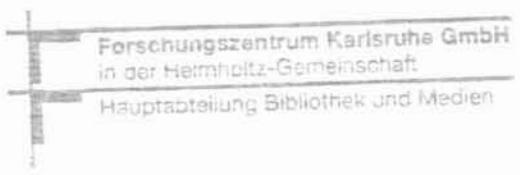


KFK-415

# KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

März 1966



KFK 415

Institut für Reaktorbauelemente

Zur Messung der Wärmeleitfähigkeit von Festkörpern  
insbesondere von keramischen Kernbrennstoffen  
bei höchsten Temperaturen

Johannes Spies



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

März 1966

K F K 415

Institut für Reaktorbauelemente

Zur Messung der Wärmeleitfähigkeit von Festkörpern  
insbesondere von keramischen Kernbrennstoffen  
bei höchsten Temperaturen

Johannes Spies

Unter Mitarbeit von  
Karl Heinz Steigerwald und Edgar Meyer  
Fa. K.H. Steigerwald GmbH., München

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

## A b s t r a c t

The thermal conductivity of ceramic nuclear fuel is to be measured to give data for the development of mixed fuels with improved thermal conductivity and to permit the proper core design for these fuels. A method is proposed for the measurement of thermal conductivity at the fuel temperatures of 800 to 2,000 ° C encountered in a high temperature reactor, which, physically, is based upon the one-dimensional heat flow method. In this process a disk-shaped specimen is heated on both sides by electron beams in vacuum. The temperatures of the sides of the specimen can be measured very accurately by a photoelectric pyrometer. The heat flow penetrating the specimen perpendicular to the disk areas owing to thermal conduction is determined by adjustment of two stationary states through the arising difference in the powers emitted onto a preset side of the specimen and reflected by it, respectively. The attainable accuracy in measurement of thermal conductivity is estimated to be  $\pm 5$  percent for the case of measurement of heat flow through the powers dissipated by the specimen area. The apparatus can be designed so that also measurements of neutron irradiated nuclear fuel material in a "hot cell" are possible by remote control.

## R é s u m é

La conductibilité thermique de combustibles nucléaires céramiques est à mesurer ce qui permet de gagner les conditions préalables au développement de combustibles mixtes à conductibilité thermique améliorée et de choisir pour ces combustibles des conceptions adaptées du coeur du réacteur atomique. Il est proposé une méthode de mesure de la conductibilité thermique pour les températures de combustible intervenant dans le réacteur à haute température, c'est à dire de 800 à plus de 2000 ° C.

Du point de vue physical, cette méthode a pour base le procédé employant une seule plaque. D'après ce procédé un échantillon détaché en forme de cible est chauffé sur deux côtés dans un vide poussé par des rayons électroniques. Les températures sur les côtés de l'échantillon peuvent être mesurées avec une grande précision à l'aide d'un pyromètre photoélectrique. Le flux calorifique qui en conséquence de la conduction de chaleur passe par l'échantillon verticalement aux surfaces de la cible, est déterminé en ajustant deux conditions thermiques stationnaires de l'échantillon et en mesurant la différence entre la puissance portant sur un côté de l'échantillon ou entre la puissance émise de ce côté. La précision de mesure que l'on peut atteindre pour la conductibilité thermique est estimée avec une exactitude de  $\pm 5 \%$  quand le flux calorifique est mesuré en recourant aux puissances émises par les surfaces de l'échantillon. L'appareil peut être construit de sorte qu'il est possible d'effectuer des mesures même sur combustibles nucléaires irradiés par neutrons dans une "cellule chaude" par télémanipulation.

Inhaltsübersicht :

- (I) Einführung
- 1) Aufgabenstellung
  - 2) Physikalische Grundlagen der Wärmeleitfähigkeitsmeßverfahren
  - 3) Anforderungen an ein Hochtemperaturmeßverfahren insbesondere für Messungen an Kernbrennstoffen.
  - 4) Schwierigkeiten bei den bisherigen Meßverfahren zur Messung der Wärmeleitfähigkeit fester Stoffe bei höchsten Temperaturen.
- (II) Darstellung des vorgeschlagenen, bei höchsten Temperaturen anwendbaren Wärmeleitfähigkeitsmeßverfahrens mit zwei unterschiedlichen stationären Zuständen der Meßprobe.
- 1) Herstellung des ersten stationären Zustandes mittels beidseitiger unterschiedlich starker Bestrahlungserhitzung einer scheibenförmigen Meßprobe.
  - 2) Übergang zum zweiten stationären Zustand unter Konstanthalten der auf eine der beiden Probenseiten aufgestrahlten Erhitzungsleistung.
  - 3) Übergang zum zweiten stationären Zustand unter Konstanthalten des von einer der beiden Probenseiten abgestrahlten Wärmestromes.

(III) Einzelmessungen an der Meßprobe

- 1) Messung der Proben-  
temperaturen
- 2) Messung des durch die  
Probe fließenden sta-  
tionären Wärmestromes.

(IV) Apparatur für die Durch-  
führung des stationären  
Hochtemperatur-Wärmeleit-  
fähigkeitsmeßverfahrens.

- 1) Dimensionierung der  
Elektronenstrahlssysteme  
für die Erhitzung der  
Probe
- 2) Gesamtaufbau der Proben-  
erhitzungseinrichtung

(V) Erreichbare Meßgenauigkeit

(VI) Zusammenfassung

(VII) Literaturverzeichnis

(I) E i n f ü h r u n g

- 1) Aufgabenstellung: Durch die Messung der Wärmeleitfähigkeit von keramischen Kernbrennstoffen sollen u.a. Unterlagen für die wärmetechnische Berechnung der Spaltzonen von Hochtemperatur-Reaktoren sowie die Entwicklung von Kernbrennstoffen mit verbesserter Wärmeleitfähigkeit erarbeitet werden.

In den interessierenden Hochtemperatur-Reaktoren liegen die niedrigsten Brennstofftemperaturen bei etwa  $800^{\circ}\text{C}$  und die höchsten bei über  $2500^{\circ}\text{C}$ . In diesem Temperaturintervall sind die Wärmeleitfähigkeitswerte der zu verwendenden Kernbrennstoffe zu messen.

Die Wärmeleitfähigkeit des als keramischer Kernbrennstoff oft verwendeten Urandoxyds kann z.B. durch gewisse metallische oder oxydische Beimengungen verbessert werden. Als Metall ist vor allem Molybdän und als Oxyd Berylliumoxyd brauchbar. Daher ist es notwendig, die Wärmeleitfähigkeit von solchen Mischbrennstoffen mit verschiedenen großen Beimengungsgehalten zu messen und miteinander zu vergleichen.

Durch die Messung bei hohen und höchsten Temperaturen dürfte es weiterhin möglich sein, zu klären, ob und in welchem Maße die Wärmeleitfähigkeit in Übereinstimmung mit der Theorie oberhalb von etwa  $1500^{\circ}\text{C}$  bei Urandoxyd wieder ansteigt.

## 2) Physikalische Grundlagen der Wärmeleitfähigkeitsmeßverfahren

Die Wärmeleitfähigkeit  $k$  eines Stoffes wird an einem zeitlich unveränderlichen Temperaturfeld definiert durch die Beziehung

$$q = - k \cdot \text{grad } T$$

worin  $q$  den pro Zeit- und Flächeneinheit fließenden Wärmestrom und  $T$  die Temperatur bedeuten.

Hingegen wird die Temperaturleitfähigkeit  $\alpha$  eines Stoffes an einem zeitlich veränderlichen Temperaturfeld definiert durch die Beziehung

$$T = \alpha \cdot \text{div grad } T$$

Die beiden Größen  $k$  und  $\alpha$  sind einander proportional, wobei das spezifische Gewicht  $\gamma$  und die spezifische Wärme  $c_p$  als Proportionalitätsfaktoren auftreten:

$$k = \alpha \cdot \gamma \cdot c_p$$

Aus diesen Beziehungen folgt, daß die Wärmeleitfähigkeit mit Hilfe eines stationären Temperaturfeldes direkt oder mit Hilfe eines instationären Temperaturfeldes indirekt, nämlich über die Temperaturleitfähigkeit, bestimmt werden kann.

Die Meßmethoden, die sich eines stationären Temperaturfeldes bedienen ("stationäre Methoden"), laufen auf die Messung eines Wärmestromes und einer Temperaturdifferenz hinaus. Die Meßmethoden, die sich eines instationären Temperaturfeldes bedienen ("instationäre Methoden"), führen auf Messungen über die Ausbreitungsgeschwindigkeit eines zeitlich-räumlichen Temperaturfeldes. Außerdem müssen in letzterem Fall noch das spezifische Gewicht und die spezifische Wärme bekannt sein oder bestimmt werden.

Die bekanntesten stationären Methoden sind die Ein- und Zweiplattenmethode, die Methode des radialen Wärmeflusses durch einen zylinder-, kugel- oder ellipsoidförmigen Körper und die Vergleichsmethode, bei welcher der Wärmestrom, der die Meßprobe durchfließt, gleichzeitig durch eine Probe bekannter Wärmeleitfähigkeit geführt wird. Letztere Methode ist also gegenüber den vorhergenannten eine Absolutmethode.

Die bekannteste instationäre Methode ist die Angström-Methode, bei welcher die Ausbreitungsgeschwindigkeit von Temperaturwellen in der Probe gemessen wird. Weiterhin sind eine ganze Reihe von verbesserten Anström-Methoden bekannt. Sie ist auch die Grundlage für das von R. D. Cowan ausgearbeitete, im nachfolgenden "Los Alamos-Methode" genannte Verfahren für hohe und höchste Temperaturen. Dabei wird eine scheibenförmige Probe im Vakuum einseitig mit einem Elektronenstrahl erhitzt und die Temperaturschwingungsgeschwindigkeit gemessen. Insbesondere läßt sich die Messung in der Weise durchführen, daß der Elektronenstrahl mit einer Sinusschwingung moduliert und der Phasenunterschied der resultierenden Temperaturwellen zwischen Vor- und Rückseite der Probenscheibe gemessen wird. Die Messung des Phasenunterschiedes kann z.B. in der Weise erfolgen, daß die temperaturbedingten Änderungen der an den Probenflächen auftretenden thermischen Elektronenemission in bekannter Weise in elektrische Spannungsänderungen umgewandelt werden und deren Phasendifferenz gemessen wird.

3) Anforderungen an ein Hochtemperaturmeßverfahren insbesondere für Messungen an Kernbrennstoffen.

Die bisher gebräuchlichen stationären Meßmethoden eignen sich nur bedingt für die gestellte Aufgabe. Die Schwierigkeit besteht darin, einerseits verhältnismäßig kleine und möglichst einfache, jederzeit z. B. auch aus gebrauchten Kernreaktor-Brennelementen herstellbare Einzelproben zu verwenden, und andererseits eine Reihe von experimentellen Bedingungen zu erfüllen:

- a) gute Wärmeübertragung am Probenkörper bei geringstmöglicher mechanischer Belastung der Probe, da diese bei höchsten Temperaturen in merklichem Grad plastisch werden kann (z.B.  $UO_2$ ),
- b) geringe Beeinflussung des Temperaturfeldes durch Temperaturmeßeinrichtungen in der - kleinen - Probe, damit der Temperaturfehler nicht zu groß wird;
- c) geringe Wärmeverluste an den Randflächen der Probe, die parallel zum Wärmestrom verlaufen, damit der Meßfehler für den Wärmestrom klein genug bleibt,
- d) schnelle Einstellung des stationären Meßzustandes (in Minuten), damit die Messung nicht zuviel Zeit beansprucht.

Am günstigsten sind scheibenförmige Proben, da sie sich einfach pressen oder aus fertigen Kernreaktor-Brennelementen (insbesondere aus stab-, zylinder-, kugelförmigen Brennelementen) herauscheiden lassen. Es sollen daher für das hier vorgeschlagene Verfahren scheibenförmige Einzelproben vorgesehen werden (ca. 10 mm  $\varnothing$  und 1 - 2 mm Dicke).

4) Schwierigkeiten bei den bisherigen Meßverfahren zur  
Messung der Wärmeleitfähigkeit fester Stoffe bei höch-  
sten Temperaturen.

Betrachtet man die zur Auswahl stehenden Meßmethoden hinsichtlich der Bedingungen (insbesondere bezüglich Probenform, Probeneinspannung, Einstellgeschwindigkeit der Meßwerte, Temperaturmessung) dann scheiden für hohe und vor allem für höchste Temperaturen (über 2000 ° C) die meisten der bisher bekannten stationären Meßmethoden aufgrund der unkontrollierbaren Strahlungsverluste, Schwierigkeiten bei der Temperaturmessung, u. dgl. aus. Es sind zwar stationäre Meßmethoden vorgeschlagen und erprobt worden, bei denen Proben einseitig durch Strahlung oder durch einseitigen Kontakt mit einem hochoberhitzten Festkörper (z.B. Wolframband) erhitzt und die Wärme über die durch die freistehende gegenüberliegende Probenfläche abgestrahlte Leistung bestimmt wird. Jedoch ergeben sich infolge der einseitigen Probenerhitzung bei den hohen Temperaturen u.U. recht erhebliche Temperaturdifferenzen von bis zu einigen hundert Grad Celsius zwischen den beiden Probenseiten, was u.a. ein zu großes Temperaturintervall für den Meßwert bedeutet. Unter den instationären Meßmethoden erscheint das von R.D. Cowan vorgeschlagene Verfahren (Los Alamos Methode) für hohe Temperaturen sehr aussichtsreich, die wesentlichen Schwierigkeiten sind hier jedoch neben den ebenfalls entstehenden hohen Temperaturdifferenzen zwischen den Probenflächen darin zu sehen, daß zusätzlich die spezifische Wärme und das spezifische Gewicht der Probe bei der Meßtemperatur bestimmt werden müssen. Bei der Ermittlung der Wärmeleitfähigkeit addieren sich dann zu der relativen Ungenauigkeit der erhaltenen Temperaturleitfähigkeit die relativen Fehler dieser zusätzlichen Messungen.

Die vorstehend genannten Schwierigkeiten werden durch das im folgenden dargelegte stationäre Hochtemperaturwärmeleitfähigkeitsmeßverfahren vermieden.

(II) Darstellung des vorgeschlagenen, bei höchsten Temperaturen anwendbaren, Wärmeleitfähigkeitsmeßverfahrens mit zwei unterschiedlichen stationären Zuständen der Meßprobe.

- 1) Herstellung des ersten stationären Zustandes mittels beidseitiger unterschiedlich starker Bestrahlungserhitzung einer scheibenförmigen Meßprobe.

Eine freistehende scheibenförmige Materialprobe, die in einer seitlich angreifenden Halterung gelagert ist, wird mit einem, die Wärme in der Probe selbst erzeugenden Mittel auf vorbestimmbare Temperaturen erwärmt. Hierbei werden jedoch im Gegensatz zu den bekannten stationären Verfahren die **b e i d e n** gegenüberliegenden Probenseiten erhitzt, da - wie weiter unten gezeigt wird - ein Weg gefunden wurde, trotz beidseitiger Erhitzung der Meßprobe den durch die Probe fließenden Wärmestrom in einfachster Weise zu bestimmen. In der zunächst vorgesehenen Ausführungsform der Meßapparatur werden zur Erwärmung der Probe Elektronenstrahlen benutzt, die Probe befindet sich im Hochvakuum.

Zur Ermittlung der Wärmeleitfähigkeit  $k$  werden die Temperaturen  $T_1$  und  $T_2$  an den Oberflächen der scheibenförmigen Probe und die senkrecht durch diese Flächen hindurchgehende Wärmemenge  $q$  gemessen. Ist  $q$  die pro Flächen- und Zeiteinheit hindurchgehende Wärmemenge (Wärmestrom) und  $d$  die Dicke der Probenscheibe, dann erhält man die Wärmeleitfähigkeit der Probe zu

$$k = \frac{q \cdot d}{T_2 - T_1}$$

Wie man sieht, geht das Verfahren im Prinzip auf die Einplatten-Methode zurück.

Zur Messung der vorgenannten Größen, insbesondere zur Bestimmung von  $q$ , werden anders als bei den bisherigen stationären Verfahren mindestens zwei unterschiedliche stationäre Temperaturzustände in der Probe eingestellt. Zunächst wird von einem ersten stationären Zustand ausgegangen, wie er in Fig. 1a, 2a dargestellt ist. Hierbei erhalten beide Seiten der Probe unterschiedliche Temperaturen, die linke Probenseite die niedrigere Temperatur  $T_1$ , die rechte Probenseite die höhere Temperatur  $T_2$ . Dieser Zustand wird durch

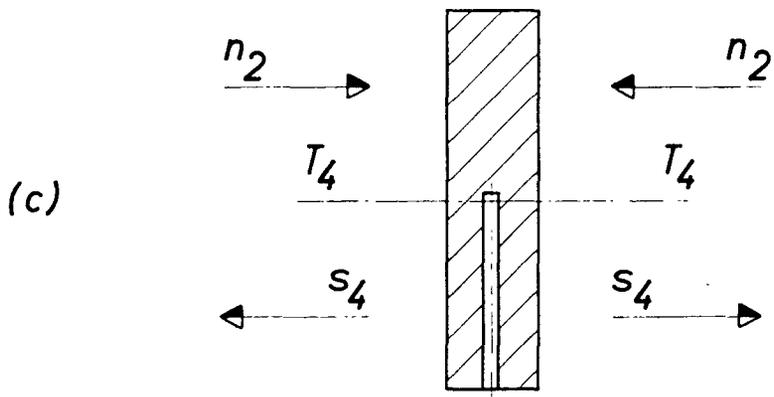
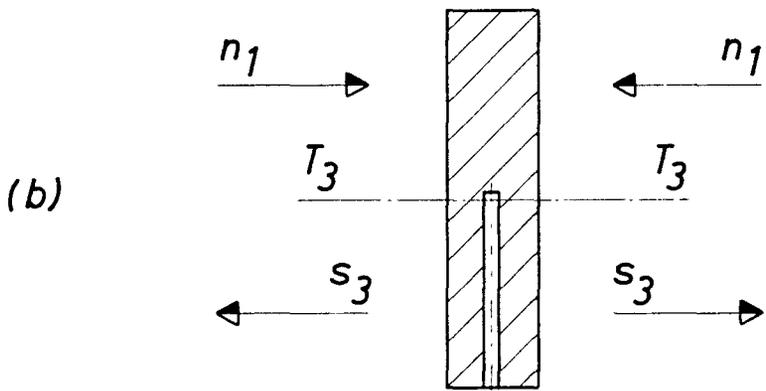
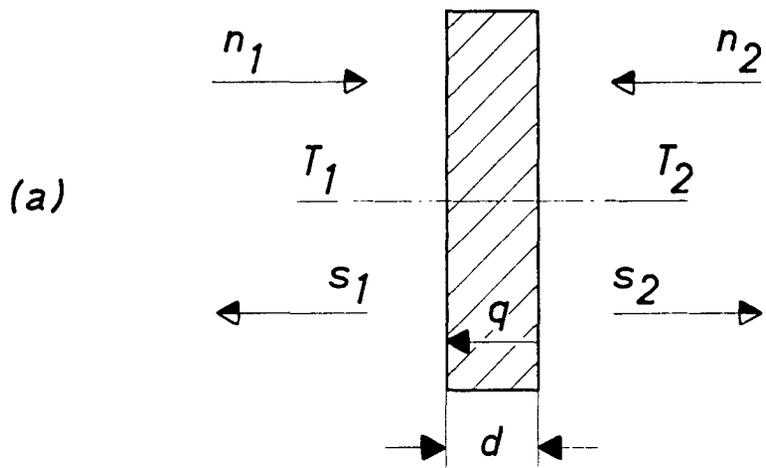
Bestrahlung der linken Probenseite mit der spezifischen Strahlungsleistung, d.h. der Strahlungsleistung pro Flächeneinheit  $n_1$  und der rechten Probenseite mit der spezifischen Strahlungsleistung  $n_2$  erzeugt. Die von den Probenseiten infolge Wärmestrahlung abgegebenen spezifischen Strahlungsleistungen sind  $S_1$  bzw.  $S_2$ . Durch das Temperaturgefälle fließt senkrecht zu den Probenoberflächen ein Wärmestrom  $q$  von der wärmeren zur kälteren Probenseite, so daß für diesen allgemeinen Fall  $n_1 \neq S_1$  und  $n_2 \neq S_2$  gilt.

Zur Ermittlung der Wärmeleitfähigkeit der Probe müssen die beiden Temperaturen  $T_1$  und  $T_2$  sowie der hierbei senkrecht durch die Probe fließende Wärmestrom  $q$  neben der Dicke  $d$  der Probe gemessen werden. Während die Messung der Probenoberflächentemperaturen keine prinzipiellen Schwierigkeiten bereitet, wird zur Messung des Wärmestromes  $q$  ein zweiter stationärer Zustand eingestellt und hierbei auf einer der beiden Probenseiten entweder die eingestrahlte Leistung, z.B.  $n_1$  oder die abgestrahlte Leistung, z.B.  $S_1$  konstant gehalten und gleichzeitig der Wärmestrom  $q$  kompensiert, indem beide Probenseiten auf die gleiche Temperatur gebracht werden. Diese beiden Möglichkeiten sind nachfolgend anhand der Figuren 1 und 2 dargestellt.

1) Übergang zum zweiten stationären Zustand unter Konstanthalten der auf eine der beiden Probenseiten aufgestrahlten Erhitzungsleistung.

Wird ausgehend von dem in Fig. 1 a dargestellten Zustand beispielsweise die auf der rechten Probenseite eingestrahlte Leistung  $n_2$  so weit vermindert, daß auf beiden Seiten die gleiche Temperatur  $T_3$  entsteht, d.h. also auf  $n_1$  herabgesetzt, dann erhält man den in Fig. 1 b dargestellten stationären Zustand. Dagegen erhält man - ebenfalls von dem in Fig. 1 a dargestellten Zustand ausgehend - den in Fig. 1 c gezeigten stationären Zustand, wenn man die auf die linke Probenseite eingestrahlte Leistung  $n_1$  so weit erhöht, daß auf beiden Seiten die Temperatur  $T_4$  entsteht.

Zur Ermittlung des in Fig. 1 a eingezeichneten Wärmestromes  $q$  über einen der beiden in Fig. 1 b und 1 c wiedergegebenen stationären Zustände ist von folgender Überlegung auszugehen:



**Fig.1: Stationäre Zustände der Meßprobe, die sich bei Konstanthalten der auf eine der beiden Proben-seiten aufgestrahlten Erhitzungsleistung ergeben.**

Im ersten stationären Zustand (Fig. 1 a) ergibt sich die abgestrahlte Leistung  $S_1$  zu:

$$S_1 = n_1 + q$$

bzw.  $S_2 = n_2 - q$

Dagegen ist im zweiten stationären Zustand (Fig. 1 b bzw. 1 c) die auf der linken Probenseite abgestrahlte Leistung  $S_3$  bzw.  $S_4$  gleich der eingestrahlt Leistung, da nun infolge der gleichen Temperaturen auf beiden Probenseiten  $q = 0$  ist:

$$S_3 = n_1$$

bzw.  $S_4 = n_2$

Hieraus ergibt sich für die Bestimmung des Wärmestromes  $q$  die Beziehung:

$$q = S_1 - S_3$$

bzw.  $q = S_4 - S_2$

Denn, da auf einer Seite die eingestrahlt Leistung konstant gehalten wird, ist anhand der Fig. 1 sofort erkennbar, daß im zweiten stationären Zustand (Fig. 1 b oder 1 c) die auf der linken bzw. rechten Seite abgestrahlte Leistung genau um den Betrag des - nun nicht mehr zur linken Seite hinfließenden - Wärmestromes  $q$  vermindert (Fig. 1 b) bzw. um den Betrag des vorher von der rechten Seite wegfließenden Wärmestromes  $q$  vermehrt (Fig. 1 c) ist.

Geht man bei der Bestimmung der Strahlungsleistungen von der bekannten  $T^4$  - Beziehung aus, wobei die Strahlungskonstante  $\sigma$  und das Gesamtstrahlungsvermögen bei der Temperatur  $T_1$  bzw.  $T_3$ ,  $\epsilon_{T_1}$  bzw.  $\epsilon_{T_3}$  sowie die Umgebungstemperatur  $T_0$  eingeführt werden, dann ergibt sich ( $\epsilon_{T_0} \approx 1$ ) mit:

$$\left[ (\epsilon_{T_1} - \epsilon_{T_2}) \cdot T_0^4 \right] \ll \left[ \epsilon_{T_1} T_1^4 - \epsilon_{T_3} T_3^4 \right]$$

bzw. der entsprechenden Beziehung für  $T_1$ ,  $T_2$ , und  $T_4$  der gesuchte Wärmestrom zu:

$$q = \sigma \cdot \left[ \epsilon_{T_1} T_1^4 - \epsilon_{T_3} T_3^4 \right] \text{ nach (Fig. 1 a und 1 b)}$$

bzw.  $q = \sigma \left[ \epsilon_{T_4} T_4^4 - \epsilon_{T_2} T_2^4 \right] \text{ nach (Fig. 1 a und 1 c)}$

2) Übergang zum zweiten stationären Zustand unter  
Konstanthalten des von einer der beiden Proben-  
seiten abgestrahlten Wärmestromes.

Ausgangszustand ist auch hier der in Fig. 1 a = Fig. 2 a dargestellte stationäre Zustand. Nun wird jedoch zur Ermittlung des Wärmestromes  $q$  nicht wie unter (II,1) die auf einer Seite ein-, sondern die abgestrahlte Leistung, d.h. aber die Temperatur dieser, beispielsweise der linken, Probenseite konstant gehalten. Die eingestrahlten Leistungen  $n_1$  und  $n_2$  werden derart verändert, daß beide Seiten die gleiche Probentemperatur, nämlich entweder  $T_1$  oder  $T_2$ , annehmen. Diese stationären Zustände sind in Fig. 2 b und 2 c wiedergegeben.

Den Wärmestrom  $q$  erhält man nun aufgrund einer Betrachtung über die auf der linken (Fig. 2 b) oder der rechten (Fig 2 c) Seite eingestrahlten Leistungen:

Im ersten stationären Zustand (Fig. 2 a) gilt:

$$n_1 = S_1 - q$$

$$\text{bzw. } n_2 = S_2 + q$$

Um den einen der beiden in Fig. 2 b und 2 c dargestellten stationären Zustände einzustellen, ist - da einerseits die abgestrahlte Leistung auf einer der beiden Seiten gleichbleiben und andererseits der Wärmestrom  $q$  verschwinden soll - entweder die eingestrahlte Leistung  $n_1$  auf eine höhere Leistung heraufzusetzen (Fig. 2 b) oder die eingestrahlte Leistung  $n_2$  auf eine niedrigere Leistung  $n_4$  herabzusetzen (Fig. 2 c):

$$n_3 = S_1$$

$$\text{bzw. } n_4 = S_2$$

Für den Wärmestrom  $q$  ergibt sich daher

$$q = n_3 - n_1 \quad (\text{Fig. 2 a und 2 b})$$

$$\text{bzw. } q = n_2 - n_4 \quad (\text{Fig. 2 a und 2 c})$$

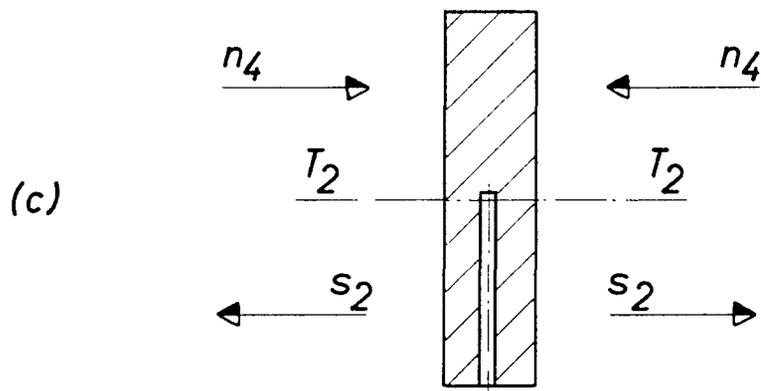
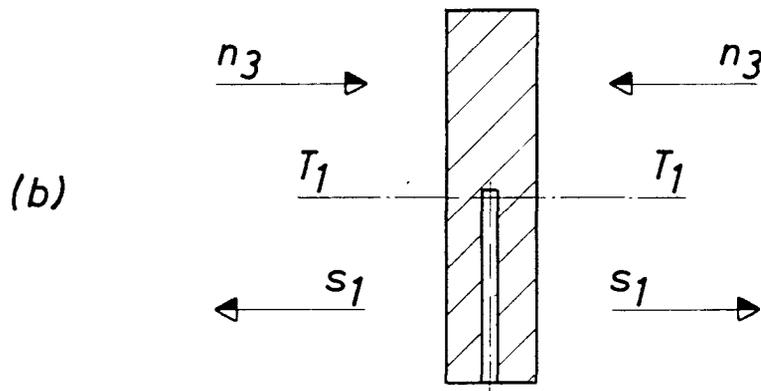
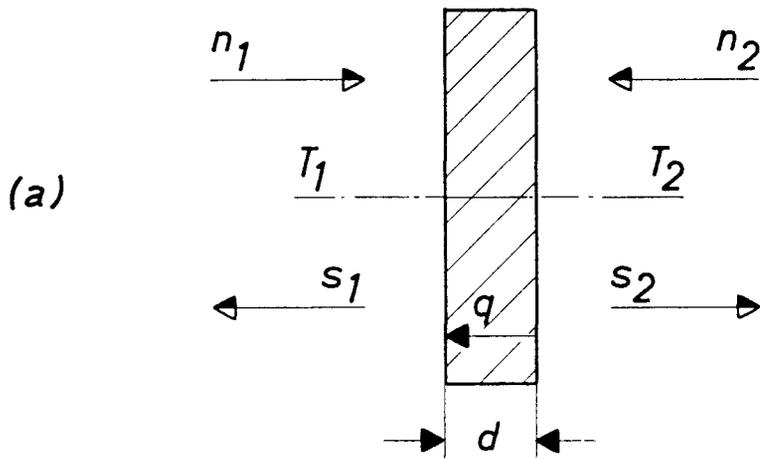


Fig. 2: Stationäre Zustände der Meßprobe, die sich bei Konstanthalten des von einer der beiden Proben-seiten abgestrahlten Wärmestromes ergeben.

Das ist anhand der Fig. 2 leicht einzusehen. Entweder wird nämlich gemäß Fig. 2 b die beim Übergang vom ersten zum zweiten stationären Zustand auf der linken Seite eingestrahlte Leistung  $n_1$  um genau den Betrag erhöht, um den im ersten in Fig. 2 a dargestellten stationären Zustand der Wärmestrom  $q$  - der nun Null ist - zur Abstrahlungsleistung  $S_1$  beigetragen hat. Oder bei Übergang zu dem in Fig. 2 c dargestellten Zustand als zweiten stationären Zustand wird die auf der rechten, d.h. der im ersten stationären Zustand stärker erhitzten Seite eingestrahlte Leistung gerade um soviel erniedrigt wie von der im ersten stationären Zustand gemäß Fig. 2 a rechts eingestrahlten Erhitzungsleistung  $n_2$  nach der linken Probenseite infolge des Wärmestromes  $q$  abgeflossen ist.

Der Wärmestrom  $q$  ist also einfach gleich der Differenz  $n_3 - n_1$  bzw.  $n_2 - n_4$  der z.B. mittels Elektronenstrahlquellen eingestrahlten Erhitzungsleistungen.

(III) E i n z e l m e s s u n g e n an der Meßprobe.

1) Messung der Probertemperaturen

Die Temperaturen der Probenoberflächen können pyrometrisch gemessen werden. Da sich mit einem visuell abgleichbaren Pyrometer zu große Ungenauigkeiten ergeben würden (bis zu einigen Grad Celsius) ist ein photoelektrisch abgleichbares Pyrometer erforderlich wie es von J.Middlehurst und T.P.Jones beschrieben wurde (Journal of Scientific Instr. 1961, 202 - 204). Ein mit Hilfe eines Stimmgabelgenerators schwingender Spalt befindet sich im Strahlengang des Pyrometers vor einem Multiplier. In der Spaltebene sind die Oberfläche des Meßobjekts und der Faden der Pyrometerlampe abgebildet. Der Spalt ist so eingestellt, daß er beim Schwingen abwechselnd hauptsächlich Licht vom Meßobjekt und Licht vom Pyrometerlampenfaden durchläßt. Bei ungenauem Abgleich entstehen Helligkeits- und damit am Multipliaerausgang Stromschwankungen im Rhythmus der Stimmgabelschwingungen. Diese werden verstärkt, und der Abgleich erfolgt über einen phasenempfindlichen Detektor, dessen Ausgang durch Änderung des Stromes der Pyrometerlampe auf Null abgeglichen wird.

Diese Meßeinrichtung gestattet es, die schwarze Temperatur der Probenoberfläche auf  $0,1^{\circ}$  C genau zu bestimmen. Die wahre Temperatur  $(T)_w$  wird im Verlauf der Messung mit Hilfe einer parallel zu den Seitenflächen der Scheibe verlaufenden Bohrung Fig. 1 b und 1 c sowie 2 b und 2 c bestimmt, deren Tiefe groß gegenüber dem Durchmesser ist. Hierzu wird auf beiden Probenseiten die gleiche Temperatur eingestellt, so daß davon ausgegangen werden kann, daß auch im Inneren der Probe diese Temperatur herrscht.

2) Messung des durch die Probe fließenden stationären Wärmestromes.

- a) Messung des Wärmestromes durch Bestimmung der von der Probe abgestrahlten Leistungen.

Soll der durch die Probe fließende Wärmestrom nach dem unter (II,1) beschriebenen Verfahren gemessen werden, so sind im wesentlichen nur die beiden Temperaturen  $T_1$  und  $T_3$  oder  $T_4$  sowie das Gesamtstrahlungsvermögen  $\xi$  bei diesen Temperaturen zu bestimmen. Da die Bestimmung des Gesamtstrahlungsvermögens ebenfalls auf Temperaturmessungen hinausläuft, kann im wesentlichen auf den vorhergehenden Abschnitt (III,1) verwiesen werden. Hierbei ist zu beachten, daß zur Bestimmung des Gesamtstrahlungsvermögens an sich neben der wahren Temperatur die Gesamtstrahlungstemperatur bestimmt werden muß. Handelt es sich jedoch bei der Meßprobe um einen "grauen Strahler", d.h. einen Strahler, dessen Emissionsvermögen von der Wellenlänge unabhängig ist, was für Metalloxyde bei höheren Temperaturen im allgemeinen hinreichend genau zutrifft, dann erübrigt sich eine gesonderte Messung der Gesamtstrahlungstemperatur. Man erhält dann:

$$\xi_T = \xi(\lambda, T) = \exp. \left[ \frac{c_2}{\lambda} \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T_s} \right) \right],$$

wobei  $T$  die wahre Temperatur und  $T_s$  die "schwarze", ist, d.h. die mit einem Teilstrahlungs-pyrometer bei der Wellenlänge  $\lambda$  tatsächlich gemessene Temperatur.

Weiterhin ist  $c_2 = 1,4388 \text{ cm}^\circ \text{K}$ .

- b) Messung des Wärmestromes durch Bestimmen der auf die Probe aufgestrahlten Leistungen.

Geht man bei der Messung des durch die Probe fließenden Wärmestromes nach dem unter (II,2) beschriebenen Ver-

fahren vor und erhitzt die Probe durch Elektronenstrahlen, dann sind die Leistungen  $n_1$  und  $n_3$  oder  $n_2$  und  $n_4$ , genauer gesagt, deren Differenz, zu ermitteln. Das kann in einfachster Weise geschehen durch Messung des auf die Probe aufgebrauchten Elektronenstromes und der Beschleunigungsspannung, mit der die Elektronen zur Probe hin beschleunigt werden. Hierbei sind lediglich die Verluste durch Sekundärstrahlung (Sekundärelektronen, reflektierte Elektronen, Röntgenstrahlung) in Betracht zu ziehen und gegebenenfalls beim Aufbau der Meßapparatur sowie bei der Korrektur der Meßergebnisse zu berücksichtigen. Insbesondere bei der Frage nach der Dimensionierung der Elektronenstrahlquelle wird weiter unten näher auf diese Verhältnisse einzugehen sein.

Zunächst ist jedoch zu fragen, wie die Differenz der Leistungen  $n_1$  und  $n_3$  oder  $n_2$  und  $n_4$  möglichst genau gemessen werden kann, denn diese Differenz ist wesentlich geringer als die Leistungen selbst, so daß durch einfache Differenzbildung der Wärmestrom mit einem erheblichen Meßfehler belastet würde.

Die auf jeder Seite der Probe aufzubringende Leistung hängt von der geforderten Probentemperatur ab und liegt bei  $700 - 2300^\circ \text{C}$  zwischen etwa  $3 - 130 \text{ Watt/cm}^2$ , wobei eine Abstrahlungskonstante von  $\xi = 0,5$  zugrundegelegt ist. Der zu messende Wärmestrom, der aufgrund der Wärmeleitung durch die Probe hindurchgeht, hängt dagegen von der Temperaturdifferenz zwischen Vor- und Rückseite der Probe ab, außerdem noch von der Probendicke und der Wärmeleitfähigkeit. Geht man beispielsweise von dem mittleren Wärmeleitfähigkeitswert für Urandioxyd von  $k = 0,008 \text{ cal/sec. cm grad}$  aus, dann ergeben sich Wärmeströme von etwa  $5 - 25 \text{ Watt/cm}^2$  bei Temperaturdifferenzen von  $20 - 100^\circ \text{C}$  zwischen beiden Probenseiten. Da man diese Temperaturdifferenzen aber möglichst klein halten wird ( $20^\circ - 40^\circ \text{C}$ ), um die Wärmeleitfähigkeit innerhalb kleiner Temperaturintervalle messen zu können, ergibt sich ein Wärmestrom durch die Probe,

der im Mittel etwa ein Zehntel des zur Probenerhitzung benötigten Energiestromes beträgt. Wenn man daher diesen in die Gleichung für die Wärmeleitfähigkeit eingehenden Wärmestrom auf 2  $\frac{^{\circ}}{_{\circ}}$  genau bestimmen will, müßte man die aufgebrachte Elektronenerhitzungsleistung, aus welcher durch Differenzbildung zwischen zwei Zuständen der durch die Probe gehende Wärmestrom ermittelt wird, auf 1  $\frac{^{\circ}}{_{\circ\circ}}$  genau messen.

Diese Schwierigkeit kann man auf folgende Weise umgehen:

Zunächst wäre es naheliegend, zur Erhitzung der Probe einen Großflächenstrahl zu benutzen. Es gibt jedoch auch die Möglichkeit, die Probe punktwise zu bestrahlen, ähnlich wie bei der Bildabtastung im Fernsehen. Das empfiehlt sich schon deswegen, weil es äußerst schwierig ist, bei einem Großflächenstrahl die Energieverteilung so einzustellen, daß die zu fordernde gleichmäßige Erhitzung der Probe gewährleistet wird. Wendet man die letztere Bestrahlungsart an, dann ist es möglich, eine der beiden Probenseiten gleichzeitig mit zwei Elektronenstrahlensystemen zu bestrahlen, ohne daß sich diese gegenseitig behindern. Nun wird der die Probe durchfließende Wärmestrom mit Hilfe eines gesonderten Elektronenstrahlensystems erzeugt, so daß die Probe auf der einen Seite (der Seite der niedrigeren Temperatur) von zwei Elektronenstrahlensystemen bestrahlt wird, einem eigentlichen Probenerhitzungssystem und einem Meßsystem. Gemäß dem Meßprinzip der Methode ergibt sich der gesuchte Wärmestrom als Differenz der von dieser Seite aufgebrachten Bestrahlungsleistung zwischen zwei verschiedenen stationären Zuständen. Beim Übergang von einem in den anderen stationären Zustand wird die Leistung des Probenerhitzungssystems konstant gehalten und nur die des Meßsystems geändert. Da stets eine Erhöhung der Bestrahlungsleistung beim Übergang erforderlich ist,

erhöht man die Leistung des Meßsystems von Null auf den dem Zustand entsprechenden Meßwert. Der zu messende, in die Gleichung für die Wärmeleitfähigkeit eingehende Wärmestrom ist daher direkt (ohne Differenzbildung) als Leistung des Meß-Bestrahlungssystems gegeben. Voraussetzung ist selbstverständlich gleichzeitig, daß die Leistungen der eigentlichen Probenerwärmungssysteme genügend konstant gehalten werden, wobei zur Einstellung des zweiten stationären Zustandes selbstverständlich zunächst die Leistung des dem Meß-Bestrahlungssystem gegenüberliegenden Probenerwärmungssystems gemäß Abschnitt (II,2) entsprechend zu verändern ist.

(IV) Apparatur für die Durchführung des stationären Hochtemperatur-Wärmeleitfähigkeitsmeßverfahrens.

1) Dimensionierung der Elektronenstrahlssysteme für die Erhitzung der Probe.

Die Erhitzung der Probe und damit die Erzeugung des Wärmestromes  $q$ , erfolgen nach dem vorstehenden Vorschlag durch Beschuß der beiden vorzugsweise kreisförmigen Flächen der Probe mit Elektronenstrahlen. Voraussetzung für die Anwendbarkeit der unter (II) gegebenen Gleichung für die Wärmeleitfähigkeit  $k$  ist, daß die Wärme in einer gegenüber der Scheibendicke vernachlässigbar dünnen Schicht an der Oberfläche der Probe erzeugt wird, d.h. die Eindringtiefe der Elektronen, die auf die Probe aufgeschossen werden muß klein gegenüber der Probendicke  $d$  sein. Diese Forderung ist auch noch aus einem ganz anderen Grunde zu stellen, und zwar wegen der Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von der Elektronenkonzentration der freien Elektronen. Daher wird die anwendbare Beschleunigungsspannung für den Elektronenstrahl aufgrund dieser Bedingung festgelegt.

Wegen der verhältnismäßig hohen erforderlichen Erhitzungsleistung von maximal etwa  $100 \text{ Watt/cm}^2$  auf beiden Seiten der Probe ist es an sich wünschenswert eine möglichst hohe Beschleunigungsspannung für die Elektronen zu benutzen, da hierdurch der Elektronenstrom klein gehalten werden kann, was eine bessere Beherrschung des Elektronenstrahles und der Mittel zu seiner Erzeugung (Kathode) ermöglicht. Bezüglich der Umwandlung der kinetischen Energie der auf die Probe auftreffenden Elektronen sind im wesentlichen zwei Vorgänge zu betrachten:

- a) Abbremsung der Elektronen durch Ionisation der Feststoffatome
- b) Erzeugung von Röntgenstrahlung durch die auftreffenden Elektronen.

a) Abbremsung der Elektronen durch Ionisation

Für die Beschleunigungsspannung kommt zunächst grundsätzlich der Bereich von 5 KV - 100 KV infrage. Für diesen Bereich ist die praktische Reichweite  $d_e$  der Elektronen im Bremsstoff gegeben durch die Gleichung:

$$d_e = 2,1 \cdot 10^{-12} \frac{U^2}{\varrho}$$

Hierbei ist die praktische Reichweite definiert als die Wegstrecke im Bremsstoff, nach deren Durchlaufen die mittlere Voltgeschwindigkeit der Strahlelektronen auf 1 % der ursprünglichen Strahlspannung abgefallen ist. Wird  $U$  in Volt und  $\varrho$  in  $\text{g/cm}^3$  eingesetzt, so erhält man  $d_e$  in cm.

Als praktische Reichweiten ergeben sich folgende Werte für  $\text{UO}_2$ , Kohlenstoff und Molybdän (die letzteren beiden Stoffe sind hinzugenommen werden, da eine dünne Bedampfung der Probenoberfläche mit C oder Mo zur Erniedrigung des Widerstandes von  $\text{UO}_2$  und damit zur besseren Ableitung der auftreffenden Elektronen von den Probenoberflächen vorgesehen ist):

Bremsstoff	$\varrho$ [g/cm <sup>3</sup> ]	$d_e$ [μ] für 10 KV	$d_e$ [μ] für 100 KV
$\text{UO}_2$	10,9	0,2	20
C	2,25	1,0	100
Mo	10,2	0,2	20

Man sieht, daß bei 100 KV Beschleunigungsspannung die praktische Eindringtiefe der Elektronen bereits für eine 1 mm dicke Probenscheibe 2 % der Probendicke betragen würde bei  $\text{UO}_2$  als Bremsstoff (Probenmaterial). Daher ist eine Beschleunigungsspannung von etwa 10 bis 20 KV vorzuziehen.

b) Erzeugung von Röntgenstrahlung.

Der Anteil der Elektronen-Energie, der in Röntgenstrahlung

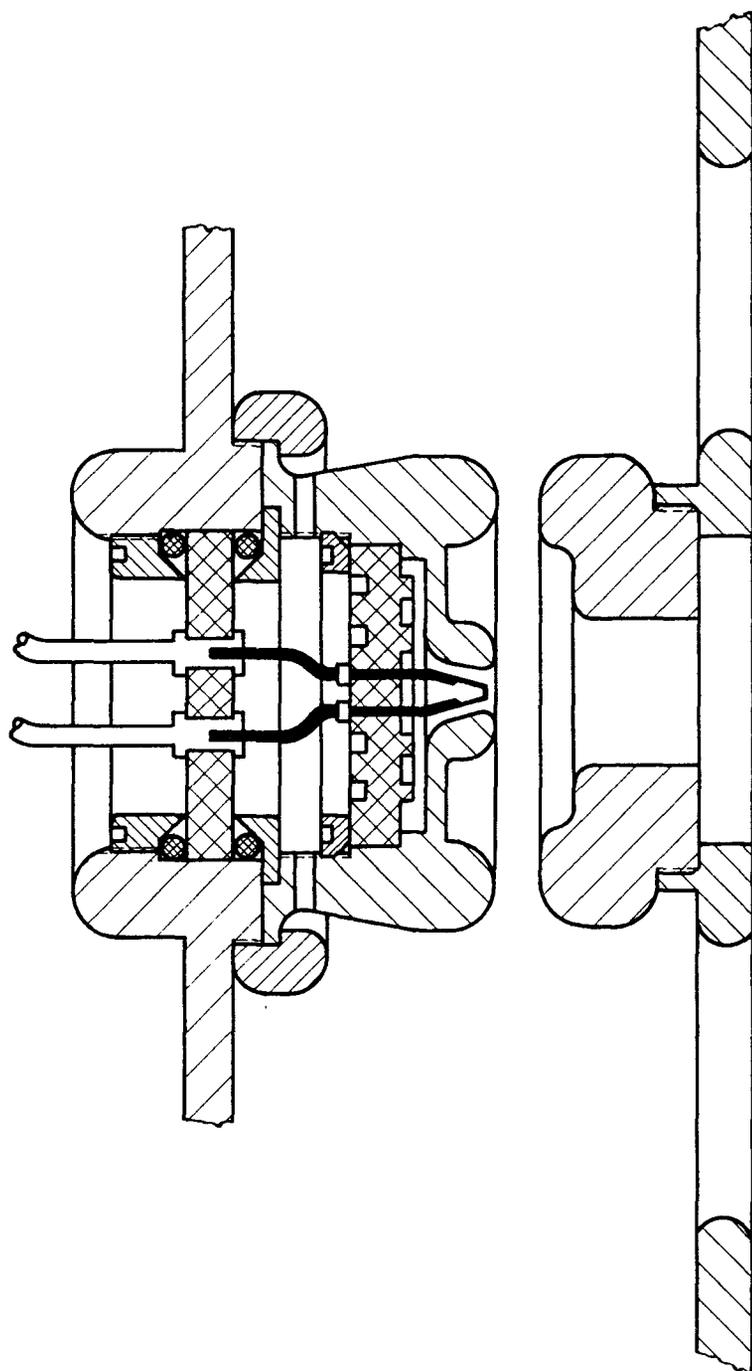


Fig.3: 15KV - 80mA Strahlerzeuger

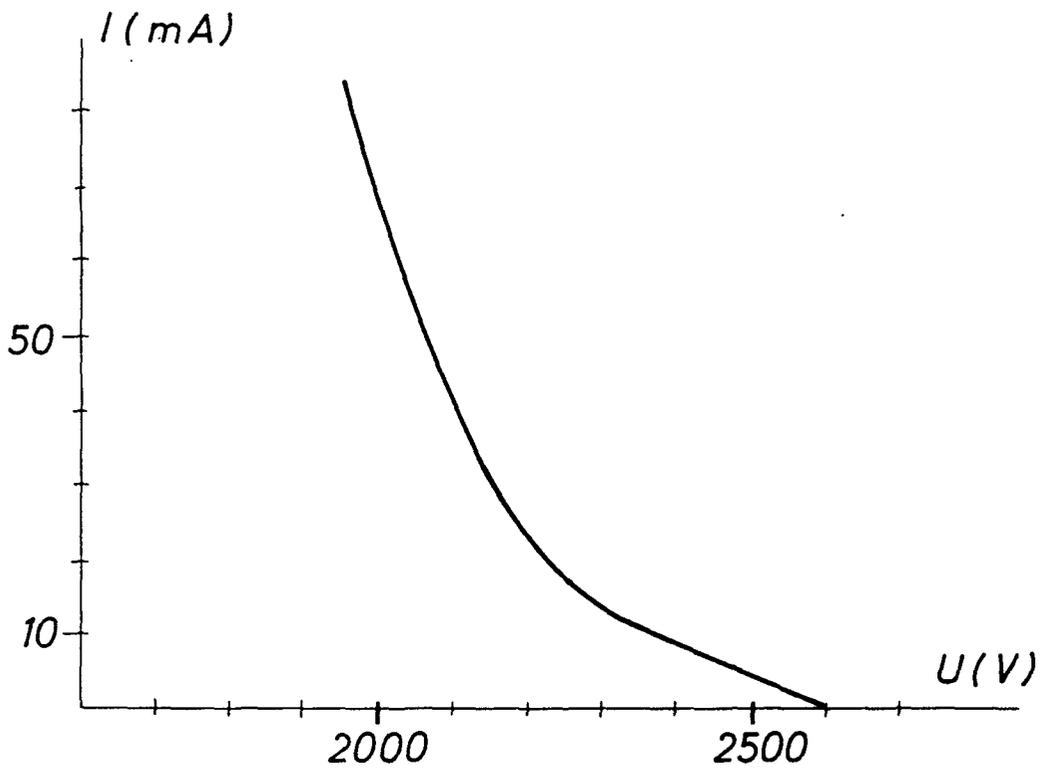
umgewandelt wird, ist näherungsweise gegeben durch:

$$\frac{E(\gamma)}{E} = 7 \cdot 10^{-10} \cdot Z \cdot E$$

wobei Z die Ordnungszahl der bremsenden Atome ist und E die Elektronenenergie in eV. Danach wird in  $UO_2$  bei 100 KV Beschleunigungsspannung ein Anteil von ca. 0,6 % der Elektronenenergie in Röntgenstrahlung umgewandelt gegenüber 0,06 % bei 10 KV. Wenn dieser Anteil auch durch eine Kohlenstoffschicht herabgesetzt werden kann, so daß bei 100 KV nur noch 0,04 % der eingestrahlten Elektronenenergie in Röntgenstrahlung umgewandelt würde, müßte diese Kohlenstoffschicht dazu jedoch mehrere  $\mu\text{m}$  dick (bis zu 20  $\mu\text{m}$ ) sein. Daher ist es auch zur Vermeidung derartiger dicker Schichten auf der Probe zweckmäßig, eine niedrigere Beschleunigungsspannung als 100 KV zu wählen.

Aufgrund der vorstehenden Überlegungen wurde ein Elektronenstrahlsystem (Strahlerzeuger) mit einer Beschleunigungsspannung von 15 KV entworfen, das in Fig. 3 dargestellt ist. Auf eine kurzbreitige Strahlquelle mit einer Kathode aus 2 mm Wolframband, die mit 35 A direkt geheizt wird, folgt eine elektromagnetische Fokussierungslinse. Diese Anordnung verbindet eine gute Absaugleistung der Elektronen von der Kathode mit einer Fokussierung des Elektronenstrahles im Abstand zwischen 300 und 500 mm von der Kathode. Der Elektronenstrahl wird auf der Probenoberfläche in einem Heizfleck von ca. 2 mm Durchmesser konzentriert, so daß die Probe durch Abrasten der Probenoberfläche erhitzt werden kann.

Mit der Strahlenquelle können Elektronenstrahlströme bis zu 80 mA erzeugt werden, was bei der vorgesehenen Beschleunigungsspannung von 15 KV einer Maximalleistung von 1200 Watt entspricht. Diese Leistung ist zur Erhitzung der Proben erforderlich, wenn man davon ausgeht, daß die Probe mit einem, deren Temperaturfeld fortsetzenden



*Fig.4: Emissionsstrom - Wehneltspannungs - Kennlinie des Strahlerzeugers für 15KV, 80mA*

und daher ebenfalls mit zu erheizenden Schutzring umgeben wird und als Gesamtdurchmesser für die Probe einschließlich Schutzring 3 cm anzusetzen sind. Unter diesen Voraussetzungen können bei einem Emissionsvermögen des Probenmaterials zwischen 0,35 und 0,70 Temperaturen bis über 2000 ° C erreicht werden.

Die Charakteristik des Strahlerzeugers ist in Fig. 4 dargestellt.

## 2) Gesamtaufbau der Probenerhitzungseinrichtung.

Der Gesamtaufbau ist in Fig. 5 dargestellt. Darin bedeuten  $E_1$  und  $E_2$  zwei Elektronenstrahlsysteme, wie sie unter (IV,1) beschrieben worden sind. In der dargestellten Apparatur sind nur zwei Strahlquellen vorgesehen, so daß hier der durch die Probe fließende Wärmestrom zweckmäßig nach dem unter (III,2,a) dargestellten Verfahren durch Messung der von den Proben-seiten abgestrahlten Leistung bestimmt wird. Es kann jedoch ohne weiteres eine dritte, kleinere Elektronenstrahlquelle als "Meßstrahlsystem" vorgesehen werden, um den Wärmestrom gemäß dem in (III,2,b) beschriebenen Verfahren mit großer Genauigkeit bestimmen zu können. Die mit einem Schutzring umgebene Probe P wird mit den Elektronenstrahlsystemen  $E_1$  und  $E_2$  beidseitig erhitzt. Die Probe mit dem Schutzring ist durch eine nicht eingezeichnete, seitlich zur Probenachse an vorzugsweise drei Punkten angreifende Halterung befestigt, so daß die durch die Halterung abfließende Wärme vernachlässigbar klein gehalten wird. Die Temperaturen auf den Seitenflächen der Probe können mittels Pyrometer durch die Fenster  $F_1$  und  $F_2$  und die wahre Probentemperatur kann durch das Fenster  $F_3$  und eine in dem Schutzring und der Probe angebrachte Bohrung (wie in Fig. 1 b und 1 c sowie 2 b und 2 c angedeutet) gemessen werden.

Die Fenster sind aus darstellungstechnischen Gründen nahe an der Probe eingezeichnet. In der praktischen Ausführung

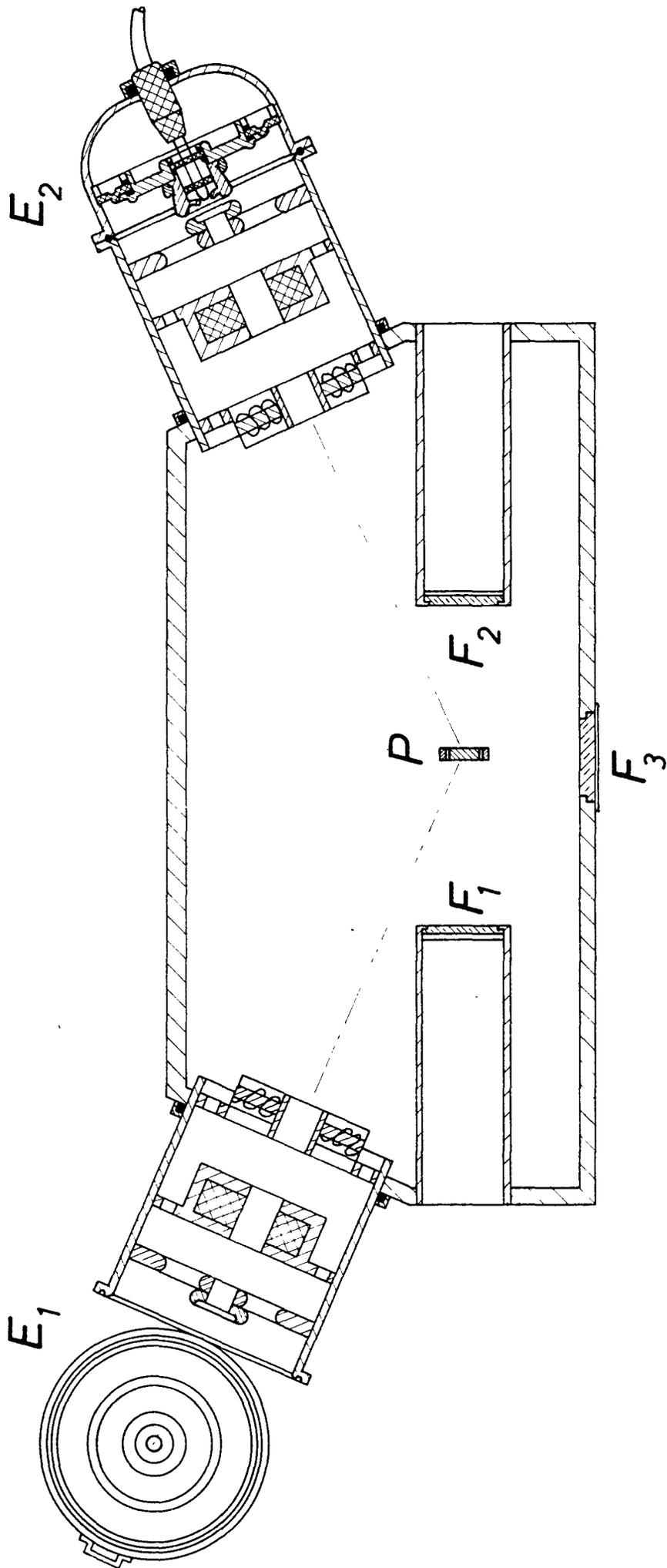


Fig.5: Apparatur für Wärmeleitfähigkeitsmessung  
bei höchsten Temperaturen

ist es jedoch aus wärmeschutztechnischen Gründen sowie weiterhin wegen der in Probennähe starken Bedampfungsfahr erforderlich, die Fenster in möglichst großer Entfernung von der Probenoberfläche anzuordnen. Darüberhinaus werden die Fenster zweckmäßig durch zusätzliche Mittel vor Bedampfung geschützt, da sonst die Temperaturmessungen in einem für das Meßverfahren nicht tragbarem Maße verfälscht würden. Hierzu kann beispielsweise eine Flüssigkeit als sich ständig erneuernde Schicht oder ein durchsichtiger Feststofffilm an der, der Probe zugewandten Fläche des jeweiligen, in möglichst großem Abstand von der hochoberhitzten Probe angeordneten Beobachtungsfensters vorbeigeführt werden. Als Flüssigkeit wird ein lichtdurchlässiges Öl o. dgl. mit niederem Dampfdruck verwendet.

(V) Erreichbare Meßgenauigkeit

Je nachdem, ob der durch die Probe fließende Wärmestrom  $q$  über die von der Probenoberfläche thermisch abgestrahlten Leistungen gemäß Abschnitt (II,1) oder über die mittels Elektronenstrahlen auf die Probenoberfläche  $f$  aufgebrachten Leistungen gemäß Abschnitt (II,2) bestimmt wird, erhält man für die Berechnung der Probenleitfähigkeit  $k$  durch Einsetzen der für  $q$  gewonnenen Ausdrücke in die eingangs gegebene Gleichung (für die Wärmeleitfähigkeit) die Beziehungen:

$$k = \sigma \cdot \bar{\xi}_{(1,3)} \cdot d \frac{T_1^4 - T_3^4}{T_2 - T_1} ; \quad k = \sigma \cdot \bar{\xi}_{(2,4)} \cdot d \frac{T_4^4 - T_2^4}{T_2 - T_1}$$

$$k = \frac{d \cdot U \cdot J}{f(T_2 - T_1)}$$

Zu diesen Beziehungen wird insbesondere auf die Fig. 1 verwiesen, in der die Temperaturen  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $T_3$  und  $T_4$ , die zu den jeweiligen stationären Zuständen der Meßprobe gehören, dargestellt sind. Weiterhin bezeichnet  $\bar{\xi}_{(1,3)}$  den aus  $\xi_{T_1}$  und  $\xi_{T_3}$  bzw.  $\bar{\xi}_{(2,4)}$  den aus  $\xi_{T_2}$  und  $\xi_{T_4}$  gebildeten Mittelwert<sup>1</sup>;  $U$  ist die Beschleunigungsspannung und  $J$  der auf die Probe mittels des in Abschnitt (III) beschriebenen "Meßelektronenstrahlensystems" aufgebrachte Elektronenstrom;  $U \cdot J$  also die Differenz der Leistungen  $n_1$  und  $n_3$  oder  $n_2$  und  $n_4$ , die mit dem gesonderten "Meßelektronenstrahlensystem", auf die Probe aufgestrahlt wird.

1) Erreichbare Meßgenauigkeit bei Messung der abgestrahlten Leistungen.

Außer den Meßfehlern der Messungen von  $\bar{\xi}$  und der Proben-  
dicke  $d$  gehen lediglich die Fehler von Temperaturmessungen  
in den Gesamtfehler der Probenwärmeleitfähigkeit ein, da die  
Konstante  $\sigma$  so genau gemessen ist, daß deren Ungenauigkeit  
hier nicht ins Gewicht fällt.

Setzt man eine Konstanz der Temperatur in der Größe der Meßgenauigkeit des Pyrometers gemäß Abschnitt (III,1) von  $\Delta T/T = \pm 2 \cdot 10^{-4}$  voraus, so ergibt sich aus der Bestimmungsgleichung für  $\xi$  ein Fehler von

$$\frac{\Delta \xi}{\xi} = \left( \frac{\Delta c_2}{c_2} + \frac{\Delta \lambda}{\lambda} + 2 \frac{\Delta T_s}{T_s} + \frac{\Delta (T - T_s)}{T - T_s} \right) \ln \xi$$

und daraus ein Fehler  $\Delta \xi / \xi \approx \pm 5 \cdot 10^{-3}$ :  
Die Genauigkeit des Ausdrucks

$$A = \frac{T_1^4 - T_3^4}{T_2 - T_1}$$

erhält man entsprechend zu  $\Delta A/A \approx 3 \cdot 10^{-2}$ , so daß bei einem Meßfehler von  $\Delta d/d = 1 \cdot 10^{-2}$  eine Gesamtmeßgenauigkeit für die Wärmeleitfähigkeit  $\Delta k/k$  von etwa 5 % erreichbar ist.

Wichtig ist, daß die beim jeweiligen stationären Zustand eingestellte mit dem Elektronenstrahl aufgebrachte Leistung genügend konstant ist, damit die obengenannte Temperaturmeßgenauigkeit auch realisiert ist. Da die aufgebrachte Leistung im stationären Fall der vierten Potenz der absoluten Temperatur proportional ist, ergibt sich aus  $\Delta T/T = \pm 2 \cdot 10^{-4}$  als Konstanzforderung für die Elektronenstrahlleistung  $\Delta n/n = \pm 8 \cdot 10^{-4} \approx \pm 10^{-5}$ . Die Beschleunigungsspannung läßt sich mit entsprechender elektronischer Stabilisierung auf etwa  $\pm 3 \cdot 10^{-4}$  konstant halten. Damit ergibt sich für die Stromkonstanz als Forderung  $\Delta J/J \approx \pm 7 \cdot 10^{-4}$ .

Aus der in Fig. 4 dargestellten Charakteristik der für den vorliegenden Zweck experimentell erprobten Strahlquelle nach Fig. 3 ergibt sich für die infrage kommenden Grenzwerte

des Strahlstromes als erforderliche Konstanz der Wehneltspannung  $\Delta U_w / U_w$ .

Strahlstrom	Wehneltspannung	Steilheit	$\frac{\Delta U_w}{U_w}$
mA	V	m A/V	
1	2600	0,07	$4 \cdot 10^{-6}$
80	2000	0,35	$8 \cdot 10^{-5}$

Diese Forderung läßt sich mit sorgfältig stabilisierten Spannungsquellen noch realisieren. Es bleibt darüberhinaus zu berücksichtigen, daß auch Schwankungen durch Ungleichmäßigkeiten bei der Abrasterung der Probe auftreten können. Eine Abschätzung zeigt aber, daß die erforderliche Konstanz der Ablenkfrequenzen, - amplituden und -phasenlagen eingehalten werden kann.

2) Erreichbare Meßgenauigkeit bei Messung der durch den Elektronenstrahl eingestrahlten Leistungen.

Während die erreichbaren Meßgenauigkeiten für die Proben-  
dicke, die Probenoberfläche und die Temperaturdifferenz  
sowie die Beschleunigungsspannungen an sich ebenfalls eine  
Mindestmeßgenauigkeit von 5 % erwarten lassen, ist die-  
ser Wert wegen der Verfälschung des Stromes  $J$  infolge von  
Sekundäremission und Reflektion von Elektronen auf der  
Probenoberfläche nicht ohne weiteres erreichbar, sondern es  
sind hierzu noch entsprechende Untersuchungen erforderlich,  
welche Meßgenauigkeit tatsächlich in diesem Falle erreicht  
werden kann.

(VI) Z u s a m m e n f a s s u n g

Die Wärmeleitfähigkeit von keramischen Kernbrennstoffen soll gemessen werden, um Anhaltspunkte bei der Entwicklung von Mischbrennstoffen mit verbessertem Wärmeleitvermögen zu bekommen und um für diese Brennstoffe entsprechende Spaltzonenauslegungen vornehmen zu können. Zur Messung der Wärmeleitfähigkeit bei den im Hochtemperatur-Reaktor vorkommenden Brennstofftemperaturen von 800 bis über 2000 ° C wird ein Verfahren vorgeschlagen, das physikalisch gesehen auf das Einplattenverfahren zurückgeht. Hiernach wird eine freistehende scheibenförmige Probe im Hochvakuum beidseitig durch Elektronenstrahlen erhitzt. Die Temperaturen der Probenseiten können mit einem photoelektrischen Pyrometer sehr genau gemessen werden. Der Wärmestrom, der aufgrund der Wärmeleitung senkrecht zu den Scheibenflächen durch die Probe hindurchtritt wird durch Einstellung zweier stationärer Probenzustände über die dabei auftretende Differenz der auf eine vorbestimmte Probenseite aufgestrahlten bzw. von dieser abgestrahlten Leistungen bestimmt. Die erreichbare Meßgenauigkeit für die Wärmeleitfähigkeit wird für den Fall der Messung des Wärmestromes über die von der Probenfläche abgestrahlten Leistungen zu  $\pm 5 \%$  abgeschätzt. Die Konstruktion der Apparatur kann so ausgebildet werden, daß auch Messungen an neutronenbestrahlten Kernbrennstoffen in einer "heißen Zelle" mittels Fernbedienung möglich sind.

(VII) L i t e r a t u r v e r z e i c h n i s .

- 1) W.D. Kingery,  
M.C. McQuarrie  
Thermal conductivity: I,  
Concepts auf measurement and  
factors affecting thermal  
conductivity of ceramic materials,  
J.Am. Ceram. Soc., 37 (1954),  
67-72.
- 2) M.Adams,  
A.L.Loeb  
Thermal conductivity: II,  
Development of a thermal con-  
ductivity expression for the  
special case of prolate spheroids,  
J.Am.Ceram.Soc., 37 (1954) 73-74
- 3) M.Adams  
Thermal conductivity: III, Prolate  
spheroidal envelope method,  
J.Am. Ceram. Soc., (1954)  
74-79
- 4) J.Francl,  
W.D.Kingery  
Thermal conductivity: IV, Appara-  
tus for determining thermal con-  
ductivity by a comparative me-  
thod, J.Am.Ceram. Soc., 37, (1954)  
80-84
- 5) M.Mc.Quarrie  
Thermal conductivity: V, High-  
temperature method and results for  
alumina, magnesia and beryllia  
from 1000 to 18000 °C,  
J.Am. Ceram.Soc., 37 (1954) 84-88
- 6) W.D.Kingery  
Thermal conductivity: VI, Determi-  
nation of conductivity of  $Al_2O_3$   
by spherical envelope and cylin-  
der methods, J.Am.Ceram.Soc., 37  
(1954), 88-90
- 7) M.Mc.Quarrie  
Thermal conductivity: VII, Analysis  
of variation of conductivity with  
temperature for  $Al_2O_3$ , BeO, and  
MgO  
J.Am.Ceram Soc., 37 (1954), 91-95
- 8) A.L.Loeb  
Thermal conductivity: VIII, A  
Theory of thermal conductivity  
of porous materials,  
J.Am.Ceram.Soc., (1954), 96-99
- 9) J.Francl,  
W.D.Kingery  
Thermal conductivity IX, Experi-  
mental investigation of effect of  
porosity on thermal conductivity  
J.Am. Ceram Soc. 37 (1954)  
99-107

- 10) W.D. Kingery u.a. Thermal conductivity: X, Data for several pure oxide materials corrected to zero porosity, J.Am. Ceram. Soc., (1954), 107-110
- 11) B.B. Brenden, H.W. Newkirk Method for determining thermal conductivity of incandescent solids. Journ. Appl. Physics 31 (1960), 737-738
- 12) P.E. Glaser, S.Merra, W.K.Sepetoski, D.F. Comstock, A.G. Emslie Radiation imaging technique for thermal conductivity measurement above 1000° C, Review Sci.Instr. 33 (1962) 57-63
- 13) W.J.Parker, R. J.Jenkins, C.P.Butler, G.L.Abbot Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity, and thermal conductivity; J. Appl. Phys. 32 (1961), 1679-1684
- 14) J.Vardi, M.Hoch Thermal conductivity of anisotropic solids of high temperatures. The thermal conductivity of molded and pyrolytic graphites; Journ.Am. Ceram.Soc. 46 (1963) 129-132.
- 15) J.L.Finck An apparatus for measuring the thermal conductivity of refractories at high temperatures, J.Am.Ceram., Soc., 18 (1935) 6-12
- 16) J.D. Eichenberg An in-pile measurement of the effective thermal conductivity of UO<sub>2</sub>, WAPD-200, 1958
- 17) A.Saulhier Etude structurale du beryllium par micrographie et microdiffraction electroniques sur coupes minces. J.Nucl.Mat.2 (1960) 299-309
- 18) G.Elston, C.Labbe Effet des traitements thermiques et de l'irradiation par les neutrons sur les proprietes physiques et mecaniques de l'oxyde de beryllium fritte sous charge. J.Nucl.Mat.4 (1961),143-164
- 19) A.W.Pratt Analysis of error due to edge heat loss in measuring thermal conductivity by the hot plate method, J.Sci. Instr., 39, (1962),63-68
- 20) J.Belle (Hrsg.) Uranium dioxide: Properties and nuclear applications. Naval Reactors, Division of Reactor Development, United States Atomic Energy Commission, 1961

- 21) J.Spies  
Verfahren und Vorrichtung zum Bestimmen von Wärmekennziffern, vorzugsweise nichtmetallischer Werkstoffe.  
Deutsche Patentanmeldungen K 47 296 IX b/ 42 i und K 49 027 IX b/42 i.
- 22) F.Klasse,  
A.Heinz,  
J.Hein  
Vergleichsverfahren zur Ermittlung der Wärmeleitfähigkeit keramischer Werkstoffe, Ber. der deut. Keram. Gesellsch.  
34 (1957), 183-189
- 23) Z. Mihailovic  
Apparate zur Messung der Wärmeleitfähigkeit von Keramikmaterial für den Reaktorbau; Sprechsaal für Keramik, Glas, Email, 95 (1962) 60
- 24) V.J.Tennery  
Review of thermal conductivity and heat transfer in uranium dioxide. ORNL-2656; 1959
- 25) A.M.Ross  
A literature survey on the measurement of thermal conductivity of several solids including uranium dioxide, CRFD-762; 1958
- 26) J.L.Bates  
Thermal conductivity of  $UO_2$  improves at high temperatures, Nucleonics, Juni 1961, 83-87
- 27) R.E.Taylor  
Thermal conductivity and expansion of beryllia at high temperatures. J.Am.Ceram.Soc., 45 (1962) 74-78
- 28) R.D.Cowan  
Proposed method of measuring thermal diffusivity at high temperatures LA-2460, 1960
- 29) M.Cutler a.o.  
Thermal conductivity of reactor materials  
GA-1391, 1960
- 30) H.Shapiro  
R.M.Powers  
High conductivity  $UO_2$   
SCNC-294, 1959
- 31) G.Arthur  
Ceramics-Thermal Conductivity, Nuclear Engineering, 1961, 138-161

- 32) H.E.Schmidt  
Mesures de la conductivité  
thermique a hautes temperatures.  
(unveröffentlicht)
- 33) D.J.McNeill  
Measurement of the thermal diffu-  
sivity of thermoelectric materials.  
Journ. Appl. Phys., 1962, 597-600
- 34) B.Abeles,  
G.D.Cody,  
D.S.Beers  
Apparatus for the measurement of  
the thermal diffusivity of solids  
at high temperatures.  
J.Appl.Phys. 1960, 1585-1592
- 35) A.E.Paladino u.a.  
Unsteady-state method of measu-  
ring thermal diffusivity and Biot's  
modulus for alumina between  
1500° and 1800° C. Journ. of the  
Am.Ceram. Soc., 40, (1957),340-345
- 36) W.Koch  
Die Wärmeleitzahl von Porzellan  
und Kieselgurformstein bis 800°C.  
Physikalische Zeitschrift 39  
(1938), 431-436
- 37) H.Lehmann,  
E.Gatzke  
"Entwicklung einer Methode zur  
Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit,  
von Roh- und Fertigprodukten der  
Steine- und Erden-Industrie bei  
hohen Temperaturen; Tonindustrie-  
Zeitung und keramische Rundschau  
18 (1957), 217-220
- 38) C.D.Bopp  
Measurement of thermal conductivi-  
ty with mercury contacts; J.Amer.  
Ceram.Soc. 47 (1964), 151-152
- 39) Z.V.Harvalik  
A modified Fitch thermal conduc-  
tivity apparatus. Rev. Sci.Instr.,  
1947, 815-817
- 40) D.Rosenthal  
A.Ambrosio  
A new method of determining ther-  
mal diffusivity of solids at vari-  
ous temperatures.  
Transaction of the ASME, 73  
(1951), 917-974
- 41) L.N.Clarke  
R.S.T.Kingston  
Equipment for the  
determination of thermal con-  
ductivity: Application to insula-  
ting materials using a variable  
state method.  
Aust.J.Appl.Sci.,. 1 (1950),172-187

- 42) C.P.Lentz  
A transient heat flow method of determining thermal conductivity of insulating materials. Can. Jour. of Technology , 30, 153-166
- 43) W.Kanpp  
Thermal conductivity of nonmetallic single crystals. J.of the Am.Ceram.Soc., 1943, 48-55
- 44) E.J.Soxman  
Adaption of a modified Angström method to the measurement of thermal diffusivity. NR-032-022 Alfred University, 1955-1957
- 45) G.Weill  
Appareillages de mesure de la conductivité thermique des semi-conducteurs I.Généralités; Methode des fluxmètres. Le Journal de Phys. et le Radium Phys. Appliquée, Supplement an No. 3, 23, (1962), 15 A-20 A
- 46) J.Gatecel  
G.Weill  
Appareillages de mesure de la conductivité thermique des semi-conducteurs: II.La méthode d'Angström. Le Journal de Phys. et le Radium Phys. Appliquée, Supplement au No.6, 23, (1962) 95 A-101 A
- 47) H.E.Schwiete,  
H.Westmark  
Die Wärmeleitfähigkeit feuerfester Steine im Spiegel der Literatur; Forschungsberichte des Landes Nordrhein-Westfalen Nr. 689, Westdeutscher Verlag, Köln und Opladen 1959.
- 48) A.Mittenbühler  
Apparatur zur Messung der Wärmeleitfähigkeit von feuerfesten Steinen, Körnungen und Pulvern; Ber. der Deut.Keram. Gesellsch. 41(1964), 15-20
- 49) H.E.Schwiete u.a.  
Wärmeleitfähigkeit feuerfester Materialien des Systems  $Al_2O_3 - SiO_2$  zwischen  $200^\circ$  und  $1600^\circ$  C; Berichte der deutsch. keram. Ges. 38, (1961), 529-534
- 50) J.Schröder  
Eine einfache Methode zur Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit von festen Stoffen. Philips techn. Rundsch. 1959/60, 364-368

- 51) M.Jakob  
Verfahren zur Messung der  
Wärmeleitfähigkeit fester Stoffe in  
Plattenform.  
Zeitschrift für techn. Phys. 1926,  
475-481
- 52) W.G.Fastie  
An emissivity-independent radiation  
pyrometer.  
Proc.Opt.Soc. of Am. 51 (1951) 872
- 53) N.S.Rasor  
J.D.McClelland  
Thermal property measurement at  
very high temperatures  
Rev.Sci.Instr. 31 (1960), 595-604
- 54) P.H.Sidles  
G.D.Danielson  
Thermal diffusivity measurements  
at high temperatures in: B.Abeles,  
"Thermoelectricity"; J.Wiley and  
Sons, New York 1960, 270-277
- 55) M.Bettman  
J.E.Schneider  
On the heat conductivity of indium  
antimonide and on the longitudinal  
flow method of measuring it, in:  
B.Abeles, "Thermoelectricity";  
J.Wiley and Sons, New York,  
1960, 295 - 306
- 56) A.Krumhansl  
W.S.Williams  
Thermal conductivity in solids in  
B.Abeles, "Thermoelectricity";  
J.Wiley and Sons, New York 1960,  
77-91
- 57) J.Middlehurst  
T.P.Jones  
Photoelectric optical pyrometer  
J.Sci.Instr., Vol.38 (1961) 202-204
- 58) W.D.Kingery  
Property measurements at high tem-  
peratures.  
J.Wiley and Sons, New York 1959
- 59) A.G.Emslie,  
H.H.Blau, Jr.  
On the measurement of the tempera-  
tures of unenclosed objects by ra-  
diation methods. Journ. of the  
Electrochemical Society 106 (1959),  
877-880
- 60) J. Spies  
Photoelektrisch abgleichbares Teil-  
strahlungs-pyrometer.  
Deutsche Patentanmeldung G 40 489  
IX b/42 i.
- 61) R.E.Taylor,  
J.Morreale  
Thermal conductivity of titanium,  
carbide, zirconium carbide, and  
titanium nitride at high tempera-  
tures; J.Am.Ceram., Soc., 47 (1964)  
69-73

- 62) J.Tavernier  
La conduction thermique dans les solides; L'Onde électr.42 (1962), 541-553
- 63) E.Justi  
Leitfähigkeit und Leitungsmechanismus fester Stoffe. Van-den-Hoeck und Ruprecht, Göttingen, 1948
- 64) W.E.Haupin  
Hot wire method for rapid determination of thermal conductivity. Ceramic Bulletin, 39 (1960), 139-141
- ~~65)~~ Th.C.Ehlert  
J.L.Margrave  
Melting point and spectral emissivity of uranium dioxide. J.Am.Ceram., Soc. 41(1958), 330
- 66) Nuclear Engineering  
Data sheet, No.10: Ceramic fuels. Nucl.Eng., Aug.1958.
- ~~67)~~ D.W.Lee  
W.D.Kingery  
Radiation energy transfer and thermal conductivity of ceramic oxides. Journ.Am.Ceram.Soc., 43 (1960), 594-607
- 68) Westinghouse  
Electric Corp.  
Measurement of thermal conductivity of uranium oxide. AECU-3381, 1956
- ~~69)~~ R.Scott  
Thermal conductivity of  $UO_2$   
A.E.R.E.-M/R-2526
- 70) W.A.Scholes  
Thermal conductivity of bodies of high BeO-content. J.Am.Ceram.Soc., 33 (1950), 111-117
- 71) E.Raisch  
Verfahren zum Messen der Wärmeleitfähigkeit von Metallen. Forschungen auf dem Gebiet des Ingenieurwesens; 1932, 209-211
- 72) M.Hoch,  
J.Vardi  
Thermal conductivity of TiC; J.Am. Ceram.Soc.46 (1963), 245
- ~~73)~~ D.Harkort,  
G.Honcia,  
H.G.Kling  
Untersuchungen einiger physikalischer Eigenschaften von  $UO_2$ -Sinterkörpern in Abhängigkeit von BeO-Zusätzen; Berichte d.Deut.Keram.Gesellschaft., 40 (1963), 123-128

- 74) P.Jeschke,  
H.E.Schwiete Die Wärmeleitfähigkeit von neuen  
und gebrauchten Schamotte-,Magne-  
sit-, Chrommagnesit- und Forsterit-  
steinen; Tonindustrie-Zeitung und  
Keramische Rundschau 87 (1963),  
386-400 und 427-442
- 75) Van Dusen  
S.M.Shelton Apparatus for measuring thermal  
conductivity of metals up to  
600° C.  
Bureau of Standards J.of Research,  
12 (1934), 429-440
- 76) L.Storm Zur genauen Messung der absoluten  
Temperatur aus dem thermischen  
Rauschen.  
Z.angew.Phys., 14 (1962) 117-121
- 77) N.E.Häger Thin-heater thermal conductivity  
apparatus.  
Rev.Sci.Instr. 31(1960), 177-185
- 78) R.W.Powell  
R.P.Tye High alloy steels for use as a  
thermal conductivity standard.  
Brit.Journ. Appl.Phys. 11 (1960),  
195 - 198
- 79) D.Wild Über die Wärmeleitzahl von Kunst-  
kohle.  
VDI-Z. 100 (1958), 95 - 99
- 80) R.W.Powell EXperiments using a simple thermal  
comparator for measurement of ther-  
mal conductivity, surface roughness  
and thickness of foils or of  
surface deposits.  
Journ. Sci.Instr. 34 (1957),485-492
- 81) R.D.Reiswig Thermal conductivity of UO<sub>2</sub> to  
2100° C  
J.Am.Ceram.Soc. 44 (1961), 48 - 49
- 82) T.T.Claudson Emissivity data for UO<sub>2</sub>; HW - 5544
- 83) Euler-Ludwig Arbeitsmethoden der optischen Pyro-  
metrie. 414  
Verlag G.Braun, Karlsruhe, 1960
- 84) V.J.Tennery Review of thermal conductivity and  
heat transfer in UO<sub>2</sub>.ORNL-2656,1959

- 85) J.H.Heath High temperature Thermocouples.  
AEEW-R 141
- ~~86)~~ N.N. Additive improves  $UO_2$  thermal  
conductivity.  
Nucleonics 1959, 156
- ~~87)~~ J.Cohen Measurement of the thermal conducti-  
vity of metal-clad uranium oxide  
rods during irradiation.  
WAPD-228, 1960
- 88) T.J. Câmpân Die Bestimmung der Wärmeleitfähig-  
keit von schlechtleitenden Stoffen  
nach der Methode der Kontaktem-  
peratur; Allgemeine Wärmetechnik 9  
(1959) , 141 ff.
- 89) Chemisches Laboratorium . Vollautomatische Anlage zur Durch-  
für Tonindustrie Berlin- führung des Zweiplattenverfahrens  
Reinickendorf-Goslar (Harz) für die Bestimmung der Wärmeleit-  
fähigkeit nach Pechingen; Ber.der  
deut. Keram.Gesellsch.; 41 (1964)  
666
- 90) G.Klemens The thermal conductivity  
Proc.Roy.Soc. (London), A 208,  
(1951), 108 - 133
- 91) J.D.Eshelby Fundamental physics of heat con-  
duction.  
Proc. of the General discussion on  
Heat Transfer; Inst.Mech. Engrs.,  
London 1951, 267 ff
- 92) C. Kittel Interpretation of the thermal con-  
ductivity of glasses.  
Phys.Rev.75 (1949), 972 - 974
- 93) H.W.Russell Principles of heat flow in porous  
insulators.  
J.Am.Ceram.Soc.18 (1935), 1 - 5
- 94) A.M.Ross The dependence of the thermal con-  
ductivity of uranium dioxide on den-  
sity, microstructure, stoichiome-  
try and thermal neutron irradiation.  
AECL-1096, 1960
- 95) M.vonArdenne Tabellen der Elektronenphysik,  
Jonenphysik und Übermikroskopie.  
Deutscher Verlag der Wissenschaften,  
Berlin 1956
- 96) B.S.Petuchow "Experimentelle Untersuchung der  
Wärmeübertragung"  
VEB-Verlag Technik, Berlin, (1958)
- 97) J.Spies "Verfahren zum Aufrechterhalten der  
Durchsichtmöglichkeit bei Beobach-  
tungsfenstern an Vakuumbehältern".  
DBP 1 181 677

- 98) M. Koltermann Die Wärmeleitfähigkeit keramischer Werkstoffe; Tonindustrie-Zeitung und Keramische Rundschau 85 (1961), 399 - 407
- 99) R.M.Stephenson Apparatus for testing heat resistance of materials US-Patent 2,196,481
- 100) Y.Laure Les applications de l'électronique à la pyrométrie, Bull. Céramique 1949, No.5,15-17
- 101) S.J.Fray,  
A.R.Goodwin,  
F.A.Johnson,  
J.E.Quarrington An absolute method of determining transmission and reflection coefficients, J.Sci,Instr. 40 (1963), 387-390
- 102) D.Kelsall An automatic emissivity-compensated radiation pyrometer, J.Sci.Instr. 40 (1963), 1-4
- 103) J.Spies Kernreaktorbrenn- bzw. -brustoffelement, Deutsche Patentanmeldung K 49 431 VIII c/21 g
- ~~104)~~ M.Vandenberg,  
H.E.Schmidt Dispositif de mesure de la diffusivité a hautes temperatures, EUR - 2424. f; 1965
- 105) M.J.Wheller Thermal diffusivity at incandescent temperatures by a modulated electron beam technique, Brit.J.Appl. Phys. 16 (1965), 365 - 376
- 106) B.H.Morrison,  
D.J.Klein,  
L.R.Cowder High temperature thermal diffusivity measurements by the flash technique; LA - DC - 7456; 1965
- 107) R.Taylor An investigation of the heat pulse method for measuring thermal diffusivity, Brit. J. Appl. Phys. 16 (1965), 509-515

- 108) R.K.Day                      Thermal conductivity of high conductivity materials (Measurement),  
Am.Ceram.Soc.Bull. 44 (1965),  
608 - 611
- 109) J.Spies                      Verfahren zum Bestimmen der Temperaturleitfähigkeit durch Messen der Phasendifferenzen von Temperaturwellen in Werkstoffproben.  
Deutsche Patentanmeldung G 40 757 IXb/42 i.  
Französisches Patent 1 434 812