

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

Mai 1966

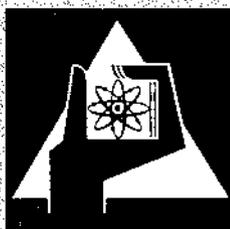
KFK 469

Abteilung Reaktorbetrieb

Magnetische Verfahren zur Messung der Maximaltemperatur
in Bestrahlungsproben

W. Marth, D. Stözl,

R. Sizmann (III. Phys. Inst. der Universität München)



**GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE**

Magnetische Verfahren zur Messung der Maximaltemperatur in Bestrahlungsproben Magnetic methods for measuring the maximum temperature of irradiated samples

Von W. Marth¹, D. Stölzl¹ und R. Sizmann²

¹ Kernforschungszentrum Karlsruhe, Abt. Reaktorbetrieb ² III. Physikalisches Institut der Universität München

1. Einleitung

Bei Bestrahlung von Materialien in Kernreaktoren ist die Kenntnis der sich einstellenden Temperaturen oft unerlässlich. Das gilt für einfache Probenbestrahlungen wie auch für Rig- und Loopexperimente. Die im Versuch erreichte Maximaltemperatur geht entscheidend in die Beurteilung der sicherheitstechnischen Auslegung und der gewonnenen Ergebnisse ein. Meistens wird die Temperatur in bestrahlten Materialien rechnerisch abgeschätzt. Das ist häufig nur sehr grob möglich, weil wesentliche Faktoren wie Wärmeübergangs- und Strahlungsgrößen nur ungenau bekannt sind. Hinzu kommt, daß bei vielen Probenbestrahlungen Probe, Umhüllung und Kapsel gegeneinander verschiebbar sind, so daß sich Probenlage und Wärmkontakte schon im Laufe der Lademanipulationen unkontrollierbar verändern können.

In vereinzelt Fällen wird in der Praxis die Temperatur durch Thermoelemente bestimmt. Der benötigte Meßraum ist sehr klein; die Messung ist kontinuierlich und nahezu trägheitslos möglich. Schwierigkeiten bereitet allerdings der Umstand, daß der Meßwert über längere elektrische Leitungen aus dem Strahlungsfeld des Reaktors geführt werden muß. Dazu sind auf engem Raum temperatur-, druck-, korrosions- und strahlungsbeständige Leitungsführungen notwendig, die kompliziertere und zeitraubende Installationen erfordern. Fehlmessungen oder Ausfälle treten unter diesen ungünstigen Bedingungen erfahrungsgemäß häufig auf. Das sind auch die Gründe, weshalb z. B. bei kurzfristig durchzuführenden Probenbestrahlungen fast immer auf eine Temperaturmessung verzichtet wird. Für Bestrahlungen in Kapseln, die über Rohrpostleitungen in den Reaktor eingeschleust werden (eine Technik, die heute vielfach an Forschungsreaktoren verwendet wird), ist die Temperaturmessung über Thermoelemente undurchführbar.

Im folgenden wird ein einfaches *magnetisches* Temperaturmeßverfahren beschrieben. Hiermit ist allerdings keine kontinuierliche Überwachung möglich. Die magnetische Methode ist deshalb auf die Fälle beschränkt, in denen die Kenntnis der während der Bestrahlung erreichten Maximaltemperatur genügt. Das ist bei den meisten Probenbestrahlungen der Fall.

2. Grundlagen der magnetischen Temperaturmessung

Die magnetische Temperaturmessung beruht auf der Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung ferromagnetischer Stoffe. Dieses Verhalten kann in zwei Weisen zur Messung der Maximaltemperatur bei Reaktorbestrahlung herangezogen werden.

2.1 Curiepunktmethode

Diese Methode ergibt sich aus der Tatsache, daß ferromagnetische Materialien beim Überschreiten des Curiepunktes ihren Ferromagnetismus verlieren. Magnetisierte Metallstückchen (Indikatoren) mit verschiedenen Curiepunkten werden zu der Probe gegeben. Je nachdem, ob die Proben-temperatur während der Bestrahlung unterhalb oder oberhalb der jeweiligen Curietemperatur eines Indikators lag, wird er nach der Bestrahlung noch merklich ferromagnetisch sein oder nicht.

Für die Herstellung von Ferromagneten mit wählbarem Curiepunkt eignen sich vor allem Legierungen. Fig. 1 zeigt den Verlauf der Curietemperatur für einige binäre Systeme. Die Legierungen Cu-Ni, Pd-Ni und Cr-Fe sind für Indikatoren unterhalb von 300 °C brauchbar; für höhere Temperaturen eignen sich die Legierungen Fe-Ni, Si-Fe, Pd-Fe und Cr-Fe [1–3].

Der Vorteil der Curiepunktmethode ist, daß die Messung auf eine Ja-Nein-Entscheidung reduziert ist, also eine genaue Absolutbestimmung der magnetischen Feldstärke der Indikatoren unnötig ist. Hinderlich ist, daß i. allg. eine größere Anzahl von Indikatoren notwendig ist, was bei engen Platzverhältnissen Schwierigkeiten bereitet. Weiterhin ist es nachteilig für die Meßeindeutigkeit, daß die Magnetisierung schon einige zehn Grad unterhalb der Curietemperatur steil abfällt.

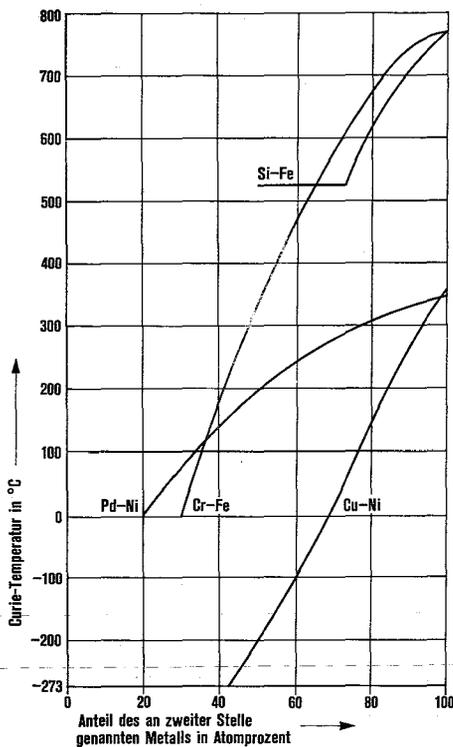


Fig. 1: Abhängigkeit der Curietemperatur verschiedener ferromagnetischer Legierungen von ihrer Zusammensetzung. Nach [1-3]

Fig. 1: The Curie temperature of different ferromagnetic alloys as function of the composition. After [1-3]

2.2 Remanenzmethode

Diese Methode gründet sich auf die vorhin erwähnte Temperaturabhängigkeit der Restmagnetisierung eines bei tieferer Temperatur magnetisierten Ferromagneten. Es wird eine geeignete Legierung ausgewählt, die einen gut meßbaren Abfall der Magnetisierung in dem Bereich der vermuteten maximalen Probestemperatur hat. Der Indikator wird bis zur Sättigung magnetisiert, zu der Probe gegeben und an der gewünschten Reaktorposition exponiert. Die restliche Magnetisierung nach Ende der Bestrahlung ist ein Maß für die maximale Probestemperatur. Die Eichung wird man bereits vorher (in einem Thermostaten) vornehmen, so daß man nach der Bestrahlung nur noch einen Feldstärkewert zu bestimmen hat. Die während der Bestrahlung erreichte Maximaltemperatur kann dann aus dem Eichdiagramm entnommen werden. Im Unterschied zur Curiepunktmethode bedarf es hier nur eines Indikators.

Die Magnetisierung der Indikatoren sinkt nicht ab, wenn zwischen Bestrahlung und Messung einige Tage (z. B. zum Abklingen der Radioaktivität) vergehen. Hierzu wurden an Indikatoren aus Cu mit 80% Ni Messungen gemacht. Bei einwöchiger Wartezeit war kein Abfall der Magnetisierung zu verzeichnen. Dies gilt sowohl für den Fall, daß der Indikator auf Raumtemperatur, als auch dafür, daß er (im Thermostat) 20 Grad unterhalb seiner während der Bestrahlung erreichten Maximaltemperatur gehalten wurde.

Es ist entscheidend für die Anwendbarkeit des Verfahrens, daß die Reaktorstrahlung auf die magnetischen Eigenschaften nur geringen Einfluß hat. Bei einer Fluenz schneller Neutronen von $2,7 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ wurde bei Nickelferriten eine Änderung von $-1,7\%$ der Magnetisierung gefunden [4-6]; der größte Einfluß von Reaktorbestrahlung wurde für eine Molybdänlegierung gemessen ($-3,2\%$) [3]. In den vorlie-

genden Versuchen lag die Neutronenfluenz nur bei maximal $3 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$. Über den Einfluß der Bestrahlung auf den Temperaturgang der Magnetisierung liegen noch keine detaillierten Messungen vor; er ist in den hier verwendeten Cu-Ni-Legierungen jedoch gering.

3. Versuche

Zur Prüfung der Methode der magnetischen Temperaturmessung in Bestrahlungsproben wurden Versuche an Rohrpostproben durchgeführt. Wir beschränken die Versuchsbeschreibung auf die ausführlicher untersuchte Remanenzmethode; dieses Verfahren benötigt nur einen Indikator und beansprucht deshalb das größte Interesse für die praktische Anwendung.

3.1 Herstellung, Magnetisierung und Eichung der Indikatoren

Die am häufigsten vorkommenden Probestemperaturen liegen im Bereich zwischen 50 und 150 °C. Als Ferromagnetikum eignet sich hier eine Legierung aus 80% Ni und 20% Cu, deren Magnetisierung in diesem Temperaturbereich einen starken Temperaturgang besitzt (Fig. 2). Ihr Curiepunkt liegt bei ungefähr 160 °C (Fig. 1).

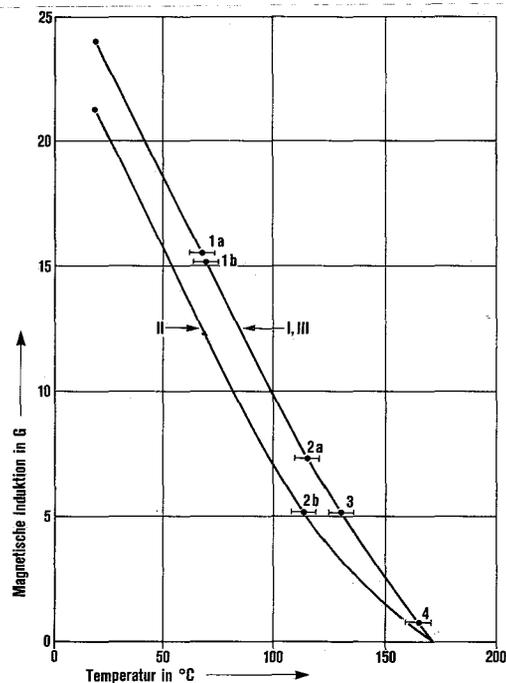


Fig. 2: Verlauf der restlichen Magnetisierung von drei Indikatoren aus 80% Ni und 20% Cu (I, II und III). Die eingefragten Punkte mit den Fehlerintervallen beziehen sich auf die Messungen der Tabelle

Fig. 2: Behaviour of the magnetic remanence of three indicators of 80% Ni and 20% Cu (I, II, and III). The experimental points with indicated errors correspond to the values in the table

Die Indikatoren waren quadratische Prismen von $2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$ mit einer Länge von 8 mm. Sie waren möglichst klein, damit durch ihre Eigenabsorption das Temperaturprofil in den zu untersuchenden Proben nicht merklich verfälscht wird. Sie wurden in einer Feldspule mit dem Strom von Kondensatorentladungen bis zur Sättigung magnetisiert. Die Magnetisierung wurde mit einem Gaußmeter gemessen. Mit der Feldsonde wird in Polnähe die Stelle der höchsten Feldstärke aufgesucht; der gefundene Feldstärkebetrag ist die verwendete Meßgröße.

Anschließend wurde die Temperaturabhängigkeit untersucht. Hierzu wurde der Indikator in einen Thermostaten (Temperaturbereich 20...100 °C) bzw. einen geregelten Ofen (100...300 °C) gebracht und schrittweise aufgeheizt. In 10-Grad-Stufen erfolgte eine Messung der verbliebenen Magnetisierung mit dem Gaußmeter. Auf diese Weise ergaben sich für drei Indikatoren die Kurven der Fig. 2. Die Temperaturzeit bei den einzelnen Temperaturen spielte keine Rolle.

3.2 Temperaturmessungen an einigen Rohrpostproben

Zur praktischen Erprobung der Methode während des Reaktorbetriebes wurden die Temperaturen in einigen Rohrpostbestrahlungen gemessen. Die Rohrpost wurde ausgewählt, weil damit die Mehrzahl der Bestrahlungen am Reaktor FR2 in Karlsruhe durchgeführt wird und eine Temperaturmessung mit den üblichen Methoden größte Schwierigkeiten bereitet. Das magnetische Meßverfahren könnte hier seine Nützlichkeit beweisen.

Als Probensubstanzen wurden nichtspaltbare Materialien (Polyäthylen) und Brennstoffe (natürliches UO_2) ausgewählt. Im ersten Falle war die Kapsel nahezu vollständig mit Polyäthylen ausgefüllt, in dem der Indikator eingebettet lag. Für die Spaltstoffbestrahlung wurde eine Mischung von UO_2 mit Graphit verwendet. Das Mischungsverhältnis wurde variiert. Als Umhüllung diente Quarzglas, das in der Kapsel von einem Polyäthylensteg gehalten war.

Bestrahlt wurde je 30 Minuten in der Position mit der höchsten Flußdichte bei einer thermischen Reaktorleistung von 12 MW. Nach einer Abklingzeit des dann radioaktiven Indikators von zwei Tagen bei Zimmertemperatur wurde, wie oben beschrieben, die verbliebene Magnetfeldstärke gemessen. Die Meßwerte sind in der Tabelle zusammengefaßt.

Tabelle: Ergebnisse der Temperaturmessungen in Rohrpostkapseln
Reaktorleistung 12 MW, Mitte der Spaltzone

Nummer der Probe	Nummer des Indikators	Beladung der Kapsel	Temperatur der Probe °C
1 a	I	Polyäthylen	66 ± 4
1 b	III	Polyäthylen	68 ± 4
2 a	I	100 mg UO_2 + Graphitpulver	114 ± 5
2 b	II	100 mg UO_2 + Graphitpulver	116 ± 5
3	III	130 mg UO_2 + Graphitpulver	131 ± 5
4	I	200 mg UO_2 + Graphitpulver	≈ 165

Man erkennt, daß die Temperaturwerte an wiederholten Bestrahlungen (Proben 1 a, 1 b bzw. 2 a, 2 b), gut beieinanderliegen, obwohl verschiedene Indikatoren verwendet wurden. Der Temperaturwert der Probe Nr. 4 ist nicht verlässlich, weil hier die restliche Feldstärke des Indikators nur noch einen kleinen, schwer meßbaren Wert besaß.

4. Folgerungen

Die Versuche lassen den Schluß zu, daß das Verfahren der magnetischen Temperaturmessung für Bestrahlungen in Kernreaktoren gut geeignet ist. Die Vorteile der Methodik sind ihre Einfachheit und Billigkeit. Nachteilig mag sich in einigen Fällen auswirken, daß keine kontinuierliche Messung möglich ist und ausschließlich die maximale Temperatur ermittelt werden kann.

Die Fehlerbreite der Meßwerte der magnetischen Induktion beträgt $\pm 5\%$; sie wurde aus wiederholten Ablesungen am Gaußmeter ermittelt. Die Hauptursache der Ungenauigkeit ist die Unsicherheit, mit der die Feldsonde an die Stelle höchster Feldstärke am Indikator placiert werden konnte. Für die Legierung aus 80% Ni und 20% Cu $\pm 5\%$ Unsicherheit in der Magnetisierungsmessung einer Temperaturunsicherheit von etwa ± 5 grad. Mit einer standardisierten Vorrichtung läßt sich dieser Fehler herabsetzen.

Herrn V. Merges danken wir für die Durchführung orientierender Vorversuche, Herrn Dr. G. Süßmann für die kritische Durchsicht des Manuskripts.

Literatur

- [1] Bozorth, R.: Ferromagnetism. New York, Toronto: D. van. Nostrand 1953
- [2] Kneller, E.: Ferromagnetismus. Berlin, Göttingen, Heidelberg: Springer-Verlag 1962
- [3] Hansen, M.: Constitution of Binary Alloys. New York: McGraw-Hill 1958
- [4] Sery, R. S., und D. I. Gordon: Bull. Am. Phys. Soc. II, 3, 117 (1958)
- [5] Sery, R. S., R. E. Fischel und D. I. Gordon: Proc. Conf. on Magnetism and Magnetic Materials, American Institution of Electrical Engineers 1956
- [6] Gordon, D. I., R. S. Sery und R. E. Fischel: Nucleonics 16, No. 6, 73 (1958)