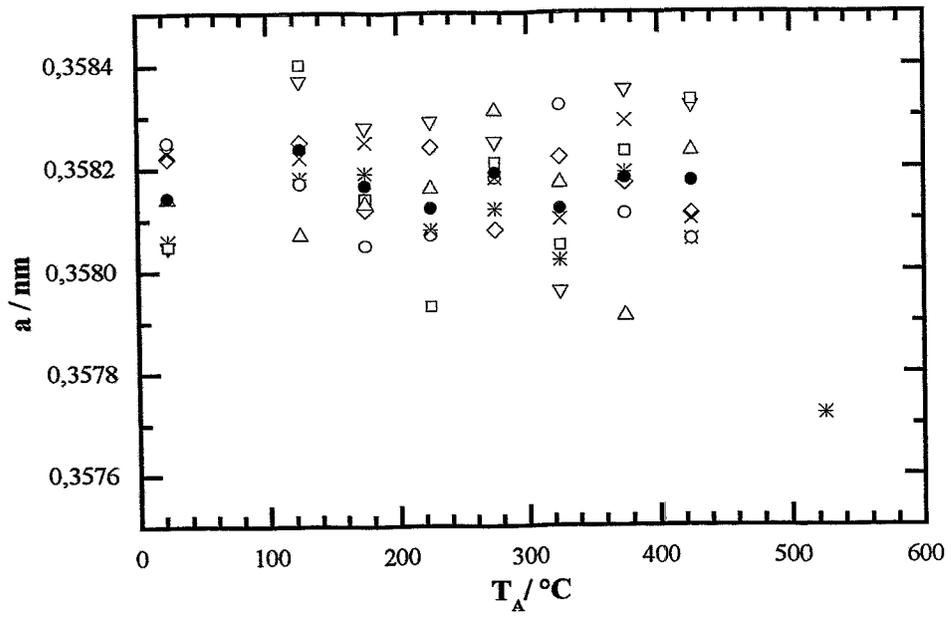
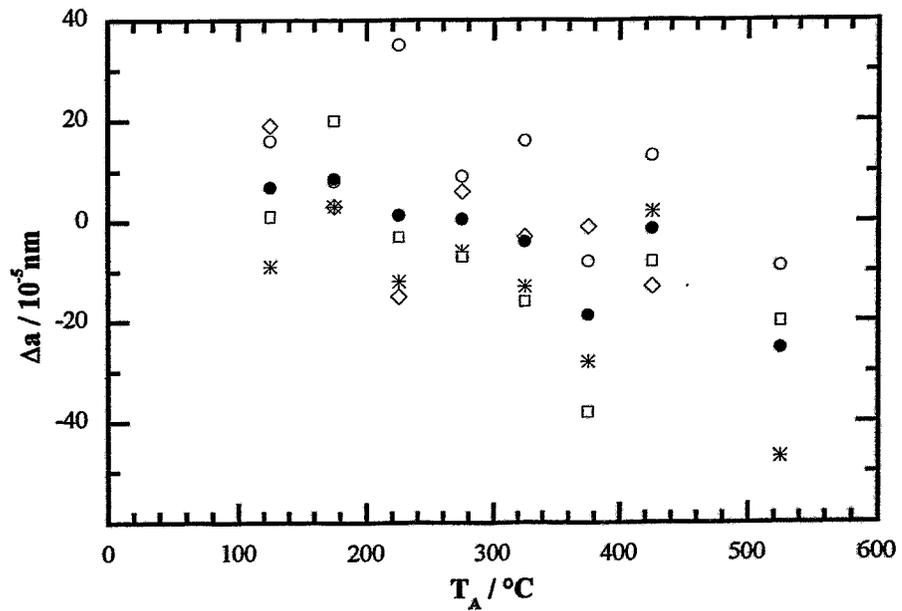
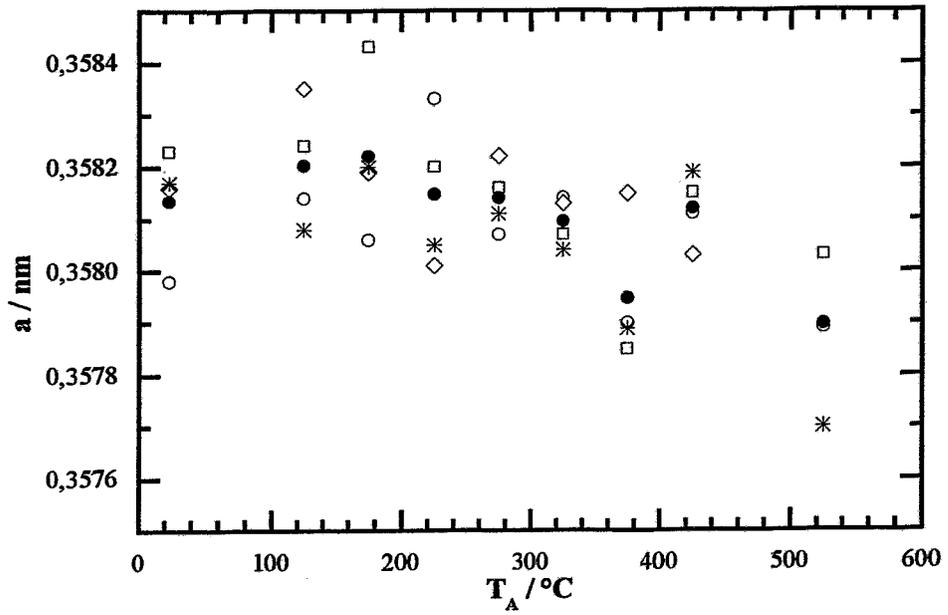


Abb. 5: Strahlengang beim Röntgendiffraktometer



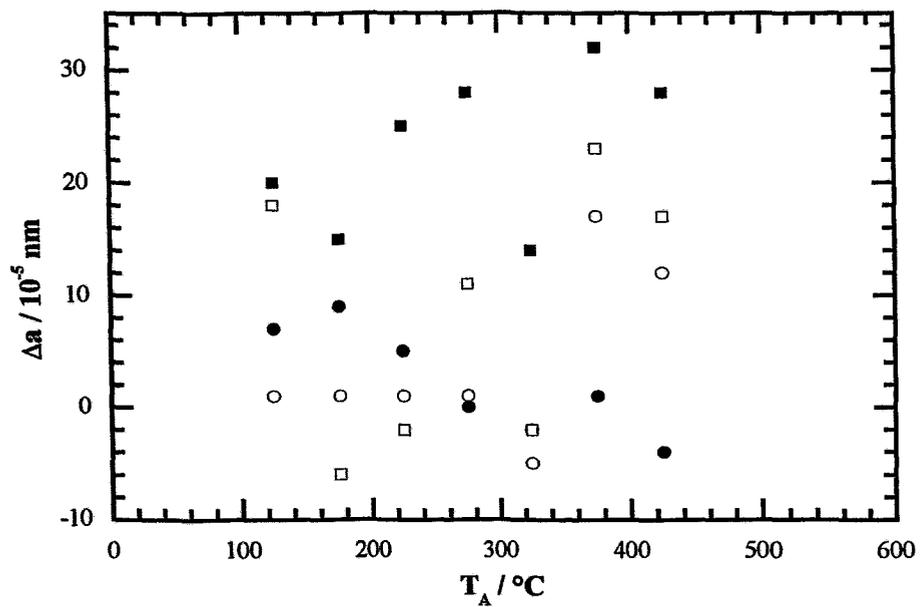
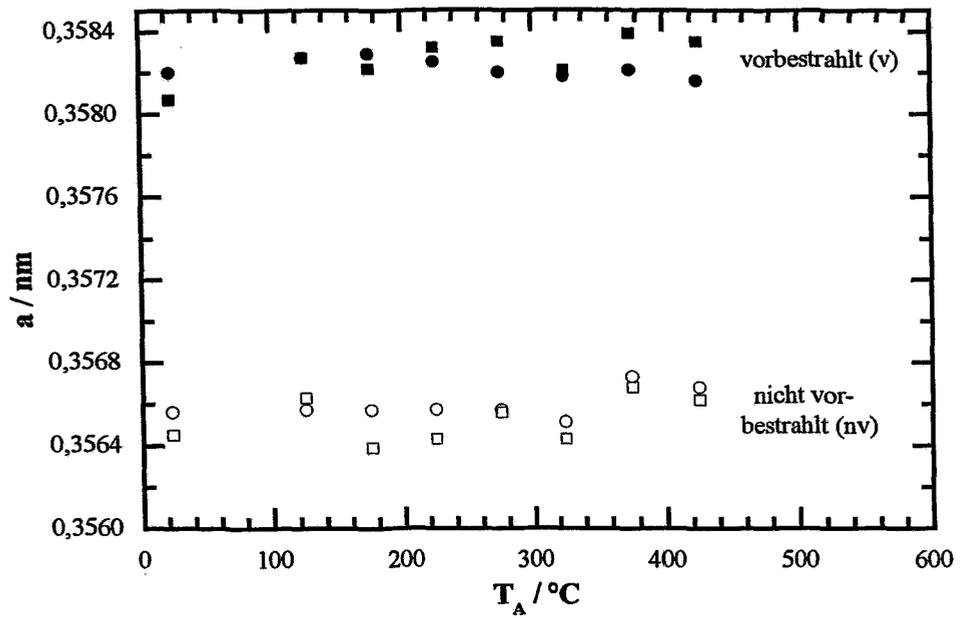
- | | | |
|------------------|------------------|------------------|
| * Kapsel-Nr. 157 | ◇ Kapsel-Nr. 160 | × Kapsel-Nr. 163 |
| ▽ Kapsel-Nr. 158 | △ Kapsel-Nr. 161 | ● Mittelwert |
| □ Kapsel-Nr. 159 | ○ Kapsel-Nr. 162 | |

Abb. 6: Gitterkonstante a (oben) und Änderung der Gitterkonstanten Δa (unten) in Abhängigkeit von der Ausheiltemperatur für das Experiment RH 5/BK 11



- Kapsel-Nr. 172 * Kapsel-Nr. 175 ● Mittelwert
 ◇ Kapsel-Nr. 173 □ Kapsel-Nr. 176

Abb. 7: Gitterkonstante a (oben) und Änderung der Gitterkonstanten Δa (unten) in Abhängigkeit von der Ausheiltemperatur für das Experiment RH 5/BK 10



- Kapsel-Nr. 29 nv
- Kapsel-Nr. 29 n
- Kapsel-Nr. 17 nv
- Kapsel-Nr. 17 v

Abb. 8: Gitterkonstante a (oben) und Änderung der Gitterkonstanten Δa (unten) in Abhängigkeit von der Ausheiltemperatur für das Experiment RH 6 / BK 17 und 29

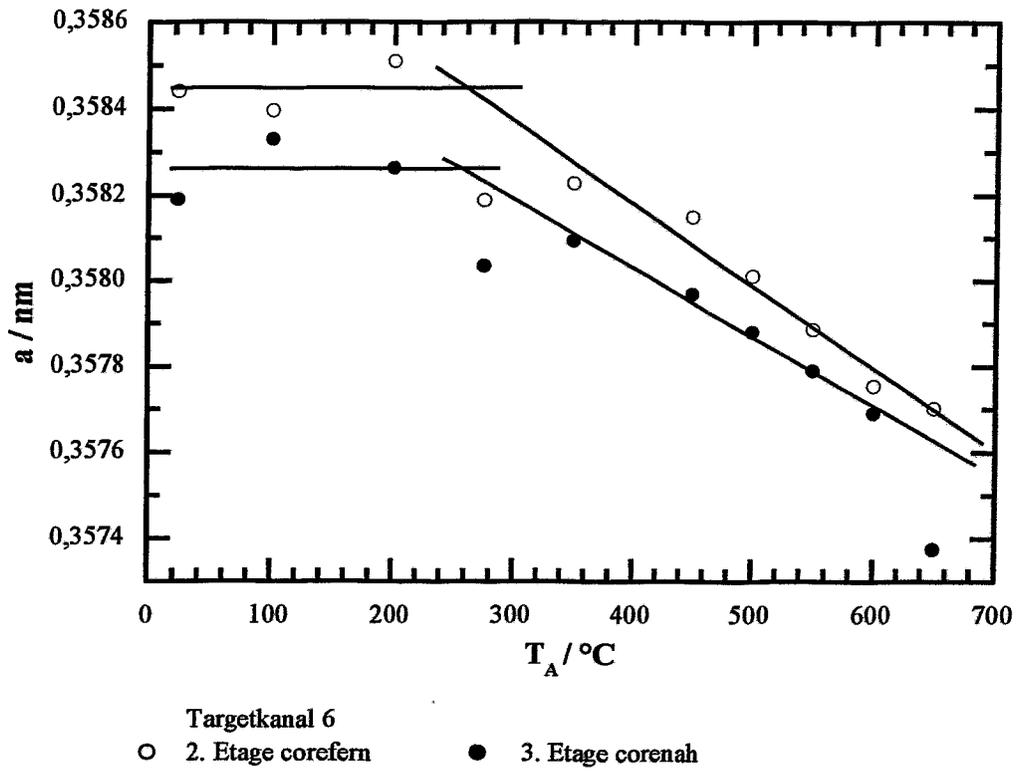
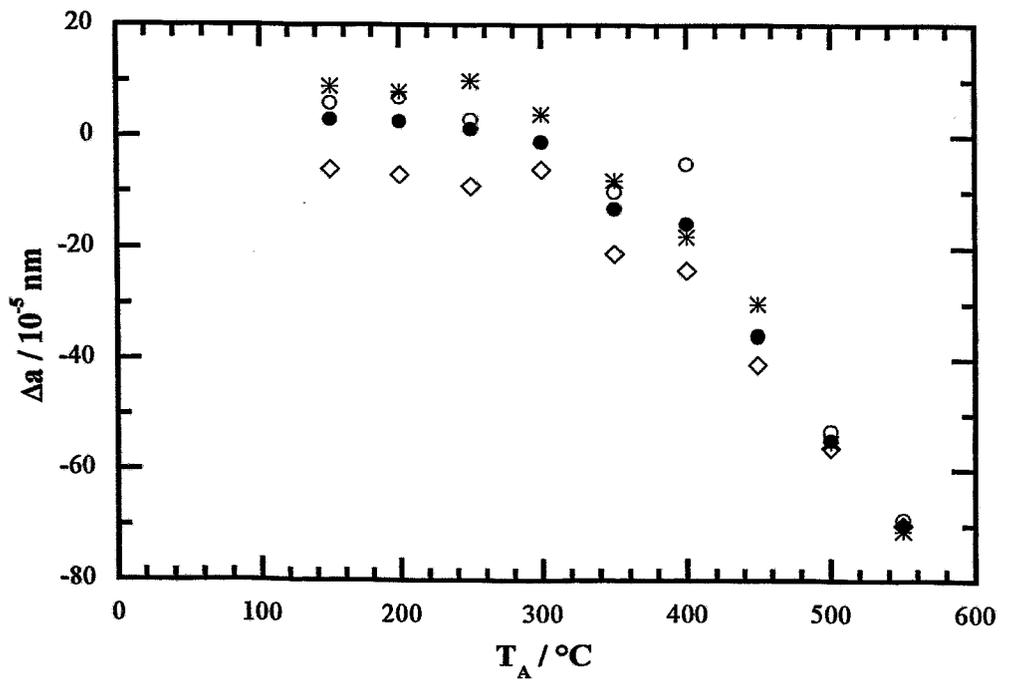
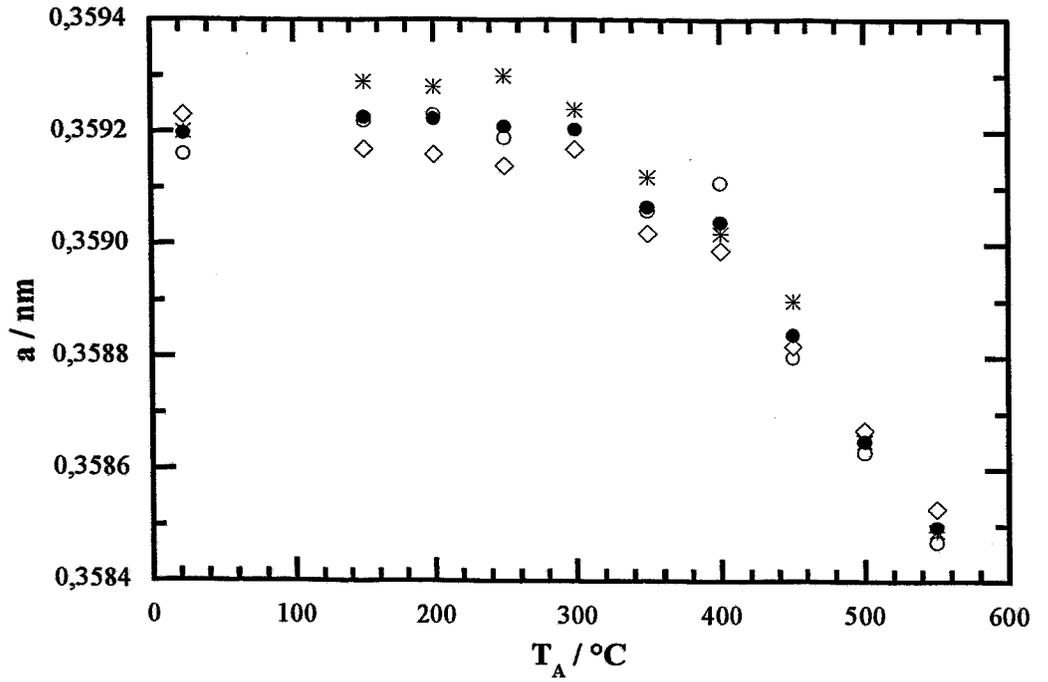
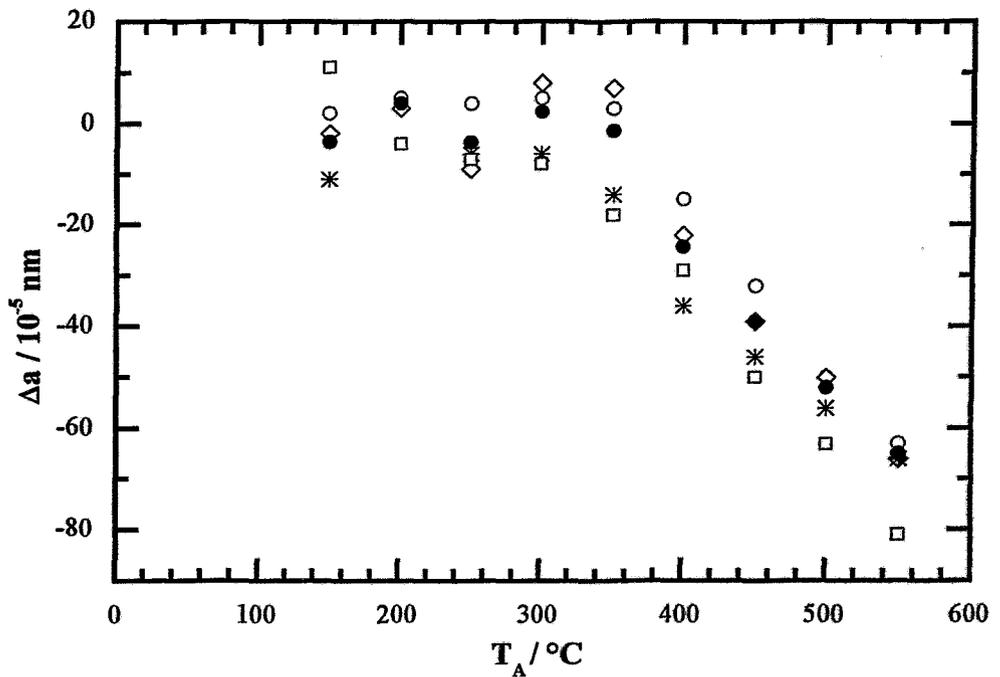
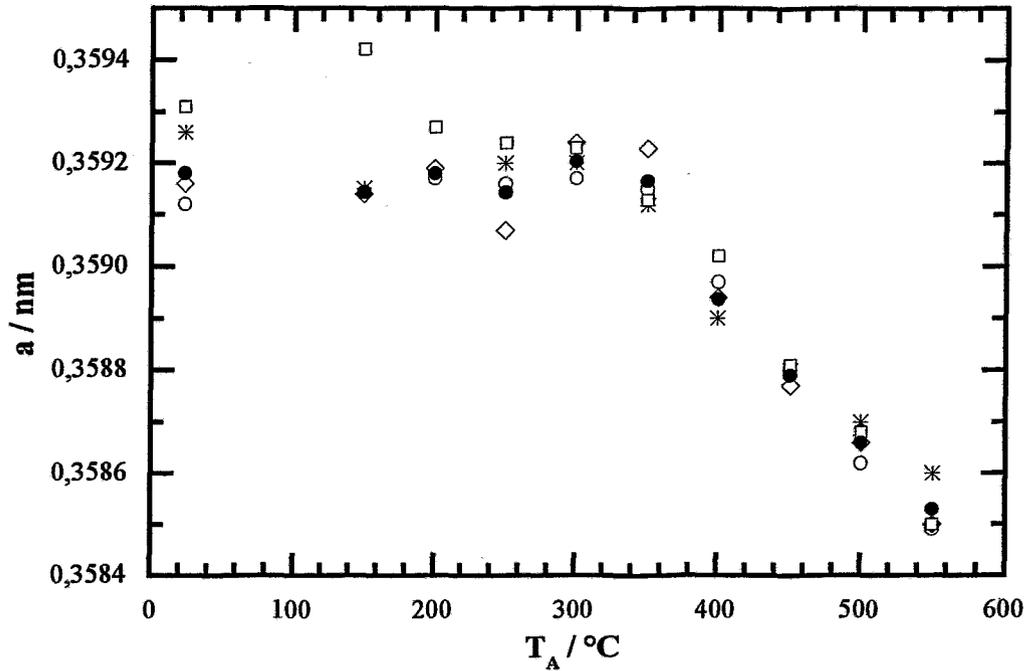


Abb. 9: Gitterkonstante a (oben) und Änderung der Gitterkonstanten Δa (unten) in Abhängigkeit von der Ausheiltemperatur für das Experiment RH 7 / Position corenah und corefern



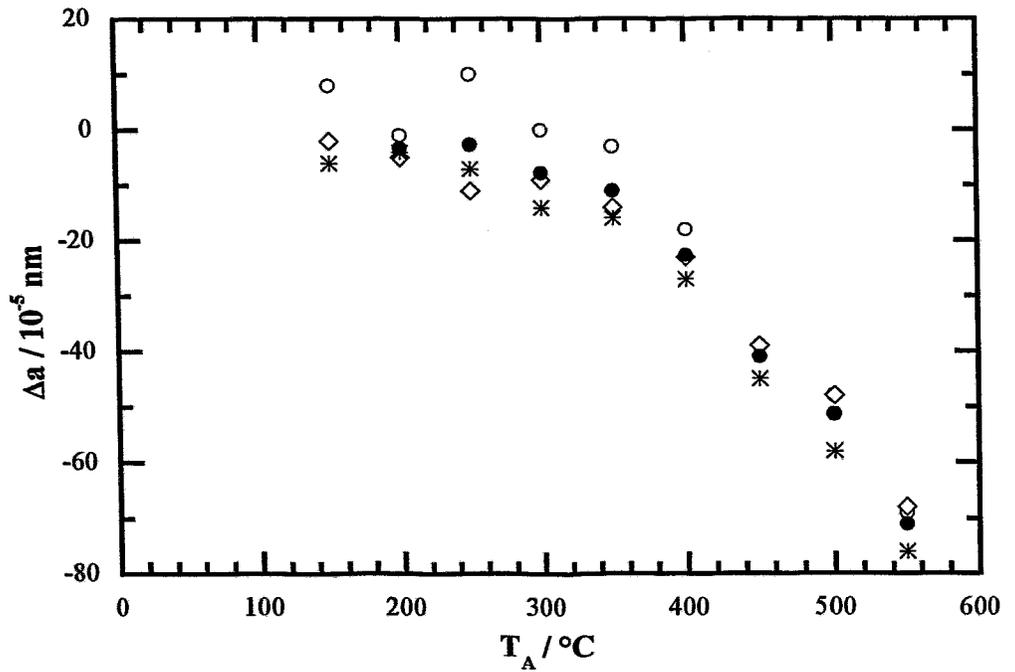
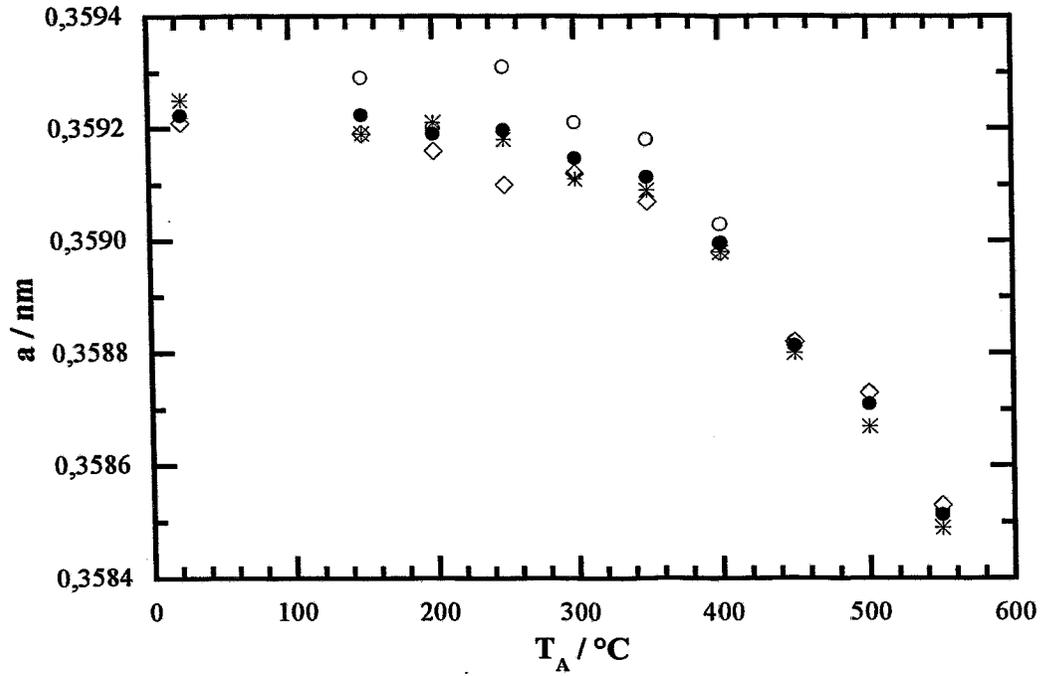
○ Kapsel-Nr. 46 ◇ Kapsel-Nr. 41
 * Kapsel-Nr. 37 ● Mittelwert

Abb. 10: Gitterkonstante a (oben) und Änderung der Gitterkonstanten Δa (unten) in Abhängigkeit von der Ausheiltemperatur für das Experiment RH 8 / BK 9



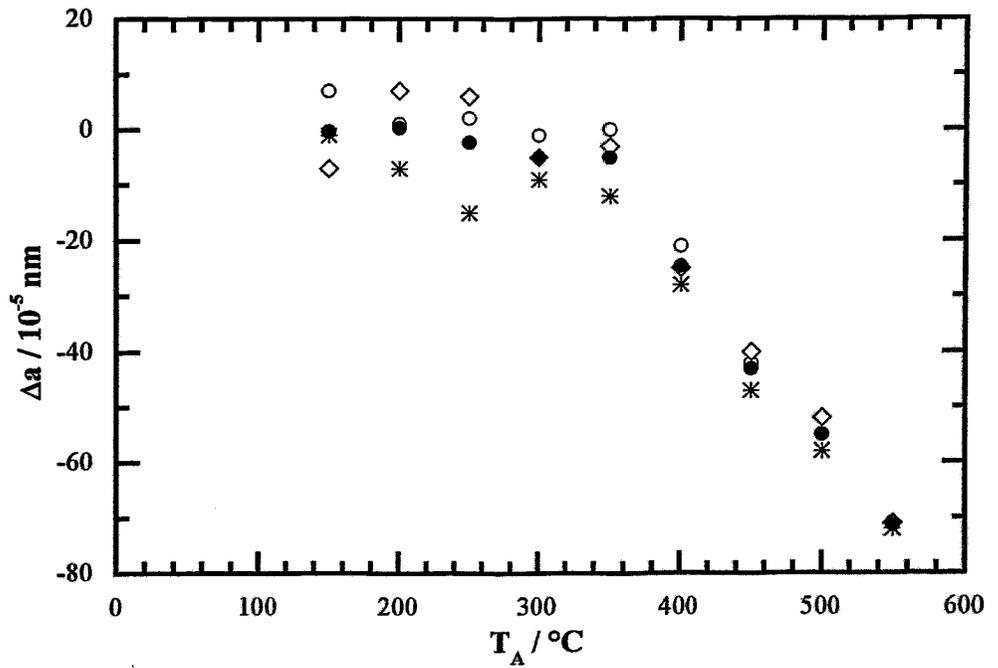
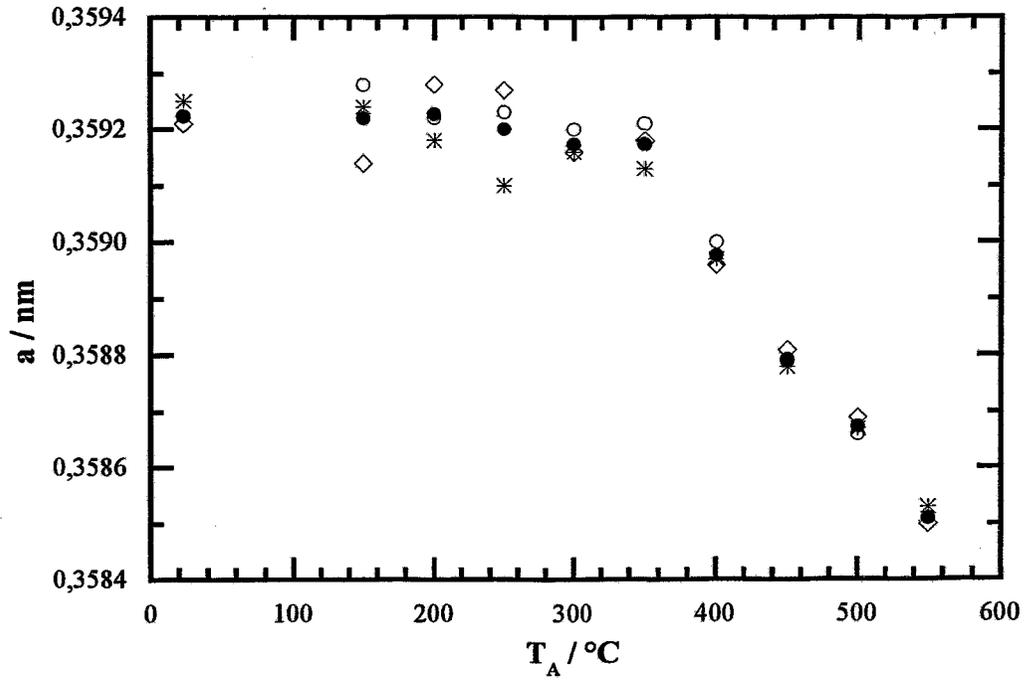
- Kapsel-Nr. 47 ◇ Kapsel-Nr. 56 ✱ Kapsel-Nr. 51
 □ Kapsel-Nr. 64 ● Mittelwert (Kapsel-Nr. 47,56,51)

Abb. 11: Gitterkonstante a (oben) und Änderung der Gitterkonstanten Δa (unten) in Abhängigkeit von der Ausheiltemperatur für das Experiment RH 8 / BK 17 und 18



- Kapsel-Nr. 71
- ◇ Kapsel-Nr. 75
- * Kapsel-Nr. 59
- Mittelwert

Abb. 12: Gitterkonstante a (oben) und Änderung der Gitterkonstanten Δa (unten) in Abhängigkeit von der Ausheiltemperatur für das Experiment RH 8 / BK 21



- Kapsel-Nr. 84 ◇ Kapsel-Nr. 78
 ✱ Kapsel-Nr. 82 ● Mittelwert

Abb. 13: Gitterkonstante a (oben) und Änderung der Gitterkonstanten Δa (unten) in Abhängigkeit von der Ausheiltemperatur für das Experiment RH 8 / BK 22

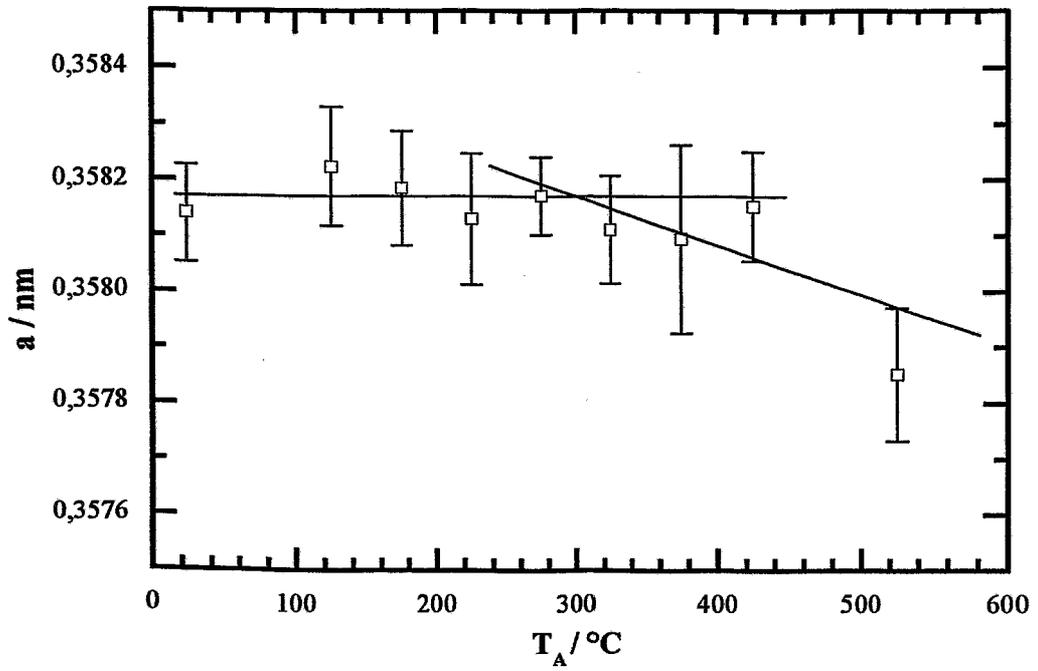


Abb. 14: Temperaturverlauf der Mittelwerte der Gitterkonstanten für 11 Temperaturmonitore des Bestrahlungsexperimentes RH 5

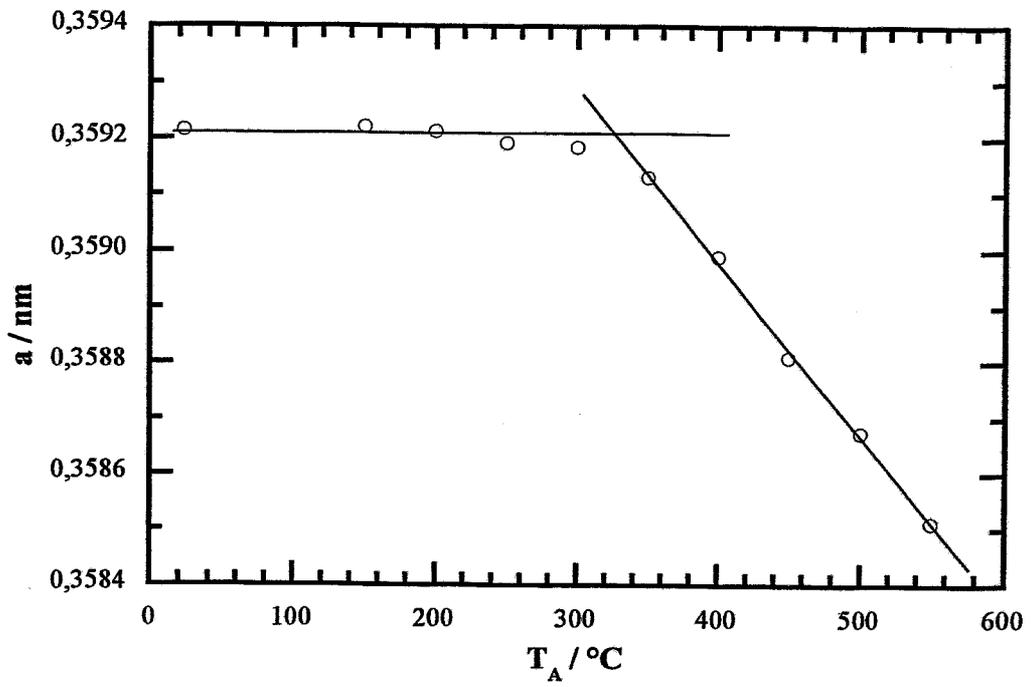


Abb. 15: Temperaturverlauf der Mittelwerte der Gitterkonstanten für 13 Temperaturmonitore des Bestrahlungsexperimentes RH 8