

**KfK 3588**  
**Oktober 1983**

# **Die Bestimmung der optischen Stoffdaten von Schmelzen aus Urancarbid und Thoriumcarbid**

**K. Wagner**  
**Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik**  
**Projekt Schneller Brüter**

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik  
Projekt Schneller Brüter

KfK 3588

Die Bestimmung der optischen Stoffdaten von  
Schmelzen aus Urancarbid und Thoriumcarbid

K. Wagner

Dissertation genehmigt von der Fakultät für  
Maschinenbau der Universität Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Zusammenfassung

In einem neu entwickelten Autoklav-Laser-Reflektometer wurde der spektrale Reflexionsgrad für polarisiertes Licht von Schmelzen aus Urancarbid bzw. Thoriumcarbid (ThC) gemessen. Um Störungen der Messungen durch übermäßiges Verdampfen von Probenmaterial oder Siedeeffekte zu vermeiden, wurden die Messungen unter einem Inertgasdruck (Ar) von bis zu 15 bar durchgeführt. Die scheibenförmigen, gesinterten (UC) bzw. heißgepreßten (ThC) Proben wurden mit einem Nd-YAG-Leistungslaser lokal aufgeschmolzen. Dabei wurden Temperaturen oberhalb von 4100 K erreicht.

Zur Herstellung der Proben aus Thoriumcarbid wurde eine Heipresse und spezielle Druckmatrizen konstruiert. Die damit fabrizierten ThC-Pellets wiesen eine Dichte von mehr als 96% der theoretischen Dichte auf. Die Messungen wurden bei vier Wellenlängen im sichtbaren Spektralbereich und drei unterschiedlichen Reflexionswinkeln durchgeführt. Die Anwendung des Kirchhoffschen Gesetzes ermöglichte die Bestimmung des spektralen Emissionsgrades der untersuchten Materialien.

Das auf den Fresnelschen Formeln für die Reflexion von polarisiertem Licht basierende Verfahren zur Bestimmung der optischen Konstanten, nämlich des Brechungsindex  $n$  und der Absorptionskonstante  $k$ , wurde ausführlich im Hinblick auf die aus den besonderen Mebedingungen folgenden Fehlermöglichkeiten diskutiert. Es konnte gezeigt werden, da durch das Aufschmelzen der Probenoberfläche keine unzulässig groen Mefehler verursacht werden. Zusätzlich wurde ein Verfahren zur Optimierung der Empfindlichkeit des angewendeten Meverfahrens angegeben. Aus dem spektralen Verlauf der Absorptionskonstante  $k$  wurde der Absorptionskoeffizient  $K$  im sichtbaren Spektralbereich berechnet. Aus dem unterschiedlichen Verlauf der Absorptionsspektren von UC und ThC konnten Aussagen zur elektronischen Struktur von Urancarbid, insbesondere zur Rolle der 5f-Elektronen gewonnen werden.

## Determination of the optical material data of melts of uranium carbide and thorium carbide

---

### Abstract

The spectral reflectivity for polarized light of molten uranium carbide (UC) and thorium carbide (ThC), respectively, was measured in a newly developed laser reflectometer, which was especially designed for high pressures. Measurements were performed under inert gas (Ar) at pressures up to 15 bar to prevent errors in measurement which could be caused by evaporation or boiling effects. Disk-shaped, sintered (UC) or hot-pressed (ThC) specimens were locally molten by means of a Nd-YAG power laser. During a 6 ms laser-pulse the specimen surface was heated up to temperatures above 4100 K.

A hot-press and special dies were constructed for making the thorium carbide specimens. The hot-pressed pellets showed a density of 96% of the theoretical density. Measurements were carried out at four wavelenghts in the visible spectral region at three different angles of incidence. By use of Kirchhoff's law it was possible to determine the spectral emissivity of the specimens. Based on the generalized Fresnel reflection equations the optical constants, i.e. the refractive index  $n$  and the absorption constant  $k$ , were computed.

Considering the special measurement conditions the evaluation method was discussed in detail. It could be proved that the melting of the specimen surface did not cause inadmissible errors. In addition a method to increase the sensitivity of the evaluation was given. The spectral absorption coefficient  $K$  in the visible spectral region was calculated from the spectral course of the absorption constant  $k$ . The different spectral courses of the absorption coefficient of UC and ThC, respectively, gave information on the electronic structure of UC, especially on the 5f-electrons of uranium carbide.

## Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung und Zielsetzung der Arbeit	1
2. Die physikalische Bedeutung der optischen Konstanten	4
3. Die Bestimmung der optischen Konstanten aus Reflexions- messungen	7
3.1 Die Reflexion von polarisiertem Licht	7
3.2 Die Auswahl des geeigneten Meßverfahrens zur Bestimmung der optischen Konstanten	13
3.3 Die Optimierung des gewählten Meßverfahrens	23
4. Die Temperaturmessung	32
4.1 Das Pyrometer	32
4.2 Die Strahlungsgesetze	35
4.3 Die Berechnung der Temperatur aus den elektrischen Signalen des Pyrometers	39
4.4 Übertragung der Eichpunkte von Wolframbandlampen auf andere Wellenlängen	42
5. Die Bestimmung des spektralen Emissionsgrades und die Abschätzung des Strahlungsanteils der Wärmeleitfähigkeit	46
5.1 Der spektrale Emissionsgrad $\epsilon_{\lambda}(T)$	46
5.2 Die Abschätzung des Strahlungsanteils $K_{\text{rad}}(T)$ der Wärmeleitfähigkeit von Schmelzen aus Urancarbid bzw. Thoriumcarbid	50
6. Die Charakterisierung und Präparation der Meßproben	55
6.1 Die Charakterisierung des Probenmaterials	56
6.1.1 Urancarbid (UC)	56
6.1.2 Thoriumcarbid (ThC)	57
6.2 Die Herstellung von Pellets aus Thoriumcarbid durch Heißpressen	57
6.3 Die Präparation der Meßproben	64

	Seite
7. Die Beschreibung des Versuchsaufbaus und der Durchführung der Experimente	66
7.1 Das Kugelreflektometer	66
7.2 Die Lichtquelle und der optischen Detektor	71
7.3 Das Aufschmelzen der Proben mit einem Leistungslaser	73
7.4 Die Einstellung des Polarisationszustandes und des Reflexionswinkels	78
7.5 Der Reflexionsstandard	79
7.6 Der Ablauf der Messungen und die Erfassung der Meßdaten	80
7.7 Die Auswertung der Meßdaten	82
8. Die Ergebnisse der Messungen	84
8.1 Der spektrale Reflexionsgrad	84
8.2 Die optischen Konstanten	95
8.3 Der spektrale Emissionsgrad	100
8.4 Die Bestimmung der Schmelztemperatur	103
9. Die Diskussion der Meßergebnisse	106
10. Die Fehleranalyse zu den Experimenten	111
10.1 Der Fehler bei der Bestimmung der optischen Konstanten	111
10.2 Der Fehler bei der Bestimmung der Oberflächentemperatur der Meßproben	117
10.3 Der Einfluß der Unsicherheit des Reflexionswinkels und der Streubreite der Meßwerte auf die Berechnung der optischen Konstanten	120
10.4 Der Einfluß des Polarisationsgrades des zu reflektierenden Lichts	122
10.5 Abschätzung der aus der Verwendung von fokussiertem Licht resultierenden Fehler	125
10.6 Die Berechnung der durch die Bildung von Schmelzkratern auf der Probenoberfläche verursachten Fehlern	126



Seite

11. Zusammenfassung

128

12. Anhang

132

13. Literaturverzeichnis

141

## 1. Einleitung und Zielsetzung der Arbeit

Bei der Entwicklung fortgeschrittener Brennelemente für schnelle Brutreaktoren wird immer wieder auch die Verwendung von Urancarbid als Brennstoff in Betracht gezogen /1,2/.

Dieses Material hat eine im Vergleich zu Uranoxid höhere Urandichte, eine bessere Wärmeleitfähigkeit und eine geringere Spaltgasfreisetzung. Der höhere Brutgewinn von UC in schnellen Reaktoren hat außerdem eine kürzere Verdopplungszeit des spaltbaren Inventars zu Folge. Dieser Vorteil würde sich insbesondere dann auswirken, wenn die Erzexploration schwierig werden sollte und/oder der Energiebedarf stark ansteige /3/.

Für die Analyse der Sicherheit von Kernreaktoren ist die Kenntnis der thermophysikalischen Eigenschaften von geschmolzenem Brennstoff von großer Bedeutung. Wegen der hohen Schmelztemperaturen der keramischen Brennstoffe sind experimentelle Untersuchungen der flüssigen Phase dieser Materialien in der Regel mit großen Schwierigkeiten verbunden.

Die Genauigkeit theoretischer Voraussagen über das Verhalten von geschmolzenem Urancarbid wird durch den Umstand beeinträchtigt, daß die elektronische Struktur dieser Verbindung nicht vollständig bekannt ist. Einer der Gründe dafür ist die bislang nicht geklärte Rolle der 5f-Elektronen des Uranatoms. Wesentliche Fragen ließen sich klären, wenn bekannt wäre, ob die 5f-Zustände im Energieschema von UC über mehr oder weniger breite Energiebereiche verteilt sind, oder ob ihre Energie sehr genau festgelegt ist /4,5/. Im ersten Fall würde man von einer Bandstruktur, im zweiten Fall von lokalisierten Zuständen sprechen.

Die Anregung von Elektronen durch elektromagnetische Strahlung hat sich als Methode zur Untersuchung der elektronischen Struktur von Festkörpern bewährt /4/. In der Regel bedingen solche Meßverfahren einen großen mathematischen Aufwand, da die Experimente nicht die absoluten Energien der jeweils angeregten Elektronenzustände, sondern lediglich die Energiedifferenzen zwischen den Grundzuständen und den angeregten Zuständen liefern.

Glücklicherweise kann dieses Problem bei Urancarbid umgangen werden, wenn Vergleichsmessungen an Thoriumcarbid durchgeführt werden, denn Thoriumcarbid besitzt keine 5f-Elektronen. Da ThC die gleiche Kristallstruktur aufweist wie UC können auch für die flüssigen Phasen beider Materialien identische Strukturen erwartet werden. Deshalb können alle registrierten Unterschiede im Verhalten beider Stoffe dem Einfluß der 5f-Elektronen zugeschrieben werden.

Licht aus dem sichtbaren Bereich des elektromagnetischen Spektrums besteht aus Photonen mit Energien zwischen etwa 1,5 eV und 3,2 eV. Übergänge zwischen Zuständen, die weniger als 1,5 eV oder mehr als 3,2 eV auseinanderliegen, können durch Messungen mit Licht deswegen nicht festgestellt werden, sofern man nicht die mit nur sehr geringer Wahrscheinlichkeit auftretenden Mehr-Photonen-Anregungen in Betracht zieht.

Da die Anregung von Elektronen mit der Absorption von Licht verbunden ist, können aus dem spektralen Verlauf des Absorptionskoeffizienten, dem sogenannten Absorptionsspektrum, Rückschlüsse auf die elektronische Struktur des untersuchten Materials gezogen werden.

Die Absorptionskoeffizienten von keramischen Schmelzen sind direkten Messungen nicht zugänglich. Sie können jedoch indirekt aus Reflexionsmessungen gewonnen werden. Reflexionsmessungen mit polarisiertem Licht ermöglichen die Bestimmung

der optischen Konstanten, nämlich des Brechungsindex und der Absorptionskonstante. Der gesuchte spektrale Verlauf des Absorptionskoeffizienten kann durch eine Umrechnung aus dem spektralen Gang der Absorptionskonstante ermittelt werden /6/.

Zusätzlich kann aus den Reflexionsdaten der für pyrometrische Temperaturbestimmungen notwendige spektrale Emissionsgrad berechnet werden. Schließlich ermöglicht die Kenntnis des spektralen Verlaufs der optischen Konstanten die Abschätzung der Strahlungswärmeleitfähigkeit. Damit werden Aussagen über den Energietransport in Schmelzen aus UC bzw. ThC ermöglicht, die insbesondere im Rahmen von Reaktorsicherheitsanalysen von Bedeutung sind.

Das Ziel der Arbeit besteht darin, den Verlauf der oben erwähnten optischen Stoffdaten, nämlich des spektralen Reflexionsgrades, des spektralen Emissionsgrades und der optischen Konstanten, im Temperaturbereich zwischen dem Schmelzpunkt der Materialien (2780 K) und etwa 4000 K bei mehreren Wellenlängen innerhalb des sichtbaren Spektralbereiches zu messen.

## 2. Die physikalische Bedeutung der optischen Konstanten

Die Absorptionskonstante  $k$  und der Brechungsindex  $n$  werden gemeinsam als die 'optische Konstanten' bezeichnet. Allerdings ist die Verwendung des Begriffs 'Konstanten' in diesem Zusammenhang etwas irreführend, weil beide Größen in der Regel sowohl von der Wellenlänge als auch von der Temperatur abhängen.

Durch die optischen Konstanten werden, ganz allgemein gesagt, die Wechselwirkungen zwischen elektromagnetischer Strahlung und Materie charakterisiert. Sie bestimmen beispielweise, welcher Anteil des einfallenden Lichts von der Grenzfläche zweier Medien reflektiert bzw. durch sie transmittiert wird. Die Kenntnis der beiden Größen  $n$  und  $k$  ermöglicht aber ebenso die Berechnung der Energiemenge, die innerhalb eines erhitzten Körpers von thermischer Strahlung transportiert wird. Während dabei der Brechungsindex  $n$  Einfluß auf die spektrale Verteilung der thermischen Strahlung hat, wird durch die Absorptionskonstante deren Reichweite bestimmt /7/.

Die Strahlungswärmeleitfähigkeit  $k_{\text{rad}}$  ist umso größer, je größer die Reichweite der thermischen Strahlung im betreffenden Material ist. Ein Maß für die Reichweite ist die sogenannte mittlere Eindringtiefe  $\bar{d}$ , deren Kehrwert der Absorptionskoeffizient  $K$  ist. Die Absorptionskonstante  $k$  (dimensionslos) hängt vom Absorptionskoeffizienten  $K$  (Einheit 1/cm) über folgende Gleichung ab:

$$K = \frac{1}{\bar{d}} = \frac{4 \cdot \pi \cdot k}{\lambda} \qquad 2-1$$

$\lambda$  ist die Wellenlänge der Strahlung.

Der Absorptionskoeffizient  $K$  gibt an, in welchem Maß die Intensität einer fortlaufenden, ebenen Welle gedämpft wird.

Es gilt

$$I(x) = I_0 \cdot \exp(-K \cdot x) . \quad 2-2$$

$I_0$  ist die ursprüngliche Intensität der Strahlung und  $x$  ist der im Material zurückgelegte Weg.

Die genauen physikalischen Zusammenhänge werden in den nachfolgenden Kapiteln 3 und 5 ausführlich beschrieben.

Die Absorptionskonstante  $k$  und der Brechungsindex  $n$  können als Imaginär- bzw. Realteil des komplexen Brechungsindex  $N$  aufgefaßt werden, der wie folgt definiert ist:

$$N = n - i k . \quad 2-3$$

Diese Definition ermöglicht die Übertragung optischer Gesetze (z.B. des Snellius'schen Brechungsgesetzes), der ursprünglich für Dielektrika (elektrisch nicht leitende Stoffe) hergeleitet wurden, auf leitende Materialien. Zu den elektrisch leitenden Stoffen zählen nicht nur die Metalle, sondern auch die Halbleiter und die semimetallischen Verbindungen.

Für Dielektrika (z.B. Glas, Quarz, Wasser) ist die Absorptionskonstante im sichtbaren Teil des Spektrums in der Regel sehr klein. Deswegen sind sie durchsichtig. Metalle hingegen weisen in diesem Spektralbereich große Werte der Absorptionskonstanten auf (typisch  $2-10 / 8 /$ ), und sind deshalb undurchsichtig.

Diese Aussagen sind jedoch nur für den sichtbaren Bereich des Spektrums (400 nm-750 nm)<sup>+)</sup> gültig. Wasser, zum Beispiel, ist für Strahlung mit Wellenlängen um 3  $\mu\text{m}$  praktisch undurchlässig, während Natrium für Strahlung mit Wellenlängen kleiner als 210 nm transparent wird.

<sup>+) 1 nm =  $10^{-3}$   $\mu\text{m}$  =  $10^{-9}$  m</sup>

Die optischen Konstanten sind dimensionslose Größen. Sie können jedoch in Abhängigkeit von den Materialkonstanten  $\epsilon$ ,  $\sigma$  und  $\mu$  dargestellt werden. Aus den Maxwell-Gleichungen lassen sich die folgenden Relationen ableiten / 7/:

$$n^2 = \frac{1}{2} \left( \left( u^2 \epsilon^2 + \frac{4\mu^2 \sigma^2}{v^2} \right)^{1/2} + \mu \cdot \epsilon \right), \quad 2-4$$

$$k^2 = \frac{1}{2} \left( \left( u^2 \epsilon^2 + \frac{4\mu^2 \sigma^2}{v^2} \right)^{1/2} + \mu \cdot \epsilon \right) \cdot \quad 2-5$$

$\epsilon$  ist die Dielektrizitätskonstante,  
 $\mu$  ist die magnetische Permeabilität,  
 $\sigma$  ist die elektrische Leitfähigkeit und  
 $v$  ist die Frequenz der elektromagnetischen Strahlung.

Gelegentlich findet man in der Literatur auch folgende Definition des komplexen Brechungsindex  $N$ :

$$N = n(1 - ik') \quad 2-6$$

wobei gilt:  $k = k' \cdot n$  . 2-7

Beide Definitionen des komplexen Brechungsindex  $N$  sind gleichwertig, beim Vergleich von Werten der Absorptionskonstante muß jedoch überprüft werden, welche der Definitionen verwendet wurde.

### 3. Die Bestimmung der optischen Konstanten aus Reflexionsmessungen

---

#### 3.1 Die Reflexion von polarisiertem Licht

Das Reflexionsverhalten einer Oberfläche wird durch eine Vielzahl von Faktoren beeinflusst. Dazu zählen die physikalischen Eigenschaften des Materials, die zum Beispiel durch die elektrische Leitfähigkeit, die magnetische Permeabilität und die Dielektrizitätskonstante charakterisiert werden können, aber auch die geometrischen Verhältnisse, unter denen die Reflexion stattfindet. Da aus dem Verhalten der Oberfläche Rückschlüsse auf die Eigenschaften des ganzen Materials gezogen werden ist die Präparation der Oberfläche, an der die Messungen durchgeführt werden, von entscheidender Bedeutung. So müssen Struktur und chemische Zusammensetzung des Materials an und in der Nähe der Oberfläche mit der des gesamten Materials genau übereinstimmen. Stoffe, die an Luft leicht oxidieren, sind deshalb während des gesamten Vorbereitungs- und Meßprozesses vor einem Kontakt mit der Atmosphäre unbedingt zu schützen.

Die Fresnelsche Theorie der Reflexion, die der Auswertung zugrunde liegt, ist ausschließlich für spiegelnde Reflexion gültig. Deshalb muß besonderes Augenmerk auf die mechanische Präparation der Meßflächen gerichtet werden. Löcher oder Krater in der Oberfläche oder Poren in deren unmittelbarer Nähe führen bei der Reflexion zu Lichtstreuung. Dieses Streulicht kann, besonders bei schwach absorbierenden Materialien die Messung in erheblichem Umfang verfälschen. Zu den einleitend erwähnten geometrischen Einflußgrößen zählen in erster Linie die Reflexionswinkel sowie der Polarisationszustand des zu reflektierenden Lichts.



Grundsätzlich gibt es eine große Anzahl von Verfahren zur Bestimmung der optischen Konstanten aus Reflexionsmessungen, wobei eine Unterteilung der verschiedenen Methoden in zwei große Gruppen möglich ist. Die erste Gruppe beinhaltet alle Meßmethoden, bei denen die Intensität des einfallenden und des reflektierten Lichtes bei verschiedenen Reflexionsbedingungen gemessen wird. Die zweite Gruppe besteht aus den sogenannten polarimetrischen Verfahren, bei denen die durch die Reflexion bedingte Änderung des Polarisationszustandes des Lichtes gemessen wird. Die folgenden Betrachtungen betreffen ausschließlich die erste Gruppe von Meßverfahren, da unter den durch die hohen Temperaturen (intensive thermische Strahlung) und die kurzen Meßzeiten vorgegebenen Bedingungen polarimetrische Meßverfahren nicht durchführbar sind.

Vor der detaillierten Beschreibung der grundsätzlich möglichen Meßmethoden soll der Einfluß des Reflexionswinkels und des Polarisationszustandes des zu reflektierenden Lichts auf den Reflexionsgrad  $r$  erläutert werden. Der Reflexionsgrad ist definiert als das Verhältnis von reflektierter zu eingestrahelter Lichtintensität und kann somit Werte zwischen 0 und 1 annehmen. Die zur Berechnung des Reflexionsverhaltens einer Materialoberfläche notwendige Mathematik wird von der allgemeinen Fresnelschen Theorie der Reflexion geliefert, die sich aus den Maxwell-Gleichungen ableiten läßt. Eine ausführliche Herleitung der Fresnelschen Gleichungen wird im Anhang gegeben. Zum Verständnis dieser Gleichungen sollen vorab die Begriffe "Einfallsebene", "Reflexionswinkel" und "Polarisationszustand" erläutert werden.

Die Einfallsebene wird vom einfallenden Strahl  $\vec{I}$  und der Normalen  $\vec{N}$  der Probenoberfläche aufgespannt. Die Darstellung in Abb. 3.1 ist so gewählt, daß die Einfallsebene in der Papierebene liegt. Der Reflexionswinkel  $\alpha$  ist der Winkel zwischen dem einfallenden Strahl und der Probennormalen.

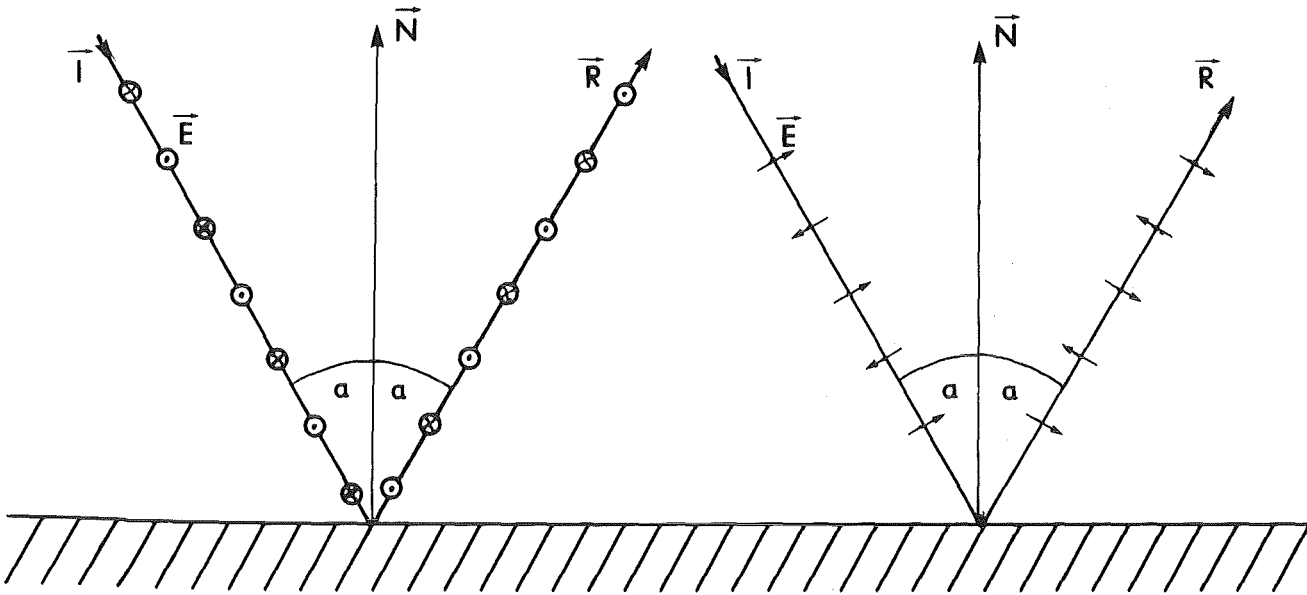


Abb.3.1: spiegelnde Reflexion von polarisiertem Licht

- |   |  |
|---|--|
| <p>a) einfallendes und reflektiertes Licht senkrecht zur Einfallsebene polarisiert.</p> | <p>b) einfallendes und reflektiertes Licht parallel zur Einfallsebene polarisiert.</p> |
|---|--|

Für den Polarisationszustand des Lichtes ist die Orientierung des Vektors der elektrischen Feldstärke  $\vec{E}$  entscheidend. Dieser Vektor schwingt immer senkrecht zur Ausbreitungsrichtung  $\vec{I}$  des Lichtes. Natürliches oder unpolarisiertes Licht ist ein Gemisch aus Lichtstrahlen, deren  $\vec{E}$ -Vektoren zeitlich und örtlich gleichmäßig über alle möglichen Orientierungen verteilt sind, so daß keine Orientierung ausgezeichnet ist. Bei linear polarisiertem Licht schwingen die  $\vec{E}$ -Vektoren aller Lichtstrahlen in der gleichen Ebene (senkrecht zur Ausbreitungsrichtung). Der Vollständigkeit halber sei noch das zirkular polarisierte Licht erwähnt, bei dem sich die Orientierungen der  $\vec{E}$ -Vektoren aller Lichtstrahlen mit konstanter Winkelgeschwindigkeit gleichphasig senkrecht zur Ausbreitungsrichtung drehen.

Bei linear polarisiertem Licht ergeben sich aus der Fresnelschen Theorie der Reflexion zwei besonders hervorgehobene Orientierungen des  $\vec{E}$ -Vektors. Für Licht, das senkrecht zur Einfallsebene polarisiert ist (Fall a in Abb.3.1), ist der Reflexionsgrad  $r$  für jeden Reflexionswinkel am größten, während er für Licht, das parallel zur Einfallsebene polarisiert ist (Fall b in Abb. 3.1), am kleinsten ist. Diese beiden Polarisationszustände werden mit den Indices "s" und "p" gekennzeichnet. Für den jeweiligen Reflexionsgrad gilt /9/:

$$r_s = \frac{(a - \cos \alpha)^2 + b^2}{(a + \cos \alpha)^2 + b^2} \quad 3-1$$

$$r_p = r_s \cdot \frac{(a - \sin \alpha \cdot \tan \alpha)^2 + b^2}{(a + \sin \alpha \cdot \tan \alpha)^2 + b^2} \quad 3-2$$

wobei die Größen  $a$  und  $b$  über die folgenden Gleichungen definiert sind:

$$a^2 = 0.5 \cdot \left( (n^2 - k^2 - \sin^2 \alpha) + \sqrt{(n^2 - k^2 - \sin^2 \alpha)^2 + 4n^2 k^2} \right), \quad 3-3$$

$$b^2 = 0.5 \cdot \left( -(n^2 - k^2 - \sin^2 \alpha) + \sqrt{(n^2 - k^2 - \sin^2 \alpha)^2 + 4n^2 k^2} \right). \quad 3-4$$

Dabei ist  $\alpha$  der Reflexionswinkel,  $n$  der Brechungsindex und  $k$  die Absorptionskonstante. Die Gleichungen 3-1 und 3-2 sind die sogenannten allgemeinen Fresnelschen Reflexionsgleichungen.

Für den Reflexionswinkel  $45^\circ$  gilt folgende Beziehung, auf die später noch Bezug genommen wird:

$$r_s^2 = r_p \quad 3-5$$

Für den Reflexionswinkel  $0^\circ$  ist für linear polarisiertes Licht keine Orientierung mehr ausgezeichnet. Es gilt die Beziehung

$$r(0^\circ) = r_p(0^\circ) = r_s(0^\circ) = \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2}, \quad 3-6$$

die zur Berechnung der Reflexionsverluste an Fenstern allgemein Verwendung findet. Unpolarisiertes oder natürliches Licht kann man als Linearkombination der beiden Polarisationszustände  $s$  und  $p$  auffassen. Deshalb gilt für den Reflexionsgrad  $r$  für natürliches Licht:

$$r(\alpha) = 0.5(r_p(\alpha) + r_s(\alpha)). \quad 3-7$$

In der Abbildung 3.2 ist zur Veranschaulichung die Abhängigkeit folgender Größen vom Reflexionswinkel für ein Material mit dem Brechungsindex  $n=1.8$  und der Absorptionskonstanten  $k=1.8$  dargestellt:

Reflexionsgrad  $r$  für natürliches Licht: Kurve R,  
Reflexionsgrad  $r_p$  für parallel zur Einfallsebene polarisiertes Licht: Kurve P,  
Reflexionsgrad  $r_s$  für senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht: Kurve S,  
Verhältnis  $v$  von  $r_p$  zu  $r_s$ : Kurve V.

Die mit R, P und S bezeichneten Kurven haben beim Reflexionswinkel  $0^\circ$  den Wert  $r(0^\circ)$  (siehe Glg. 3-6). Während der Reflexionsgrad für senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht  $r_s$  mit steigendem Reflexionsgrad monoton auf den Wert 1 bei  $90^\circ$  ansteigt, bleibt der Wert des Reflexionsgrades für natürliches Licht  $r$  bis zu einem Reflexionswinkel von etwa  $40^\circ$  praktisch konstant, um danach ebenfalls auf den Wert 1 bei  $90^\circ$  anzusteigen. Die mit P und V bezeichneten Kurven verhalten sich anders. Beide fallen zunächst mit größer

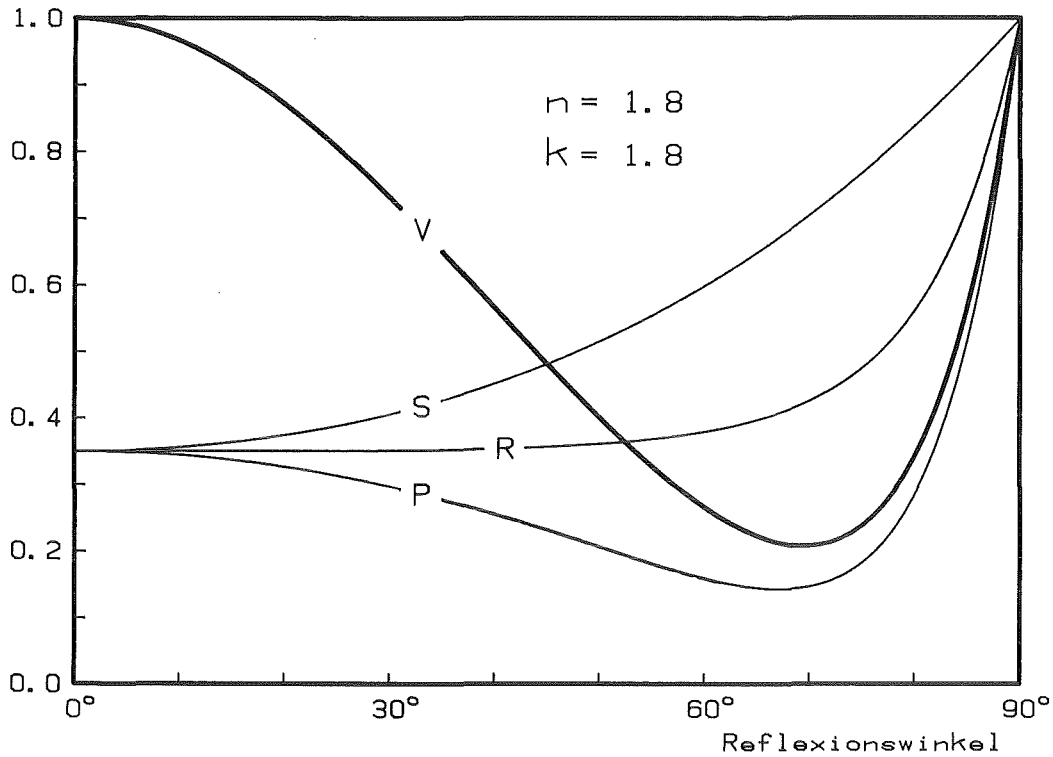


Abb.3.2: die Winkelabhängigkeit des Reflexionsgrades für unpolarisiertes Licht (R), für parallel zur Einfallsebene (P) sowie senkrecht dazu polarisiertes Licht (S) und des Reflexionsgradverhältnisses  $r_p/r_s$  (V).

werdendem Reflexionswinkel, um erst nach dem Durchlaufen eines Minimums, das für beide Kurven nicht identisch ist, auf den Wert 1 bei  $90^\circ$  anzusteigen.

Abweichend von den anderen Kurven hat die mit V bezeichnete Kurve beim Reflexionswinkel  $0^\circ$  den Wert 1. Es muß betont werden, daß diese Kurve, im Gegensatz zu den drei anderen Kurven, kein physikalisches Verhalten repräsentiert, sondern eine mathematische Konstruktion darstellt, die allerdings, wie später deutlich wird, besonders aussagekräftig ist. Der Winkel  $\alpha_p$ , bei dem der Reflexionsgrad  $r_p$  für parallel zur Einfallsebene polarisiertes Licht ein Minimum durchläuft, wird Brewster-Winkel genannt. Sein, von den optischen Konstanten  $n$  und  $k$ , abhängiger Wert ist die Lösung der folgenden kubischen Gleichung, deren Ableitung man z.B. bei Humphreys-Owen /10/ finden kann:

$$2(p^2+q) \cdot u^3 + p^2(p^2-3) \cdot u^2 - 2p^4 \cdot u + p^4 = 0$$

3-8

wobei gilt:  $u = \sin^2(\alpha_B)$   
 $p = n^2 + k^2$   
 $q = n^2 - k^2$  .

Um den Einfluß der numerischen Werte der optischen Konstanten auf den Verlauf der Reflexionsgrade für die verschiedenen Polarisationszustände zu demonstrieren, ist deren Verlauf für 15 verschiedene Wertekombination der optischen Konstanten  $n$  und  $k$  in der Abbildung 3.3 dargestellt. Man kann mehrere Charakteristika erkennen. Je größer der Wert der Absorptionskonstante  $k$  wird, umso ausgeprägter wird das Minimum von  $r_p$ , wobei der Wert des Minimums umso kleiner ist, je kleiner (bei gleichem Wert des Brechungsindex  $n$ ) der Wert der Absorptionskonstanten  $k$  ist. Der Reflexionswinkel, bei dem das Minimum von  $r_p$  auftritt, ist (bei gleichem Wert der Absorptionskonstante  $k$ ) umso größer, je größer der Wert des Brechungsindex  $n$  ist. Bei großen Werten der Absorptionskonstante  $k$  durchläuft auch der Reflexionsgrad für natürliches Licht ein, allerdings schwach ausgeprägtes, Minimum.

### 3.2 Auswahl des geeigneten Meßverfahrens zur Bestimmung der optischen Konstanten

Eine allgemeine Übersicht über die Gruppe der nicht-polarimetrischen Methoden zur Bestimmung der optischen Konstanten aus Reflexionsmessungen wurde 1960 von Humphreys-Owen /10/ gegeben. Die von ihm eingeführte Klassifizierung werde ich für die folgenden Ausführungen beibehalten.

Klasse I beinhaltet Meßmethoden, die grundsätzlich bei beliebigen Reflexionswinkeln durchgeführt werden können.

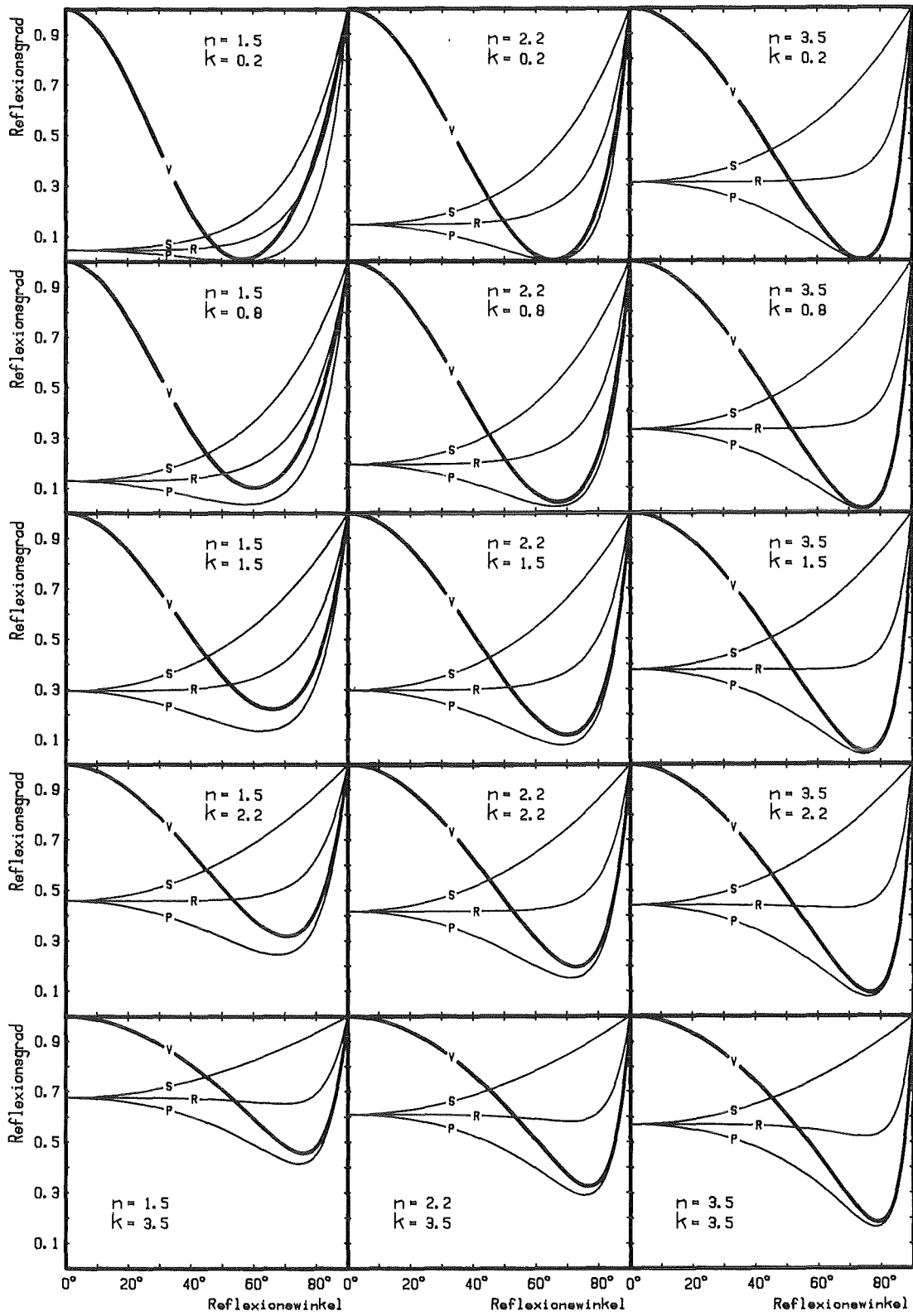


Abb.3.3: die Winkelabhängigkeit von  $r$ ,  $r_p$ ,  $r_s$  und  $v$  für verschiedene Wertekombinationen der optischen Konstanten.

- Methode A: Messung des Reflexionsgrades  $r$  für natürliches, unpolarisiertes Licht (R) bei mindestens zwei Reflexionswinkeln.
- Methode B: Messung des Reflexionsgrades  $r_p$  für parallel zur Einfallsebene polarisiertes Licht (P) bei mindestens zwei Reflexionswinkeln.
- Methode C: Messung des Reflexionsgrades  $r_s$  für senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht (S) bei mindestens zwei Reflexionswinkeln.
- Methode D: Bestimmung des Verhältnisses  $r_p/r_s$  (V) bei mindestens zwei Reflexionswinkeln.
- Methode E: Messung des Reflexionsgrades sowohl für parallel (P) als auch für senkrecht (S) zur Einfallsebene polarisiertes Licht bei mindestens einem Reflexionswinkel.

Die Klasse II der Meßmethoden nach Humphreys-Owen enthält die Meßverfahren, bei denen zuerst der Brewsterwinkel bestimmt werden muß, und danach der Reflexionsgrad für einen der Polarisationszustände bei unter beim Brewster - Winkel einfallendem Licht. Ich möchte auf diese Gruppe von Meßmethoden nicht näher eingehen, da eine Bestimmung des Brewsterwinkels unter den im Rahmen dieser Arbeit gegebenen Meßbedingungen nicht möglich ist.

Jede der Methoden A bis E hat spezifische Vor- und Nachteile, sowohl im Hinblick auf die Durchführung der Messungen als auch auf die mathematische Sensitivität bezüglich der Berechnung der optischen Konstanten aus den Meßwerten.

Methode A läßt als einziges Verfahren die Verwendung von unpolarisiertem Licht zu. Damit ist sie grundsätzlich für Messungen in Spektralbereichen geeignet, in denen eine Polarisation des zu reflektierenden Lichtes schwierig ist



(z.B. fernes UV). Es wurde jedoch berichtet /11/, daß selbst dann, wenn die Reflexionswinkel weit auseinander liegen, die Sensitivität dieser Methode nicht groß ist. Weit auseinander liegende Reflexionswinkel haben zur Folge, daß sehr unterschiedlich große Bereiche der Probenoberfläche vom einfallenden Strahl beleuchtet werden, was im Hinblick auf die erforderliche Homogenität der Meßfläche höhere Anforderungen an die Probenpräparation zur Folge hat. In der Abbildung 3.4 ist in graphischer Form der Zusammenhang zwischen den Meßwerten  $r(20^\circ)$  und  $r(70^\circ)$  und den sich daraus ergebenden optischen Konstanten  $n$  und  $k$  dargestellt. Diese Reflexionswinkel wurden von Simon /12/ angegeben.

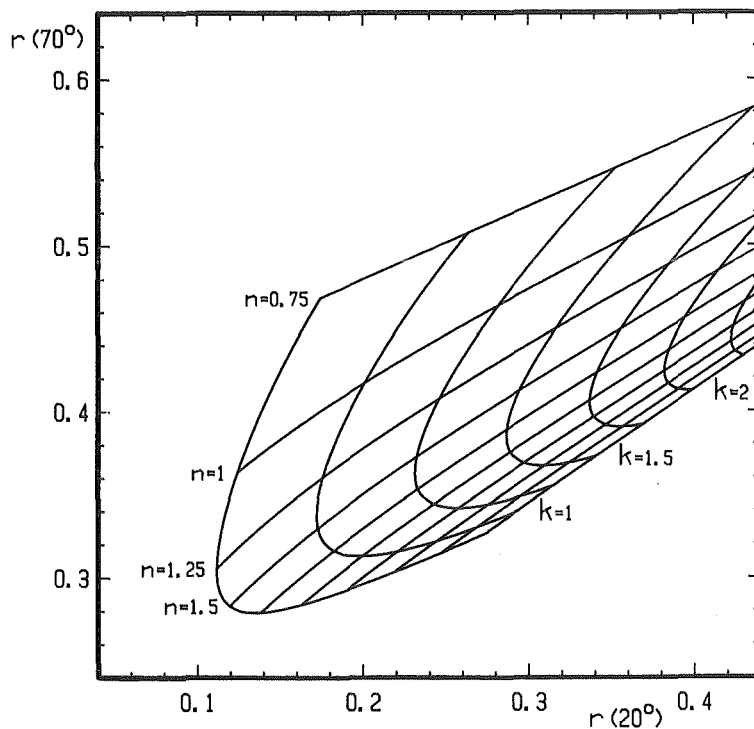


Abb. 3.4: der Zusammenhang zwischen dem bei den Reflexionswinkeln  $20^\circ$  und  $70^\circ$  gemessenen Reflexionsgrad  $r$  für natürliches Licht und den damit berechneten optischen Konstanten.

Neben der Möglichkeit einer direkten Bestimmung der optischen Konstanten ohne rechnerischen Aufwand bietet diese Art der Darstellung einen weiteren Vorteil. Man erhält eine direkte Aussage über die Wertebereiche der optischen Konstanten, in denen mit einer guten Sensitivität des Verfahrens gerechnet werden kann. Sie ist näherungsweise proportional zur Maschenweite des n-k-Netzes im Bereich des ermittelten n-k-Wertepaares. Dabei bedeutet eine große Maschenweite, daß Fehler der Meßgrößen,  $r(20^\circ)$  und  $r(70^\circ)$ , relativ kleine Unsicherheiten bei der Ermittlung der optischen Konstanten zur Folge haben, während andererseits kleine Maschenweiten eine größere Meßgenauigkeit erforderlich machen. Man sieht deutlich, daß die Sensitivität des Verfahrens für Werte des Brechungsindex  $n$  kleiner als 2 recht gut ist, mit größer werdenden Werten von  $n$  jedoch stark abnimmt.

Die Methoden B und C unterscheiden sich dadurch, daß im Fall B ausschließlich parallel zur Einfallsebene polarisiertes Licht (P) verwendet wird, während im Fall C nur senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht (S) zur Anwendung gelangt. Analog zur Darstellung in Abb. 3.4 sind in Abbildung 3.5 die n-k-Netze für die drei verschiedenen Kombinationen der Reflexionswinkel  $45^\circ$ ,  $59^\circ$  und  $71^\circ$  dargestellt. Während die Kombination  $45^\circ/59^\circ$  ebenfalls keine gute Auflösung bietet wenn der Brechungsindex größer als 2 wird, zeigen die beiden anderen, insbesondere die Kombination  $45^\circ/71^\circ$ , im gesamten dargestellten Wertebereich der optischen Konstanten zwischen 1 und 4 eine relativ große Maschenweite.

In der Abbildung 3.6 sind die Ergebnisse für den Fall C dargestellt. Wieder wurden die Reflexionswinkel  $20^\circ$  und  $70^\circ$  gewählt. Das stark verzerrte Netz bietet ebenfalls bei sehr kleinen Werten sowohl des Brechungsindex  $n$  als auch der Absorptionskonstanten  $k$  eine verwertbare Auflösung.

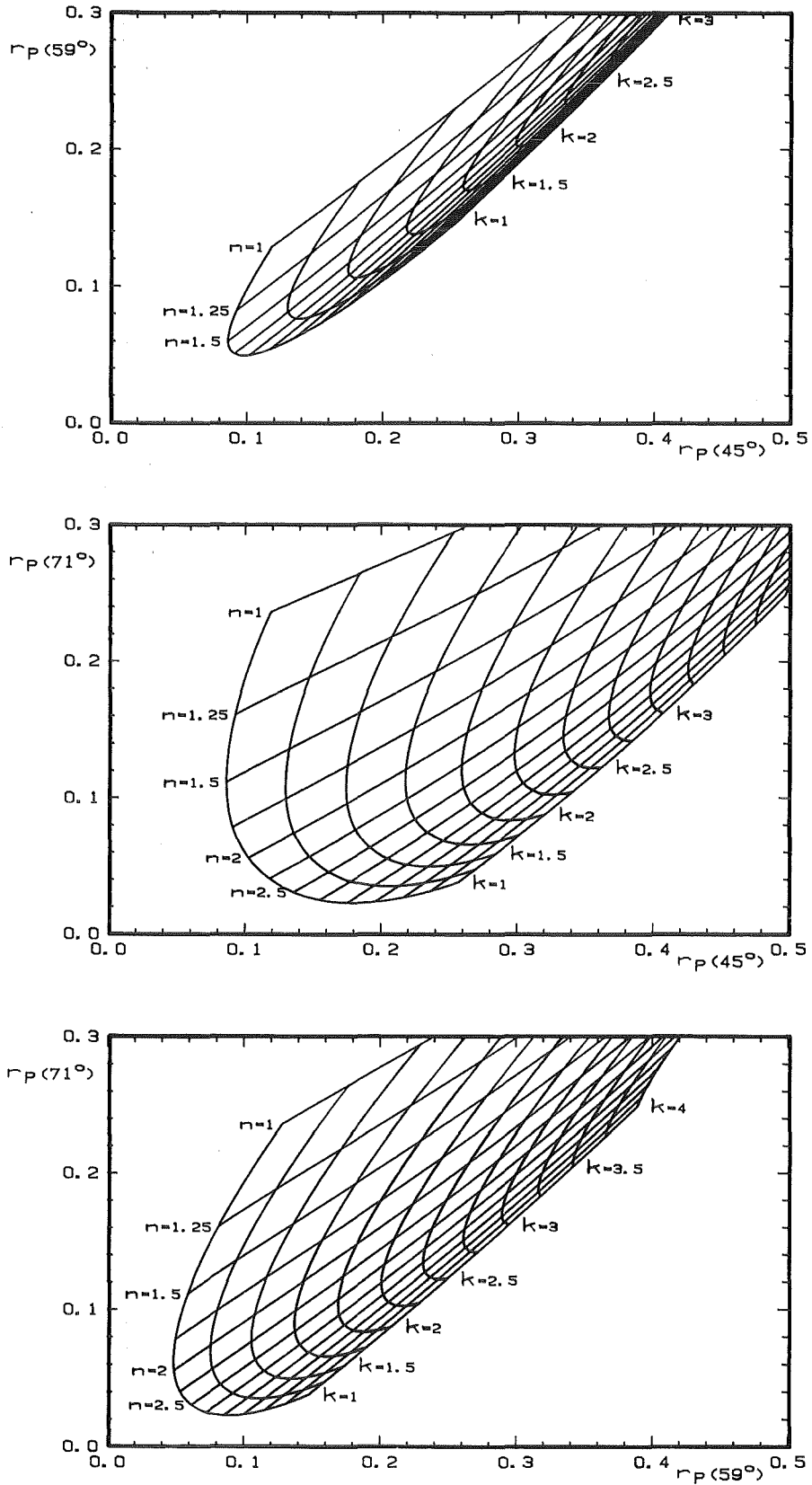


Abb.3.5: der Zusammenhang zwischen dem bei den Reflexionswinkeln  $45^\circ$ ,  $59^\circ$  und  $71^\circ$  gemessenen Reflexionsgrad für parallel zur Einfallsebene polarisiertes Licht  $r_p$  und den aus jeweils zwei Meßwerten berechneten optischen Konstanten.

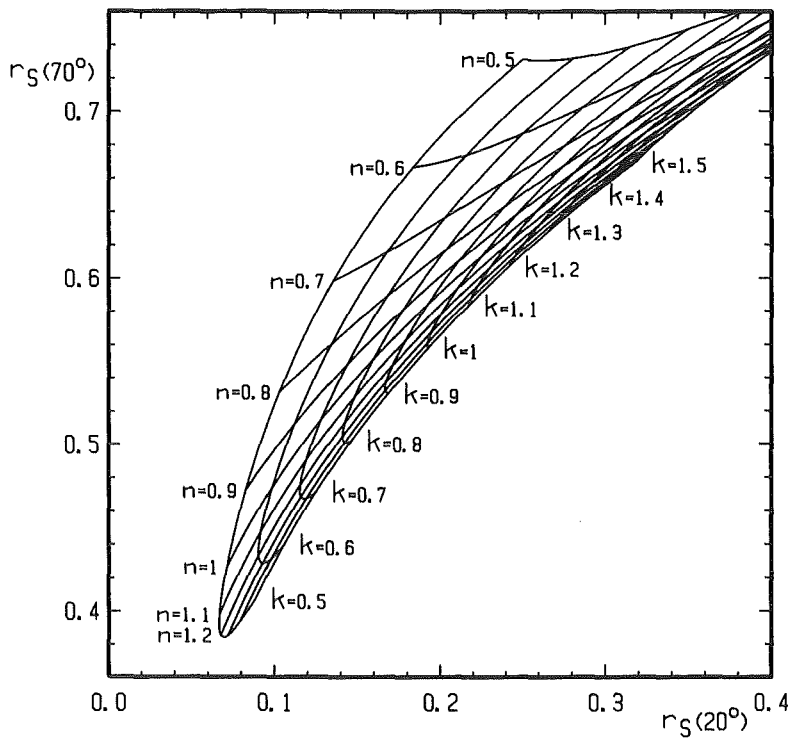


Abb.3.6: der Zusammenhang zwischen dem bei den Reflexionswinkeln  $20^\circ$  und  $70^\circ$  gemessenen Reflexionsgrad für senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht  $r_s$  und den damit berechneten optischen Konstanten.

In Anbetracht dieses sehr eingeschränkten Wertebereiches erscheint dieses Verfahren nur bedingt verwendbar.

Der Fall E, also die Messung des Reflexionsgrades sowohl für parallel als auch für senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht, ist in Abbildung 3.7 für die drei Reflexionswinkel  $60^\circ$ ,  $70^\circ$  und  $80^\circ$  dargestellt. Man erkennt, daß diese Methode erst bei sehr großen Reflexionswinkeln eine gute Sensitivität erreicht. Gerade große Reflexionswinkel sind experimentell nicht einfach zu realisieren, da Störungen in der Oberfläche der Meßproben umso größere Meßfehler zur Folge haben, je größer der Reflexionswinkel ist.

Abgesehen von ihren spezifischen Nachteilen haben die Methoden A bis C und E einen gemeinsamen Nachteil, nämlich die Notwendigkeit der absoluten Messung der einfallenden und der reflektierten Lichtintensitäten, da nur so der jeweils benötigte Reflexionsgrad bestimmt werden kann.

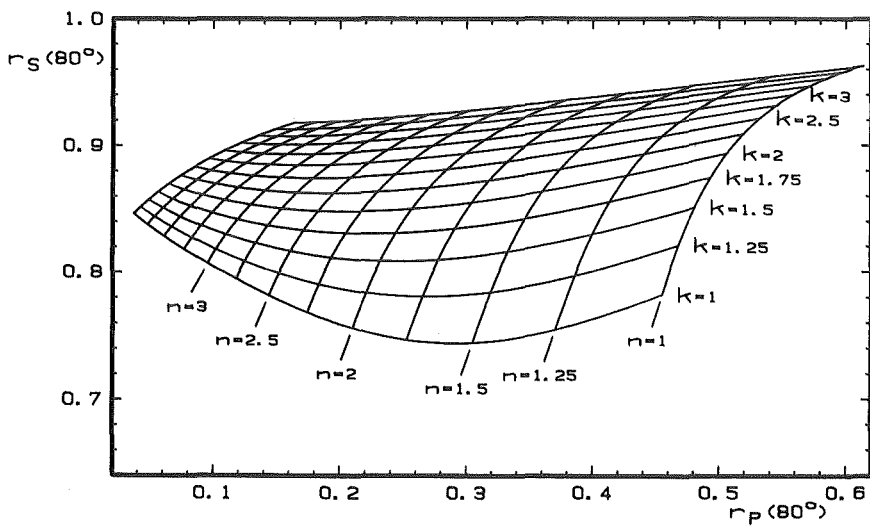
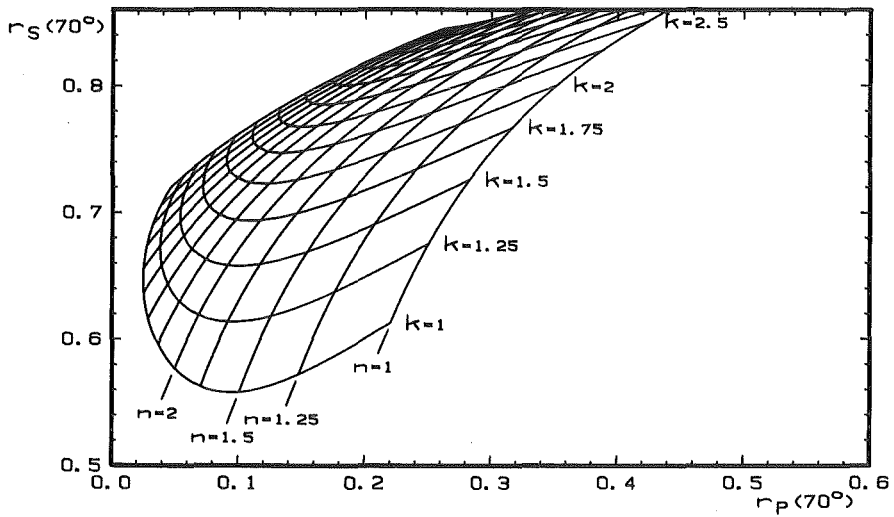
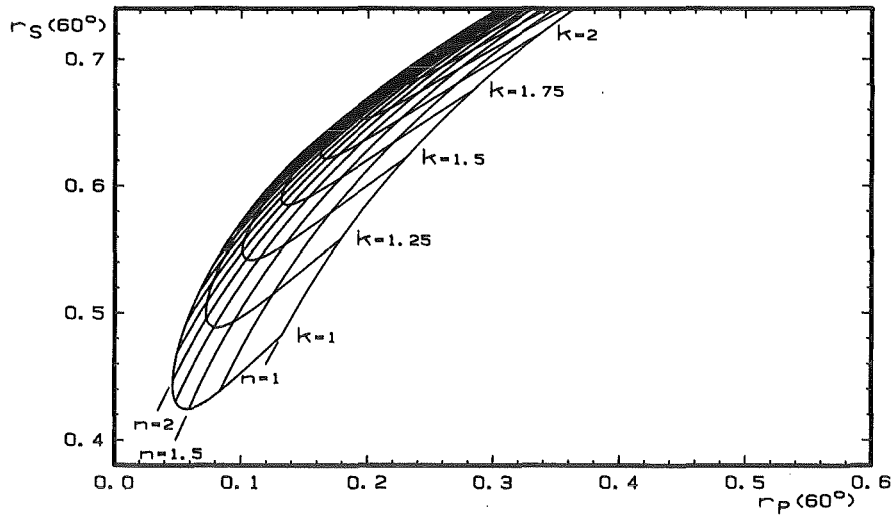


Abb.3.7: der Zusammenhang zwischen den bei den Reflexionswinkeln  $60^\circ$ ,  $70^\circ$  und  $80^\circ$  gemessenen Reflexionsgraden  $r_p$  bzw.  $r_s$  und den damit berechneten optischen Konstanten.

Unter bestimmten Voraussetzungen kann man bei Messungen nach Methode E allerdings auf Absolutmessungen verzichten, denn man kann sich eine Besonderheit der Fresnelschen Gleichungen zunutze machen. Wie bereits oben erwähnt wurde gilt beim Reflexionswinkel  $45^\circ$  die Beziehung  $r_s^2 = r_p$  (Glg. 3-5). Der Meßwert M hängt mit dem Reflexionsgrad r über folgende Beziehung zusammen:

$$r = f \cdot M \quad 3-9$$

f ist der Skalierungsfaktor. Kombiniert man die Gleichungen 3-5 und 3-9, dann erhält man für den Skalierungsfaktor f:

$$f = \frac{M_p(45^\circ)}{(M_s(45^\circ))^2} \quad 3-10$$

Diese Beziehung läßt sich aber nur dann verwenden, wenn gewährleistet ist, daß der vom Meßsystem abhängende Skalierungsfaktor f bei allen verwendeten Reflexionswinkeln den gleichen Wert hat, was im allgemeinen bei Verwendung von Abbildungsoptiken und/oder Umlenkspiegeln nicht gewährleistet ist /13/.

Die Methode D, (die erstmals von Avery /9 / vorgeschlagen wurde, unterscheidet sich von den anderen Verfahren vor allem dadurch, daß es nicht nötig ist, die Meßsignale zu normieren. Unter der Voraussetzung, daß sich die Intensität des einfallenden Strahls nicht kurzzeitig ändert, ergibt sich das in die Berechnung der optischen Konstanten eingehende Verhältnis v einfach zu

$$v(\alpha) = \frac{r_p(\alpha)}{r_s(\alpha)} = \frac{f(\alpha) \cdot M_p(\alpha)}{f(\alpha) \cdot M_s(\alpha)} = \frac{M_p(\alpha)}{M_s(\alpha)} \quad 3-11$$

Man sieht, daß der Skalierungsfaktor f nicht mehr winkelunabhängig sein muß. In der Abbildung 3.8 sind die n-k-Netze

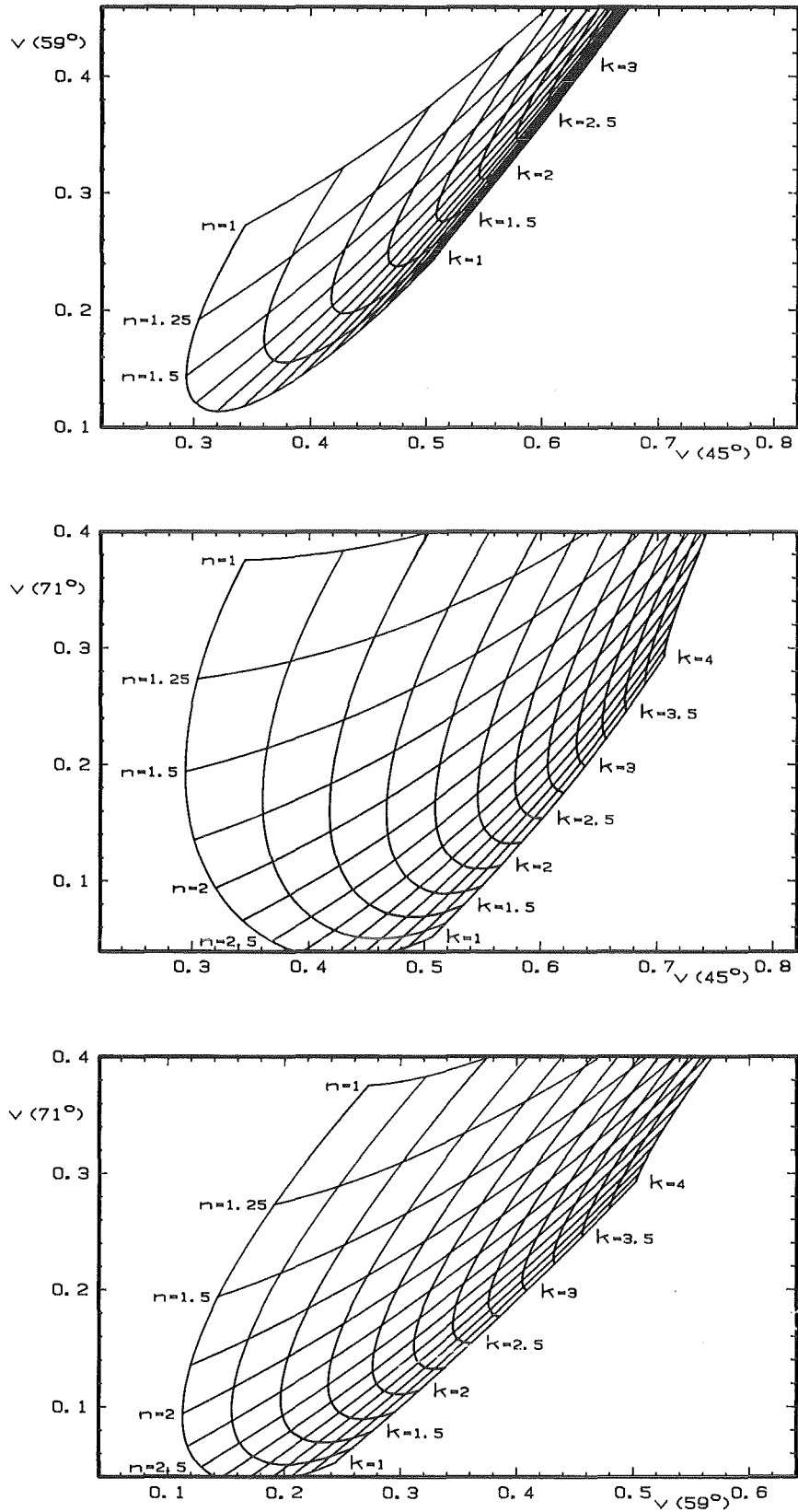


Abb. 3.8: der Zusammenhang zwischen den bei den Reflexionswinkeln  $45^\circ$ ,  $59^\circ$  und  $71^\circ$  gemessenen Reflexionsgradverhältnissen  $v$  und den aus jeweils zwei Meßwerten berechneten optischen Konstanten.

für die drei Kombinationen von jeweils zwei der drei Reflexionswinkel  $45^\circ$ ,  $59^\circ$  und  $71^\circ$  dargestellt. Die n-k-Netze haben eine ähnliche Form wie die in Abbildung 3.5. Bei genauer Betrachtung wird deutlich, daß insbesondere die Sensitivität bezüglich des Brechungsindex n deutlich höher als bei Methode B (parallel zur Einfallsebene polarisiertes Licht) ist. Allerdings zeigt auch die Methode D bei der Winkelkombination  $45^\circ/59^\circ$  für größere Werte von n keine gute Auflösung.

Im direkten Vergleich aller Methoden schneidet die Methode D am besten ab, da sie einerseits auch noch für große Werte der optischen Konstanten eine gute Auflösung der n-k-Netze bietet und andererseits nur Relativmessung der Intensität des reflektierten Lichtes erfordert. Betrachtet man noch einmal den Verlauf der Kurven in Abbildung 3.2, so fällt auf, daß die Verfahren umso sensitiver sind, je weniger monoton der Gang des betreffenden Reflexionsgrades mit dem Reflexionswinkel ist.

Die Abbildungen 3.5, 3.7 und 3.8 machen deutlich, daß die Sensitivität der Meßmethoden nicht zuletzt von der Wahl geeigneter Reflexionswinkel abhängt. Nachfolgend wird ausführlich ein Verfahren beschrieben, das, aufbauend auf den von Tousey /14/ eingeführten "Isoreflectance"-Kurven, eine gute Anpassung der Reflexionswinkel an das zu untersuchende Material ermöglicht.

### 3.3 Die Optimierung des gewählten Meßverfahrens

Im ersten Abschnitt dieses Kapitels wurde gezeigt, daß sich der Reflexionsgrad einer Materialoberfläche, das heißt das Verhältnis von reflektierter zu einfallender Lichtintensität, als Funktion des Brechungsindex n, der Absorptionskonstanten k und Reflexionswinkels  $\alpha$  für jeden der beiden



Polarisationszustände P und S, sowie für beliebige Mischungen der beiden, darstellen läßt. Während der Reflexionswinkel und der Polarisationszustand eindeutig festgelegt werden können, gibt es beliebig viele Wertekombinationen der optischen Konstanten n und k, die die Gleichungen 3-1 und 3-2 erfüllen.

Alle diese n-k-Paare liegen auf durch diese Gleichungen definierten Kurven in der n-k-Ebene, wobei jeder Polarisationszustand bei jedem Reflexionswinkel durch eine einzige Kurve repräsentiert wird. Diese Kurven werden im anglo-amerikanischen Sprachraum als "Isoreflectance"-Kurven, also Kurven gleichen Reflexionsgrades bezeichnet / g /. Sie können sowohl für unpolarisiertes Licht (R), als auch für parallel (P) oder senkrecht (S) zur Einfallsebene polarisiertes Licht sowie für das Reflexionsgradverhältnis v (V) dargestellt werden. Die folgenden Betrachtungen können auf jeden der aufgezählten Zustände übertragen werden. Um den Rahmen der Arbeit nicht zu sprengen beschränke ich mich auf das Reflexionsgradverhältnis v .

Mit den Gleichungen 3-1 und 3-2 ergibt sich das Verhältnis  $r_p/r_s$  zu

$$v = \frac{(a - \sin\alpha \cdot \tan\alpha)^2 + b^2}{(a + \sin\alpha \cdot \tan\alpha)^2 + b^2} \quad 3-12$$

Die Größen a und b sind durch die Gleichungen 3-3 und 3-4 definiert. Da sich die Gleichung 3-12 nicht nach einer der beiden optischen Konstanten n und k auflösen läßt, erfolgt die Bestimmung der "Isoreflectance"-Kurven auf numerischem Weg. Dazu setzt man in Gleichung 3-12 bei gegebenen Werten des Reflexionsgradverhältnisses v und des Reflexionswinkels  $\alpha$  für eine der beiden optischen Konstanten, n oder k, einen beliebigen Wert ein und variiert den Wert der anderen

optischen Konstante so lange, bis die Gleichung 3-12 mit der gewünschten Genauigkeit erfüllt ist. Dann ändert man den Wert der festgehaltenen optischen Konstanten um einen kleinen Betrag und sucht erneut die dazu passende andere optische Konstante.

Dieser Vorgang wird so lange wiederholt, bis ein genügend großer Wertebereich für  $n$  und  $k$  von der so bestimmten "Isoreflectance"-Kurve durchlaufen ist. Nun ändert man den Reflexionswinkel  $\alpha$  und mißt das Verhältnis  $v$  bei diesem Winkel. Auf die oben beschriebene Weise wird eine zweite "Isoreflectance"-Kurve bestimmt. Beide Kurven schneiden sich in dem Punkt der  $n$ - $k$ -Ebene, dessen Koordinaten die gesuchten optischen Konstanten des Materials sind. Wiederholt man die Reflexionsmessungen bei weiteren Winkeln, so bilden die aus diesen Messungen bestimmten "Isoreflectance"-Kurven eine Schar von Kurven in der  $n$ - $k$ -Ebene, die sich alle in einem Punkt schneiden. In der Abbildung 3.9 sind die "Isoreflectance"-Kurven für einen Wert des Brechungsindex  $n$  von 2.2 und einen Wert der Absorptionskonstanten von 1.5 für 9 verschiedene Reflexionswinkel zwischen  $10^\circ$  und  $89^\circ$  dargestellt.

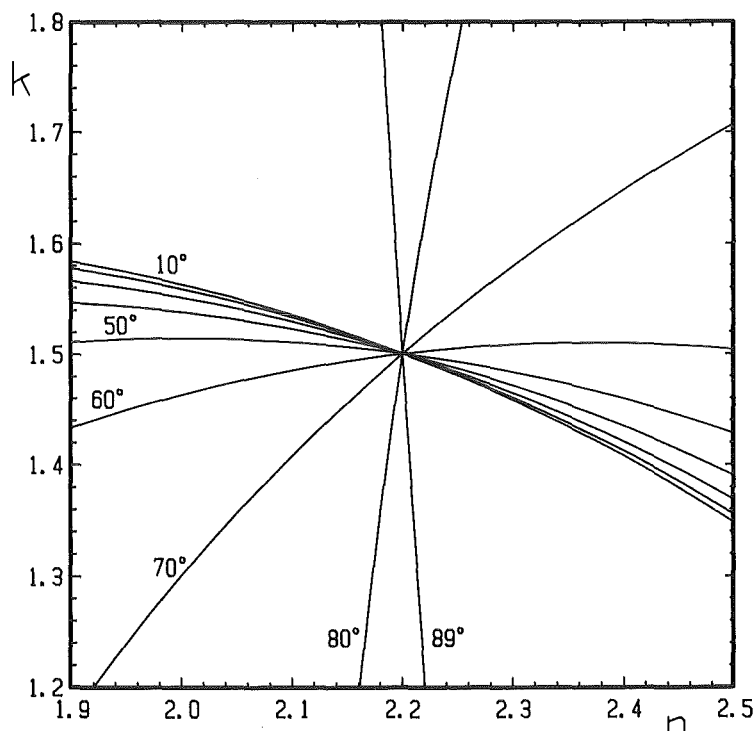


Abb. 3.9: 'Isoreflectance'-Kurven für das Reflexionsgradverhältnis  $v$ ,  $n=2.2$  und  $k=1.5$ .

Dieses Verhalten der "Isoreflectance"-Kurven läßt sich allerdings nur theoretisch erwarten. Durch die in der Praxis auftretenden Meßfehler zerfällt der gemeinsame Schnittpunkt aller Kurven in mehrere Schnittpunkte jeweils zweier Kurven. Ein solcher Fall ist für drei Reflexionswinkel in Abbildung 3.10 dargestellt. Die aus den in der Abbildung angegebenen Werten berechneten "Isoreflectance"-Kurven begrenzen einen Bereich der  $n$ - $k$ -Ebene, dessen Schwerpunkt die gesuchte Lösung darstellt. Da die Kurven zwischen den Schnittpunkten nicht sehr gekrümmt sind, kann die Lösung in guter Näherung durch arithmetische Mittelung der Koordinaten der Schnittpunkte erfolgen. Wie man leicht sieht ist der Schnittpunkt zweier "Isoreflectance"-Kurven um so genauer definiert, je größer der Winkel zwischen beiden Kurven im Schnittpunkt ist, im Idealfall also  $90^\circ$ .

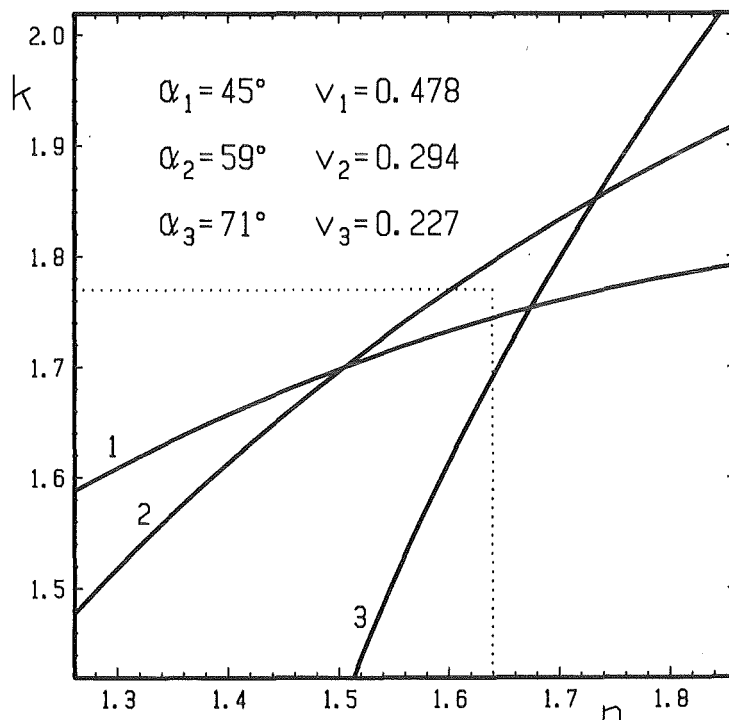


Abb.3.10: 'Isoreflectance'-Kurven für drei, bei verschiedenen Reflexionswinkeln gemessene, Reflexionsverhältnisse.

Bei drei "Isoreflectance"-Kurven liefern Schnittwinkel von  $60^\circ$  zwischen allen Kurven die kleinste Lösungsfläche. Die Sensitivität des Verfahrens ist also dann am größten, wenn die Reflexionswinkel so gewählt werden, daß sich die Isoreflectance-Kurven unter den oben angegebenen Winkeln schneiden.

Für die Auswahl dieser Winkel liefert die Darstellung in Abbildung 3.11 die notwendige Information. Dort ist für einen Brechungsindex von 2.2 und eine Absorptionskonstante von 1.5 für jeden Reflexionswinkel der Steigungswinkel der "Isoreflectance"-Kurve bezüglich n-Achse im Schnittpunkt der "Isoreflectance"-Kurven angegeben. Die Wahl der Bezugsachse ist dabei willkürlich, da nur die relativen Winkel der "Isoreflectance"-Kurven zueinander von Interesse sind.

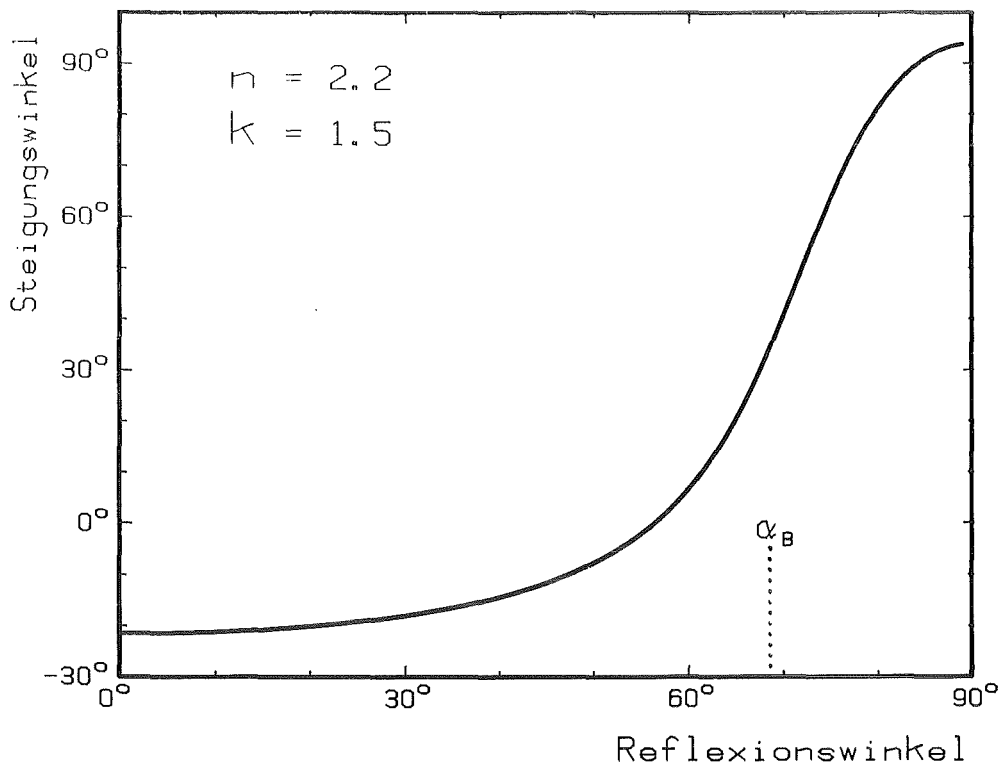


Abb.3.11: die Steigungswinkel der 'Isoreflectance'-Kurven für  $n=2.2$  und  $k=1.5$  im Schnittpunkt. Die gepunktete Linie markiert die Lage des Brewster-Winkels  $\alpha_B$ .

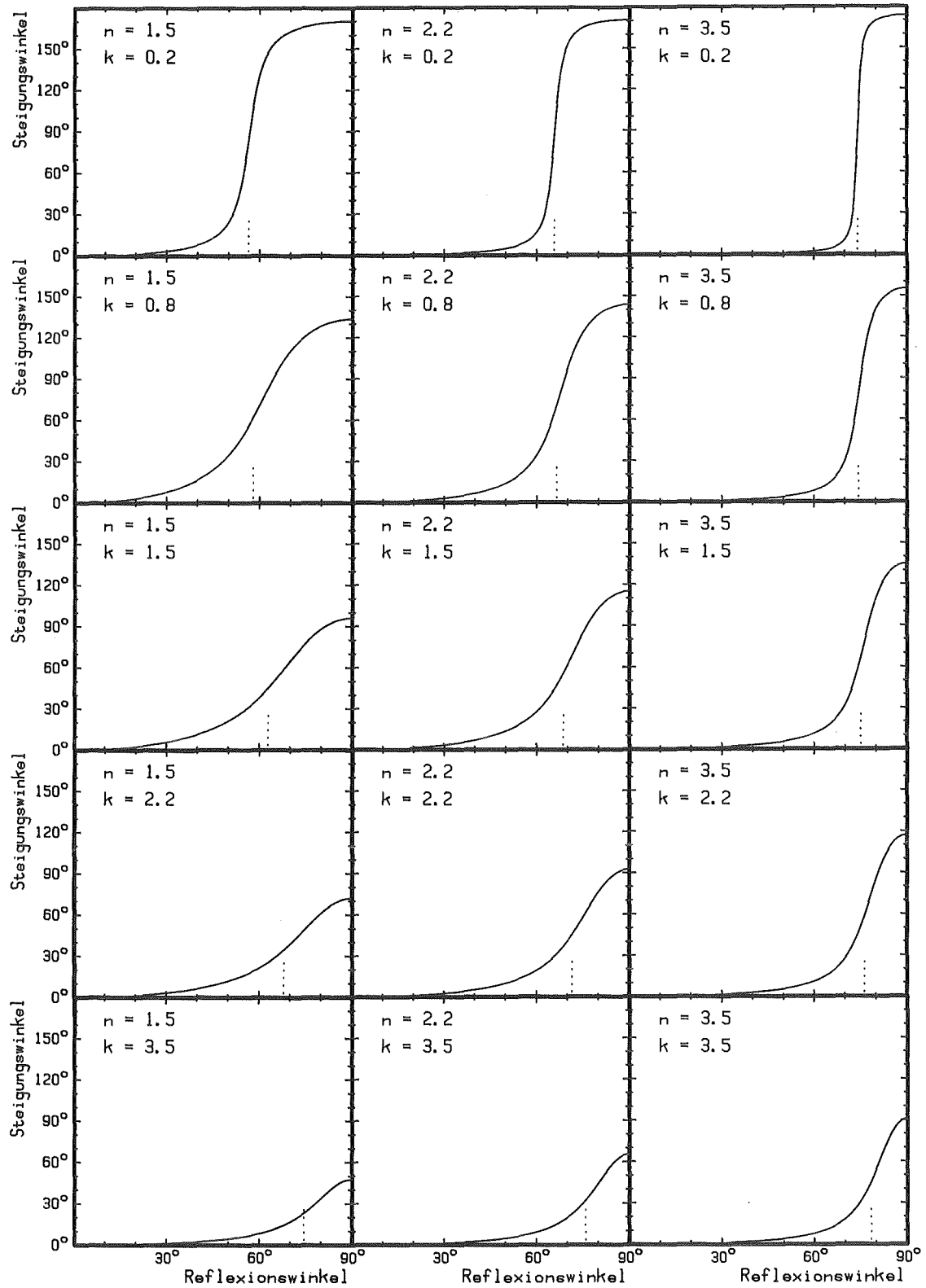


Abb. 3.12: der Verlauf der Steigungswinkel der 'Isoreflectance'-Kurven für verschiedene Wertekombinationen der optischen Konstanten. Die gepunktete Linie markiert die Lage des Brewster-Winkels  $\alpha_B$ .

Die gepunktete Linie markiert die Lage des Brewsterwinkels.

Man sieht, daß die Steigung der "Isoreflectance"-Kurven bis zu einem Reflexionswinkel von etwa  $30^\circ$  fast konstant ist. Dagegen ändert er sich im Reflexionswinkelbereich zwischen  $45^\circ$  und  $80^\circ$  um mehr als  $90^\circ$ . Wie bereits begründet wurde, ist ein Reflexionswinkel von  $80^\circ$  in der Regel nur sehr schwierig und bei der im Rahmen dieser Arbeit gewählten Meßanordnung gar nicht zu verwirklichen. In jedem Fall sollte jedoch ein Reflexionswinkel so groß wie irgend möglich gewählt werden, um den großen Anstieg der Steigungswinkel der "Isoreflectance"-Kurven bei großen Reflexionswinkeln auszunutzen.

Um den Einfluß der numerischen Werte der optischen Konstanten  $n$  und  $k$  auf den Verlauf der Steigungswinkel der "Isoreflectance"-Kurven zu demonstrieren, sind in der Abbildung 3.12 für die gleichen 15 Wertekombinationen der optischen Konstanten wie in Abbildung 3.3 die Verläufe der Steigungswinkel dargestellt. Da nur die relativen Winkeldifferenzen von Interesse sind, wurden die Steigungswinkel auf den Wert der zugehörigen  $1^\circ$ - "Isoreflectance"-Kurve bezogen, um eine einheitliche Darstellung zu ermöglichen.

Die gepunkteten Linien markieren wiederum die jeweilige Lage des Brewster-Winkels. Es fällt auf, daß die Änderung der Steigungswinkel dort am größten ist, wo der Brewsterwinkel liegt. Ähnlich wie schon bei Abbildung 3.3 lassen sich auch hier wieder einige Charakteristika feststellen. Bei festgehaltenem Wert der Absorptionskonstante  $k$  wird der Reflexionswinkelbereich, in dem sich der Steigungswinkel der "Isoreflectance"-Kurven merklich ändert, mit größer werdenden Werten des Brechungsindex  $n$  immer schmaler. Andererseits wird, bei festgehaltenem Wert des Brechungsindex  $n$ , mit wachsenden Werten der Absorptionskonstante  $k$  die maximal ausnutzbare Steigungswinkeländerung immer kleiner.

Es wurde bereits gesagt, daß ein Reflexionswinkel größtmöglich gewählt werden sollte. Werden die Messungen bei nur zwei Reflexionswinkeln durchgeführt, so sollte der zweite Reflexionswinkel so gewählt werden, daß zwischen den beiden zugehörigen "Isoreflectance"-Kurven im Schnittpunkt ein Steigungswinkelunterschied von  $90^\circ$  besteht. Beim Betrachten der Kurvenverläufe in Abbildung 3.12 fällt allerdings auf, daß eine Steigungswinkeldifferenz von  $90^\circ$  nicht mehr zur Verfügung steht, wenn man als größtmöglichen Reflexionswinkel  $75^\circ$  annimmt und die Absorptionskonstante Werte größer als etwa 1 annimmt. In diesen Fällen sollte der zweite Reflexionswinkel bei  $45^\circ$  gewählt werden. Ein kleinerer Reflexionswinkel bringt kaum noch eine Vergrößerung des Steigungswinkelunterschiedes, führt jedoch zu sehr unterschiedlich großen beleuchteten Anteilen der Meßfläche, was wie oben erläutert, vermieden werden sollte. Außerdem ist bei  $45^\circ$  unter Verwendung von Gleichung 3.5 eine Kontrolle der Messung möglich.

Reflexionsmessungen bei drei Reflexionswinkeln sind schon deswegen zu empfehlen, weil mit nur einer Messung mehr zwei zusätzliche Ergebnisse zur Verfügung stehen. In diesem Fall gilt in Bezug auf den verwertbaren Reflexionswinkelbereich sinngemäß das gleiche wie bei den Messungen bei zwei Winkeln, da auch hier bei großen Werten der Absorptionskonstanten  $k$  der optimale Steigungswinkelunterschied von  $120^\circ$ , d.h. ein Schnittwinkel von  $60^\circ$  zwischen jeweils zwei "Isoreflectance"-Kurven, nicht zur Verfügung steht. Wiederum sollte ein Reflexionswinkel so groß wie möglich und der kleinste Reflexionswinkel zu  $45^\circ$  gewählt werden. Der dritte Reflexionswinkel ist so zu wählen, daß der Steigungswinkel seiner "Isoreflectance"-Kurve sich einerseits noch deutlich von dem der  $45^\circ$ - "Isoreflectance"-Kurve unterscheidet, andererseits aber der Steigungswinkelunterschied zur "Isoreflectance"-Kurve des größten Reflexionswinkels möglichst groß ist. Bei großen Werten der Absorptionskonstanten  $k$  liefert die Kombination des kleineren und des mittleren Reflexionswinkels keine

brauchbare Auflösung mehr, so daß deren Lösung nicht mehr verwendet werden sollte. Diese Einschränkung läßt sich schon beim Betrachten der n-k-Netze in der Abbildung 3.8 erkennen.

Das vorgestellte Meßverfahren läßt sich wie folgt zusammenfassen:

- Vorläufige Messung der reflektierten Intensitäten sowohl bei parallel als auch bei senkrecht zur Einfallsebene polarisiertem Licht bei zwei Reflexionswinkeln, die bei  $45^\circ$  und etwa  $70^\circ$  liegen sollten
- Erstellung eines n-k-Netzes für die beiden Reflexionswinkel nach Methode D (für die Winkelkombination  $45^\circ/71^\circ$  kann die Abbildung 3.8 verwendet werden)
- Graphische Bestimmung der optischen Konstanten
- Optimierung der Reflexionswinkel unter Verwendung von Abbildung 3.12
- Messung der reflektierten Intensitäten bei beiden Polarisationszuständen bei den optimierten Reflexionswinkeln und Bildung der Meßwertverhältnisse  $M_p/M_s$
- Bestimmung der Schnittpunkte der "Isoreflectance"-Kurven auf graphische oder numerische Weise
- Ermittlung der gesuchten optischen Konstanten n und k entweder auf graphischem Weg durch Bestimmung des Schwerpunktes der Lösungsfläche (siehe Abbildung 3.11) oder auf numerischem Weg durch algebraische Mittelung der einzelnen Schnittpunkte der "Isoreflectance"-Kurven.



#### 4. Die Temperaturmessung

Temperaturen zwischen 2700 K und 4100 K, wie sie bei den hier beschriebenen Messungen auftreten, lassen sich nicht mehr mit den üblichen Temperaturfühlern, wie z.B. Thermoelementen, erfassen. Die klassische Methode, Temperaturen ohne mechanischen Kontakt zum Meßgut zu messen, ist die Pyrometrie. Die Information über die Temperatur wird dabei aus der thermischen Strahlung von der Probenoberfläche gewonnen. Dazu wird die Strahlungsintensität der Probenoberfläche mittels eines geeigneten optischen Systems von einem Detektor erfaßt und in ein elektrisches Signal umgewandelt. Um diesem elektrischen Signal unter Ausnutzung bekannter Strahlungsgesetze eine Temperatur zuzuordnen zu können, muß das Meßsystem, das Pyrometer, kalibriert werden. Zu diesem Zweck wird in der Regel eine geeichte Lampe verwendet.

Nachfolgend wird zuerst das verwendete Pyrometer beschrieben. Danach werden aus den Strahlungsgesetzen einfache Formeln abgeleitet, die die Temperaturberechnung aus den elektrischen Meßsignalen des Pyrometers ermöglichen. Schließlich wird erläutert, wie sich die Eichtemperaturen einer Eichlampe auf andere Wellenlängen übertragen lassen. Dieses Verfahren ist für den universellen Einsatz eines Spektralpyrometers von besonderer Bedeutung.

##### 4.1 Das Pyrometer

Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Pyrometer wurde im Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik des Kernforschungszentrums Karlsruhe entwickelt, um Temperaturen bis etwa 5000 K bei einer Zeitauflösung von besser als 2  $\mu$ sec erfassen zu können /15/. Es besteht im wesentlichen aus sechs Komponenten, die in Abbildung 4.1 schematisch dargestellt sind.

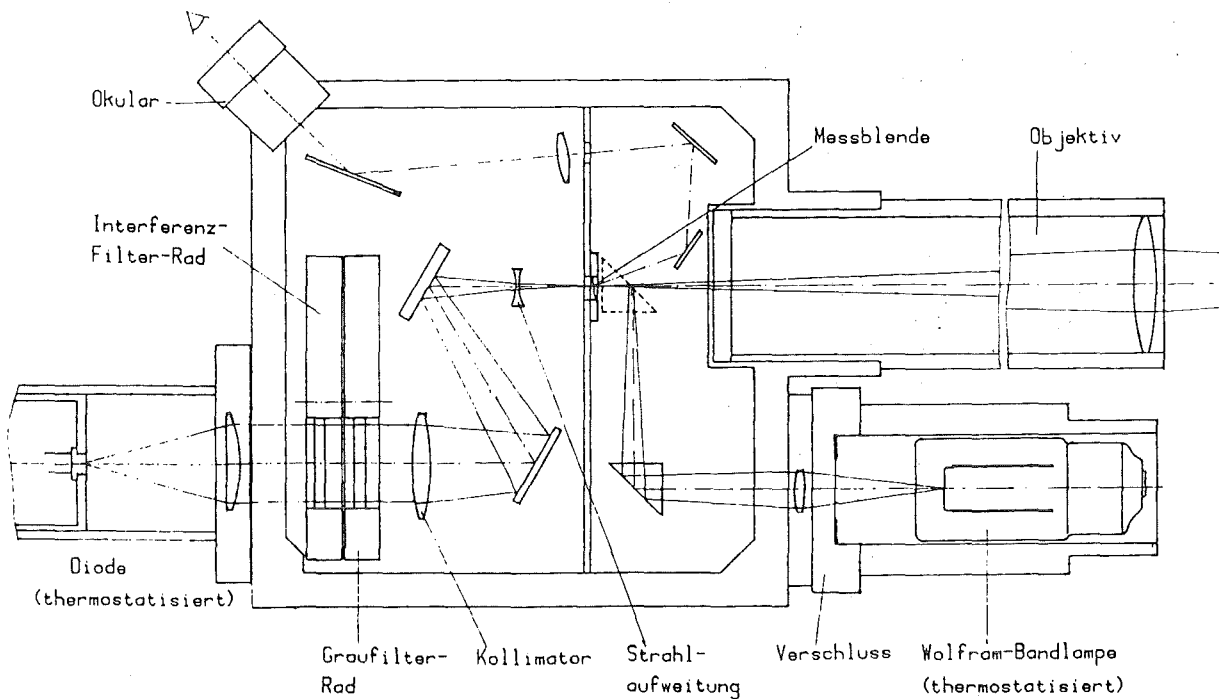


Abb. 4.1: schematische Darstellung des zur Temperaturmessung eingesetzten Spektralpyrometers.

Mit dem Objektiv wird die Oberfläche des Meßgutes vergrößert auf die Meßblende abgebildet. Das Bild der Oberfläche kann durch das vergrößernde Okular betrachtet werden. Die Meßblende ist als spiegelndes Metallscheibchen ausgebildet, in dessen Mitte sich eine kleine Bohrung befindet, deren Durchmesser wahlweise 30  $\mu\text{m}$  bis 200  $\mu\text{m}$  beträgt. Durch dieses Loch fällt ein Teil der vom Objektiv gesammelten thermischen Strahlung auf die als Detektor fungierende Photodiode (EG&G UV215B).

Da das Loch in der Blendenscheibe als dunkler Punkt im Bild der Probenoberfläche erscheint, läßt sich das Meßsignal des Pyrometers dem Meßort sehr genau zuordnen. Die örtliche Auflösung beträgt etwa 20  $\mu\text{m}$ . Die Größe des erfaßten Bereichs der Oberfläche kann durch Änderung der Blendenbohrung variiert werden.

Das Filtersystem besteht aus zwei Filtersätzen, die zur Erleichterung des Filterwechsels in zwei revolver-ähnlichen Magazinen untergebracht sind. Der erste Satz enthält verschiedene Graufilter, die die Intensität der thermischen Strahlung an die Empfindlichkeit des Detektors anpassen. Der zweite Satz besteht aus Spektralfiltern (Interferenzfiltern) mit verschiedenen Zentralwellenlängen und unterschiedlicher Breite. Mit deren Hilfe lassen sich mehr oder weniger schmale Spektralbereiche aus der thermischen Strahlung herausfiltern.

Das interne Kalibriersystem besteht aus einer speziellen Miniatur-Wolframbandlampe (GEC, Hirst Research Centre, Wembley, England), einem elektromagnetischen Kurzzeitverschluß und zwei Einkoppelspiegeln. Es dient als Sekundärnormal zur Kontrolle des Detektors. Ohne Veränderung der optischen Justierung des Pyrometers erhält man durch einfaches Umklappen des einen Einkoppelspiegels ein stabiles Kalibriersignal mit großer Langzeitkonstanz. Die interne Kalibrierlampe besitzt ein wassergekühltes Gehäuse und wird mit einer sehr stabilen Stromversorgung betrieben.

Zur Kalibrierung des Pyrometers wird eine bei der Physikalisch Technischen Bundesanstalt geeichte reguläre Wolframbandlampe (Osram WI 17G) verwendet. Sowohl bei der Eichung als auch bei der internen Kalibrierung wird ein Kurzzeitverschluß eingesetzt, um die Dauer des Eich- bzw. Kalibriersignals an die Länge der Meßsignale ( 3 msec-10 msec) anzupassen. Dadurch wird erreicht, daß zeitabhängige Änderungen der Detektorempfindlichkeit, z.B. Formierungseffekte der photosensitiven Empfängerfläche, sich nicht auf die Genauigkeit der Messung auswirken. Eine spezielle Beschaltung /16/ der als Detektor dienende Photodiode ermöglicht Temperaturmessungen mit einer Zeitkonstante von 5  $\mu$ sec und einem Signal zu Rausch Verhältnis von besser als 500:1 bei 4000 K.

#### 4.2 Die Strahlungsgesetze

Die Strahlungsleistung  $L$ , die von der Oberfläche eines erhitzten Körpers pro Flächeneinheit in den Halbraum über der Fläche abgegeben wird, ist durch das Strahlungsgesetz von Stefan-Boltzmann gegeben. Es lautet in allgemeiner Form:

$$L(T) = \sigma \cdot n^2 \cdot \epsilon(T) \cdot T^4 \quad 4-1$$

$\sigma$  ist die Stefan-Boltzmann-Konstante. Sie hat den Wert  $5,6693 \cdot 10^{-8} \text{ W/m}^2 \cdot \text{K}^4$ .  $\epsilon$  ist der (temperaturabhängige) Emissionsgrad der abstrahlenden Fläche und  $n$  ist der Brechungsindex des Mediums, in das die Strahlung abgegeben wird.

Für einen sogenannten schwarzen Strahler ( $\epsilon=1$ ), der in Vakuum ( $n=1$ ) oder in Luft ( $n \approx 1$ ) abstrahlt, vereinfacht sich Gleichung 4-1 zur allgemein bekannten Form:

$$L = \sigma \cdot T^4 \quad 4-2$$

Die Gleichungen 4-1 und 4-2 lassen sich im allgemeinen nicht zur Messung von Temperaturen verwenden, da für die meisten Materialien der Emissionsgrad  $\epsilon$  nicht genau genug bekannt ist. Man verwendet deshalb zur Temperaturmessung nicht die gesamte thermische Strahlung, sondern nur einen möglichst schmalen Spektralbereich, dem die Zentralwellenlänge  $\lambda$  zugeordnet wird /17/. Die Abhängigkeit der spektralen halbräumlichen Strahlungsleistung  $L_\lambda$  von der Wellenlänge  $\lambda$  und der Temperatur wird durch das Plancksche Strahlungsgesetz beschrieben, das in allgemeiner Form folgendermaßen lautet:

$$L_\lambda(\lambda, T) = \epsilon_\lambda(\lambda, T) \cdot \frac{c_1}{n(\lambda, T)^2 \cdot \lambda^5} \cdot \frac{1}{\exp(c_2/\lambda \cdot T \cdot n) - 1} \quad 4-3$$

$$c_1 = 2\pi \cdot c_0^2 \cdot h = 2,74126 \cdot 10^4 \text{ W} \cdot \mu\text{m}^4 / \text{cm}^2$$

$$c_2 = c_0 \cdot h / K = 1,4388 \cdot 10^4 \text{ K} \cdot \mu\text{m}$$

$h$  ist das Plancksche Wirkungsquantum,  
 $K$  ist die Boltzmann-Konstante,  
 $c_0$  ist die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum,  
 $n$  ist der Brechungsindex des den Strahler umgebenden  
 Mediums und  
 $T'$  ist die Temperatur dieses Mediums.  
 $\epsilon_\lambda$  ist der spektrale Emissionsgrad der strahlenden Fläche.

Für einen schwarzen Strahler im Vakuum vereinfacht sich die Gleichung 4-3 zu:

$$L_\lambda^0(\lambda, T) = \frac{c_1}{\lambda^5} \cdot \frac{1}{\exp(c_2/\lambda \cdot T) - 1} \quad 4-4$$

Der hochgestellte Index "o" bezeichnet hier und im Folgenden die Eigenschaften eines schwarzen Strahlers.

Der sogenannte schwarze Strahler ist ein Körper, der bei jeder Wellenlänge die größtmögliche thermische Leistung abstrahlt. Die thermische Strahlungsleistung realer Körper ist immer kleiner als die des schwarzen Strahlers. Der oben bereits erwähnte Emissionsgrad  $\epsilon$  ist das Verhältnis der Strahlungsleistung eines realen Körpers zu der eines schwarzen Strahlers gleicher Temperatur. Es gilt also:

$$\epsilon(T) = \frac{L(T)}{L^0(T)} \quad 4-5$$

beziehungsweise:

$$\epsilon_\lambda(T) = \frac{L_\lambda(\lambda, T)}{L_\lambda^0(\lambda, T)} \quad 4-6$$

Definitionsgemäß kann der Emissionsgrad also Werte zwischen 0 und 1 annehmen.

In diesem Zusammenhang soll auch der Begriff "spektrale Strahlungstemperatur" erläutert werden. Die spektrale Strahlungstemperatur  $T_s$  eines Strahlers ist die Temperatur, bei der ein schwarzer Strahler bei der Wellenlänge  $\lambda$  die gleiche spektrale Strahlungsleistung abgibt, wie der reale Strahler mit der Temperatur  $T$ , also:

$$L_\lambda(\lambda, T) = L_\lambda^{\circ}(\lambda, T_s) \quad 4-7$$

wobei wegen Gleichung 4-6 immer gilt:

$$T_s < T \quad 4-8$$

Die wahre Temperatur  $T$  eines thermisch strahlenden Körpers ist also immer höher als seine spektrale Strahlungstemperatur  $T_s$ , für die manchmal auch der Begriff "schwarze Temperatur" verwendet wird.

Der Verlauf der spektralen Strahlungsleistung  $L_\lambda^{\circ}(\lambda, T)$  des schwarzen Strahlers ist in Abbildung 4.2 für verschiedene Temperaturen zwischen 3000 K und 4500 K dargestellt.

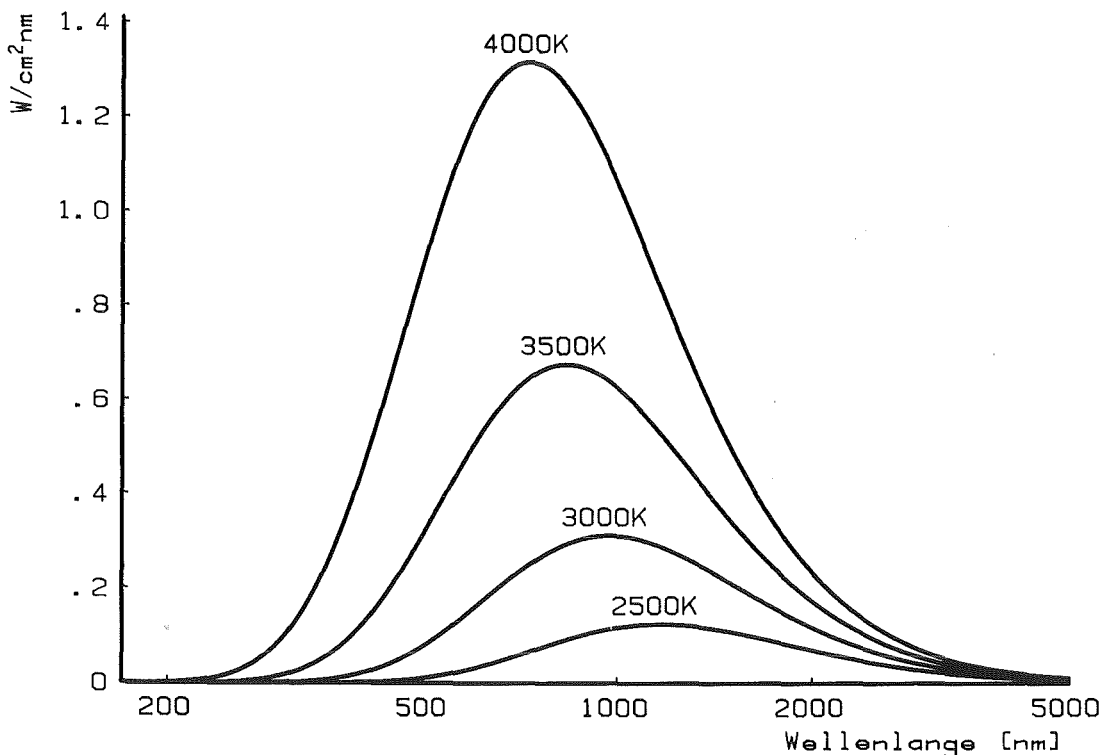


Abb.4.2: der spektrale Verlauf der Planckschen Strahlungsfunktion  $L_\lambda^{\circ}(\lambda, T)$  für verschiedene Temperaturen.

Man erkennt, daß die spektrale Strahlungsleistung mit steigender Temperatur bei jeder Wellenlänge zunimmt. Gleichzeitig wird das Maximum der Strahlungsverteilung zu kürzeren Wellenlängen, also in Richtung des blauen Teils des Spektrums verschoben.

Der Zusammenhang zwischen der Temperatur und der Wellenlänge  $\lambda_M$ , bei der das Maximum der Strahlungsverteilung auftritt, wird durch das Wiensche Verschiebungsgesetz beschrieben. Es lautet

$$\lambda_M \cdot T = 2897,8 \text{ } \mu\text{m} \cdot \text{K} \quad . \quad 4-9$$

Diese Beziehung kann dazu verwendet werden, die Temperatur thermisch strahlender Körper näherungsweise ohne direkte Temperaturmessung zu bestimmen, wenn die spektrale Verteilung der thermischen Strahlung bekannt ist. Zum Beispiel wird der Sonnenoberfläche eine Temperatur von etwa 5700 K zugeordnet, weil das Maximum ihrer Strahlungsverteilung in der Nähe von 510 nm auftritt.

Der Vollständigkeit halber ist in Abbildung 4.3 der Einfluß des Brechungsindex des Mediums, das den Strahler umgibt, bei einer Temperatur von 3500 K dargestellt.

Man kann erkennen, daß mit steigenden Werten des Brechungsindex  $n$  das Maximum der Strahlungsverteilung zu kürzeren Wellenlängen hin verschoben wird, während gleichzeitig die Intensität der Strahlung zunimmt. Diese Eigenschaft der Planckschen Strahlungsfunktion kann zur Folge haben, daß die Strahlungsleistung eines in ein optisch dichtes Medium ( $n > 1$ ) emittierenden realen Strahlers größer als die eines schwarzen Strahlers in Luft sein kann.

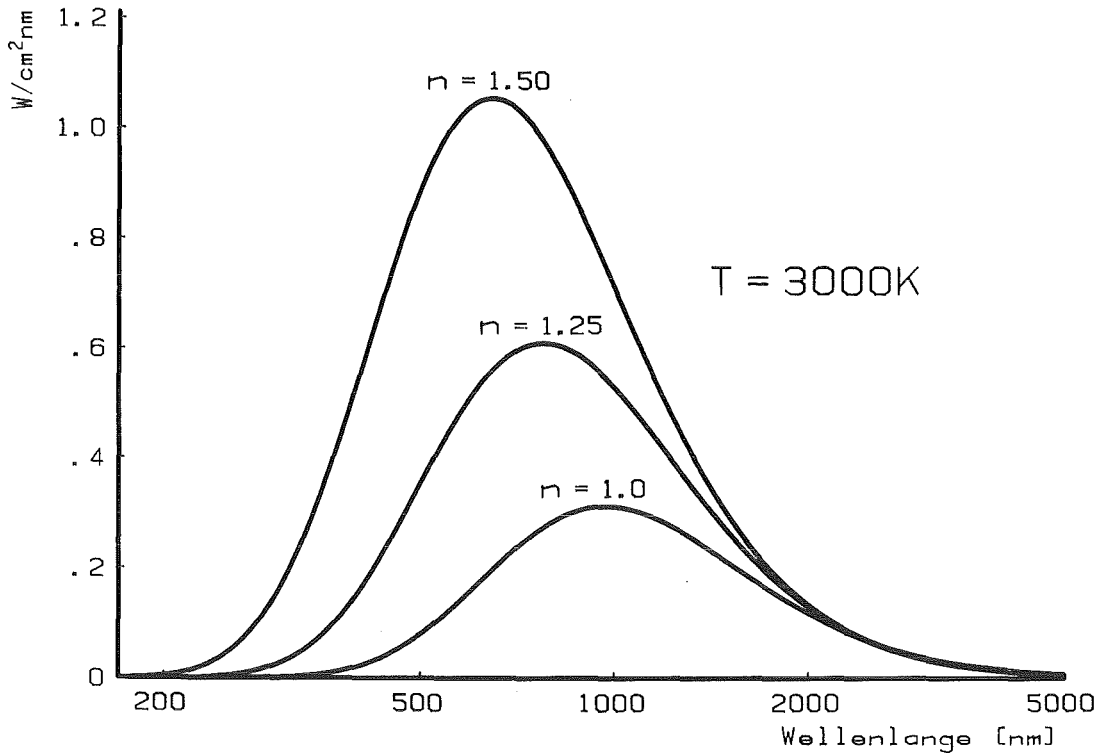


Abb.4.3: der spektrale Verlauf der Planckschen Strahlungsfunktion  $L_\lambda(\lambda, T)$  für verschiedene Werte des Brechungsindex  $n$  des den Strahler umgebenden Mediums.

#### 4.3 Die Berechnung der Temperatur aus den elektrischen Signalen des Pyrometers

Um das Meßsignal  $U_p$  des Pyrometers der vom Meßgut emittierten spektralen Strahlungsleistung  $L_\lambda$  und damit seiner Temperatur zuordnen zu können, muß das Pyrometer geeicht werden. Dazu wird in der Regel eine Eichlampe, in den meisten Fällen eine Wolframbandlampe, verwendet. Diese strahlt, wenn das Band von einem genau definierten Strom durchflossen wird, bei einer angegebenen Wellenlänge  $\lambda_E$  mit einer spektralen Strahlleistung  $L_\lambda$ , die einer ebenfalls angegebenen Strahlungstemperatur  $T_s$  entspricht. Die spektrale Strahlungstemperatur der Eichlampe wird im Folgenden als Eichtemperatur  $T_E$  bezeichnet. Das Eichsignal  $U_{p,E}$ , das das Pyrometer beim Betrachten der Eichlampe abgibt, hängt von der spektralen Strahlungsleistung der Eichlampe wie folgt ab:



$$U_{P,E} = f_{\text{Det}} (L_{\lambda}(T_E), \lambda) \cdot L_{\lambda}^{\circ}(T_E, \lambda_E) \quad 4-10$$

$f_{\text{Det}}$  ist die Übertragungsfunktion des im Pyrometer eingebauten optischen Detektors, die gegebenenfalls die nicht-lineare Abhängigkeit der Detektorempfindlichkeit von der Größe der zu messenden Strahlungsleistung berücksichtigt.

Betrachtet man mit dem Pyrometer das Meßgut, so gilt analog zu Gleichung 4-10:

$$U_P = f_{\text{Det}} (L_{\lambda}(T), \lambda) \cdot L_{\lambda}^{\circ}(T_S, \lambda) \quad 4-11$$

Falls sich der verwendete Detektor linear verhält erhält man durch Zusammenfassung der Gleichungen 4-10 und 4-11 folgende Beziehung

$$L_{\lambda}^{\circ}(T_S, \lambda) = L_{\lambda}^{\circ}(T_E, \lambda) \cdot \frac{U_P}{U_{P,E}} \quad 4-12$$

Kombiniert man diese Gleichung mit der Gleichung 4-4 und löst nach  $T_S$  auf, so erhält man:

$$T_S = \frac{c_2}{\lambda} \cdot \left( \ln \left( \frac{c_1}{\lambda^5} \cdot \frac{U_{P,E}}{U_P \cdot L_{\lambda}^{\circ}(T_E, \lambda)} + 1 \right) \right)^{-1} \quad 4-13$$

Falls der spektrale Emissionsgrad  $\varepsilon_{\lambda}(T)$  bekannt ist, läßt sich die wahre Temperatur direkt aus dem Meßsignal bestimmen. Es gilt dann:

$$T = \frac{c_2}{\lambda} \cdot \left( \ln \left( \varepsilon_{\lambda}(T) \cdot \frac{U_{P,E}}{U_P} \cdot \left( \exp \left( \frac{c_2}{\lambda \cdot T_E} \right) - 1 \right) + 1 \right) \right)^{-1} \quad 4-14$$

Ist  $\varepsilon_{\lambda}(T)$  im betreffenden Temperaturbereich von der Temperatur abhängig, so muß die wahre Temperatur  $T$  iterativ ermittelt werden. Dazu setzt man in Gleichung 4-14 in erster Näherung statt  $\varepsilon_{\lambda}(T)$  den Wert  $\varepsilon_{\lambda}(T_S)$  ein und berechnet

damit die Temperatur  $T'$ . Dann wiederholt man die Prozedur mit  $\varepsilon_\lambda(T')$  und erhält  $T''$ . Dieses Verfahren setzt man solange fort, bis die wahre Temperatur mit der gewünschten Genauigkeit berechnet ist.

Die Gleichung 4-14 kann sehr vereinfacht werden, falls die sogenannte Wiensche Näherung des Plankschen Strahlungsgesetzes verwendet werden kann. Sie lautet:

$$L_\lambda^0(T, \lambda) = \frac{c_1}{\lambda^5} \cdot \exp(-c_2/\lambda \cdot T) \quad 4-15$$

und gilt für den Fall, daß

$$\exp(c_2/\lambda \cdot T) \gg 1 \quad 4-16$$

was gleichbedeutend ist mit

$$\lambda \cdot T < 2900 \text{ } \mu\text{m} \cdot \text{K} \text{ .} \quad 4-17$$

Für die wahre Temperatur  $T$  des Meßgutes lautet die Bestimmungsgleichung dann:

$$T = \left( \frac{1}{T_E} - \frac{\lambda}{c_2} (\ln U_P - \ln U_{P,E} - \ln \varepsilon_\lambda(T)) \right)^{-1} \quad 4-18$$

Bei einer Meßwellenlänge von 650 nm ist der durch die Verwendung der Wienschen Näherung verursachte Temperaturfehler bei einer Temperatur von 4000 K kleiner als 5 K.

#### 4.4 Übertragung der Eichpunkte von Wolframbandlampen auf andere Wellenlängen

In der Regel werden Wolframbandlampen zwar bei verschiedenen Temperaturpunkten, jedoch nur bei einer Wellenlänge geeicht. Ein universeller Einsatz eines Spektralpyrometers wird jedoch erst dann möglich, wenn die Meßwellenlänge des Pyrometers den optischen Eigenschaften des Meßgutes angepaßt werden kann. Dabei ist die Meßwellenlänge so zu wählen, daß störende Einflüsse, wie zum Beispiel im Dampf über der Oberfläche des Meßgutes auftretende Emissionslinien, ausgeschlossen werden. Emissionslinien in dem vom Pyrometer erfaßten Spektralbereich können die Temperaturmessung drastisch verfälschen, da deren Intensität nicht direkt von der Temperatur der Oberfläche abhängt, sondern der thermischen Strahlung überlagert ist.

Durch konsequente Anwendung der oben beschriebenen Strahlungsgesetze können die Eichpunkte von Bandlampen mit großer Genauigkeit auf andere Wellenlängen übertragen werden. Nachfolgend wird das Verfahren ausführlich beschrieben.

Die spektrale Strahlungstemperatur der Eichlampe, die sogenannte Eichtemperatur  $T_E$ , hängt von der Temperatur  $T_B$  des Wolframbandes wie folgt ab:

$$L_{\lambda}^O(T_E, \lambda) = L_{\lambda}(T_B, \lambda) \cdot \tau_{\lambda} \quad 4-19$$

$\tau_{\lambda}$  ist die spektrale Durchlässigkeit des Lampenkolbens. Unter Verwendung von Gleichung 4-6 läßt sich Gleichung 4-19 folgendermaßen umformen

$$L_{\lambda}^O(T_E, \lambda) = L_{\lambda}^O(T_B, \lambda) \cdot \tau_{\lambda} \cdot \epsilon_{\lambda}(T_B) \quad 4-20$$

$\epsilon_{\lambda}(T_B)$  ist der spektrale Emissionsgrad des Wolframbandes der Lampe.

Analog zu Gleichung 4-14 erhält man unter Berücksichtigung von Gleichung 4-4 für die wahre Temperatur des Wolframbandes:

$$T_B = \frac{c_2}{\lambda} \cdot \left( \ln \left( \frac{c_1 \cdot \tau_\lambda \cdot \varepsilon_\lambda(T_B)}{\lambda^5 \cdot L_\lambda^0(T_E, \lambda)} + 1 \right) \right)^{-1} \quad 4-21$$

Weil auf der rechten Seite der Gleichung 4-21 der Wert  $\varepsilon_\lambda(T_B)$  verlangt ist, kann auch diese Gleichung nur iterativ gelöst werden, wobei man in erster Näherung den Wert  $\varepsilon_\lambda(T_E)$  einsetzt. Da der spektrale Emissionsgrad von Wolfram nicht sehr stark von der Temperatur abhängt konvergiert die Iteration schnell.

Der spektrale Emissionsgrad eines Wolframbandes ist für den Temperaturbereich 1600 K bis 2800 K im Spektralbereich zwischen 230 nm und 2,7  $\mu\text{m}$  sehr genau gemessen worden /18/. Mit der Kenntnis der wahren Temperatur des Wolframbandes läßt sich die spektrale Strahlungsleistung der Lampe und somit die neue Eichtemperatur  $T_E'$  bei anderen Wellenlängen  $\lambda'$  einfach berechnen. Es gilt analog zu Gleichung 4-21:

$$T_E' = c_2 / \lambda' \cdot \left( \ln \left( \frac{c_1 \cdot \tau_{\lambda'}}{(\lambda')^5 \cdot L_{\lambda'}^0(T_B, \lambda') \cdot \varepsilon_{\lambda'}(T_B, \lambda')} + 1 \right) \right)^{-1} \quad 4-22$$

Übliche Glassorten für Lampenkolben, z.B. das Schott-Glas SUPRASIL, haben im Spektralbereich zwischen 650 nm und 850 nm eine spektrale Durchlässigkeit von etwa 0,932.

Ich halte es für wichtig, besonders darauf hinzuweisen, daß die spektrale Durchlässigkeit des Lampenkolbens auch dann zu berücksichtigen ist, wenn sie für die alte und die neue Eichwellenlänge identisch ist. Der Grund dafür liegt

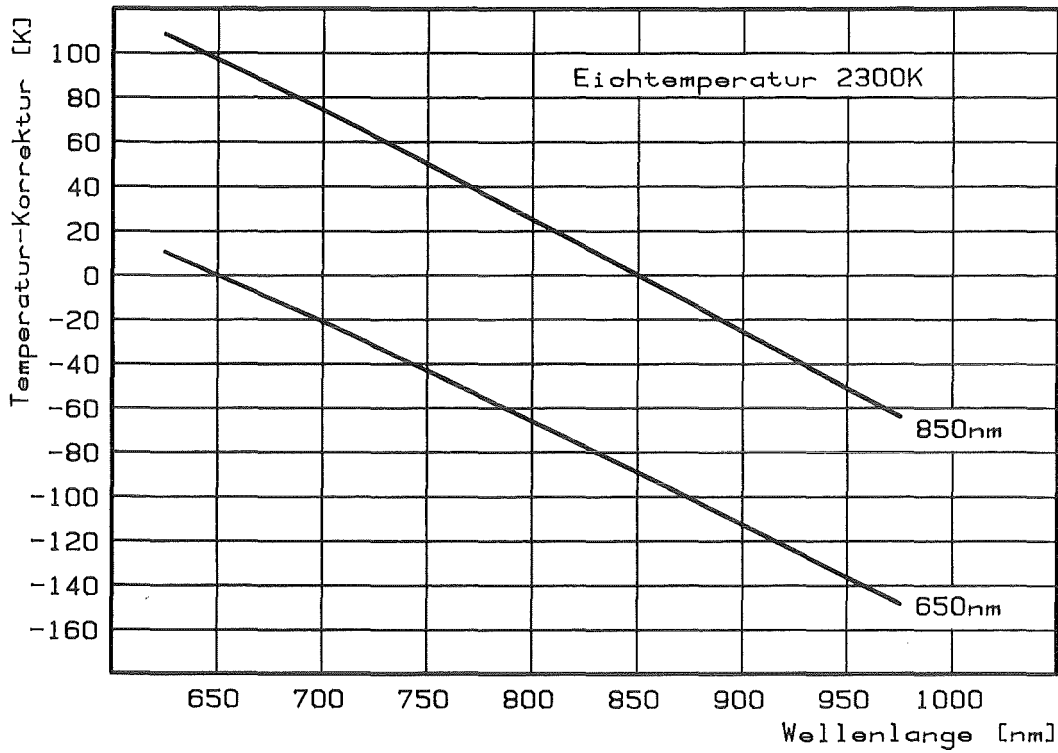


Abb. 4.4: die aus der Verschiebung der Bezugswellenlänge folgende Veränderung der Eichtemperatur einer Wolframband-Lampe.

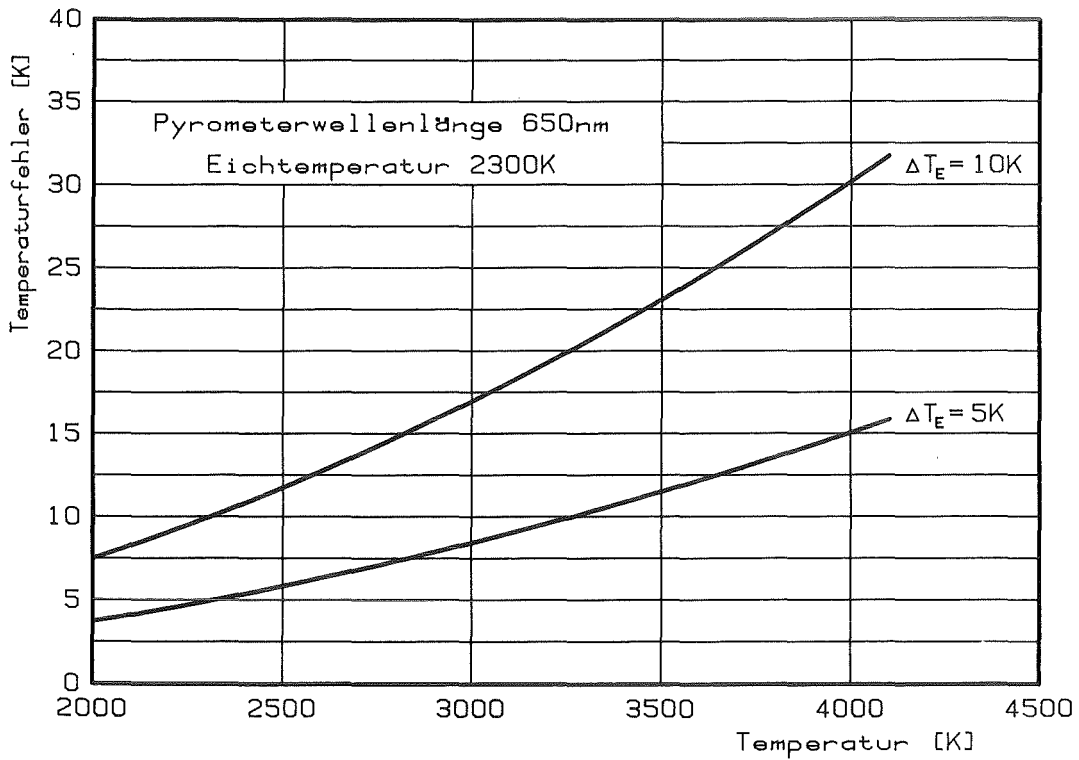


Abb. 4.5: der von einem Fehler der Eichtemperatur verursachten Temperaturmeßfehler eines Spektralpyrometers.

in der bei den verschiedenen Wellenlängen unterschiedlichen Abhängigkeit der spektralen Strahlungsleistung  $L_\lambda$  von der Temperatur.

In der Abbildung 4.4 ist die Verschiebung der Eichtemperatur  $T_E$  für die Wellenlängen 650 nm und 850 nm dargestellt. Es wurde eine Eichtemperatur von 2300 K bei der jeweiligen Wellenlänge sowie eine spektrale Durchlässigkeit  $\tau_\lambda$  von 0,932 angenommen.

In der Abbildung 4.5 ist dargestellt, wie sich ein Fehler der Eichtemperatur auf die Genauigkeit der Temperaturmessung auswirkt. Dabei wurde wiederum eine Eichtemperatur von 2300 K sowie ein Eichtemperaturfehler von  $\pm 5\text{K}$  bzw.  $\pm 10\text{K}$  angenommen. Man sieht deutlich, daß der aus der Unsicherheit der Eichtemperatur herrührende Meßfehler mit steigender Temperatur überproportional zunimmt.

## 5. Die Bestimmung des spektralen Emissionsgrades und die Abschätzung des Strahlungsanteils der Wärmeleitfähigkeit

### 5.1 Der spektrale Emissionsgrad $\epsilon_\lambda$

Im Kapitel 4.2 wurde dargelegt, daß die Kenntnis des spektralen Emissionsgrades  $\epsilon_\lambda(\lambda, T)$  Grundvoraussetzung für die pyrometrische Bestimmung der Oberflächentemperatur eines Körpers ist. Unter bestimmten Voraussetzungen läßt sich der spektrale Emissionsgrad durch Messung des spektralen Reflexionsgrades  $r_\lambda(\lambda, T)$  bestimmen.

Für jedes Material, das nicht luminesziert, bei dem die von der Oberfläche abgestrahlte Energie also nur von der Temperatur abhängt, gilt folgende Bilanzgleichung:

$$\alpha_\lambda + r_\lambda + \tau_\lambda = 1 \qquad 5-1$$

$\alpha_\lambda$  ist der spektrale Absorptionsgrad,  
 $r_\lambda$  ist der spektrale Reflexionsgrad und  
 $\tau_\lambda$  ist der spektrale Transmissionsgrad.

Diese Größen geben an, welcher Anteil des eingestrahnten, monochromatischen Lichts vom beleuchteten Körper absorbiert, von seiner Oberfläche reflektiert bzw. durch ihn transmittiert wird. Bei einem lichtundurchlässigen Körper wird definitionsgemäß der Transmissionsgrad Null. Die Gleichung 5-1 vereinfacht sich dann zu

$$\alpha_\lambda = 1 - r_\lambda \qquad 5-2$$

Falls der betreffende Körper nicht vollständig lichtundurchlässig ist, der Transmissionsgrad  $\tau_\lambda$  also berücksichtigt werden muß, lassen sich von McMahon /19/ angegebenen Gleichungen

anwenden. Der gemessene spektrale Reflexionsgrad  $r_{\lambda}^{+}$  entspricht nicht mehr dem wahren spektralen Reflexionsgrad, wenn z.B. die Dicke der durch Laseraufheizung aufgeschmolzenen Schicht kleiner als die Eindringtiefe des zu reflektierenden Laserlichts ist. Ein Teil des in der Oberfläche des Materials eingedrungenen Lichts kann dann an der Grenzschicht zwischen dem geschmolzenen und dem noch festen Material zurückreflektiert werden. Da sich in der geschmolzenen Schicht in der Regel ein Temperaturgradient ausbildet, ist in diesem Fall auch keine eindeutige Temperaturzuordnung mehr möglich, weil die thermische Strahlung tieferer, d.h. kälterer Zonen der Schmelze ebenfalls registriert wird. Falls temperaturabhängige Effekte vernachlässigt werden können lautet der Zusammenhang zwischen wahren Reflexionsgrad  $r_{\lambda}$  und scheinbarem Reflexionsgrad  $r_{\lambda}^{+}$  nach McMahon näherungsweise wie folgt:

$$r_{\lambda}^{+} = r_{\lambda} \cdot \left( 1 + \frac{\tau_{\lambda}^2 (1-r_{\lambda})^2}{1-\tau_{\lambda}^2 \cdot r_{\lambda}^2} \right) \quad 5-3$$

$\tau_{\lambda}$  ist der spektrale Transmissionsgrad der teildurchlässigen Schicht.

Die Gleichung 5-3 kann nur dann zur Korrektur der Meßwerte verwendet werden, wenn der spektrale Transmissionsgrad der Schicht bekannt. Das ist in der Regel jedoch nicht der Fall, insbesondere dann nicht, wenn sich wie bei den hier beschriebenen Experimenten, ein Temperaturgradient in der teildurchlässigen Schicht ausbildet. Von Kortum /20/ wurde ein Kriterium angegeben, mit dem der Fehler der Messung zumindest qualitativ erfaßt werden kann. Es besagt, daß der Fehler bei der Messung des spektralen Reflexionsgrades  $r_{\lambda}$  kleiner als 5% wird, wenn gilt:

$$K_{\lambda} \cdot d > 1,5 \quad 5-4$$



$d$  ist die Dicke der quasi-isothermen Materialschicht an der Oberfläche des Körpers und

$a_\lambda$  ist der spektrale Absorptionskoeffizient der betrachteten Schicht.

Unter Vernachlässigung von Streuung des eindringenden Lichtes an Materialinhomogenitäten hängt der Absorptionskoeffizient  $K_\lambda$  von der optischen Konstante  $k$ , der Absorptionskonstante, wie folgt ab:

$$K_\lambda = k \cdot \frac{4\pi}{\lambda} \quad 5-5$$

$\lambda$  ist die Wellenlänge des eindringenden Lichts.

Für die beiden Actinidencarbide kann in erster Näherung ein Wert der Absorptionskonstanten von 2,5 als für den betrachteten Spektral- und Temperaturbereich typisch angesehen werden. Für Licht der Wellenlänge 750 nm muß die isothermen Schicht an der Oberfläche des Materials also mindestens eine Dicke von etwa 0,03  $\mu\text{m}$  haben um das Kriterium nach 5-4 zu erfüllen. Da bei den beschriebenen Experimenten die aufgeschmolzenen Schichten durchweg Tiefen zwischen 15  $\mu\text{m}$  und 30  $\mu\text{m}$  aufwiesen, ist eine Korrektur der Meßergebnisse nicht notwendig.

Zwischen dem spektralen Absorptionsgrad  $\alpha_\lambda$  und dem spektralen Emissionsgrad  $\epsilon_\lambda$  besteht ein einfacher Zusammenhang der als Kirchhoffsches Gesetz bekannt ist. Es lautet

$$\epsilon_\lambda(\lambda, T) = \alpha_\lambda(\lambda, T) \quad 5-6$$

Unter Berücksichtigung der Gleichungen 3-7 und 5-2 läßt sich also der spektrale Emissionsgrad  $\epsilon_\lambda$  folgendermaßen bestimmen:

$$\epsilon_\lambda(\lambda, T) = 1 - 0,5 \cdot (r_p(\lambda, T) + r_s(\lambda, T)) \quad 5-7$$

Für einen Körper mit diffusreflektierender Oberfläche hängt die Intensität  $I$  der von einem Punkt der Oberfläche emittierten oder reflektierten Strahlung vom Winkel  $\alpha$ , unter dem die Oberfläche betrachtet wird, wie folgt ab:

$$I(\alpha) = I(\alpha=0) \cdot \cos(\alpha) \qquad 5-8$$

Dieser Zusammenhang ist als Lambertsches Gesetz bekannt. Da bei schräger Betrachtung der registrierte Anteil der Oberfläche durch die Projektion um den Faktor  $1/\cos(\alpha)$  vergrößert wird, folgt aus Gleichung 5-8, daß die registrierte Intensität und damit auch der Emissionsgrad vom Beobachtungswinkel unabhängig ist.

Weil aber reale Körper in der Regel keine perfekt diffus reflektierenden Oberflächen haben, ist deren Emissionsgrad vom Beobachtungswinkel nicht mehr unabhängig. Der mit Hilfe von Gleichung 5-7 berechnete spektrale Emissionsgrad  $\epsilon_\lambda$  gilt also nur dann, wenn die Temperatur der Oberfläche unter dem gleichen Winkel gemessen wird, unter dem der spektrale Reflexionsgrad  $r_\lambda$  bestimmt wurde.

Bei den hier beschriebenen Experimenten war der kleinste Reflexionswinkel  $45^\circ$ . Betrachtet man die Kurven in Abb.3.3, so sieht man, daß der Reflexionsgrad  $r$  (Kurve R) bis zu Reflexionswinkeln von etwa  $45^\circ$  praktisch konstant ist, wenn sowohl der Wert des Brechungsindex  $n$  als auch der Wert der Absorptionskonstanten  $K$  des betreffenden Materials größer als 1,5 ist. Da diese Bedingungen sowohl bei Urancarbid als auch bei Thoriumcarbid im betrachteten Temperaturbereich erfüllt sind, läßt sich der spektrale Emissionsgrad, der aus dem unter  $45^\circ$  gemessenen spektralen Reflexionsgrad berechnet wurde, auch für Temperaturmessungen unter kleineren Beobachtungswinkeln verwenden.

5.2 Die Abschätzung des Strahlungsanteils  $K_{\text{rad}}(T)$  der Wärmeleitfähigkeit von Schmelzen aus Urancarbid bzw. Thoriumcarbid

Die Kenntnis des spektralen Verlaufs der optischen Konstanten ermöglicht bei optisch dichten, d.h. undurchsichtigen, Materialien die Berechnung des Strahlungsanteils  $K_{\text{rad}}$  der Wärmeleitfähigkeit unter Anwendung der Rosseland-Näherung /7/. Die Rosseland-Näherung lautet:

$$K_{\text{rad}} = \frac{16 n^2 \sigma T^3}{3 \cdot a_R} \quad 5-9$$

$n$  ist der Brechungsindex,

$\sigma$  ist die Stefan-Boltzmann-Konstante und

$T$  ist die Temperatur und

$a_R$  ist der sogenannte Rosseland-Absorptions-Koeffizient, der über die folgende Gleichung definiert ist.

$$\frac{1}{a_R(T)} = \int_0^{\infty} \frac{1}{K_{\lambda}(T)} \cdot \frac{d L_{\lambda}^{\circ}(\lambda, T)}{d L^{\circ}(T)} d\lambda \quad 5-10$$

$K_{\lambda}$  ist der spektrale Absorptionskoeffizient, der aus der gemessenen Absorptionskonstante  $k$  berechnet wird. (siehe auch Gleichung 5-5),

$L^{\circ}$  ist die Strahlungsleistung des schwarzen Strahlers (siehe Gleichung 4-2) und

$L_{\lambda}^{\circ}$  ist die spektrale Strahlungsleistung des schwarzen Strahlers (siehe Gleichung 4-4).

Der Differentialquotient  $dL_{\lambda}^{\circ}(\lambda, T)/dT$  bewirkt eine temperaturabhängige spektrale Wichtung des Absorptionsspektrums  $K_{\lambda}$  des Materials. Er lautet explicit /21/:

$$\frac{d L_{\lambda}^{\circ}(\lambda, T)}{d T} = \frac{\pi h^2 c_0^3}{2n^5 \sigma \lambda^6 K T^5} \cdot \frac{\exp(\beta/\lambda \cdot T)}{(\exp(\beta/\lambda \cdot T) - 1)^2} \quad , \quad 5-11$$

wobei für  $\beta$  gilt:

$$\beta = \frac{h \cdot c_0}{n \cdot K} \quad . \quad 5-12$$

$h$  ist das Planksche Wirkungsquantum,  
 $c_0$  ist die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum,  
 $n$  ist der Brechungsindex,  
 $\sigma$  ist die Stefan-Boltzmann-Konstante,  
 $K$  ist die Boltzmann-Konstante (nicht zu verwechseln mit dem Absorptionskoeffizienten  $K_{\lambda}$ )  
 $\lambda$  ist die Wellenlänge und  
 $T$  ist die Temperatur.

Da es nicht möglich ist, das Integral in Gleichung 5-10 über den gesamten Wellenlängenbereich der elektromagnetischen Strahlung auszudehnen, muß der für die Berechnung des Integrals wesentliche Teile des Spektrums bestimmt werden. Eine einfache Methode zur Bestimmung dieses Spektralbereiches wurde von Browning /21/ angegeben. Dazu wird der Differentialquotient nach Gleichung 5-11 für die betreffende Temperatur über der Wellenlänge aufgetragen und das Maximum dieser Kurve bestimmt. Das Integral nach Gleichung 5-10 wird dann über den Teil des Spektrums gebildet, in dem das folgende Kriterium gültig ist:

$$\frac{d L_{\lambda}^{\circ}(\lambda, T)}{d T} \geq \left| \frac{d L_{\lambda}^{\circ}(\lambda, T)}{d T} \right|_{\max} \cdot 10^{-3} \quad 5-13$$

Dieses Kriterium ermöglicht eine plausible Festlegung der Integrationsgrenzen in Gleichung 5-10. Die Wahl der Größe des Dämpfungsfaktors, hier  $10^{-3}$ , muß im Hinblick auf den spektralen Verlauf des Absorptionsspektrums  $K_\lambda$  geschehen. Keinesfalls dürfen Bereiche geringer Absorption nahe außerhalb der gewählten Grenzwellenlängen liegen, da deren Beiträge zum Integral in Gleichung 5-10 dann nicht vernachlässigt werden dürfen. In der Abbildung 5.1 ist der spektrale Verlauf des Differentialquotient  $dL_\lambda^0(\lambda, T)/dL^0(T)$  für verschiedene Temperaturen zwischen 2780 K und 4000 K dargestellt. Der gewählte Wert des Brechungsindex  $n$  von 1.8 ist repräsentativ für beide Karbide im untersuchten Spektral- und Temperaturbereich.

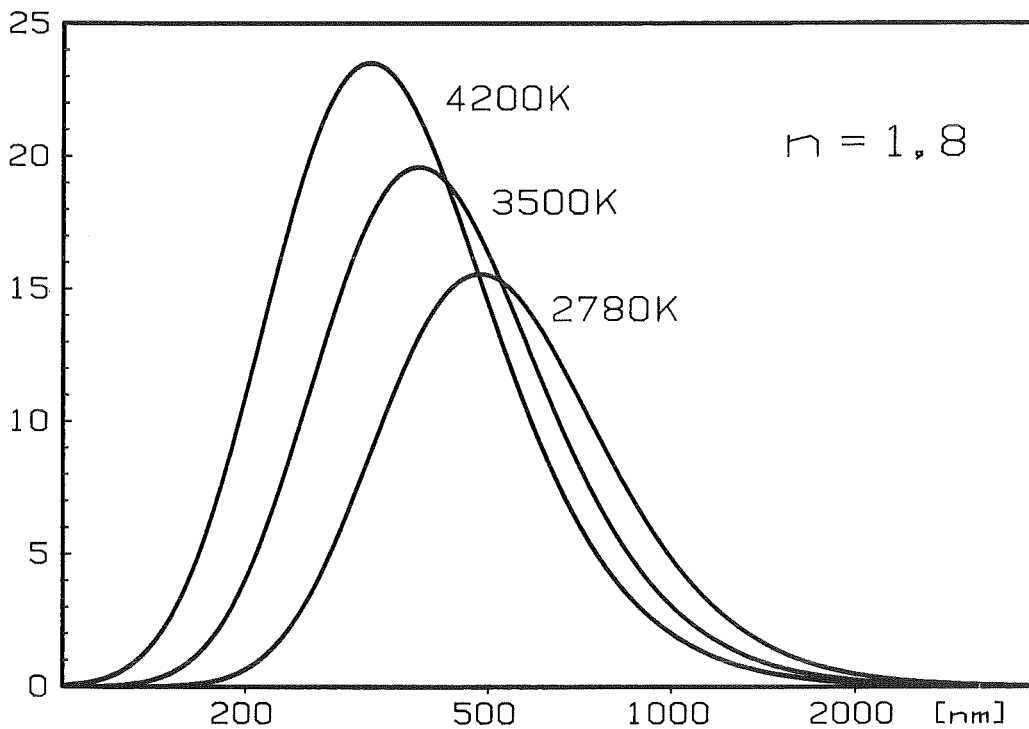


Abb. 5.1: der spektrale Verlauf des Differentialquotienten  $dL_\lambda^0(\lambda, T)/dL^0(T)$  bei einem Brechungsindex  $n=1.8$  für verschiedene Temperaturen.

Brechungs- index n	2500 K			3000 K			3500 K			4000 K		
	$\lambda_0$	$\lambda_{\max}$	$\lambda_1$	$\lambda_0$	$\lambda_{\max}$	$\lambda_1$	$\lambda_0$	$\lambda_{\max}$	$\lambda_1$	$\lambda_0$	$\lambda_{\max}$	$\lambda_1$
1,0	0,29	0,96	9,87	0,24	0,80	8,17	0,20	0,69	7,04	0,18	0,60	6,12
1,25	0,23	0,77	7,85	0,19	0,64	6,56	0,16	0,55	5,60	0,14	0,48	4,92
1,5	0,19	0,64	6,56	0,16	0,53	5,49	0,14	0,46	4,68	0,12	0,40	4,11
2,0	0,14	0,48	4,92	0,12	0,40	4,11	0,10	0,35	3,51	0,09	0,30	3,08
2,5	0,11	0,39	3,95	0,10	0,32	3,27	0,09	0,27	2,82	0,08	0,24	2,45

Tabelle 5.1: Bestimmung des für die Berechnung des Integrals nach Gleichung 5.10 relevanten Spektralbereiches  $\lambda_0$  bis  $\lambda_1$ . Das Maximum des spektralen Wichtungsfaktors  $\partial L_{\lambda}^0(\lambda, T) / \partial L^0(T)$  tritt bei der Wellenlänge  $\lambda_{\max}$  auf.

In Tabelle 5.1 sind für verschiedene Werte des Brechungsindex  $n$  und der Temperatur, die aus der Gleichung 5-13 folgenden Grenzwellenlängen angegeben. Man erkennt, daß mit steigender Temperatur der kurzwellige (blaue) Teil des optischen Spektralbereiches an Bedeutung gewinnt, wobei zugleich der aus dem Kriterium 5-13 folgende Spektralbereich immer schmaler wird. Diese Tendenz ist umso deutlicher ausgeprägt, je größer der Wert des Brechungsindex  $n$  ist.

Der im Rahmen der vorliegenden Arbeit untersuchte Spektralbereich stellt nur einen Teil des für die Berechnung der Strahlungswärmeleitfähigkeit  $K_{\text{rad}}$  relevanten Bereichs des Spektrums dar. Deswegen wurden zur Abschätzung des Strahlungsanteils der Wärmeleitfähigkeit folgende Annahmen gemacht:

$$\begin{aligned} K(\lambda < 458 \text{ nm}) &= 10^5 \text{ cm}^{-1} \\ K(\lambda > 752 \text{ nm}) &= 10^4 \text{ cm}^{-1} \\ K(\lambda > 2,3 \text{ } \mu\text{m}) &= 10^3 \text{ cm}^{-1} \end{aligned}$$

Mit diesen und den aus den Messungen abgeleiteten Werten des Absorptionskoeffizienten  $K$  hat bei 2800 K, also etwas oberhalb der Schmelztemperatur, die Strahlungswärmeleitfähigkeit  $K_{\text{rad}}$  sowohl von UC als auch von ThC einen Wert von 11 mW/m·K. Bei beiden Materialien nimmt sie mit steigender Temperatur zu und erreicht bei 4000 K einen Wert von 17 mW/m·K. Der Anstieg mit der Temperatur ist nicht so stark, wie er auf Grund der  $T^3$ -Abhängigkeit von  $K_{\text{rad}}$  (siehe Gleichung 5-9) erwartet werden könnte. Da mit steigender Temperatur eine Verschiebung des zu berücksichtigenden Spektralbereichs zu kürzeren Wellenlängen stattfindet, wird die Temperaturabhängigkeit durch die im kurzwelligen Spektralbereich größeren Werte des Absorptionskoeffizienten zum Teil kompensiert.

## 6. Die Charakterisierung und Präparation der Meßproben

Beide Carbide, sowohl Urancarbid (UC) als auch Thoriumcarbid (ThC), sind unter atmosphärischen Bedingungen nicht stabil /3,22/. In trockener Atmosphäre läßt sich UC einige Stunden handhaben, bis die matt-metallisch glänzende Oberfläche eine dunkelbraune Verfärbung zeigt, die Anzeichen einer stattfindenden Oxidation ist. ThC ist wesentlich reaktiver. Eine frisch präparierte, matt-metallisch glänzende Oberfläche überzieht sich selbst unter einer Argondusche innerhalb weniger Minuten mit einem weißen Belag aus Thoriumoxid ( $\text{ThO}_2$ ).

Da die Möglichkeit einer Nachuntersuchung der Proben nach den Experimenten nicht bestand, wurde während des gesamten Herstellungs- und Präparationsprozesses größter Wert auf eine sauerstofffreie und trockene Argonatmosphäre in den Bearbeitungs- und Lagerbehältern der Meßproben gelegt. Für alle zur Präparation der Proben benötigten Geräte wurden Handschuhkästen aus Plexiglas gebaut, in denen ständig eine saubere Argonatmosphäre ( $\text{Ar}6,0$ ) mit einem Überdruck von 30 mbar bis 50 mbar aufrecht erhalten wurde.

Während der Bearbeitung der Proben sorgte zusätzlich eine Spirale aus glühendem Zircondraht für eine sauerstofffreie Atmosphäre in den Handschuhkästen. Zwischen den einzelnen Bearbeitungsschritten wurden die Proben in Glasdosen mit eingeschliffenem Deckel unter mit Phosphorpentoxid ( $\text{P}_2\text{O}_5$ ) getrocknetem Kerosen und Argon aufbewahrt. Diese Art der Lagerung hat sich sehr gut bewährt. Die matt-metallische Bruchfläche eines frisch präparierten ThC-Pellets veränderte sich während eines Beobachtungszeitraums von vier Tagen nicht sichtbar.



## 6.1 Die Charakterisierung des Probenmaterials

### 6.1.1. Urancarbid (UC)

Urancarbid stand in Form zylindrischer Pellets mit einer Höhe von 10 mm und einem Durchmesser von 6 mm zur Verfügung. Die Spezifikationen des Materials (Herstellerangaben) sind in der nachfolgenden Tabelle angegeben.

Material	UC
Hersteller	Nukem
Chargen-Nr.	770401/2
Dimension	Ø6 mm x 10 mm
Dichte	13,12 g/cm <sup>3</sup> $\hat{=}$ 96,4% t.D.
Chem. Analyse	C 4,66%
	O <sub>2</sub> 3550 ppm
	N <sub>2</sub> 182 ppm
	Cl 15 ppm
	F <3 ppm
C-Äquivalent	1,00

Das Material wurde bis zur Verwendung in mit Argon gefüllten und abgeschmolzenen Glasrohren aufbewahrt.

### 6.1.2 Thoriumcarbid (ThC)

Thoriumcarbid konnte nicht in Form von Pellets sondern lediglich als Pulver bezogen werden. Die Spezifikationen des Materials (Herstellerangaben) sind in der nachfolgenden Tabelle angegeben.

Material	ThC
Hersteller	CERAC, P.C. Box 1178, Milwaukee, Wisconsin 53201, USA
Chargen-Nr.	7220-A-1
Dimensionen	Pulver, -40mesh
Gitterkonstante f.c.c.	5,346 Å
Chem. Analyse	Cu ≤ 50 ppm Ni, Fe ≤ 20 ppm Al ≤ 10 ppm Si, Mg ≤ 5 ppm Cr ≤ 3 ppm Ti, Ca, Mn, B ≤ 1 ppm

Zusätzlich wurde angegeben: Spuren von ThC<sub>2</sub>.

Das Material war in mit Argon gefüllten, abgeschmolzenen Glasampullen geliefert worden.

### 6.2 Die Herstellung von Pellets aus Thoriumcarbid durch Heißpressen

Da trotz intensiver Suche keine Pellets aus ThC gekauft werden konnten, mußten diese aus Pulver durch Heißpressen selbst hergestellt werden. Zu diesem Zweck habe ich eine manuell betriebene hydraulische Ein-Kolben-Pressen entsprechend umgebaut. Nach dem Umbau konnten bei einem Stempeldurchmesser von 10 mm und einem Preßdruck von 1730 bar (1,7t/cm<sup>2</sup>) Matrizentemperaturen oberhalb von 1900°C realisiert werden.

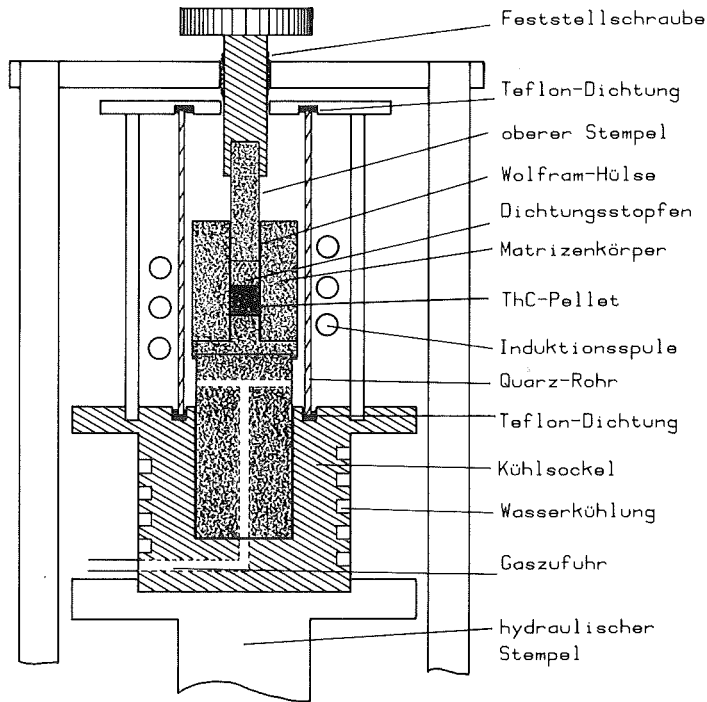


Abb.6.1: das Prinzipbild der zur Herstellung von Pellets aus Thoriumcarbid verwendeten Heißpresse.

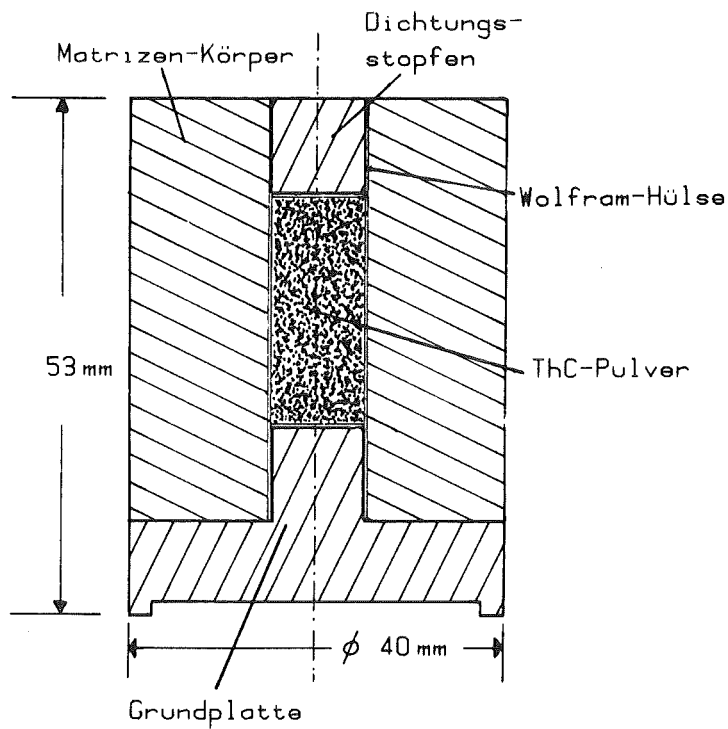


Abb.6.2: der Aufbau der zur Herstellung von Pellets aus Thoriumcarbid verwendeten Druck-Matrizen.

Der schematische Aufbau der Presse ist in der Abbildung 6.1 dargestellt.

Wegen der leichten und genauen Bearbeitbarkeit und der besonders bei hohen Temperaturen sehr großen Festigkeit wurden die Druckmatrizen aus Graphit (EK78, Ringsdorff, Bonn) hergestellt. Beim Betrachten des Kohlenstoff/Thorium-Phasendiagrammes (Abb.6.4) zeigt sich, daß es zur Erhaltung der Ausgangsstöchiometrie notwendig ist, das Thoriumcarbid wirksam von der Graphit-Matrize zu isolieren, zumal bei etwa  $1850^{\circ}\text{C}$  die Mischungslücke zwischen dem kubischen ThC und dem kubischen  $\text{ThC}_2$  verschwindet /23/. Deshalb wurde die Matrize, deren Aufbau in Abbildung 6.2 dargestellt ist, innen mit einem Röhrchen aus 0,15 mm dickem Wolframblech verkleidet. Zwischen die zum Abdichten der Matrizen oben und unten eingesetzten Graphitstopfen und das ThC-Pulver wurden ebenfalls genau eingepaßte Scheiben aus 0,3 mm starkem Wolframblech gelegt. Nach dem Pressen hatten sich diese beiden Scheiben in der Regel mit dem Wolfram-Röhrchen zu einer geschlossenen Kapsel verbunden.

Die einzelnen Teile der Graphitmatrizen wurden nach der mechanischen Bearbeitung in einer Argonatmosphäre 30 Minuten lang bei ca.  $1000^{\circ}\text{C}$  ausgeheizt, um Feuchtigkeit und von Herstellungsprozeß herrührenden Schwefelrückstände auszutreiben. Im Rahmen von Vorversuchen hatte sich bei Verwendung von nicht ausgeheizten Matrizen gelb-weißer Qualm gebildet, der zum größten Teil aus Schwefel bestand. Dieser Qualm hatte sich auf der Innenseite des Quarzschutzrohres des Preßstandes niederschlagen und die pyrometrische Temperaturmessung an der Oberfläche der Matrizen behindert.

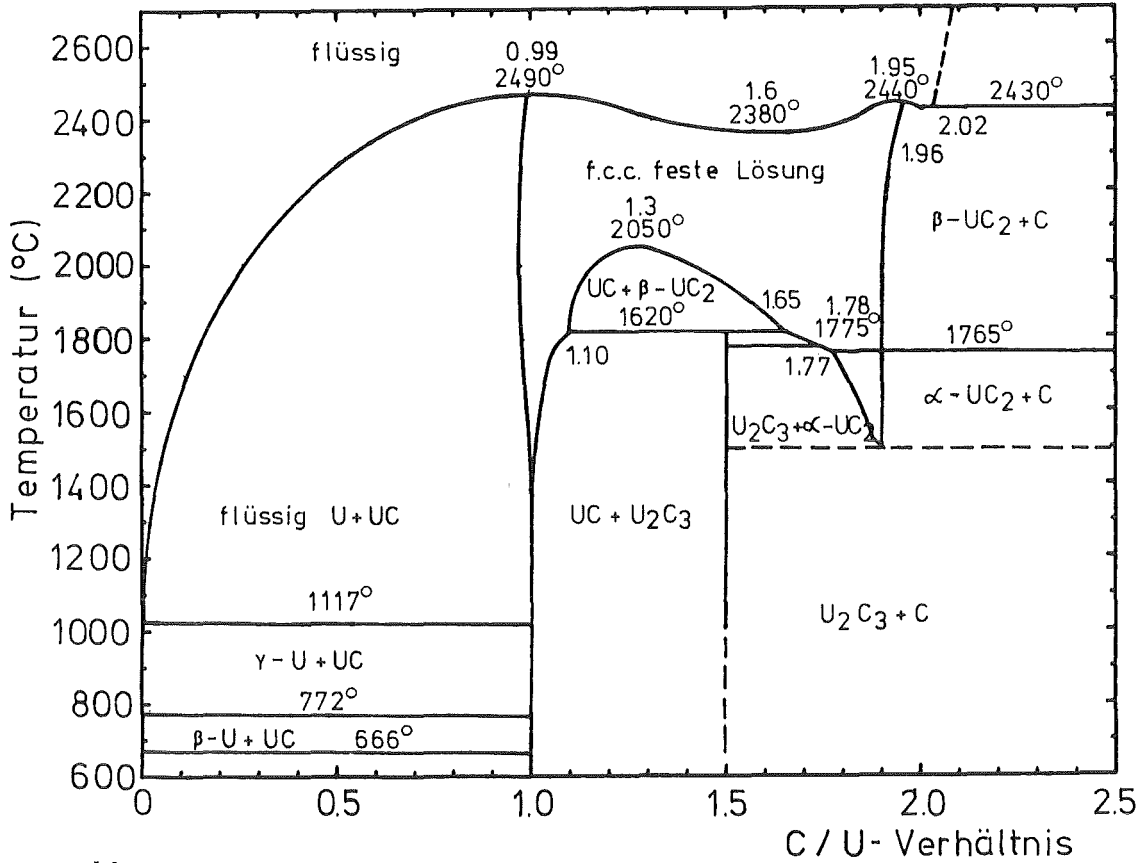


Abb.6.3: Das Phasendiagramm des Systems Uran-Kohlenstoff im Temperaturbereich zwischen 600°C und 2700°C nach Laugier und Blum /24/.

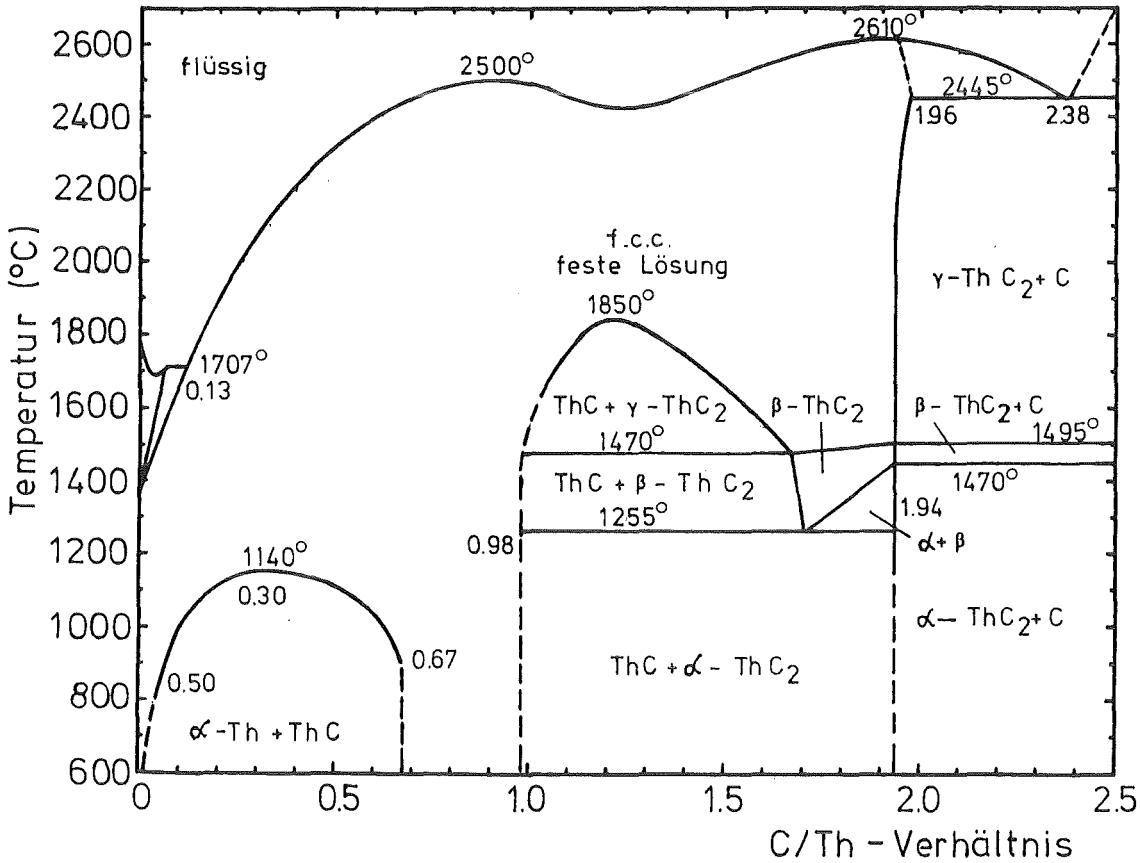


Abb.6.4: Das Phasendiagramm des Systems Thorium-Kohlenstoff im Temperaturbereich zwischen 600°C und 2700°C nach Benz und Stone /25/

Nach dem Abkühlen der Matrizen in der Argonatmosphäre wurden sie in die Schleuse des zum Zusammenbau und Füllen der Matrizen gebauten Handschuhkastens gelegt. Nach der Übernahme in den Handschuhkasten, in dem ständig eine Argonatmosphäre mit einem Überdruck zwischen 30 mbar und 50 mbar bestand, wurden die Matrizen bis auf den oberen Abschlußstopfen zusammengebaut.

Das ThC-Pulver war in Glasampullen zu je 25g Inhalt geliefert worden. Mit dieser Menge konnten drei Matrizen gefüllt werden. Die Füllmenge pro Matrize betrug 8,00 Gramm, was bei einer angestrebten Pelletdimensionierung von  $\varnothing$  10 mm x 10 mm einer Pelletdichte von 96% der theoretischen Dichte von ThC ( $10,61 \text{ gr/cm}^3$  /26/) entspricht. Der Rest des Pulvers wurde in einem offenen Gefäß im Handschuhkasten aufbewahrt und ermöglichte somit eine wirksame Kontrolle der Atmosphäre. Im Falle einer Sauerstoffkontamination wäre sofort eine weiße Verfärbung des grauen Pulvers festzustellen gewesen.

Da beim Einbau der Matrizen in die Heißpresse ein kurzer Kontakt mit der Raumluft nicht zu vermeiden war, wurden die an den Enden des Wolframröhrchens sitzenden Abschlußstopfen aus Graphit mit geringem Übermaß (0,02 bis 0,03 mm) angefertigt und mit einer kleinen manuellen Preßvorrichtung in die Matrizen eingepreßt. Der Inhalt zweier versuchsweise für zwei bzw. vier Stunden der Raumluft ausgesetzten Matrizen wies keine sichtbaren Oxidationsspuren auf.

Während des Preßvorgangs befanden sich die Matrizen in einem Schutzrohr aus Quarz, das am unteren Ende gegen den Pressenfuß vollständig abgedichtet war. Die Durchführung des Druckstempels durch die obere Abdeckplatte des Quarzrohres wurde möglichst spielfrei ausgeführt. Eine wirksame Abdichtung war jedoch nicht möglich. Aus diesem Grund wurde unter strömendem Argon gepreßt. Das Gas wurde durch eine Bohrung im Sockel der Matrizenhalterung zugeführt.

Die Matrizen wurden induktiv durch einen Hochfrequenzsender (EMA, HGD, 50 kW) aufgeheizt. Die verwendete Spule umschloß das Quarz-Schutzrohr mit drei Windungen aus Kupferrohr ( $\text{Ø}8 \times 1$  mm). Sie hatte einen Innendurchmesser von 50 mm und eine Höhe von 40 mm. Die höchste Arbeitstemperatur von  $1950^{\circ}\text{C}$  wurde bei einer Senderleistung von 18,5 kW erreicht. Die Temperaturbestimmung erfolgte an der Oberfläche der Matrizen mit einem 2-Farben-Pyrometer (IRCON R35C10). Mit diesem Gerät konnte die Temperatur mit einer Genauigkeit von  $\pm 20^{\circ}\text{C}$  gemessen werden.

Im Rahmen der Vorversuche zeigte sich, daß eine Regelung der Senderleistung während des Preßvorganges nicht notwendig war. Das kalt bei einem Druck von 60 M Pa ( $0,6 \text{ t/cm}^2$ ) kompaktierte Pulver wurde mit konstanter Senderleistung aufgeheizt. Bei etwa  $1450^{\circ}\text{C}$  setzte eine merkliche Druckabnahme durch Fließen ein. Bei weiter steigender Temperatur wurde innerhalb von etwa 15 Sekunden der Arbeitsdruck der Presse auf 173 M Pa ( $1,7 \text{ t/cm}^2$ ) erhöht. Dieser Druck wurde durch mehrmalige manuelle Nachregelung möglichst genau eingehalten. Nach etwa 80 bis 90 Sekunden konnte in der Regel kein Druckabbau durch Fließen mehr registriert werden. Nach weiteren 10 Sekunden wurde der Sender abgeschaltet. Der zeitliche Verlauf von Druck und Temperatur während des Preßvorgangs ist in der Abbildung 6.5 dargestellt.

Die Matrize wurde während des Abkühlens bei einer Temperatur von etwa  $1400^{\circ}\text{C}$  entlastet. Das Abkühlen der Matrize unter strömendem Argon auf Raumtemperatur dauerte etwa 15 Minuten. Danach wurde die Matrize aus der Presse entnommen und in die Schleuse des Handschuhkastens, in dem die Drahtsäge aufgebaut war, gebracht. Die Schleuse wurde ebenfalls einige Zeit mit Argon gespült, bevor die Matrize in den Handschuhkasten übernommen wurde. Zuerst wurde die Matrize parallel zur Längsachse aufgesägt und die Wolframkapsel freigelegt. Ein Haften der Kapsel an der Graphitmatrize konnte nicht festgestellt werden. Mit einer Pinzette wurde die sehr spröde Wolfram-

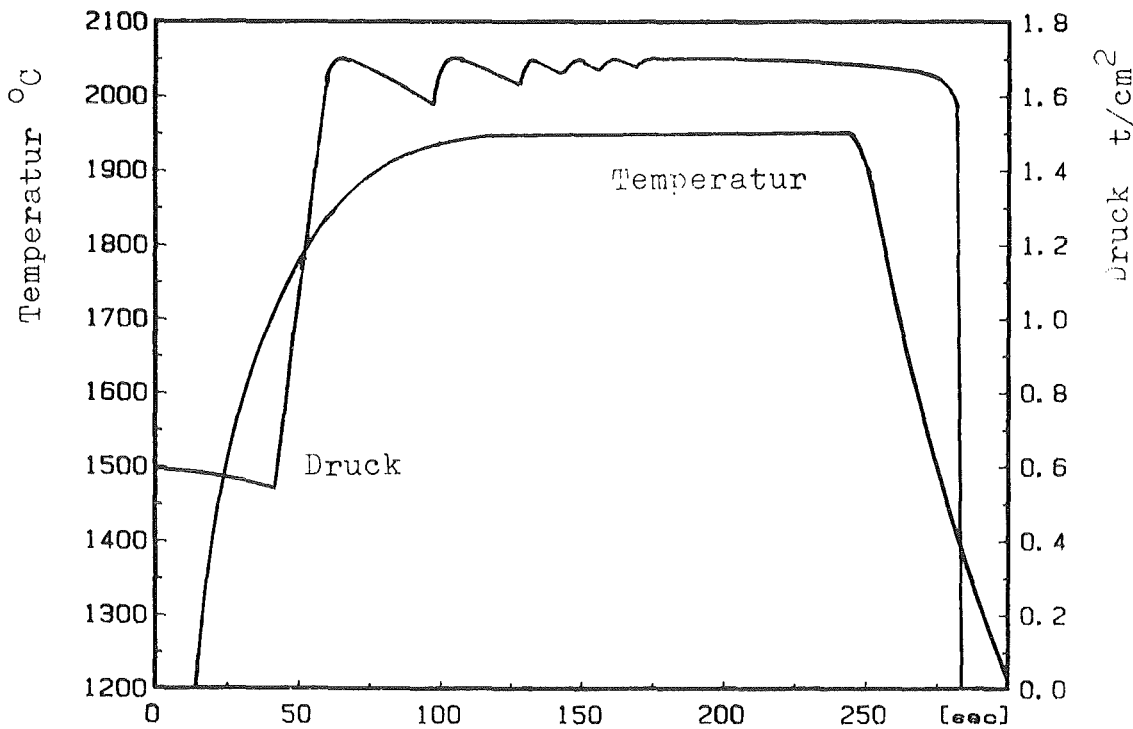


Abb.6.5: der zeitliche Verlauf der Matrixtemperatur und des Preßdruckes während des Heißpreßvorgangs.

hülle vom Thoriumcarbid-Pellet abgeschält. Ein Haften des Pellets am Wolframblech der Hülle konnte ebenfalls nicht beobachtet werden.

Die freigelegten Pellets glänzten matt-metallisch. Um die erreichte Dichte zu bestimmen wurden sie sofort vermessen. Die Dichte betrug bei 13 hergestellten Pellets im Mittel  $10,20 \text{ g/cm}^3$  bei einer Standardabweichung von  $0,11 \text{ g/cm}^3$ . Dieser Wert entspricht einer mittleren Dichte der Pellets von 96,1 % der theoretischen Dichte von Thoriumcarbid. Die Pellets wurden sofort in Scheiben mit einer Dicke von 1,8 mm geschnitten. Die Endstücke, deren Oberfläche direkt mit den Wolframabdeckscheibchen in Kontakt gestanden hatten, wurden verworfen, um eine Beeinflussung der Meßergebnisse durch gegebenenfalls in das Probenmaterial eindiffundiertes Wolfram zu vermeiden.



Die weitere Präparation der Probenscheiben war für die Proben aus ThC und UC identisch. Sie wird im nachfolgenden Kapitel 6.3 beschrieben.

### 6.3 Die Präparation der Meßproben

Die Pellets aus Urancarbid wurden in gleicher Weise wie die Pellets aus Thoriumcarbid mit einer Drahtsäge (LASTEC 2005A) in 1,8 mm dicke Scheiben gesägt. Dazu wurde ein 0,375 mm dicker, mit einer diamantimprägnierten Kupfer-Beryllium-Schicht versehener, Stahldraht verwendet. Die Geschwindigkeit des Drahtes betrug etwa 1,5 m/sec. Während des Sägens wurde die Schnittstelle ständig mit getrocknetem Kerosen gespült. Nach dem Sägen wurden die Probenscheiben in mehreren Stufen mit Naßschleifpapier bearbeitet, um die gewünschte Oberflächenrauigkeit zu erreichen. Die dazu verwendete Tellerschleifmaschine (Struers DP, 300 U/min) war ebenfalls in einem Handschuhkasten untergebracht, in dem eine saubere Argonatmosphäre mit einem Überdruck von 30 mbar bis 50 mbar aufrecht erhalten wurde.

Beim Schleifen wurde besonderer Wert auf die Erzielung planparalleler Probenscheiben gelegt. Dazu wurden die Proben in einen Halter mit großer, gehärteter Auflagefläche eingesetzt und mit leichtem Druck auf die Schleifscheibe gedrückt. Das Schleifpapier wurde ständig mit getrocknetem Kerosen beträufelt. Eine Seite der Proben wurde lediglich mit Schleifpapier der Körnung 300 geplant. Danach wurde die Probenscheibe gedreht und die zweite Seite auf gleiche Art behandelt. Dabei wurde die Probenscheibe auf eine Dicke von etwa 1,6 mm abgeschliffen. In den nächsten drei Bearbeitungsstufen wurde eine Probenseite mit Naßschleifpapieren der Körnung 600, 800 und 1000 auf eine Dicke von 1,5 mm geschliffen. Die so behandelten Probenscheiben wiesen matt glänzende Oberflächen praktisch ohne Riefen auf. In den Abbildungen 6.6 und 6.7 werden zwei elektronenmikroskopische Vergrößerungen der Oberflächen von Probenscheiben aus UC bzw. ThC gezeigt.

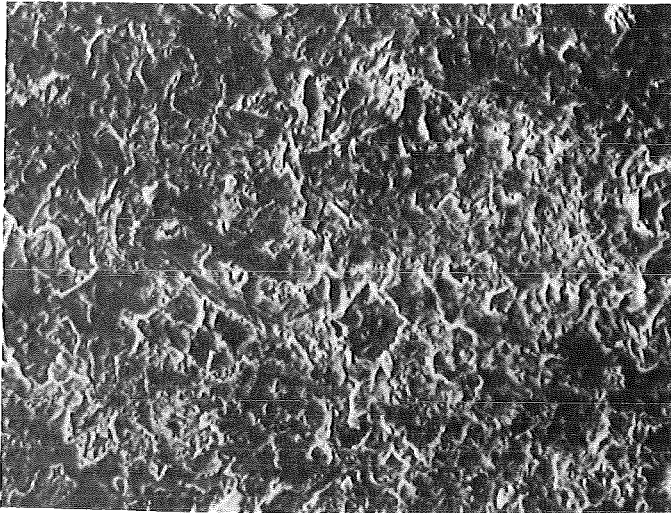


Abb. 6.6: elektronenmikroskopische Aufnahme der Oberfläche einer Probenscheibe aus Thoriumcarbid (x 1000).

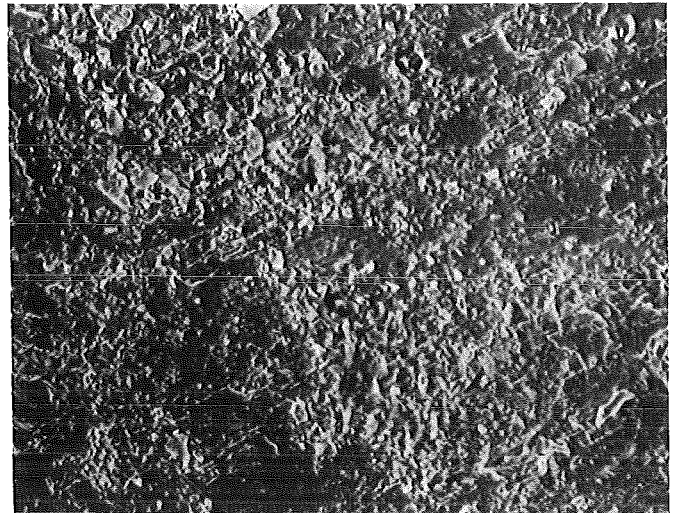


Abb. 6.7: elektronenmikroskopische Aufnahme der Oberfläche einer Probenscheibe aus Urancarbid (x960).

Versuchsweise wurden einige Probenscheiben mit Diamantschleifpaste (Körnung  $3\mu$ ) auf Samt poliert. Die Qualität der Oberflächen wurde dadurch nicht wesentlich verbessert. Die Stabilität der Probenoberfläche war jedoch deutlich schlechter, was auf einen geringen Wassergehalt des Schleifmittels zurückzuführen war.

Die Probenscheiben wurden nach dem Schleifen mit einer Genauigkeit von  $0,25^\circ$  vermessen, um die Einhaltung der geforderten Planparallelität zu überprüfen. Danach wurden sie in wasserfreiem Leichtbenzin vom anhaftenden Kerosen gereinigt, auf die vorbereiteten Probenträger montiert und sofort in das Kugelreflektometer eingesetzt.

## 7. Die Beschreibung des Versuchsaufbaus und der Durchführung der Experimente

### 7.1 Das Kugelreflektometer

Das Kernstück des Versuchsaufbaus, der in Abbildung 7.1 schematisch dargestellt ist, ist das für die hier beschriebenen Experimente entwickelte Kugelreflektometer. Dieses, auch unter dem Namen Ulbricht-Kugel bekannte, Meßinstrument ist für Innendrucke bis 40 bar ausgelegt. Die aus zwei Halbschalen zusammengesetzte Kugel mit einem Innendurchmesser von 200 mm ist aus magnetisierbarem Stahl (R ST 37) gefertigt. Die Einsätze bestehen aus Edelstahl (Wst. Nr. 1.4301) (siehe Abbildung 7.2).

Der Grund für diese Materialwahl bestand in der Notwendigkeit, die Stelle der Kugelinnenfläche zu schützen, auf die der von der Probenoberfläche kommende Reflex des Heizlaserstrahles trifft. Zu diesem Zweck wurde ein poliertes Edelstahlblech auf einen kleinen Magneten geklebt und an die betreffende Stelle gesetzt. Diese Art der Befestigung verursachte keine Schäden an der empfindlichen Beschichtung der Kugelinnenfläche.

In die fünf Flansche der vorderen Kugelhälfte sind Quarzfenster eingebaut, die als Beobachtungs- bzw. Einstrahlöffnungen dienen. Die Fenster sind mit O-Ringen gegen die Flansche abgedichtet und werden von aufgeschraubten Druckringen gehalten (siehe Abb.7.2). Die drei in die rückwärtige Hälfte der Kugel eingesetzten Flansche haben unterschiedliche Aufgaben (siehe Abb.7.3). Durch den unteren wird das Gas zugeführt, bzw. abgepumpt. Der mittlere Flansch nimmt die Drehdurchführung des Probenträgers auf und auf dem oberen sitzt der optische Detektor.

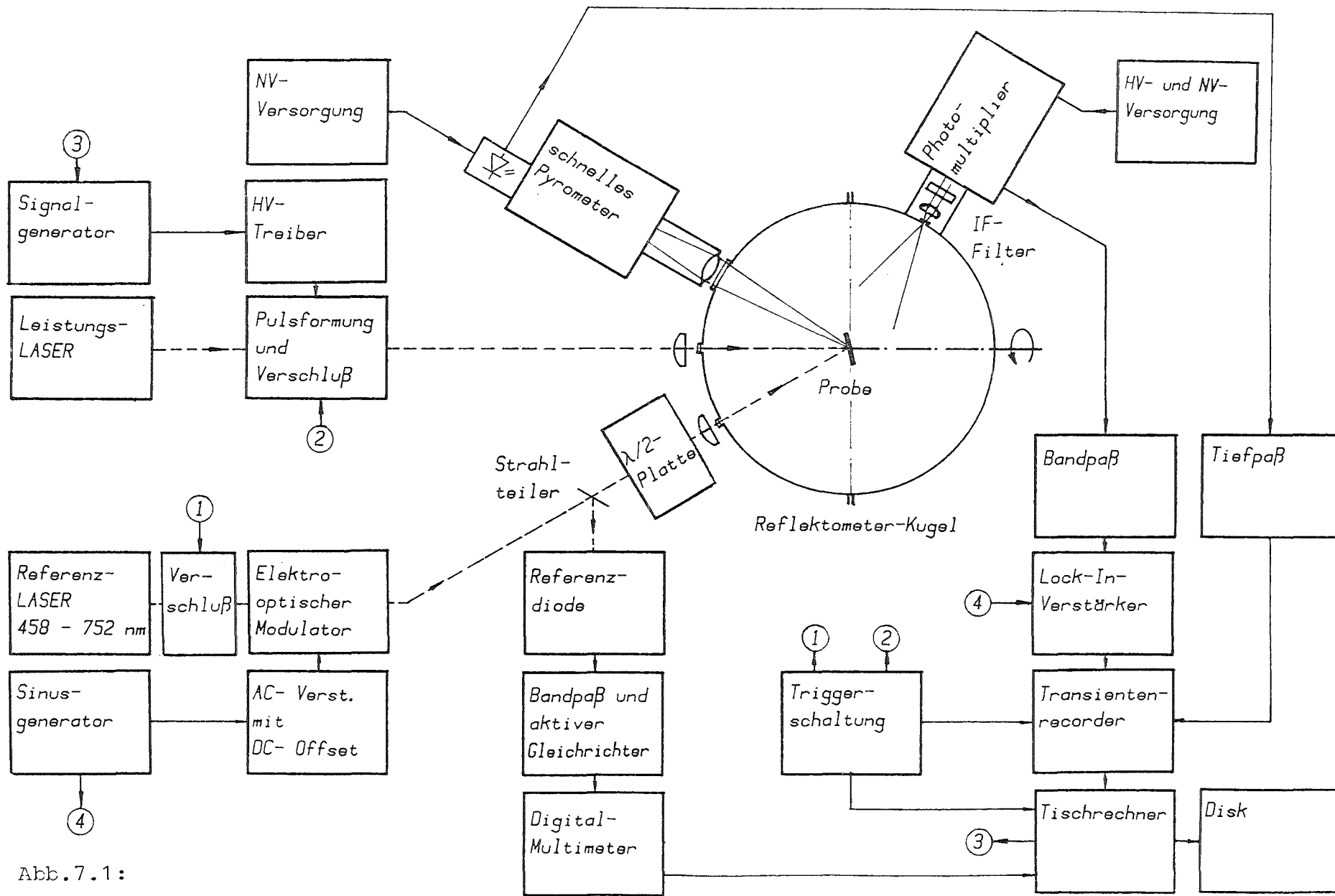


Abb. 7.1:

Reflexionsmessungen:  
Schematischer Aufbau

el. Signale ———  
 Lichtweg - - - - -

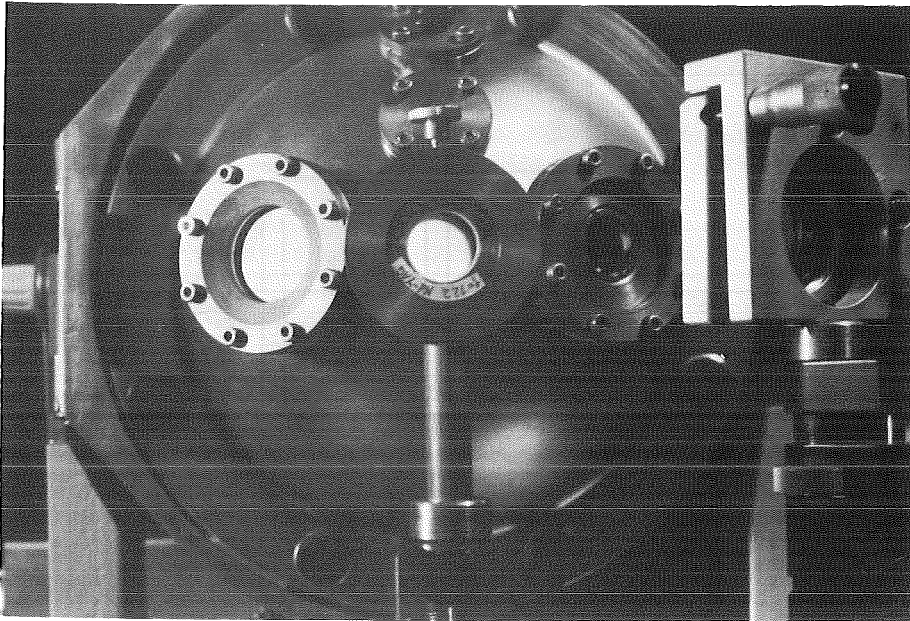


Abb.7.2: die vordere Halbkugel des Kugelreflektometers

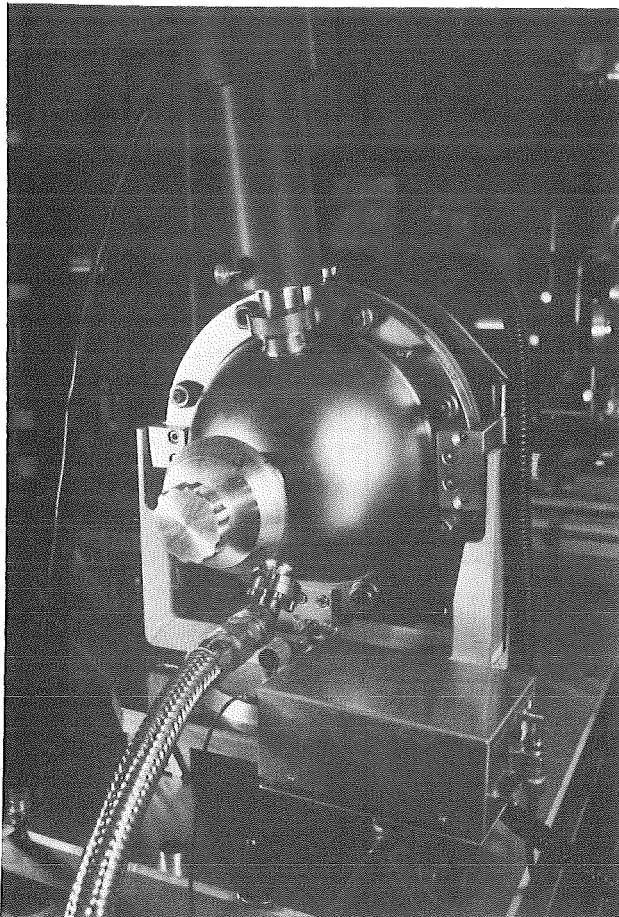


Abb. 7.3:  
die hintere Halb-  
kugel des Kugelreflektometers mit aufgesetztem SEV-Detektor (oben). Der Drehgriff dient zur Einstellung der Probenposition.

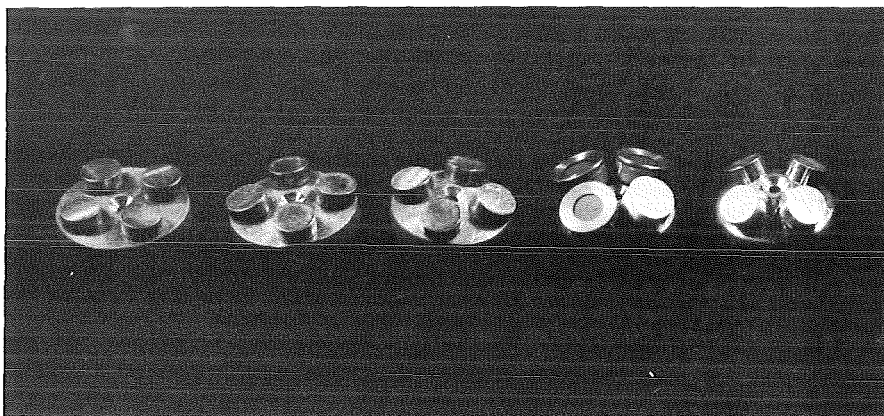


Abb.7.4: die verwendeten Probenträger

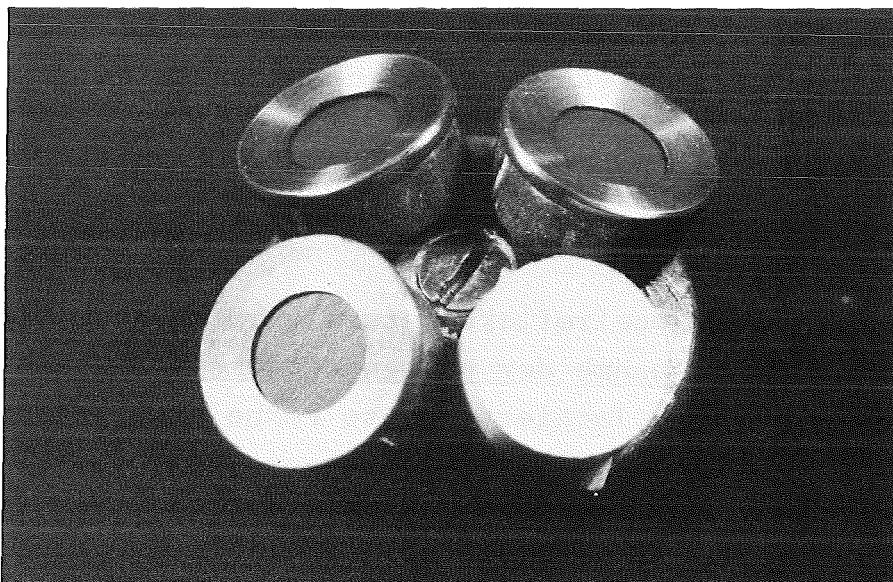


Abb.7.5: vergrößerte Abbildung eines Probenträgers. Drei der vier Probenaufnahmen sind mit Meßproben bestückt, auf der vierten Position (vorne rechts) ist ein Halon-Standard montiert.

Zum Einbau der Meß-Proben müssen die Kugelhälften nicht getrennt werden. Die Proben werden, auf dem Probenträger montiert, zusammen mit der Drehdurchführung durch den mittleren Flansch in die Kugel eingebracht. Die Achse des Probenträgers ist so bemessen, daß die Meßproben in der Nähe der Kugelmitte sitzen. Auf dem Probenträger können drei Meß-Proben und eine Standardprobe montiert werden. Die Neigung der Probenaufnahmen ist von Träger zu Träger unterschiedlich und hat Werte zwischen  $7,5^{\circ}$  und  $30^{\circ}$  (siehe Abb. 7.4). Die Probenträger wurden nach der Fertigung optisch vermessen um eine sichere Einstellung der Meß-Geometrie zu ermöglichen.

Die Probenscheiben, die einen Durchmesser von 6 mm (UC), bzw. 10 mm (ThC) halten, werden mit kleinen Kappen an die Probenaufnahmen angepreßt (siehe Abb.7.5). Wegen der Planparallelität der Proben ist dadurch eine sichere Einhaltung des Reflexionswinkels gewährleistet.

Die Innenfläche des Kugelreflektometers wurde ebenso wie die Probenträger (mit Ausnahme der Probenaufnahmen) mit einer matt-weißen Acrylfarbe lackiert. Diese Farbe dient als Haftgrund für die Beschichtung mit einer speziellen weißen Reflexionsfarbe (Kodak White Reflectance Coating 6080 /27/), die einen sehr hohen, praktisch absolut diffusen Reflexionsgrad hat. Die Reflexionseigenschaften der Kugelinnenfläche sind für die Funktion des Kugelreflektometers von grundsätzlicher Bedeutung /28/. Deshalb wurde die Beschichtung nach jeder Meßserie vollständig erneuert. Durch abgedampftes Probenmaterial, das sich auf den Kugelinnenflächen niederschlägt, würde mit der Zeit die Qualität der Beschichtung abnehmen, was eine verminderte Signalhöhe zur Folge hätte.

## 7.2 Die Lichtquelle und der optische Detektor

Das an der Probenoberfläche zu reflektierende Licht wurde, je nach gewünschter Wellenlänge, entweder von einem Argon-Ionen- oder einem Krypton-Ionen-Laser erzeugt (Spectra Physics 164). Beide Laser sind in der Lage, je nach Justierung der Spiegelsysteme, Licht verschiedener Wellenlängen zu liefern. Die verschiedenen Laserlinien unterscheiden sich jedoch sehr in der Intensität der Strahlung. Deshalb konnte die Mehrzahl der Linien nicht verwendet werden. Gemessen wurde bei der 458 nm- und der 514,5 nm-Linie des Argon-Ionen-Lasers sowie bei der 647 nm- und der 752,5 nm-Linie des Krypton-Ionen-Lasers. Die Messungen wurden bei Strahlleistungen von etwa 300 mW durchgeführt.

Das Laserlicht wird, um es von der intensiven thermischen Strahlung der Probenoberfläche separieren zu können, unter Verwendung einer Pockelszelle und nachfolgendem Analysator mit einer Frequenz von 200 kHz sinusförmig moduliert. Mit Hilfe eines Umlenkungssystems aus zwei Metallspiegeln wird der Laserstrahl durch das vordere rechte Eintrittsfenster der Reflektometerkugel auf die Probe gerichtet.

Zwischen den beiden Umlenkspiegeln wird durch eine schräg in den Strahl gestellt Glasplatte ein kleiner Teil des Laserlichtes ausgeblendet und von einer Diode erfaßt. Das Signal der Diode dient als Kontrolle der Laserleistung. Nach dem zweiten Umlenkspiegel ist eine  $\lambda_2$ -Platte angeordnet, mit der die Orientierung der Polarisationssebene der linear polarisierten Laserstrahlung bezüglich der Einfallsebene der Meßprobe eingestellt wird. Vor dem Eintritt in die Kugel wird das Laserlicht mit einer Linse (Brennweite 150 mm) auf die Oberfläche der Probe fokussiert. Durch Defokussierung kann die Größe der aufgeheizten Fläche variiert werden.



Das an der Probenoberfläche reflektierte Licht wird mit einer Sekundär-Elektronen-Vervielfacher-Röhre (Valvo PM2013) gemessen, die auf dem oberen Flansch der rückwärtigen Kugelhälfte montiert ist (siehe Abb.7.3). In diesem Flansch ist ein optisches System eingebaut, das aus einer Blende, einem Quarzfenster, einer Linse und einem Interferenzfilter besteht.

Die Blendenöffnung mit einem Durchmesser von 0,25 mm sitzt genau in der Ebene der Kugelinnenwand. Die Linse ist so eingebaut, daß ihr Brennpunkt ebenfalls in dieser Ebene liegt. Zwischen Linse und Blende sitzt ein Quarzfenster, das die Kugel abdichtet. Diese Anordnung bewirkt, daß ein paralleles Lichtbündel das hinter der Linse gesetzte Interferenzfilter durchläuft. Die Transmissionswellenlänge dieses Interferenzfilters entspricht genau der der einfallenden Laserstrahlung.

Für schräg durch ein Interferenzfilter laufendes Licht ändert sich die Transmissionswellenlänge  $\lambda$  nach folgender Gleichung /29/:

$$\lambda = \lambda_0 \cdot \sqrt{1 - \left(\frac{\sin \theta}{n}\right)^2} \quad 7-1$$

$\lambda_0$  ist die Transmissionswellenlänge für senkrechten Einfall und

$n$  ist der Brechungsindex des Filtersubstrats.

Durchläuft also die Mischung aus Laserlicht und thermischer Strahlung der Probe das Interferenzfilter nicht senkrecht, so wird der Anteil Laserstrahlung zu gunsten des thermischen Strahlungsanteils vermindert, was die Signalqualität verschlechtert.

Die durch den beschriebenen Aufbau bewirkte Trennung des Laserlichtes von der thermischen Strahlung reicht noch nicht aus. Deshalb wird das elektrische Signal des SEV-Detektors in zwei Stufen aufbereitet. In der ersten Stufe durchläuft es ein aktives elektronisches Filter, dessen Zentralfrequenz von 200 kHz genau der Modulationsfrequenz des Laserlichtes entspricht.

In der zweiten Stufe wird der Effektivwert des Signals von einem Lock-In-Verstärker gebildet. Der Lock-In-Verstärker hat zwei Eingänge. Am einen liegt das Meßsignal, am anderen ein Referenzsignal. Der Unterschied zu üblichen Verstärkern besteht darin, daß ein Lock-In-Verstärker praktisch nur die Signalanteile verstärkt, die mit dem Referenzsignal frequenz- und phasengleich sind. Als Referenzsignal wurde das Modulationssignal für die Pockelszelle verwendet. Der Anteil der thermischen Strahlung am Meßsignal konnte so wirkungsvoll unterdrückt werden.

Das große Fenster auf der linken Vorderseite der Kugel ist die Beobachtungsöffnung für das Pyrometer, dessen Aufbau und Funktionsprinzip bereits in Kapitel 4 beschrieben wurde.

### 7.3 Das Aufschmelzen der Proben mit einem Leistungslaser

Zum lokalen Aufheizen der Proben bis weit über den Schmelzpunkt hinaus wurde ein Nd-YAG-Lasersystem eingesetzt, das intensive Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von  $1,06 \mu\text{m}$  abgibt. Dieses System (LASAG, 2x LV480 + 2x LAK400) besteht aus einem regulären Laseroszillator, dem ein Laserverstärker nachgeschaltet ist. Der Laserverstärker ist bis auf die fehlenden Spiegel mit dem Oszillator identisch. Die Laserstrahlung wird nicht kontinuierlich sondern in Form kurzer Pulse abgegeben. Die Pulslänge kann bei stabilem Betrieb zwischen einer und etwa sechs Millisekunden variiert werden. Die Pulsfolgefrequenz kann unter diesen Bedingungen zwischen etwa 0,3 Hz und 1 Hz gewählt werden. Die Einstellbereiche

des Lasers sind wesentlich größer, wenn man keinen Wert auf eine gleichmäßige örtliche und zeitliche Energieverteilung im Strahl legt. Bei stabiler Einstellung hat der Laserpuls eine Form, wie sie in Abbildung 7.6 gezeigt wird. Die Maximalleistung im Puls beträgt etwa 10 kW, die maximal verfügbare Pulsenergie liegt bei etwa 20 Joule.

Am Anfang des Pulses erkennt man schnelle Leistungsszillationen, die für den Einschwingvorgang eines gepulsten Lasers charakteristisch sind. Die Leistung dieser Oszillationen ist sehr groß. Sie können die sofortige Zerstörung der Meßproben bewirken. Um diese anfänglichen Leistungsspitzen nicht noch weiter zu verstärken werden die Blitzlampen des Laser-Verstärkers erst etwa 0,1 msec nach denen des Oszillators gezündet. Wegen der fehlenden Spiegel zeigt der Verstärker dieses Einschwingverhalten nicht.

Die Regelung der Laserleistung wie auch die Formung des Laserpulses erfolgte durch eine nach dem Verstärker angeordnete Pockelszelle mit nachfolgendem Analysator. Die Pockelszelle (Sonderanfertigung DPZ 8, Gsänger, Optische Komponenten) wurde von einem rechnergesteuerten Signalgenerator (Wavetek 172 B) geregelt. Da die Pockelszelle eine Steuerspannung von 4 kV benötigt, ist dem Signalgenerator ein schneller Hochspannungsverstärker (LASAG HV3) nachgeschaltet. In der Abbildung 7.7 ist der geformte Laserpuls (untere Spur) sowie das Regelsignal (obere Spur) dargestellt. Die oben erwähnten Einschwingoszillationen werden von der Pockelszelle unterdrückt.

Die gezeigte Pulsform wurde im Rahmen langer Vorversuche ermittelt. Der erste Teil des Pulses, der sogenannte Vorpuls, bewirkt, daß der bestrahlte Teil der Probenoberfläche auf eine Temperatur knapp oberhalb des Schmelzpunktes gebracht wird. Die dafür benötigte Zeit beträgt etwa eine Millisekunde. Da die Laserleistung danach sofort vermindert wird, erstarrt die Schmelze wieder. Das kurzzeitige Aufschmelzen bewirkt

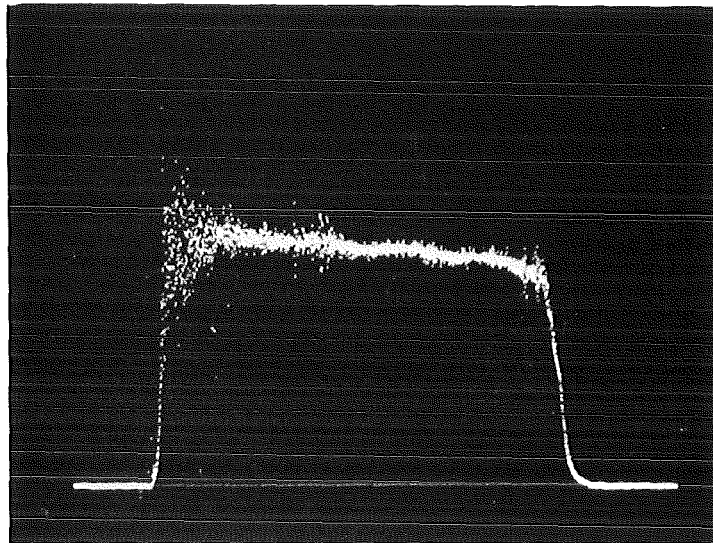


Abb. 7.6: Leistungssignal eines unregulierten Nd-YAG-Laserpulses.

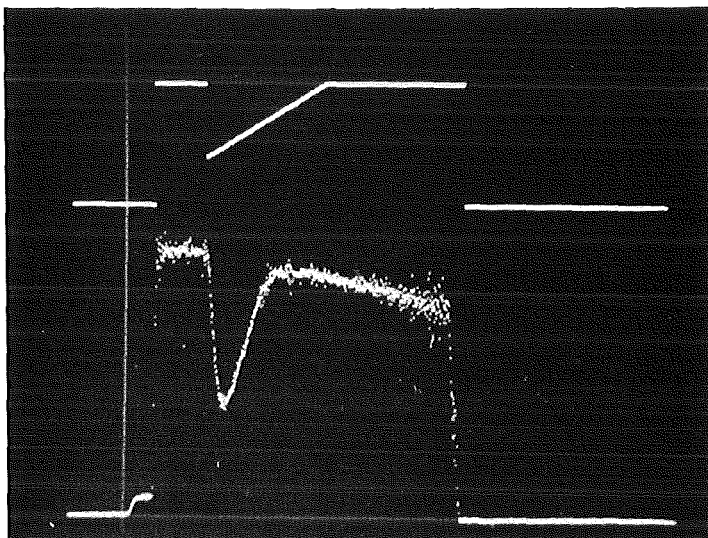


Abb. 7.7: Leistungssignal eines geformten Nd-YAG-Laserpulses (untere Spur). Die obere Spur zeigt das zugehörige Regelsignal.

zweierlei. Zum einen findet eine Säuberung des Oberflächenmaterials von eventuell vorhandenen Verunreinigungen statt, da diese aufgrund der in der Regel wesentlich höheren Dampfdrucke schnell aus der Schmelze verdampfen. Zum anderen wird die Probenoberfläche durch den Vorpuls homogenisiert und vorgeheizt, so daß die thermische Belastung des Materials in der Nähe der Probenoberfläche durch den energiereicheren Hauptpuls vermindert wird. Mit dieser Methode konnten relativ moderate Aufheizraten der geschmolzenen Oberfläche realisiert werden. Bei einer Maximalleistung ein Puls von 2 kW und einer Pulsenergie von etwa 8 Joule lagen sie im Temperaturbereich zwischen 3000 K und 4000 K in der Regel zwischen 100 K/msec und 300 K/msec.

Die Aufheizraten sowie das Aufschmelzverhalten der Meßprobenoberfläche werden wesentlich vom Inertgasdruck in der Reflektometerkugel beeinflusst. Für die gewünschten Meßtemperaturen zu kleine Drucke haben zur Folge, daß zuviel Probenmaterial von der Oberfläche abdampft und deshalb die Ausbildung einer homogenen geschmolzenen Schicht ausreichender Tiefe nicht möglich ist. Dagegen führen zu hohe Inertgasdrucke in der Kugel wegen der Behinderung der Verdampfung zu einer unerwünscht starken Aufheizung der Probenoberfläche. Der deswegen steile Temperaturgradient senkrecht zur Oberfläche verursacht eine große thermische Belastung, die zur Zerstörung der Proben Scheiben durch Bruch führt .

Bei den Messungen an Urancarbid konnten Temperaturen oberhalb von 4100 K bei einem Argondruck von 11 bar im Kugelreflektometer durchgeführt werden. Die Messungen an Thoriumcarbid bei denen Temperaturen von nahezu 4000 K erreicht wurden, fanden bei einem Inertgasdruck von 9 bar statt.

Die Abbildung 7.8 zeigt einen typischen Laserkrater in Urancarbid. Die Krater in Thoriumcarbid zeigten keine abweichenden Merkmale. Der größte Durchmesser zwischen den Kraterwällen beträgt 1,2 mm, die größte Tiefe etwa 0,09 mm bezogen auf das Niveau der ungestörten Probenoberfläche. Die Wälle am Kraterrand haben eine Höhe zwischen 0,02 mm und 0,05 mm. Diese Form der Krater begrenzt den Bereich der realisierbaren Reflexionswinkel nach oben auf etwa  $75^\circ$ . Bei größeren Reflexionswinkeln kann nicht mehr mit Sicherheit ausgeschlossen werden, daß das einfallende Licht den Krater-  
rand streift.

Die Strahlung des Heizlasers wird durch ein Umlenksystem, das aus zwei dielektrischen Spiegeln besteht, durch das zentrale Fenster der vorderen Kugelhälfte auf die Probe gerichtet. Vor diesem Fenster befindet sich eine Linse mit einer Brennweite von 127 mm, die einen Abstand von 170 mm zur Probenoberfläche hatte. Der Heizlaserstrahl wurde also nicht scharf auf die Probenoberfläche fokussiert.

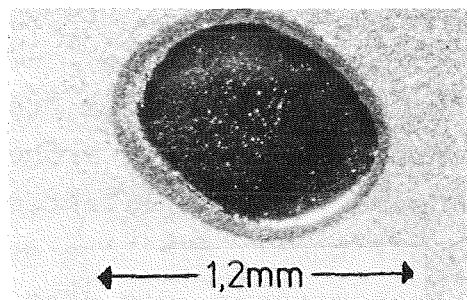


Abb.7.8: elektronenmikroskopische Aufnahme eines durch Laser-Aufheizung erzeugten Kraters in der Oberfläche einer Urancarbid-Probe

#### 7.4 Die Einstellung des Polarisationszustandes und des Reflexionswinkels

In Kapitel 3 wurde gezeigt, daß der Reflexionsgrad für linear/polarisiertes Licht dann am kleinsten ist, wenn es parallel zur Einfallsebene der Probenoberfläche polarisiert ist. Für senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht wird der Reflexionsgrad maximal. Da die keramischen Proben vor dem Aufschmelzen nicht perfekt glatt sind, kann die Einstellung des Polarisationszustandes nicht an den Proben selbst stattfinden. Deshalb wird dafür eine planparallele, auf optische Güte polierte Einkristallscheibe aus  $\text{UO}_2$  verwendet, die die gleiche Dicke wie die verwendeten Meßproben hat. Urandioxid ist an Luft sehr stabil und läßt sich gut polieren.

Zur Einstellung wird der Laserstrahl auf das Zentrum des Kristalls justiert. Durch Drehen der oben erwähnten  $\lambda/2$ -Platte werden Minimum und Maximum der reflektierten Intensität gesucht und mit präzisen Anschlägen auf dem Einstellring der  $\lambda/2$ -Platte markiert. Diese Einstellung erfolgte mehrmals vor jeder Meßreihe. Die dabei gefundenen Winkel konnten mit einer Genauigkeit von  $\pm 0,5^\circ$  eingestellt und reproduziert werden.

Die Reflexionswinkel werden durch Wahl eines Probenträgers geeigneter Neigung sowie durch Drehung der Probenträgerachse eingestellt. Die gesamte Geometrie der Reflektometer-Kugel, d.h. der Innendurchmesser der Kugel, die Lage der Eintrittsfenster, die Neigung der Probenträger, die Höhe der Probenträger, sowie die Länge der Probenträgerachse werden vor Beginn der Experimente sehr genau vermessen. Deshalb ist es möglich, für jeden gewünschten Reflexionswinkel mit Hilfe eines Rechenprogrammes den geeigneten Probenträger sowie die notwendige Drehung der Probenträgerachse zu berechnen.

Dabei wird automatisch berücksichtigt, daß der Winkel unter dem das Pyrometer auf die Probenoberfläche gerichtet ist, möglichst groß wird, um eine exakte Justierung des Meßpunktes für die Temperaturmessung, der dem Aufpunkt des Laserstrahles auf der Probenoberfläche entsprechen muß, gewährleisten zu können.

Um die Ergebnisse der Rechnungen überprüfen zu können, wurde ein genaues Duplikat der vorderen Kugelhälfte aus Plexiglas angefertigt. An deren Innenwand war der Aufpunkt des reflektierten Laserstrahls sehr gut auszumachen. Bei Reflexionen an der polierten Einkristallscheibe aus  $\text{UO}_2$  konnte im Rahmen der Meßgenauigkeit von  $0,5^\circ$  keine Abweichung vom vorausgerechneten Aufpunkt festgestellt werden.

Bei vier Proben aus Urancarbid und drei Proben aus Thoriumcarbid wurde diese Prüfung nach dem Beschuß mit dem Heizlaser an der erstarrten Schmelze im Kraterboden wiederholt. Die größte dabei festgestellte Abweichung vom eingestellten Reflexionswinkel betrug  $1,5^\circ$ , die mittlere Abweichung betrug  $1^\circ$ . Diese Überprüfung konnte an der Mehrzahl der Proben nicht durchgeführt werden, weil sich bei ihnen beim Abkühlen der Schmelze im Kraterboden Risse ausgebildet hatten.

### 7.5 Der Reflexionsstandard

Im Hinblick auf die Bestimmung des spektralen Emissionsgrads wurde auch der spektrale Reflexionsgrad der Meßproben gemessen. Dazu mußten die Reflexionssignale mit Hilfe eines Reflexionsstandards normiert werden, obwohl dieses, wie im Kapitel 3 dargestellt, zur Bestimmung der optischen Konstanten nicht nötig ist.



Von den vier Probenaufnahmen eines Probenträgers wurden deswegen nur drei mit den Meßproben bestückt. Auf die vierte Probenaufnahme wurde ein Preßling aus Halon montiert. Bei diesem Material handelt es sich um ein Fluor-Kohlen-Wasserstoff-Polymer mit hervorragenden optischen Eigenschaften /30/. Sein spektraler Reflexionsgrad ist vom sichtbaren Spektralbereich bis zum nahen Infrarot unabhängig vom Reflexionswinkel größer als 0,99. Im Gegensatz zu polierten Metallspiegeln läuft das Material unter atmosphärischen Bedingungen nicht an und kann deswegen problemlos gehandhabt werden. Mit einer manuellen Preßvorrichtung wurde vor jeder Messung aus dem im Lieferzustand pulverförmigen Material eine kleine Tablette gepreßt, die auf den Probenträger montiert und zusammen mit den Meßproben in die Kugel eingesetzt wurde.

Die Kalibriermessung wurde zu Beginn jeder Meßserie durchgeführt. Weitere Kalibrierungen zwischen den einzelnen Experimenten waren nicht möglich, da nicht ausgeschlossen werden konnte, daß sich abgedampftes Probenmaterial zumindest zum Teil auf dem Standard niedergeschlagen und so dessen Reflexionseigenschaften verändert hatte.

#### 7.6 Der Ablauf der Messungen und die Erfassung der Meßdaten

Der Nd-YAG-Heizlaser liefert nur dann Laserpulse mit homogener örtlicher Leistungsverteilung wenn er ständig mit konstanter Wiederholfrequenz (0,3 Hz) gepulst wird. Deshalb mußte der Ablauf der Messungen mit der Pulsfrequenz des Lasers synchronisiert werden. Die nicht benötigten Pulse werden bei dieser Betriebsart von einem mechanischen Verschluß zurückgehalten.

Nachdem alle Aufzeichnungssysteme auf Bereitschaft geschaltet worden waren, wurde durch Tastendruck eine Pulsanforderung an die elektronische Steuerung des Lasersystems übermittelt. Diese Anforderung wurde bis zum Ende des nächsten Pulses verzögert. Danach öffnete die Elektronik den mechanischen Verschluß des Lasers und der nächste Puls konnte das Lasersystem verlassen. Zeitgleich mit der Anforderung des Heizlaserpulses wurde der mechanische Verschluß des eingesetzten Ionen-Lasers geöffnet. Dadurch wurde der SEV-Detektor des Kugelreflektometers schon mehrere Sekunden vor dem eigentlichen Experiment belichtet. Das war unbedingt notwendig, da seine photosensitive Fläche ein Formierungsverhalten zeigte, welches das elektrische Signal des Detektors für die ersten Sekunden nach der Belichtung verfälschte. Zur Anzeige des Signals der Leistungsmeßdiode des Ionen-Lasers wurde ein Digitalmultimeter eingesetzt. Es benötigt (ebenfalls) etwa zwei Sekunden bis zur Stabilisierung der Anzeige.

Das von der Steuerelektronik des Heizlasers generierte Signal zum Zünden des Lasers wurde dazu verwendet, die zur Aufzeichnung der Meßsignale eingesetzten digitalen Transientenrecorder zu triggern. Diese Geräte (Nicolet 1090A, Nicolet Explorer III) ermöglichten bei einer Zeitauflösung von 5  $\mu$ sec eine Auflösung der Signalhöhe von 0,1% (12 bit). Während der Experimente wurden folgende Signale aufgezeichnet:

- das Reflexionssignal des SEV-Detektors
- das Temperatursignal des Pyrometers
- der Leistungsverlauf des Laserpulses.

Die Aufzeichnung des Leistungsverlaufes des Heizlaserpulses diente der Kontrolle des Heizlasersystems. Das Reflexions- und das Temperatursignal wurde nach der Aufzeichnung automatisch einem Rechner (HP 9825B, 63 kbyte) übergeben. Die Leistungsanzeige des Ionenlasers wurde vom Rechner ebenfalls automatisch abgefragt und zusammen mit den Meßdaten zur

späteren Auswertung auf Magnetplatten abgespeichert. Danach wurden die Transientenrecorder vom Rechner erneut auf Bereitschaft geschaltet und das Meßsystem stand für eine weitere Messung zur Verfügung.

### 7.7 Die Auswertung der Meßdaten

Die Reflexionssignale wurden getrennt nach Reflexionswinkel und Polarisationszustand ausgewertet. Dazu wurden die aufgezeichneten Meßkurven vom Plattenspeicher gelesen und auf einen Bildschirm übertragen. Aus diesen Kurven wurden zeitgleiche Punkte des Temperatur- und des Reflexionssignals ausgewählt und ausgewertet. Eine automatische Auswertung der Kurven war nicht möglich, da nicht alle Bereiche der Meßkurven verwendet werden konnten. Die Gründe dafür lagen in verschiedenartigen Störungen der Meßsignale, die zum Beispiel von Leistungsschwankungen des Heizlaserpulses, (aufreißenden Poren) an der Probenoberfläche, Störungen der Meßelektronik oder durch Zerschneiden der Proben hervorgerufen werden.

Die Umwandlung der Temperatursignale erfolgte mit Hilfe der im Rechner abgespeicherten Kalibrierwerte des Pyrometers unter Verwendung von Gleichung 4-13.

Aus den Reflexionssignalen wurde unter Berücksichtigung der Referenzmessung am Reflexionsstandard und der bei jedem Experiment aufgezeichneten Leistung des Ionen-Lasers nach folgender Formel der Reflexionsgrad berechnet:

$$r = \frac{M \cdot I_{\text{O}} \cdot r_{\text{H}}}{M_{\text{O}} \cdot I}$$

7-2

$M_0$  ist das Reflexionssignal von der Halon-Standardprobe,  
 $I_0$  ist die Leistung des Ionen-Lasers während der Messung  
an der Standardprobe,  
 $M$  ist das Reflexionssignal von der Meßprobe,  
 $I$  ist die Leistung des Ionen-Lasers während der Reflexions-  
messung und  
 $r_H$  ist der Reflexionsgrad der Halon-Standardprobe.

Mit Hilfe eines Plotters wurde der berechnete Reflexionsgrad sowohl für parallel als auch für senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht in einem Diagramm über der Strahlungstemperatur aufgetragen.

Die Umrechnung der Strahlungstemperatur bei 633 nm, der Meßwellenlänge des Pyrometers, erfolgte bei UC unter Verwendung der bereits gemessenen Werte des spektralen Emissionsvermögens von Urancarbid /31,32/. Die im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Werte des spektralen Emissionsgrades von UC bei 647 nm stimmen mit diesen Werten gut überein. Deshalb wurden zur Berechnung der wahren Temperatur bei den Experimenten mit Thoriumcarbid die bei 633 nm gemessene Strahlungstemperatur mit dem spektralen Emissionsgrad von ThC bei 647 nm umgerechnet. Dieses Verfahren erscheint gerechtfertigt, da der spektrale Emissionsgrad von ThC ohnehin nur schwach von der Wellenlänge abhängt. Die so erhaltenen Kurven sind in den Abbildungen 8-1 bis 8-4 für Urancarbid und in den Abbildungen 8-5 bis 8-8 für Thoriumcarbid dargestellt.

## 8. Die Ergebnisse der Messungen

### 8.1 Der spektrale Reflexionsgrad

Der Verlauf des spektralen Reflexionsgrades von geschmolzenem Urancarbid bei den Wellenlängen 458 nm, 515 nm, 647 nm und 753 nm ist in den Abbildungen 8.1 bis 8.4 für jeweils drei Reflexionswinkel ( $45^\circ$ ,  $59^\circ$  und  $71^\circ$ ) dargestellt. Der Reflexionsgrad für parallel zur Einfallsebene polarisiertes Licht  $r_p$  wird in der jeweils unteren Kurve, der Reflexionsgrad für senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht  $r_s$  in der oberen Kurve wiedergegeben. Die durchgezogenen Kurven stellen die Mittelwerte der Meßwerte dar.

Der Kurvenverlauf ist für alle Wellenlängen ähnlich. Mit steigender Temperatur nimmt sowohl  $r_p$  als auch  $r_s$  stetig ab. Der Unterschied zwischen  $r_p$  und  $r_s$  ist umso größer, je größer der Reflexionswinkel ist. Beim Reflexionswinkel  $45^\circ$  ist die aus der Theorie der Reflexion von polarisiertem Licht resultierende Bedingung

$$r_p = r_s^2 \quad 8-1$$

bis zu Temperaturen von etwa 3500 K sehr gut erfüllt. Mit zunehmenden Temperaturen zeigt sich eine Differenz zwischen  $r_s^2$  ( $45^\circ$ ) und  $r_p$  ( $45^\circ$ ). Der Unterschied ist allerdings selbst bei den höchsten gemessenen Temperaturen von 4100 K immer kleiner als 6%. Mögliche Ursachen für diese Abweichungen werden im nachfolgenden Kapitel 9 diskutiert.

In der Tabelle 8.5 sind für 8 Temperaturwerte zwischen dem Schmelzpunkt (2780 K) und 4100 K die über Temperaturintervalle von  $\pm 100$  K gemittelten Werte der Reflexionsgrade  $r_p$  bzw.  $r_s$  für die drei Reflexionswinkel  $45^\circ$ ,  $59^\circ$  und  $71^\circ$  aufgeführt. Die durchschnittlichen Werte der Standardabweichungen der Meßwerte innerhalb eines Temperaturintervalls betragen 0.017 für die Meßwertkurven von  $r_s$  und 0.012 für die Meßwertkurven von  $r_p$ . Eine ausführliche Fehlerbetrachtung wird im Kapitel 10 durchgeführt.

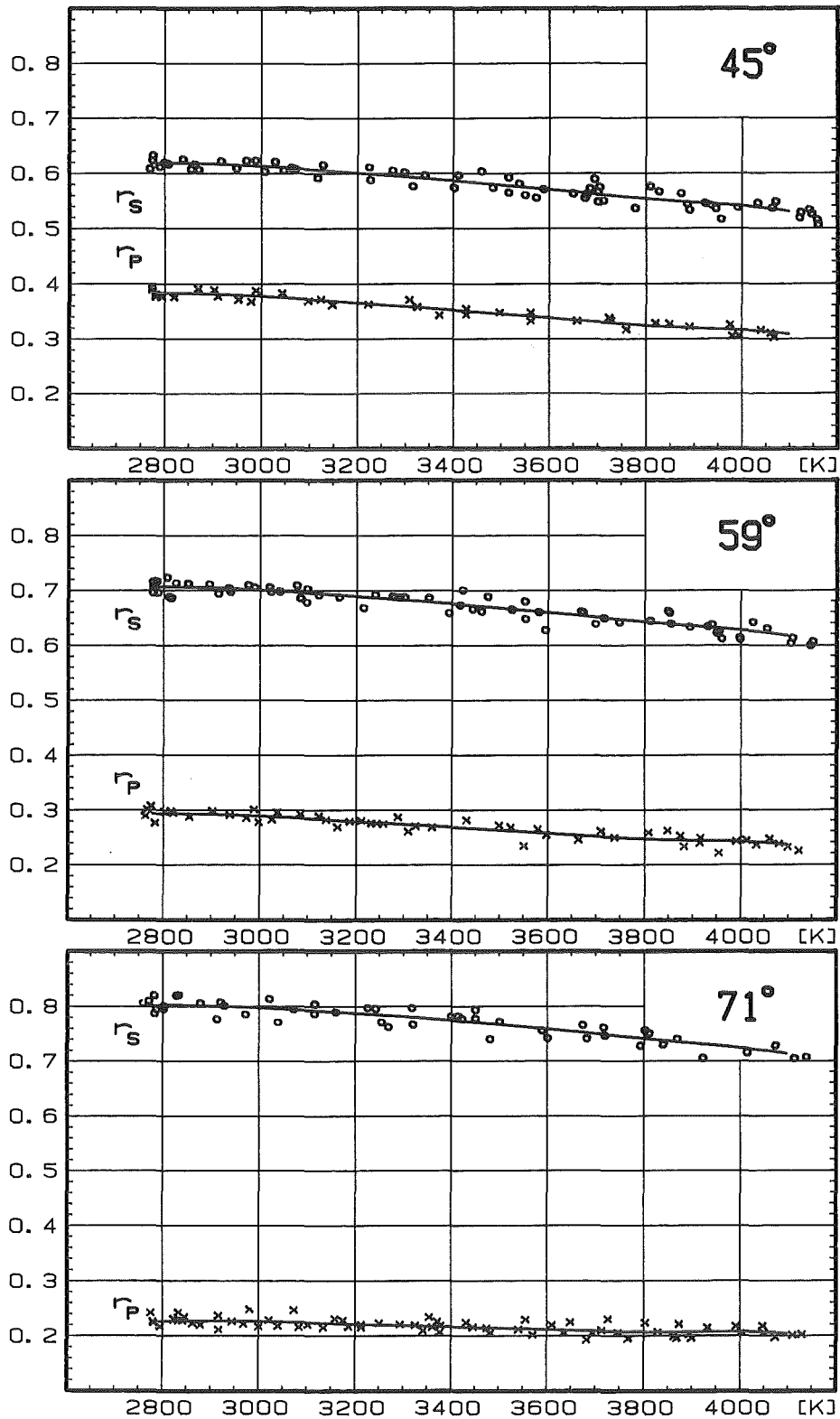


Abb.8.1: Der Verlauf des spektralen Reflexionsgrades für parallel ( $r_p$ ) bzw. senkrecht ( $r_s$ ) zur Einfallsebene polarisiertes Licht von UC bei der Wellenlänge 458 nm im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 4000 K für die Reflexionswinkel  $45^\circ$ ,  $59^\circ$  und  $71^\circ$ .

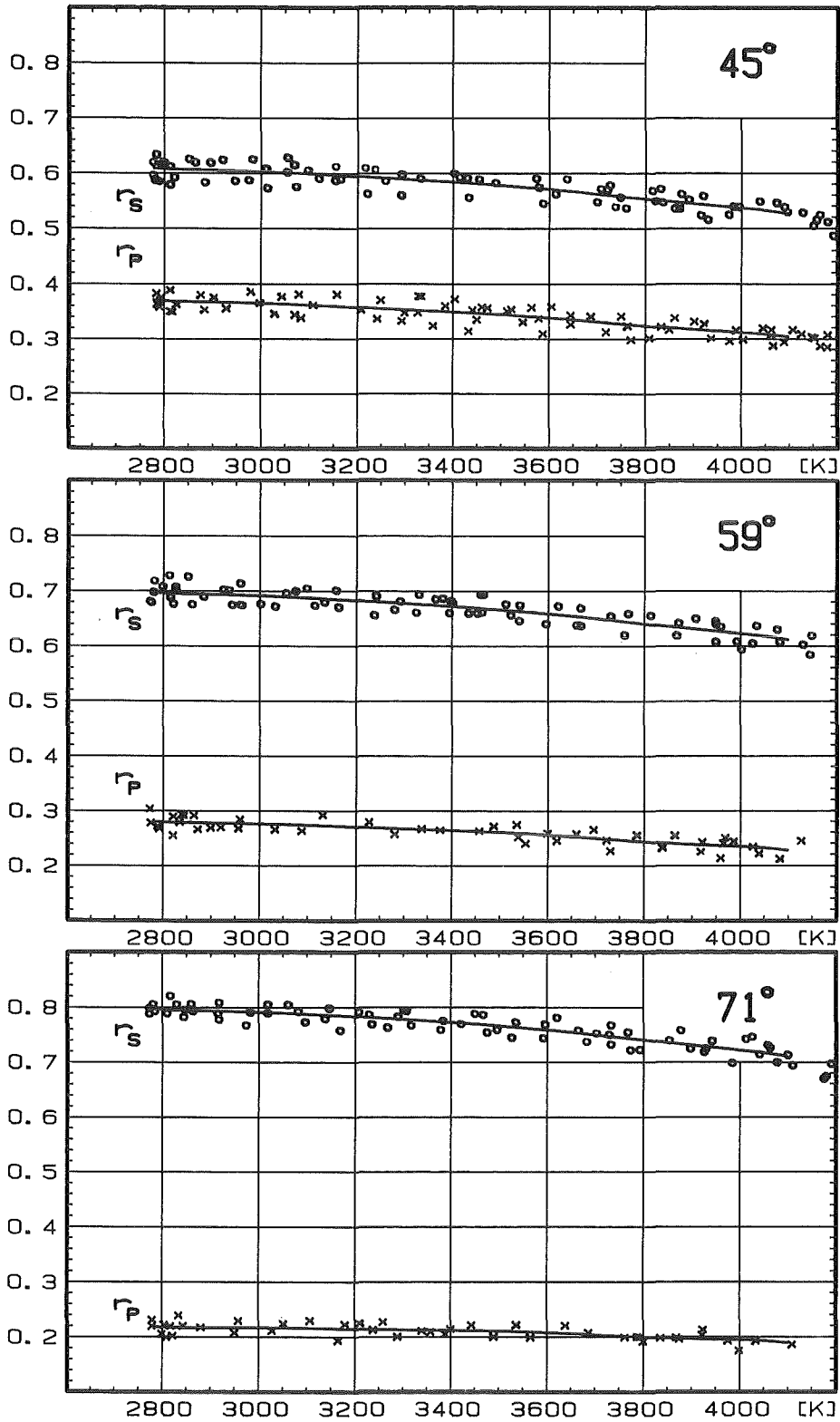


Abb. 8.2: Der Verlauf des spektralen Reflexionsgrades für parallel ( $r_p$ ) bzw. senkrecht ( $r_s$ ) zur Einfallsebene polarisiertes Licht von UC bei der Wellenlänge 515 nm im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 4100 K für die Reflexionswinkel  $45^\circ$ ,  $59^\circ$  und  $71^\circ$ .

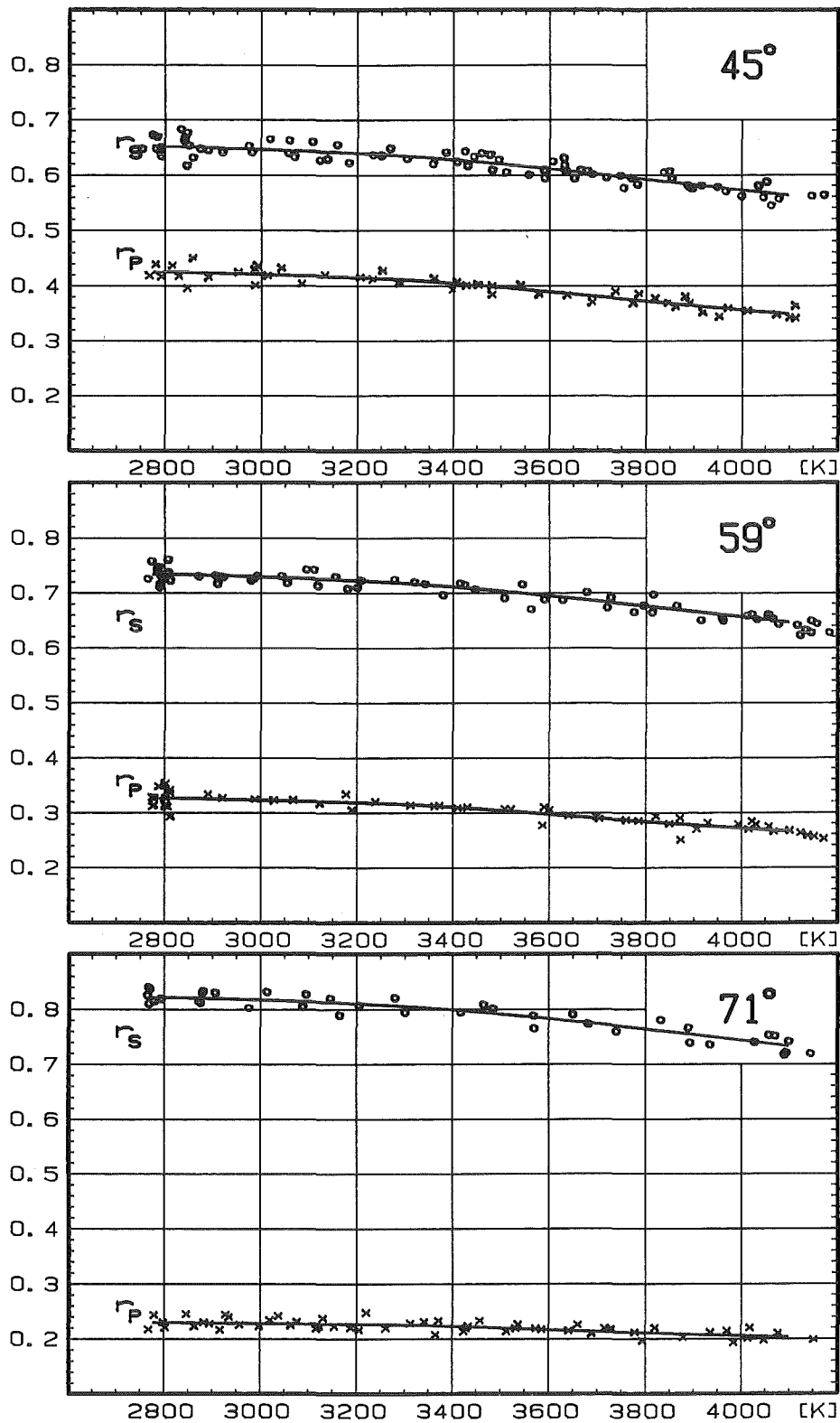


Abb.8.3: Der Verlauf des spektralen Reflexionsgrades für parallel ( $r_p$ ) bzw. senkrecht ( $r_s$ ) zur Einfallsebene polarisiertes Licht von UC bei der Wellenlänge 647 nm im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 4100 K für die Reflexionswinkel 45°, 59° und 71°.



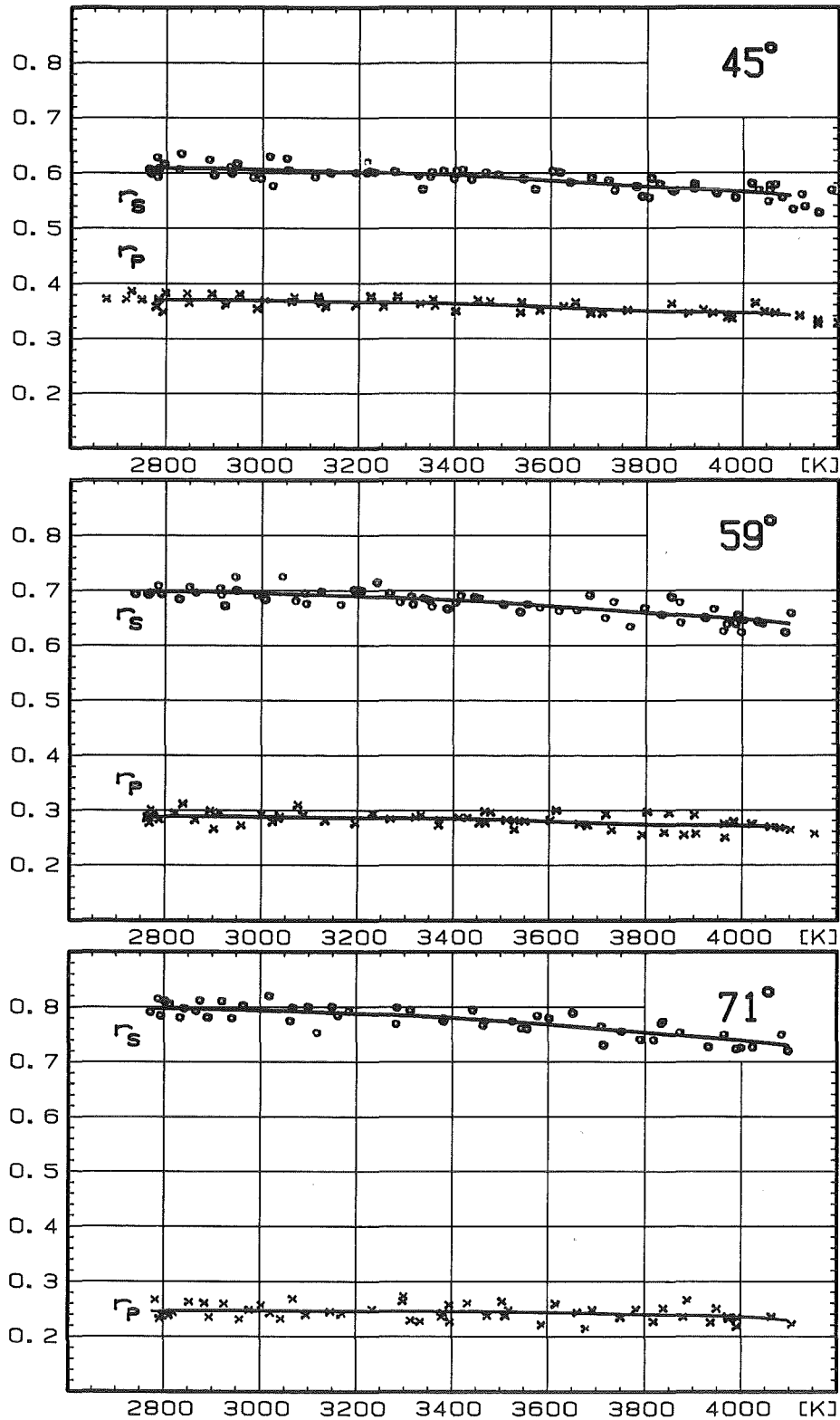


Abb. 8.4: Der Verlauf des spektralen Reflexionsgrades für parallel ( $r_p$ ) bzw. senkrecht ( $r_s$ ) zur Einfallsebene polarisiertes Licht von UC bei der Wellenlänge 753 nm im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 4100 K für die Reflexionswinkel 45°, 59° und 71°.

UC	458nm		515 nm		647 nm		753 nm	
	$r_s$	$r_p$	$r_s$	$r_p$	$r_s$	$r_p$	$r_s$	$r_p$
45°								
2780 K	.619	.384	.607	.369	.651	.424	.608	.370
2900 K	.617	.382	.603	.365	.649	.423	.608	.370
3100 K	.607	.372	.597	.360	.644	.418	.603	.367
3300 K	.594	.359	.587	.351	.635	.410	.599	.365
3500 K	.579	.346	.576	.342	.620	.397	.591	.360
3700 K	.562	.331	.560	.329	.602	.380	.580	.353
3900 K	.547	.320	.542	.315	.582	.363	.570	.347
4100 K	.530	.308	.524	.301	.564	.348	.558	.341
59°								
2780 K	.707	.294	.696	.280	.732	.325	.698	.289
2900 K	.704	.293	.693	.277	.730	.324	.697	.290
3100 K	.695	.285	.687	.273	.725	.320	.693	.288
3300 K	.682	.274	.677	.266	.716	.314	.687	.286
3500 K	.668	.264	.665	.260	.701	.303	.678	.283
3700 K	.650	.252	.649	.249	.683	.290	.666	.278
3900 K	.634	.245	.630	.238	.663	.277	.653	.274
4100 K	.616	.237	.611	.227	.643	.266	.639	.268
71°								
2780 K	.803	.227	.796	.219	.821	.230	.797	.247
2900 K	.801	.228	.793	.217	.819	.229	.796	.248
3100 K	.793	.225	.787	.216	.814	.228	.791	.247
3300 K	.781	.219	.777	.213	.805	.225	.784	.247
3500 K	.767	.215	.765	.211	.790	.220	.774	.246
3700 K	.749	.210	.748	.204	.773	.213	.761	.242
3900 K	.732	.208	.729	.196	.753	.208	.746	.239
4100 K	.713	.204	.708	.188	.732	.204	.729	.230

Tabelle 8.1: Der spektrale Reflexionsgrad von geschmolzenem UC im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 4100 K bei den Wellenlängen 458 nm, 515 nm, 647 nm und 753 nm.

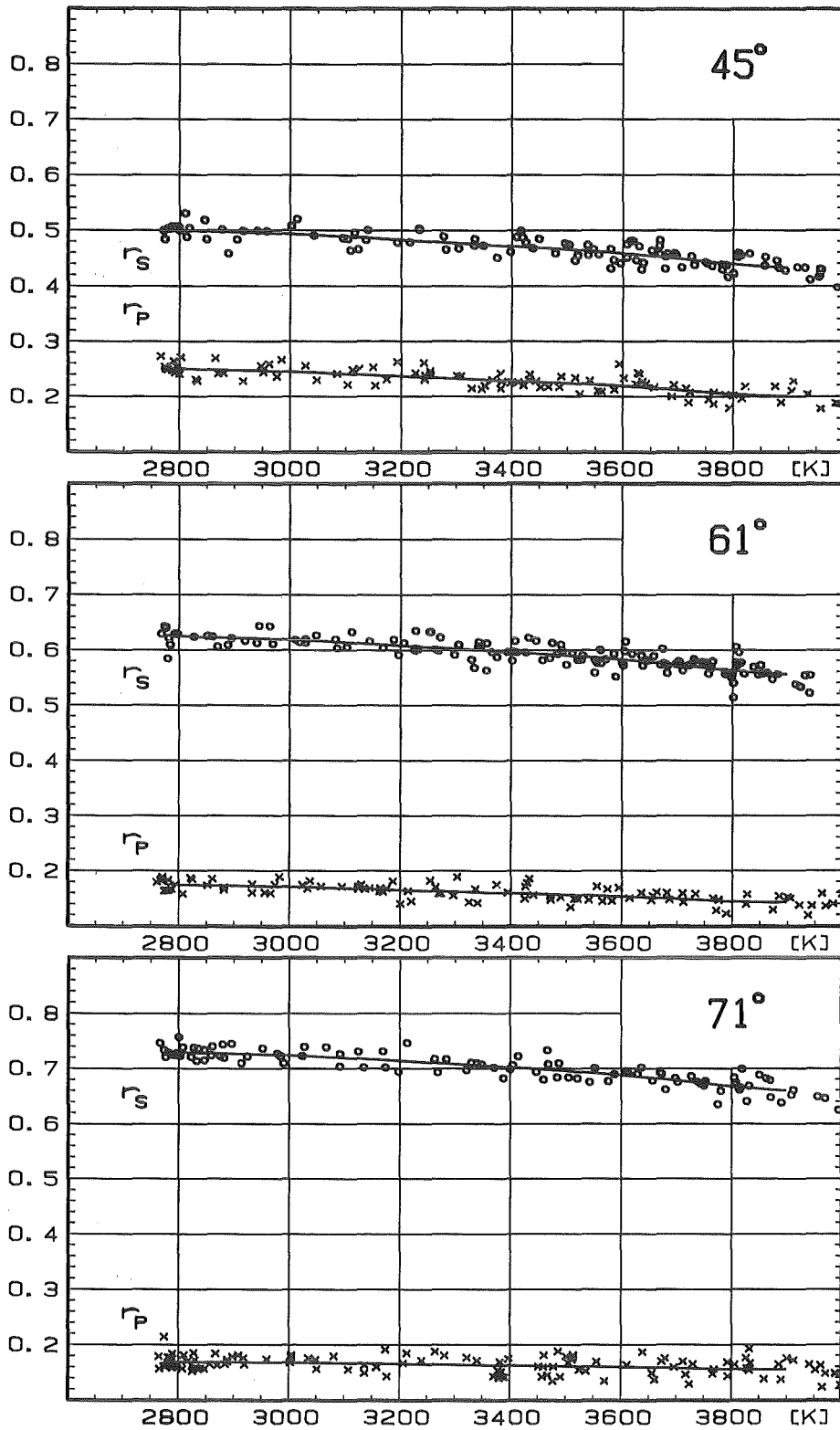


Abb. 8.5: Der Verlauf des spektralen Reflexionsgrades für parallel ( $r_p$ ) bzw. senkrecht ( $r_s$ ) zur Einfallsebene polarisiertes Licht von ThC bei der Wellenlänge 458 nm im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 3900 K für die Reflexionswinkel 45°, 61° und 71°.

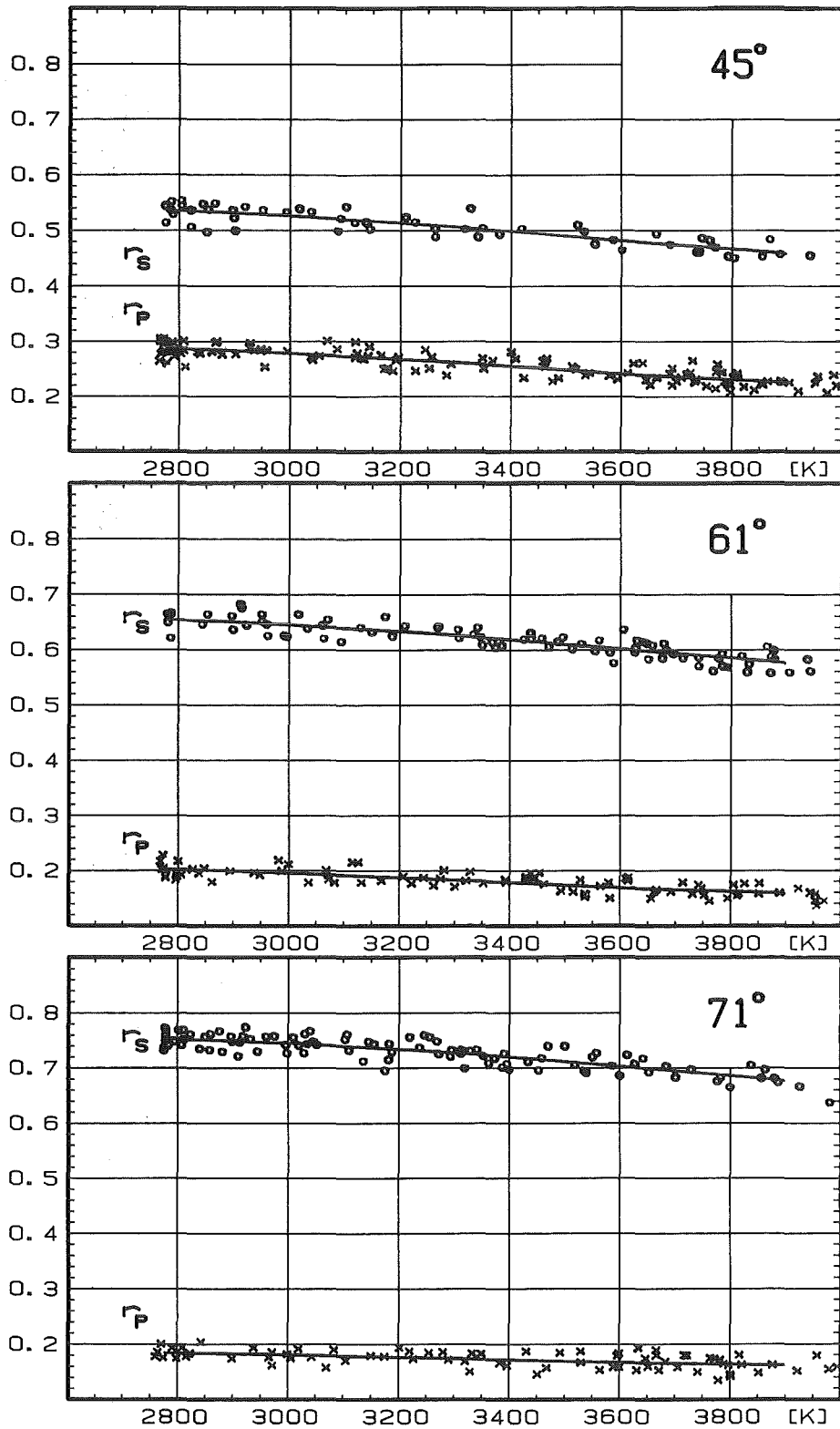


Abb. 8.6: Der Verlauf des spektralen Reflexionsgrades für parallel ( $r_p$ ) bzw. senkrecht ( $r_s$ ) zur Einfallsebene polarisiertes Licht von ThC bei der Wellenlänge 515 nm im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 3900 K für die Reflexionswinkel  $45^\circ$ ,  $61^\circ$  und  $71^\circ$ .

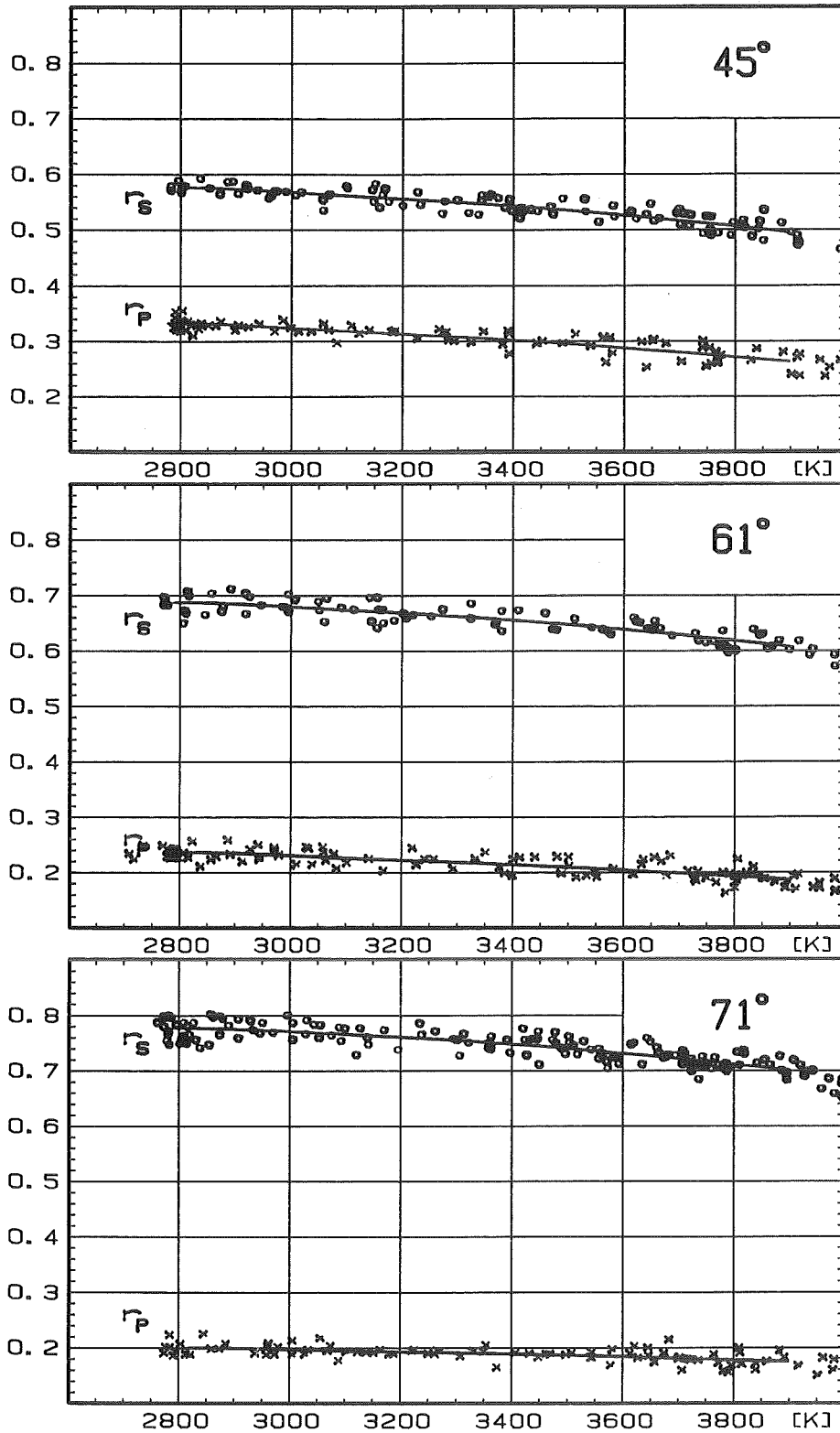


Abb. 8.7: Der Verlauf des spektralen Reflexionsgrades für parallel ( $r_p$ ) bzw. senkrecht ( $r_s$ ) zur Einfallsebene polarisiertes Licht von ThC bei der Wellenlänge 647 nm im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 3900 K für die Reflexionswinkel  $45^\circ$ ,  $61^\circ$  und  $71^\circ$ .

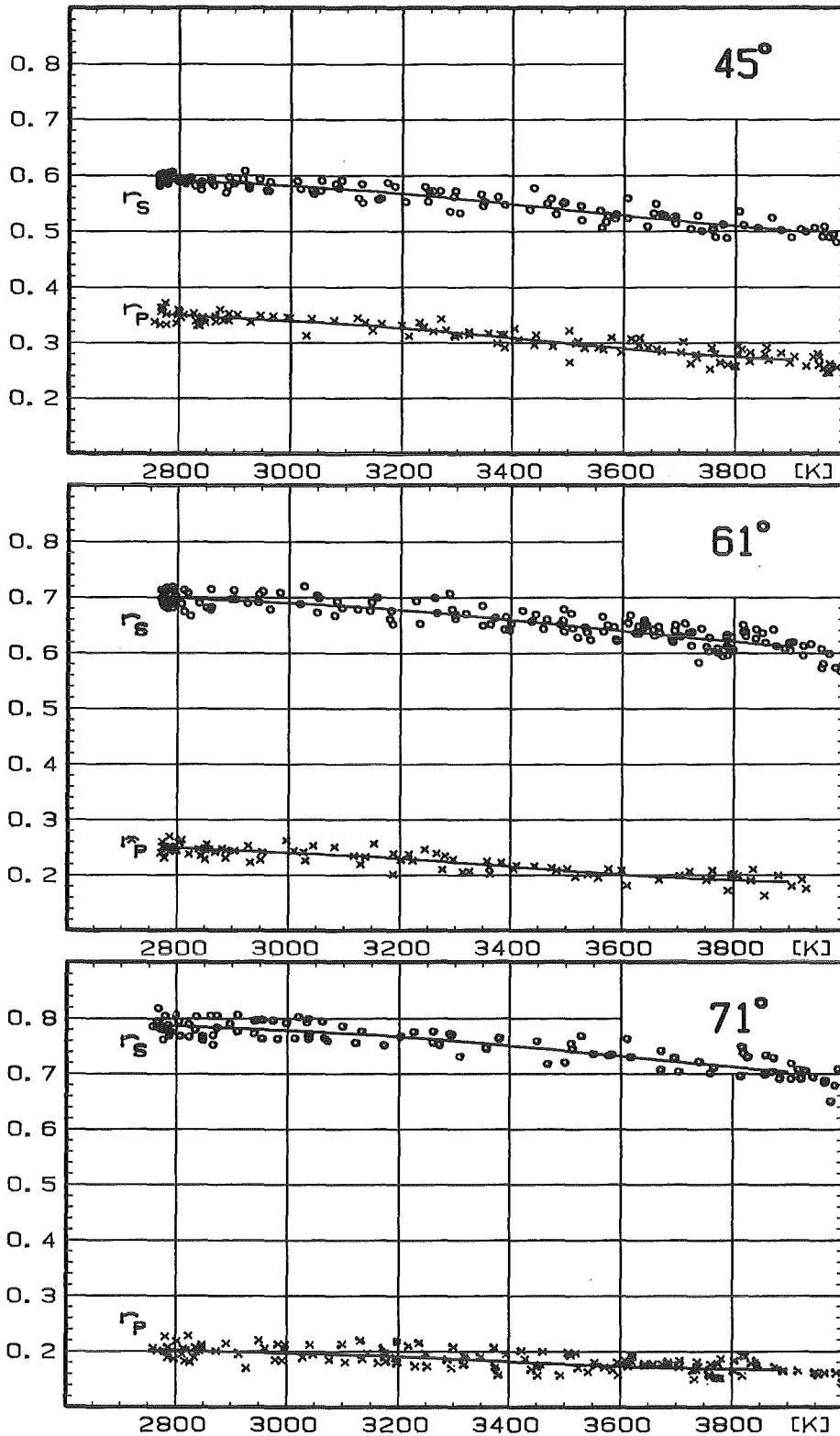


Abb. 8.8: Der Verlauf des spektralen Reflexionsgrades für parallel ( $r_p$ ) bzw. senkrecht ( $r_s$ ) zur Einfallsebene polarisiertes Licht von ThC bei der Wellenlänge 753 nm im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 3900 K für die Reflexionswinkel 45°, 61° und 71°.

ThC	458 nm		515 nm		647 nm		753 nm	
45°	r <sub>s</sub>	r <sub>p</sub>	r <sub>s</sub>	r <sub>p</sub>	r <sub>s</sub>	r <sub>p</sub>	r <sub>s</sub>	r <sub>p</sub>
2780 K	.501	.252	.535	.286	.575	.331	.591	.350
2900 K	.497	.248	.531	.282	.572	.328	.584	.342
3100 K	.489	.241	.519	.272	.561	.317	.573	.331
3300 K	.477	.232	.506	.261	.549	.307	.557	.315
3500 K	.466	.224	.490	.247	.534	.294	.536	.297
3700 K	.449	.212	.473	.235	.515	.278	.516	.279
3900 K	.434	.202	.458	.224	.493	.261	.499	.267
61°								
2780 K	.626	.175	.653	.201	.686	.235	.699	.249
2900 K	.621	.172	.650	.199	.683	.233	.693	.243
3100 K	.614	.168	.639	.191	.673	.225	.683	.234
3300 K	.602	.162	.626	.183	.661	.217	.667	.221
3500 K	.590	.157	.610	.173	.646	.208	.648	.207
3700 K	.572	.149	.593	.165	.627	.197	.628	.194
3900 K	.556	.144	.576	.158	.605	.185	.610	.186
71°								
2780 K	.731	.170	.752	.184	.777	.199	.786	.204
2900 K	.727	.169	.749	.183	.774	.199	.782	.199
3100 K	.719	.167	.739	.178	.765	.194	.772	.195
3300 K	.708	.164	.727	.174	.754	.191	.758	.187
3500 K	.695	.162	.711	.169	.739	.186	.740	.178
3700 K	.678	.158	.694	.165	.721	.181	.721	.170
3900 K	.660	.157	.676	.162	.699	.175	.703	.168

Tabelle 8.2: Der spektrale Reflexionsgrad von geschmolzenem ThC im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 3900 K bei den Wellenlängen 458 nm, 515 nm, 647 nm und 753 nm.

In den Abbildungen 8.5 bis 8.8 sind die entsprechenden Meßwerte für geschmolzenes Thoriumcarbid dargestellt. Die Messungen an Thoriumcarbid wurden nur bis zu Temperaturen von 4000 K ausgewertet, da bei höheren Temperaturen die Meßwertstreuung stark zunahm. Auch das Kriterium nach Gleichung 8-1 war bei Temperaturen oberhalb von 4000 K nicht mehr genügend gut erfüllt, da Abweichungen bis zu 10% auftraten. Die Meßkurven von ThC zeigen den gleichen Verlauf mit der Temperatur wie die von UC.

In der Tabelle 8.2 sind für 7 Temperaturwerte zwischen dem Schmelzpunkt (2780 K) und 3900 K die ebenfalls über Temperaturintervalle gemittelten Meßwerte des spektralen Reflexionsgrades  $r_p$  bzw.  $r_s$  von geschmolzenem Thoriumcarbid angegeben. Abweichend von den Messungen an UC wurde der mittlere Reflexionswinkel zu  $61^\circ$  gewählt, um eine optimale Sensitivität der Messungen zu erzielen.

## 8.2 Die optischen Konstanten

In den Abbildungen 8.9 und 8.10 sind die aus den Reflexionsgradverhältnissen  $r_p/r_s$  berechneten optischen Konstanten von geschmolzenem Urancarbid-Abhängigkeit von der Temperatur bei den Wellenlängen 458 nm, 515 nm, 647 nm und 753 nm dargestellt. Man erkennt, daß bei der Wellenlänge 647 nm sowohl der Brechungsindex  $n$  als auch die Absorptionskonstante  $k$  wesentlich größer sind als bei den anderen Wellenlängen. Während bei den Wellenlängen 458 nm, 515 nm und 647 nm die Werte der optischen Konstanten  $n$  und  $k$  mit steigender Temperatur stetig abnehmen, zeigt den Verlauf der optischen Konstanten bei der Wellenlänge 753 nm ein davon abweichendes Verhalten. Bei Temperaturen oberhalb von 3700 K steigen die Werte der optischen Konstanten bei 753 nm wieder an.



Die Abbildungen 8.11 und 8.12 zeigen den Verlauf der optischen Konstanten von ThC. Anders als bei UC verlaufen bei Thoriumcarbid alle Kurven ähnlich. Sowohl die Werte des Brechungsindex  $n$  als auch die der Absorptionskonstante  $k$  nehmen bei allen Wellenlängen mit steigender Temperatur stetig ab. Auch der spektrale Verlauf der optischen Konstanten von ThC ist sehr regelmäßig. Der Brechungsindex  $n$  ist ebenso wie die Absorptionskonstante umso größer, je mehr die Wellenlänge des Lichtes zunimmt. Im Gegensatz zu den Verhältnissen bei Urancarbid schneiden sich die Kurven bei Thoriumcarbid nicht sondern verlaufen fast parallel.

In den Abbildungen 8.13 und 8.14 bzw. 8.15 und 8.16 ist sowohl für UC als auch für ThC der spektrale Verlauf der optischen Konstanten für mehrere Temperaturwerte zwischen 4100 K bzw. 3900 K dargestellt. Diese Darstellung zeigt deutlich die besonders großen Werte der optischen Konstanten von Urancarbid bei der Wellenlänge 647 nm.

Mögliche Ursachen für den unterschiedlichen Verlauf der optischen Konstanten von UC und ThC sowohl mit der Temperatur als auch mit der Wellenlänge werden im Kapitel 9 diskutiert.

In den Tabellen 8.3 und 8.4 sind die Werte des Brechungsindex  $n$  und der Absorptionskonstante  $k$  von Urancarbid und Thoriumcarbid in Abhängigkeit von Temperatur und Wellenlänge angegeben.

Die Fehler bei der Bestimmung der optischen Konstanten werden im Kapitel 10 ausführlich diskutiert.

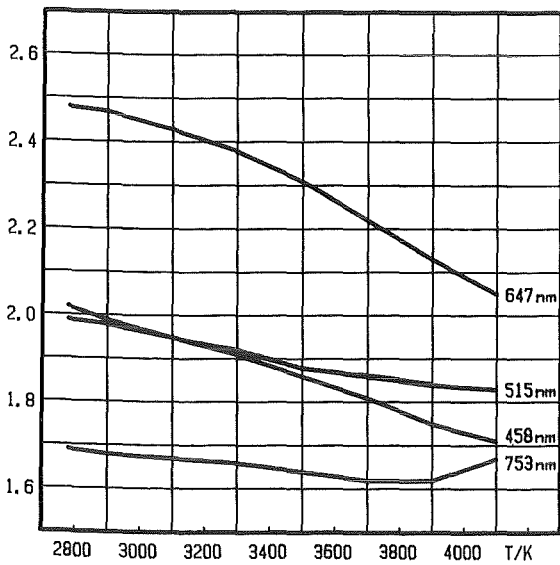


Abb. 8.9:  
Der Brechungsindex  $n$  von UC im Temperaturbereich von 2780 K bis 4100 K bei den Wellenlängen 458 nm, 515 nm, 647 nm und 753 nm.

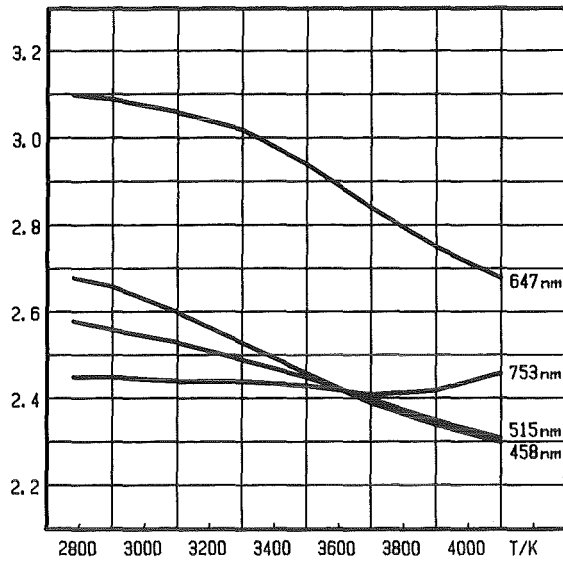


Abb. 8.10:  
Die Absorptionskonstante  $K$  von UC im Temperaturbereich von 2780 K bis 4100 K bei den Wellenlängen 458 nm, 515 nm, 647 nm und 753 nm.

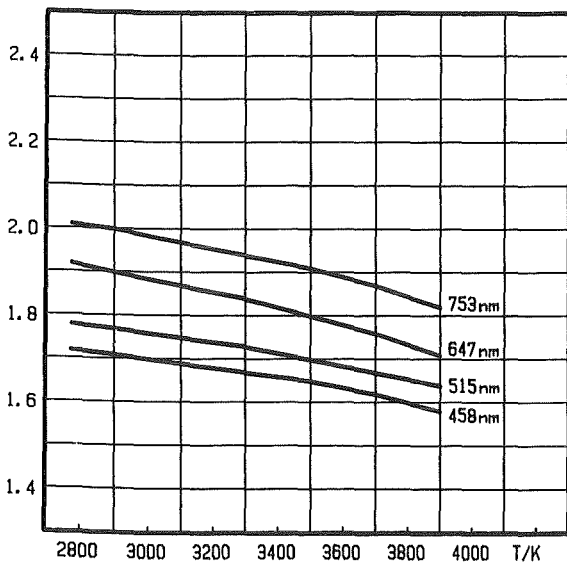


Abb. 8.11:  
Der Brechungsindex  $n$  von ThC im Temperaturbereich von 2780 K bis 3900 K bei den Wellenlängen 458 nm, 515 nm, 647 nm und 753 nm.

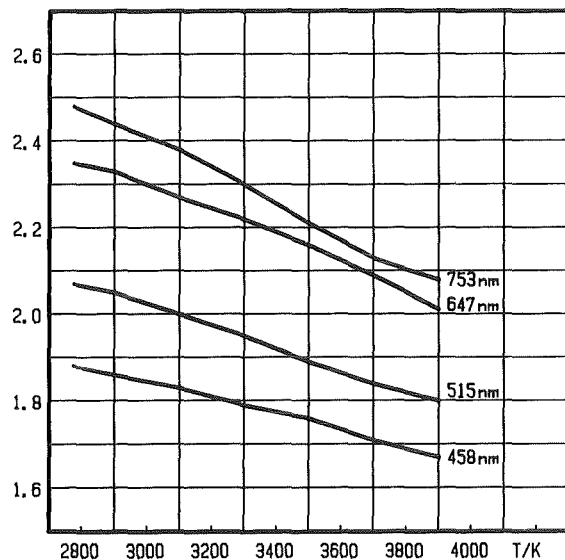


Abb. 8.12:  
Die Absorptionskonstante  $K$  von ThC im Temperaturbereich von 2780 K bis 3900 K bei den Wellenlängen 458 nm, 515 nm, 647 nm und 753 nm.

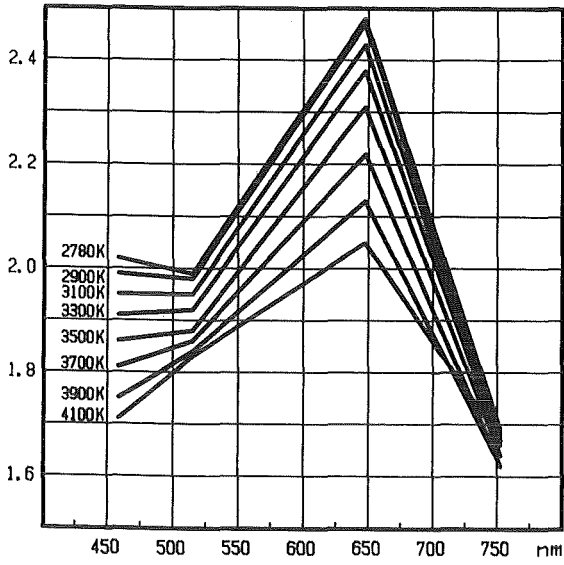


Abb. 8.13:  
Der Brechungsindex  $n$  von UC im Spektralbereich von 458 nm bis 753 nm bei mehreren Temperaturen zwischen 2780 K und 4100 K.

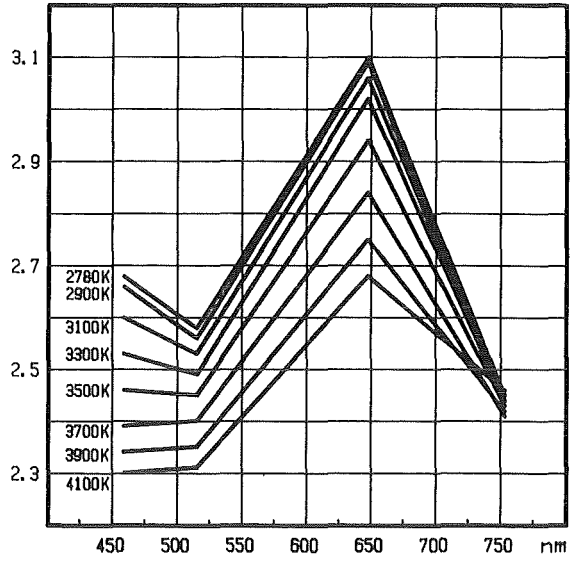


Abb. 8.14:  
Die Absorptionskonstante  $K$  von UC im Spektralbereich von 458 nm bis 753 nm bei mehreren Temperaturen zwischen 2780 K und 4100 K.

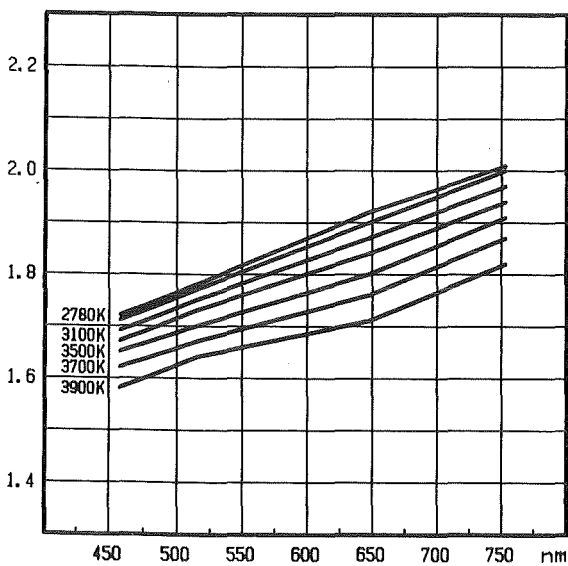


Abb. 8.15:  
Der Brechungsindex  $n$  von ThC im Spektralbereich von 458 nm bis 753 nm bei mehreren Temperaturen zwischen 2780 K und 3900 K.

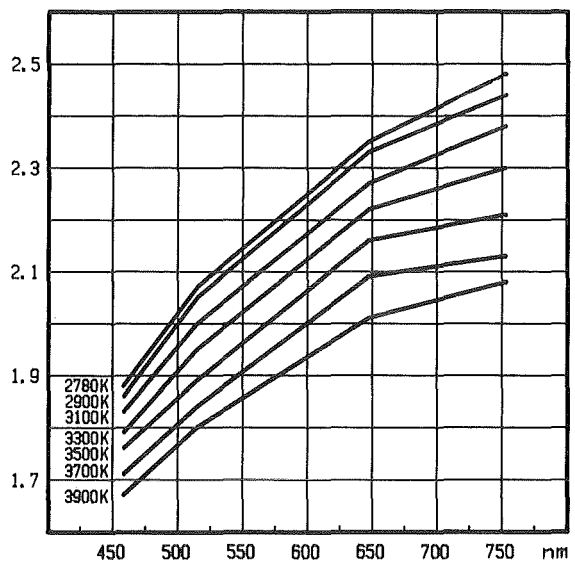


Abb. 8.16:  
Die Absorptionskonstante  $K$  von ThC im Spektralbereich von 458 nm bis 753 nm bei mehreren Temperaturen zwischen 2780 K und 3900 K.

UC		458 nm		515 nm		647 nm		753 nm	
		n	k	n	k	n	k	n	k
2780	K	2,02	2,68	1,99	2,58	2,48	3,10	1,69	2,45
2900	K	1,99	2,66	1,98	2,56	2,47	3,09	1,68	2,45
3100	K	1,95	2,60	1,95	2,53	2,43	3,06	1,67	2,44
3300	K	1,91	2,53	1,92	2,49	2,38	3,02	1,66	2,44
3500	K	1,86	2,46	1,88	2,45	2,31	2,94	1,64	2,43
3700	K	1,81	2,39	1,86	2,40	2,22	2,84	1,62	2,41
3900	K	1,75	2,34	1,84	2,35	2,13	2,75	1,62	2,42
4100	K	1,71	2,30	1,83	2,31	2,05	2,68	1,67	2,46

Tabelle 8.3: Die optischen Konstanten von UC

ThC		458 nm		515 nm		647 nm		753 nm	
		n	k	n	k	n	k	n	k
2780	K	1,72	1,88	1,78	2,07	1,92	2,35	2,01	2,48
2900	K	1,71	1,86	1,77	2,05	1,90	2,33	2,00	2,44
3100	K	1,69	1,83	1,75	2,00	1,87	2,27	1,97	2,38
3300	K	1,67	1,79	1,73	1,95	1,84	2,22	1,94	2,30
3500	K	1,65	1,76	1,70	1,89	1,80	2,16	1,91	2,21
3700	K	1,62	1,71	1,67	1,84	1,76	2,09	1,87	2,13
3900	K	1,58	1,67	1,64	1,80	1,71	2,01	1,82	2,08

Tabelle 8.4: Die optischen Konstanten von ThC

### 8.3 Der spektrale Emissionsgrad

Der Verlauf des spektralen Emissionsgrades  $\epsilon_\lambda(T)$  von Uran-  
carbid bzw. Thoriumcarbid ist in den Abbildungen 8.17 und  
8.18 für die Wellenlängen 458 nm, 515 nm, 647 nm und 753 nm  
im Temperaturbereich zwischen 2780 K (Schmelzpunkt) und  
4100 K bzw. 3900 K dargestellt.

Der spektrale Emissionsgrad von ThC zeigt einen sehr regel-  
mäßigen Verlauf. Bei allen Wellenlängen steigt er mit  
wachsender Temperatur stetig an.  $\epsilon_\lambda(T)$  ist bei jeder Tempera-  
tur umso größer, je kürzer die Wellenlänge ist. Am Schmelz-  
punkt liegen die Werte des spektralen Emissionsgrades von  
ThC zwischen 0.53 und 0.62, bei 3900 K zwischen 0.62 und  
0.68.

Die Kurven des spektralen Emissionsgrades  $\epsilon_\lambda(T)$  von Uran-  
carbid liegen näher bei einander. Am Schmelzpunkt über-  
streichen sie den Wertebereich zwischen 0.46 und 0.51, bei  
4100 K den Bereich zwischen 0.54 und 0.59. Auch bei UC  
steigen alle Kurven mit wachsender Temperatur stetig an.  
Allerdings ist der spektrale Verlauf nicht so übersicht-  
lich wie bei ThC. Die größten Werte wurden bei der Wellen-  
länge 515 nm, die niedrigsten bei 647 nm gemessen. Die  
Kurve des spektralen Emissionsgrades bei 753 nm steigt mit  
zunehmender Temperatur langsamer an als die drei anderen  
und schneidet bei etwa 3300 K die bei 458 nm gemessene  
Kurve.

Um die Verwendung dieser Daten für pyrometrische Zwecke zu  
erleichtern wurden die Kurven des spektralen Emissionsgrades  
von UC und ThC bei den Wellenlängen 647 nm und 753 nm durch  
Polynome 4. Grades der folgenden Form dargestellt:

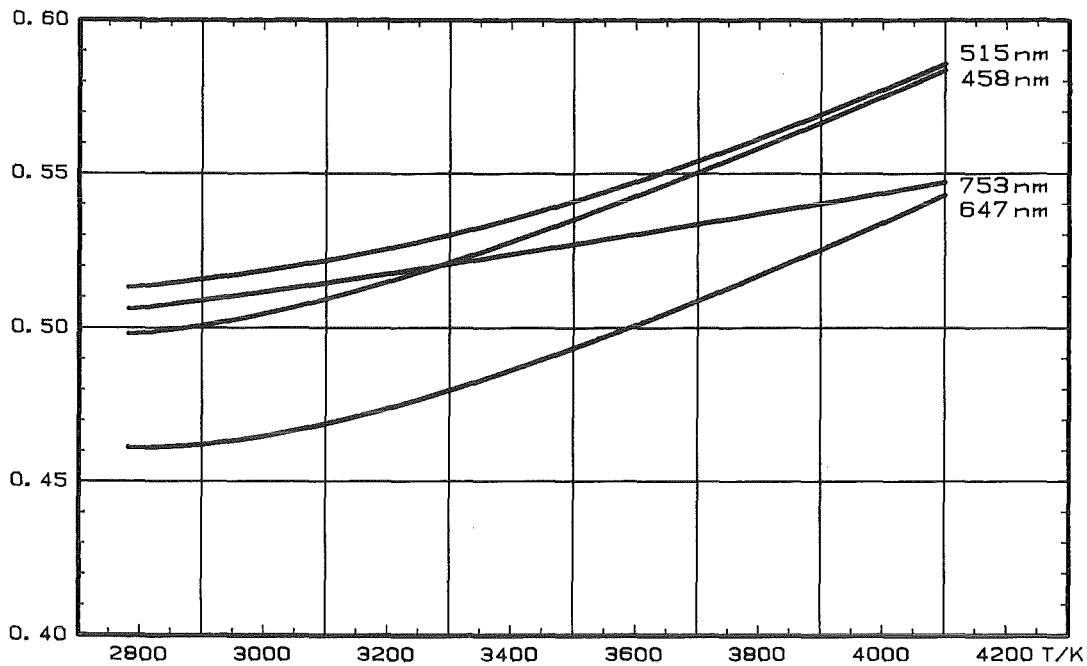


Abb.8.17: Der spektrale, gerichtete Emissionsgrad  $\epsilon_{\lambda}(45^{\circ}, T)$  von geschmolzenem Urancarbid (UC) im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 4100 K bei den Wellenlängen 458 nm, 515 nm, 647 nm und 753 nm.

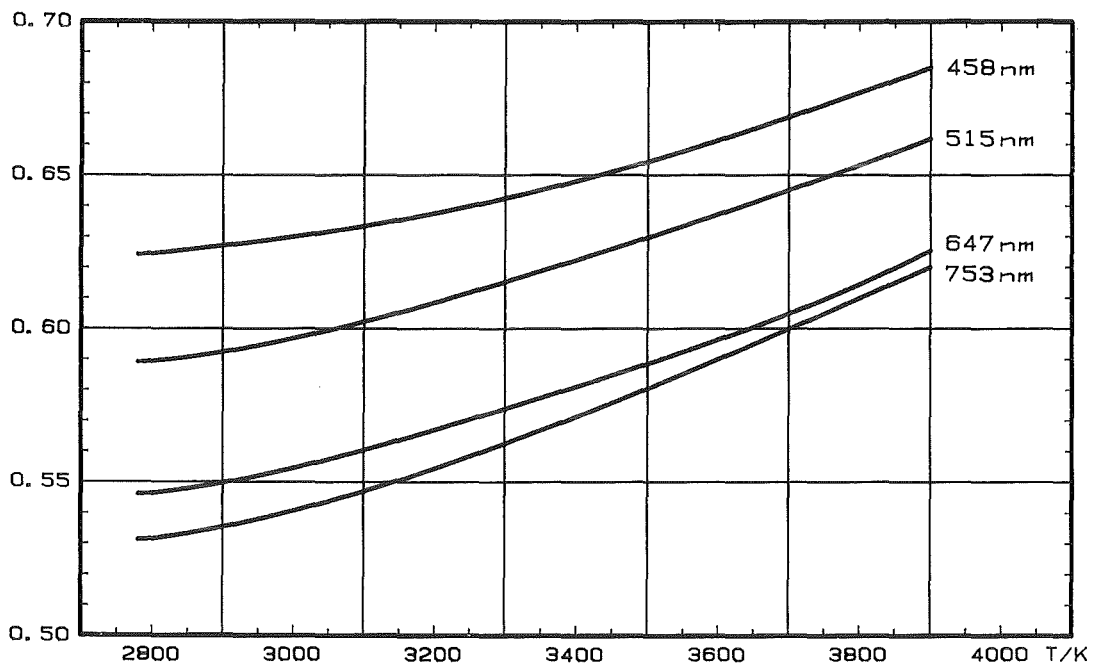


Abb.8.18: Der spektrale, gerichtete Emissionsgrad  $\epsilon_{\lambda}(45^{\circ}, T)$  von geschmolzenem Thoriumcarbid (ThC) im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 3900 K bei den Wellenlängen 458 nm, 515 nm, 647 nm und 753 nm.

$$\epsilon_{\lambda}(T') = \epsilon_{\lambda}(T_M) + a \cdot T' + b \cdot (T')^2 + c \cdot (T')^3 + d \cdot (T')^4$$

8-2

$$T' = T - T_M$$

$T_M$  ist der Schmelzpunkt (2780 K)

Die Größen  $\epsilon_{\lambda}(T_M)$  sowie die Koeffizienten der Polynome sind in der Tabelle 8.5 angegeben.

	647 nm		753 nm	
	UC	ThC	UC	ThC
$\epsilon(T_M)$	0,461	0,546	0,506	0,531
a	-1,391 e-6	+1.867 e-5	+2,196 e-5	+2,757 e-5
b	+9,757 e-8	+1,160 e-7	+1,908 e-8	+8,30 e-8
c	-5,605 e-11	-1,210 e-10	-1.614 e-11	-4,182 e-11
d	+1,412 e-14	+5,282 e-14	+5,342 e-15	+8,108 e-15

Tabelle 8.5: Koeffizienten der Pyrometrie-Polynome für UC und ThC bei den Wellenlängen 647 nm und 753 nm.

Der Fehler des spektralen Emissionsgrades  $\epsilon_{\lambda}(T)$  wird durch die Ungenauigkeit der Meßwerte des spektralen Reflexionsgrades  $r_p(T)$  bzw.  $r_s(T)$  bestimmt. Die Streubreite der Meßwerte des spektralen Reflexionsgrades verursacht einen Fehler des spektralen Emissionsgrades von 0,011. Die Berechnung dieses Wertes wird in den Kapiteln 10.1 und 10.2 beschrieben.

Werte des spektralen Emissionsgrades von geschmolzenem UC bei der Wellenlänge 633 nm wurden bereits veröffentlicht /31/. Der dort am Schmelzpunkt angegebene Wert von 0,452 stimmt gut mit dem im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Wert von 0,461 überein.

Werte des spektralen Emissionsgrades von geschmolzenem ThC waren bisher nicht bekannt.

#### 8.4 Die Bestimmung der Schmelztemperatur

In den Abbildungen 8.24 bis 8.27 sind typische Meßsignale dargestellt. Die untere Spur ist das Pyrometer-, die obere Spur das Reflexionssignal. Man erkennt, daß mit steigenden Temperaturen der Reflexionsgrad abnimmt. Betrachtet man das Temperatursignal etwas genauer, so fällt auf, daß das Signal nach dem Experiment nicht sofort auf die Null-Linie (Anfang des Signals) zurückfällt, sondern bis zum Ende der Aufzeichnung einen konstanten Wert größer als Null hat. Diese Stufe im Temperaturverlauf wird vom Erstarrungsvorgang der Schmelze verursacht. Die Stufenhöhe entspricht also der Erstarrungstemperatur. Bei den meisten Signalen ist auch am Anfang des Temperatursignals eine kleine Stufe in gleicher Höhe zu erkennen, die den Schmelzpunkt markiert. Die Temperaturwerte dieser Stufe wurden bei Urancarbid in 56 Fällen und bei Thoriumcarbid in 73 Fällen ausgewertet, um die Schmelz- bzw. Erstarrungstemperatur zu erhalten. Ein signifikanter Unterschied zwischen Schmelz- und Erstarrungstemperatur konnte weder bei den Experimenten mit UC noch bei den Messungen an ThC festgestellt werden.



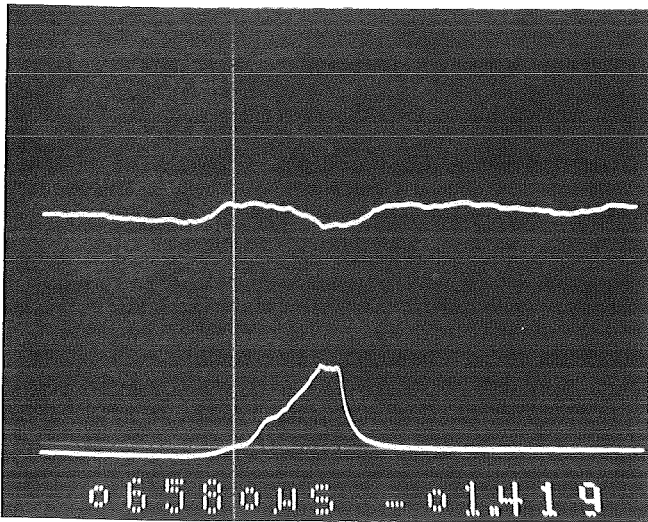


Abb.8.19:  $T_{\max} = 3370 \text{ K}$

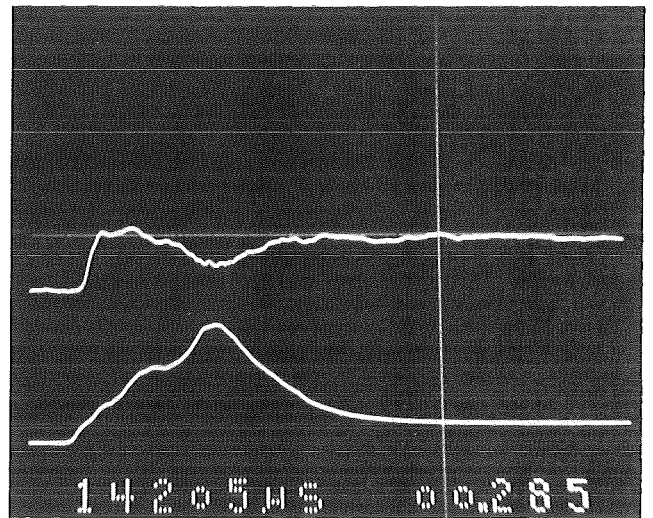


Abb.8.20:  $T_{\max} = 3540 \text{ K}$

Typische Signale, wie sie bei den Reflexionsmessungen erhalten wurden. Die obere Spur stellt das Reflexionssignal dar, die untere das Temperatursignal.

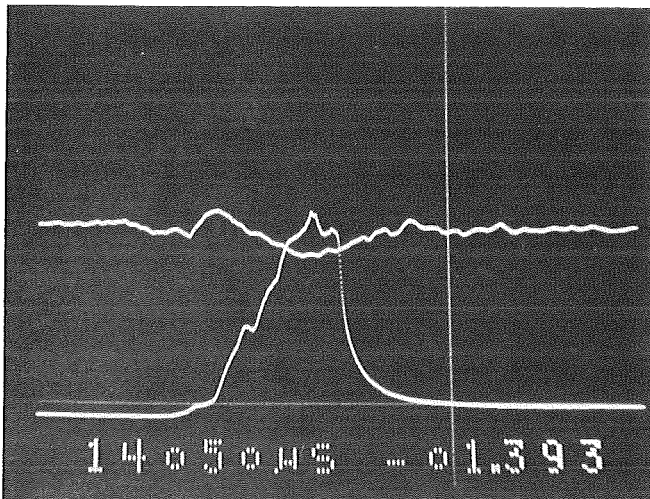


Abb.8.21:  $T_{\max} = 3950 \text{ K}$

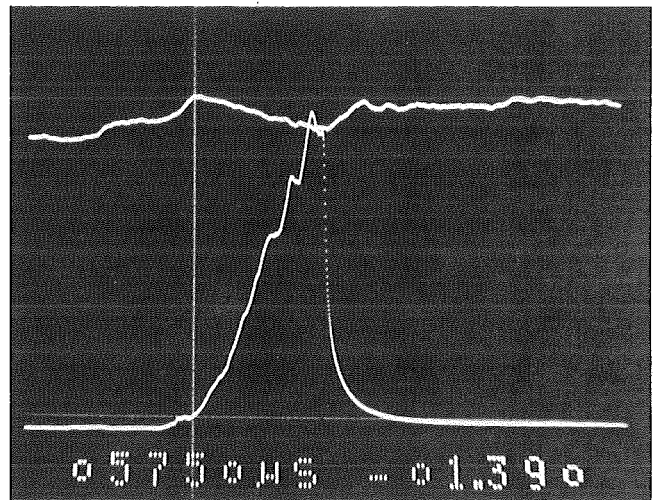


Abb.8.22:  $T_{\max} = 4125 \text{ K}$

Die Auswertung ergab für Urancarbid eine Schmelztemperatur von  $2778 \pm 19\text{K}$ . Dieser Wert deckt sich praktisch mit dem von Johnson /33/ empfohlenen Wert von  $2780\text{ K} \pm 25\text{ K}$ .

Für Thoriumcarbid wurde die Schmelztemperatur zu  $2781 \pm 23\text{ K}$  bestimmt. Auch dieser Wert stimmt ausgezeichnet mit dem von Benz und Stone /25/ bzw. von Henney und Jones /34/ angegebenen Wert von  $2773\text{ K} \pm 35\text{ K}$  überein.

## 9. Die Diskussion der Meßergebnisse

Der Verlauf des spektralen Reflexionsgrades mit der Temperatur ist für beide Materialien, UC und ThC, bei allen zur Messung verwendeten Wellenlängen ähnlich. Mit steigender Temperatur nehmen sowohl die Werte von  $r_p$  (Licht parallel zur Einfallsebene polarisiert) und  $r_s$  (Licht senkrecht zur Einfallsebene polarisiert) als auch die Werte der Reflexionsgrades für unpolarisiertes Licht  $r$  ab. Dieses Verhalten ist typisch für keramische Schmelzen und wurde schon von anderen Hochtemperatur-Materialien wie  $Al_2O_3$ ,  $MgO$ ,  $Nd_2O_3$ ,  $ThO_2$  und  $UO_2$  berichtet /31,32,35/.

Bereits in Kapitel 8.1 wurde darauf hingewiesen, daß der Verlauf der Reflexionsgrade  $r_p$  und  $r_s$  beim Reflexionswinkel  $45^\circ$  bei hohen Temperaturen von dem durch die Gleichung 8-1 gegebenen Zusammenhang geringfügig abweicht. Es fällt auf, daß der Reflexionsgrad für parallel zur Einfallsebene polarisiertes Licht  $r_p$  bei den höchsten gemessenen Temperaturen größer und der Reflexionsgrad für senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht  $r_s$  kleiner ist, als der für den entsprechenden Polarisationszustand theoretisch zu erwartende Wert.

Dieser Gang der Meßwerte ist das Anzeichen für eine besonders bei den höchsten Temperaturen in geringem Umfang auftretende Depolarisierung des zu reflektierenden Lichtes. Die Ursachen dafür sind in erster Linie in Bewegungen der Oberfläche der flüssigen Materialien zu sehen, die durch aus der Schmelze verdampfende, die aus tieferen Materialschichten stammende Verunreinigung, oder durch Leistungsschwankungen des Heizlasers hervorgerufen werden können. Im Rahmen der Fehlerbetrachtung in Kapitel 10 wird gezeigt, daß die Werte der optischen Konstanten davon nicht sehr beeinflußt werden.

Aufgrund der im untersuchten Temperaturbereich niedrigen Dampfdrucke der Karbide, der Siedepunkte von UC wird bei etwa 4800 K erwartet /36/, und des zusätzlich in der Meßapparatur herrschenden Inertgasdruckes von bis zu 10 bar können Störungen der Messungen durch im größerem Umfang verdampfendes Probenmaterial außer Betracht gelassen werden. Bei Materialien mit im interessierenden Temperaturbereich hohen Dampfdrucken können die Messungen durch Absorption und Streuung des einfallenden Lichts in der heißen Dampfschicht über der Oberfläche des Materials drastisch verfälscht werden.

Für die Bestimmung des spektralen Emissionsgrades  $\epsilon_{\lambda}(T)$  aus Reflexionsmessungen gelten grundsätzlich die gleichen Einschränkungen. Allerdings wirken sich unpolarisierte Anteile des Meßlichts auf die Berechnung des spektralen Emissionsgrades praktisch nicht aus, da dazu der Mittelwert der Reflexionsgrade für parallel bzw. senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht verwendet wird, der dem Reflexionsgrad für unpolarisiertes Licht entspricht (siehe Gleichungen 3-7 und 5-7).

Der spektrale Emissionsgrad  $\epsilon_{\lambda}(T)$  von Urancarbid zeigt, wie der von Thoriumcarbid, eine deutliche Abhängigkeit sowohl von der Wellenlänge als auch von der Temperatur. Für den spektralen Emissionsgrad von geschmolzenem Uranoxid ist ein ähnliches Verhalten berichtet worden /31/. Die Wellenlängenabhängigkeit des spektralen Emissionsgrades keramischer Schmelzen verhindert eine Temperaturmessung mit Hilfe von Mehrfarbenpyrometern. Diese Meßinstrumente, auch Quotientenpyrometer genannt, ermöglichen unter bestimmten Voraussetzungen die Bestimmung der Oberflächentemperatur erhitzter Körper ohne Kenntnis des spektralen Verlaufs des Emissionsgrades. Die wichtigste Voraussetzung, die hier offensichtlich nicht erfüllt ist, ist jedoch die Unabhängigkeit des spektralen Emissionsgrades von der Wellenlänge /37,38/. Deswegen ist die einzige verlässliche Art der Temperaturbestimmung von

keramischen Schmelzen die klassische Einfarbenpyrometrie, die allerdings immer die Kenntnis der Temperaturabhängigkeit des spektralen Emissionsgrades bei der Meßwellenlänge des Pyrometers voraussetzt.

Der Verlauf der optischen Konstanten von ThC zeigt eine einfache Abhängigkeit von Temperatur und Wellenlänge. Sowohl die Absorptionskonstante  $k$  als auch der Brechungsindex  $n$  werden mit zunehmender Temperatur bzw. abnehmender Wellenlänge kleiner. Dieser Gang des Brechungsindex mit der Wellenlänge wird als anomale Dispersion bezeichnet und ist typisch für Spektralbereiche, in denen starke Absorption beobachtet wird /39/. Ein ähnliches Verhalten wurde, wenn auch schwächer ausgeprägt, bei  $UO_2$  beobachtet /40/.

Im Gegensatz dazu zeigen die optischen Konstanten von UC eine unregelmäßige Abhängigkeit von der Wellenlänge. Besonders auffällig sind die großen Werte sowohl des Brechungsindex  $n$  als auch der Absorptionskonstante  $k$  bei der Wellenlänge 647 nm.

In der Einleitung wurde dargelegt, daß der spektrale Verlauf des Absorptionskoeffizienten  $K$ , das sogenannte Absorptionsspektrum, Hinweise auf die elektronische Struktur des untersuchten Materials geben kann. Der Zusammenhang zwischen dem Absorptionskoeffizienten  $K$  und der Absorptionskonstante  $k$  ist durch die einfache Gleichung

$$K = \frac{4\pi \cdot k}{\lambda} \qquad 9-1$$

gegeben, wobei  $\lambda$  die Wellenlänge des einfallenden Lichts ist. In der Abbildung 9.1 ist das mit Gleichung 9-1 berechnete Absorptionsspektrum von UC und in der Abbildung 9.2 das Absorptionsspektrum von ThC jeweils für mehrere Temperaturen dargestellt.

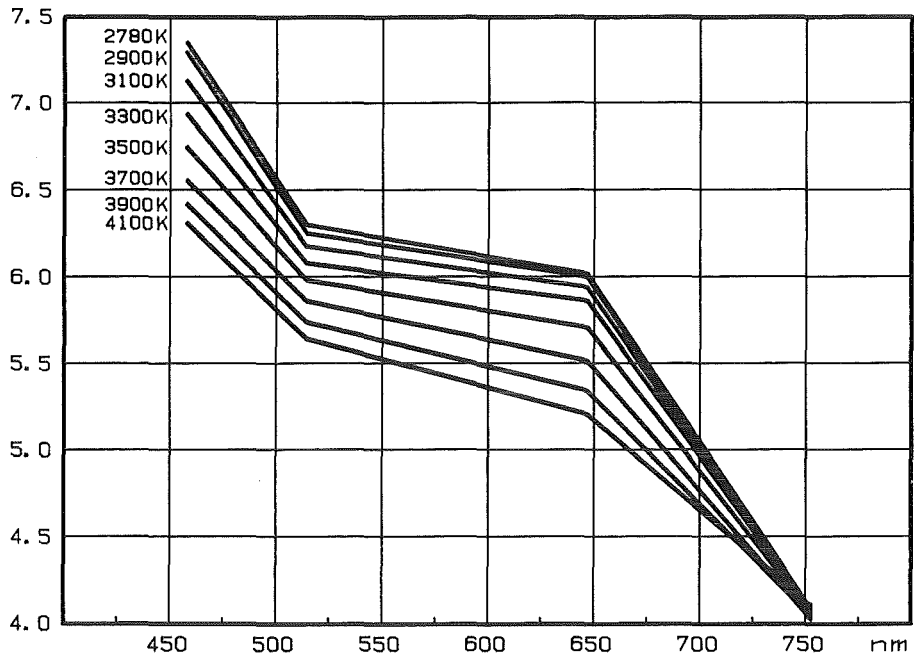


Abb.9.1: Der spektrale Absorptionskoeffizient  $K$  von geschmolzenem Urancarbid im Wellenlängenintervall 458 nm bis 753 nm bei Temperaturen zwischen 2780 K und 4100 K.

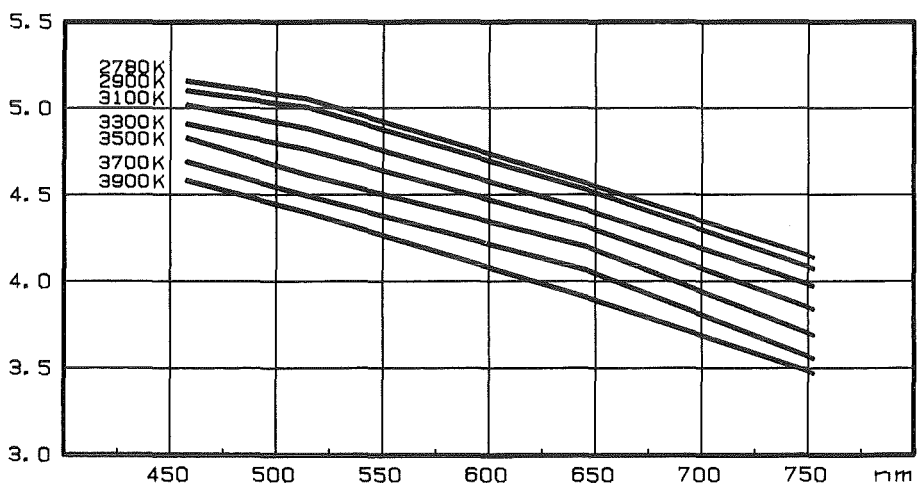


Abb.9.2: Der spektrale Absorptionskoeffizient  $K$  von geschmolzenem Thoriumcarbid im Wellenlängenintervall 458 nm bis 753 nm bei Temperaturen zwischen 2780 K und 3900 K.

Der spektrale Gang des Absorptionskoeffizienten  $K$  von UC ist gleichmäßiger als der der Absorptionskonstante  $k$ . Er nimmt, ebenso wie der von ThC, sowohl mit größer werdender Wellenlänge als auch mit steigender Temperatur ab. Allerdings fällt auf, daß zwischen 753 nm und 647 nm, aber auch zwischen 515 nm und 458 nm, der Wert des Absorptionskoeffizienten von UC stärker ansteigt, als es bei ThC der Fall ist.

Die stärkere Absorption bei 647 nm zeigt einen Übergang zwischen zwei Zuständen an, die um etwa 1,9 eV verschiedene Energien haben, während die großen Werte von  $K$  bei 458 nm auf einen Übergang zwischen zwei Zuständen mit einer Energiedifferenz von etwa 2,7 eV hinweisen. Übergänge mit diesen Energien ergeben sich aus Berechnungen der elektronischen Struktur von UC, die von Joukov und Gubanov /41/ veröffentlicht wurden.

Deren Berechnungen ergaben, daß die 5f-Zustände des Uran-Atoms nicht lokalisiert sind, sondern zusammen mit den Uran-6d-Elektronen und den 2p-Elektronen des Kohlenstoffatoms das Valenzband und somit die kovalente Bindung bilden. Diese Ergebnisse widersprechen den Ergebnissen der Rechnungen von Chan und Lam /42/, die eine starke Lokalisierung der 5f-Zustände ergaben. Die Nicht-Lokalisierung der 5f-Zustände, und damit die Beteiligung dieser Elektronen an der kovalenten Bindung, wurde schon vorher auch von anderen Autoren /43,44,45,46,47/ vorausgesagt, allerdings gaben diese keine genauen Energie-Termschemata an.

Die gute Übereinstimmung zwischen dem Verlauf des im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Absorptionsspektrums von Urancarbid und den unabhängig davon durchgeführten Rechnungen ist ein wichtiges Indiz für die Richtigkeit dieser Annahmen.

## 10. Die Fehleranalyse zu den Experimenten

### 10.1 Der Fehler bei der Bestimmung der optischen Konstanten

Für die Berechnung eines n-k-Wertepaares (n,k) gilt allgemein der folgende funktionelle Zusammenhang

$$(n,k) = f(\alpha_1, \alpha_2, v(\alpha_1), v(\alpha_2)) \quad 10-1$$

$\alpha_1$  und  $\alpha_2$  sind die beiden Reflexionswinkel  
 $v(\alpha_1)$  und  $v(\alpha_2)$  sind die bei diesen Reflexionswinkeln bestimmten Meßwertverhältnisse  $r_p(\alpha_1)/r_s(\alpha_1)$  und  $r_p(\alpha_2)/r_s(\alpha_2)$ .

Im Kapitel 3.3 wurde gezeigt, daß die Formeln zur Berechnung der optischen Konstanten (3-12 und 3-3 bzw. 3-4) nicht explizit nach einer der beiden Größen n oder k aufgelöst werden können. Die Ermittlung des die Lösung der Gleichung 3-12 darstellenden n-k-Wertepaares muß deshalb auf numerischem, d.h. iterativem Weg erfolgen.

Aus diesem Grund ist eine Fehleranalyse nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz nicht durchführbar. Um dennoch die Unsicherheit der berechneten Werte der optischen Konstanten quantifizieren zu können wurde das nachfolgend beschriebene Verfahren angewendet.

Zunächst wurden die Meßwerte des spektralen Reflexionsgrades für linear polarisiertes Licht  $r_p$  und  $r_s$  für jede Wellenlänge und jeden Reflexionswinkel in 7(ThC) bzw. 8(UC) Gruppen zusammengefaßt. Jede Gruppe beinhaltet die innerhalb eines Temperaturintervalls von 200K gemessenen Meßwerte. Da der spektrale Reflexionsgrad von der Temperatur nicht stark abhängt war eine feinere Unterteilung nicht notwendig. Für jede Meßwertgruppe wurde sowohl der Mittelwert als auch die Standardabweichung berechnet. Unter Verwendung der jeweiligen Mittelwerte  $\bar{r}_p$  und  $\bar{r}_s$  sowie den bei den Messungen eingestellten



Reflexionswinkeln wurde ein n-k-Wertepaar berechnet. Da die Reflexionsmessungen für jede Wellenlänge bei drei Reflexionswinkeln durchgeführt worden waren, konnten durch Kombination von jeweils zwei der drei Meßwertgruppen drei n-k-Wertepaare berechnet werden. Als Lösung ergab sich der Mittelwert dieser drei n-k-Wertepaare:

$$\bar{n} = \frac{1}{3} (n(\alpha_1, \alpha_2, v(\alpha_1), v(\alpha_2)) + n(\alpha_1, \alpha_3, v(\alpha_1), v(\alpha_3)) + n(\alpha_2, \alpha_3, v(\alpha_2), v(\alpha_3))) \quad 10-2$$

$\bar{k}$  wurde entsprechend berechnet.

Die Standardabweichungen der einzelnen Meßwertgruppen wiesen (wegen der unterschiedlichen Anzahl von Meßwerten pro Temperaturintervall) keine einheitliche Größe auf. Um die Fehlerbetrachtung möglichst allgemein gültig zu gestalten wurde für die Meßwerte von  $r_p$  und  $r_s$  jeweils eine für alle Wellenlängen und Temperaturbereiche charakteristische Standardabweichung  $\Delta r_p$  bzw.  $\Delta r_s$  bestimmt. Diese Werte wurden so gewählt, daß sie größer als 86% ( $\hat{=} 1 - e^{-2}$ ) der berechneten Standardabweichungen der einzelnen Meßwertgruppen waren. Die Streubreiten der Meßwerte bei den Messungen an UC und ThC unterschieden sich nicht. Deshalb konnten die charakteristischen Standardabweichungen für beide Materialien gleich groß gewählt werden. Für  $\Delta r_p$  wurde so ein Wert von 0,012 und für  $\Delta r_s$  ein Wert von 0,017 ermittelt. Unter Berücksichtigung der Fehler  $\Delta r_p$  und  $\Delta r_s$  berechnet sich der Fehler der Meßwertverhältnisse  $v(\alpha_i)$  zu:

$$\Delta v(\alpha_i) = \left( \left( \frac{\Delta r_p}{\bar{r}_s(\alpha_i)} \right)^2 + \left( \frac{\bar{r}_p(\alpha_i)}{\bar{r}_s^2(\alpha_i)} \Delta r_s \right)^2 \right)^{1/2} \quad 10-3$$

Der tatsächliche Reflexionswinkel unterscheidet sich vom eingestellten Reflexionswinkel aus den unten aufgezählten Gründen im Mittel um  $\Delta\alpha$ . Dieser Winkelfehler  $\Delta\alpha$  hängt nicht von der Größe des Reflexionswinkels  $\alpha_i$  ab. Die Winkelunsicherheit hat verschiedene Ursachen. Zum einen wird sie von der Einstellgenauigkeit der Probenhalter ( $\leq 0,25^\circ$ ), zum anderen von der Abweichung der Probenoberflächen von der Planparallelität ( $\leq 0,25^\circ$ ) verursacht. Die Hauptursache des Winkelfehlers ist jedoch die durch das Aufschmelzen der Probe bedingte Neigungsänderung der Meßfläche. Dieser Fehler wurde durch mehrere Messungen der Änderung des Reflexionswinkels nach dem Beschuß der Proben mit dem Heizlaser im Mittel zu  $1,25^\circ$  bestimmt (siehe dazu auch Kapitel 7.4).

Zur Bestimmung des Gesamtfehler bei der Berechnung der optischen Konstanten wurden die Mittelwerte der Meßwerte nach folgendem Schema variiert:

$$\alpha'_i = \begin{cases} \alpha_i - \Delta\alpha \\ \alpha_i \\ \alpha_i + \Delta\alpha \end{cases} \quad \text{und} \quad v'_i = \begin{cases} v_i - \Delta v_i \\ v_i \\ v_i + \Delta v_i \end{cases} \quad 10-4$$

Bei drei Reflexionswinkeln wurden durch Permutation unter Berücksichtigung der Reihenfolge 243 Meßwerte- und Reflexionswinkelpaare erhalten aus denen ebensoviele Wertepaare der optischen Konstanten  $n$  und  $k$  berechnet wurden.

In den Tabellen 10.1 und 10.2 sowie in graphischer Form in den Abbildungen 10.1 und 10.2 sind für 36 Wertekombinationen der optischen Konstanten  $n$  und  $k$  die aus den Meß- und Einstellfehlern resultierenden prozentualen Fehler der optischen Konstanten dargestellt. Man erkennt, daß der Fehler  $\Delta n$  des Brechungsindex  $n$  sowohl mit steigenden Werten des Brechungsindex  $n$  selbst als auch mit größer werdenden Werten der Absorptionskonstante  $k$  zunimmt, wobei sich die Größe der Absorptionskonstante  $k$  stärker auswirkt als die Größe des Brechungsindex  $n$ .

n \ k	1,5	1,8	2,1	2,4	2,8	3,2
1,5	7,7	8,9	10,6	13,5	19,8	32,1
1,7	8,4	9,5	11,4	14,3	20,8	25,8
1,9	9,2	10,4	12,5	15,6	22,5	27,3
2,1	10,1	11,6	13,8	17,3	24,8	29,4
2,3	11,4	13,1	15,6	19,5	28,0	32,2
2,6	13,4	16,1	19,3	23,1	29,8	38,3

Tabelle 10.1:  
Prozentualer Fehler des Brechungsindex n

n \ k	1,5	1,8	2,1	2,4	2,8	3,2
1,5	10,4	10,1	10,3	11,2	13,5	15,1
1,7	10,5	9,9	10,2	11,0	13,0	14,9
1,9	10,3	9,7	9,9	10,7	12,5	14,3
2,1	9,9	9,4	9,5	10,2	11,7	13,4
2,3	9,3	8,7	8,8	9,4	10,6	12,5
2,6	8,3	8,4	8,4	8,5	9,0	10,8

Tabelle 10.2:  
Prozentualer Fehler der Absorptionskonstante k

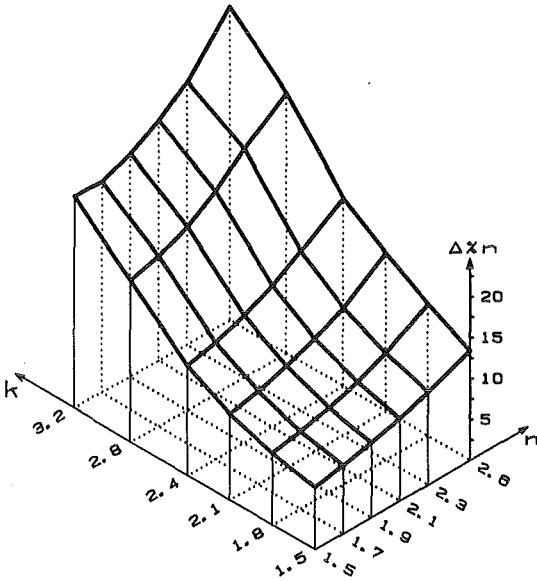


Abb.10.1: der prozentuale Fehler des Brechungsindex  $n$

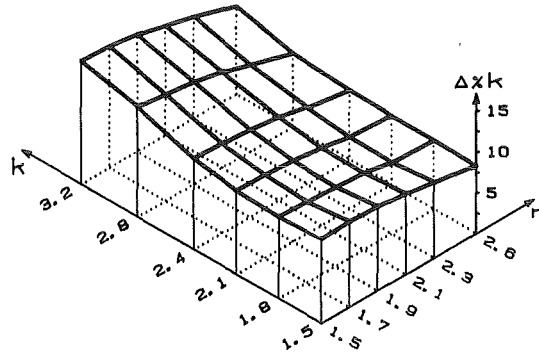


Abb.10.2: der prozentuale Fehler der Absorptionskonstante  $k$

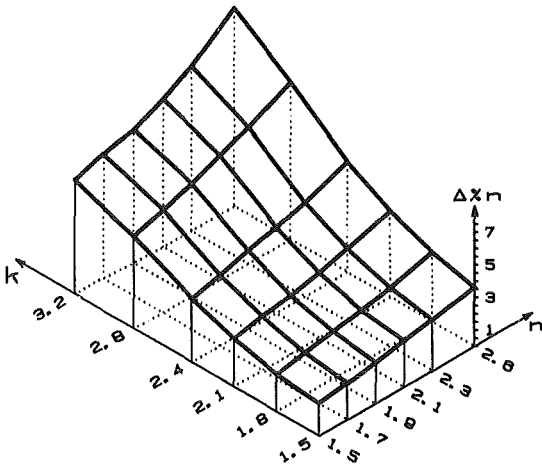


Abb.10.3: die prozentuale Abweichung  $\bar{n}' - \bar{n}$ .  
(Erläuterung im Text)

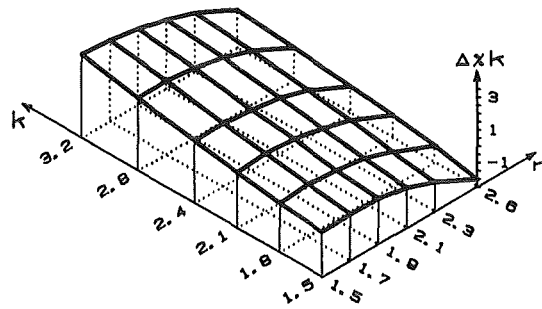


Abb.10.4: die prozentuale Abweichung  $\bar{k}' - \bar{k}$ .  
(Erläuterung im Text)

Der Verlauf des Fehlers  $\Delta k$  der Absorptionskonstante  $k$  unterscheidet sich deutlich von dem oben beschriebenen Verlauf.  $\Delta k$  nimmt mit steigenden Werten der Absorptionskonstante  $k$  zwar ebenfalls zu, jedoch wesentlich weniger schnell als  $\Delta n$ . Im Gegensatz zu  $\Delta n$  nimmt  $\Delta k$  mit steigenden Werten des Brechungsindex  $n$  ab.

Die berechneten Mittelwerte  $\bar{n}'$  und  $\bar{k}'$  stimmen nicht vollständig mit den aus den Mittelwerten der Meßgrößen berechneten Mittelwerten  $\bar{n}$  und  $\bar{k}$  überein. Der Unterschied, der in den Abbildungen 10.3 und 10.4 graphisch dargestellt ist, folgt nicht aus einer ungenügenden Genauigkeit des Rechenverfahrens. Zum einen bewirken die symmetrischen Fehlerbänder der gemessenen Verläufe der Reflexionsgrade  $r_p$  und  $r_s$  kein symmetrisches Fehlerband der Meßwerteverhältnisse  $v$ , und zum anderen ist auch der funktionale Zusammenhang zwischen den Einstell- bzw. Meßgrößen und den daraus berechneten optischen Konstanten ebenfalls nicht symmetrisch. Deshalb haben Abweichungen von den Mittelwerten der Meßwerte in unterschiedlichen Richtungen verschieden große Abweichungen der berechneten  $n$ - $k$ -Wertepaare von den Mittelwerten  $\bar{n}$  und  $\bar{k}$  zur Folge.

Aus den Abbildungen 10.3 und 10.4 kann man entnehmen, daß der Gang von  $\bar{n}' - \bar{n}$  bzw.  $\bar{k}' - \bar{k}$  dem Gang der Fehler  $\Delta n$  und  $\Delta k$  ähnlich ist. Während jedoch die Werte von  $\bar{k}' - \bar{k}$  im Bereich zwischen 0,7% und 3,1% liegen, nimmt die Abweichung  $\bar{n}' - \bar{n}$  für große Werte von  $n$  und  $k$  Werte größer als 11% an. Diese Abweichungen bedeuten, daß die aus den Mittelwerten der Meßwerte berechneten Werte  $\bar{n}$  für den Brechungsindex zu kleine Werte liefern. Der wahre Wert des Brechungsindex  $n$  liegt also im oberen Bereich des durch die numerische Mittelung berechneten Fehlerbandes. Für die Messungen an UC ergibt sich daraus die Folgerung, daß die hohen Werte des Brechungsindex  $n$  bei 647 nm wahrscheinlich sogar noch etwas größer sind. Allerdings liegen die Abweichungen  $\bar{n}' - \bar{n}$  noch deutlich innerhalb des aus der numerischen Mittelung folgenden Fehlerbandes.

Die so durchgeführte Fehlerabschätzung ist aus zwei Gründen sicherlich konservativ. Zum einen gehen die mit der gesamten Standardabweichung belasteten Meßwerte mit der gleichen Wichtung in die Mittelung ein wie die Mittelwerte selbst. Zum anderen wird der durch das Aufschmelzen der Proben verursachte Winkelfehler zu stark berücksichtigt, da er sich zumindest teilweise schon in der Meßwertstreuung äußert. Im Kapitel 10.3 werden deshalb einzelne Fehlerursachen isoliert betrachtet, um ihren Einfluß auf den Gesamtfehler festzustellen.

### 10.2 Der Fehler bei der Bestimmung der Oberflächentemperaturen der Meßproben

Im Gegensatz zum Fehler der optischen Konstanten läßt sich der Fehler der pyrometrisch bestimmten Oberflächentemperatur  $T$  der Meßproben analytisch unter Anwendung des Fehlerfortpflanzungsgesetzes berechnet.

Allgemein gilt:

$$T = f(T_E, U_{P,E}, U_P, \epsilon_\lambda(T)) \quad 10-5$$

Die Funktion  $f$  ist in Gleichung 4-14 explizit angegeben. Sie lautet:

$$T = \frac{c_2}{\lambda} \cdot \left( \ln(\epsilon_\lambda(T)) \cdot \frac{U_{P,E}}{U_P} \left( \exp\left(\frac{c_2}{\lambda \cdot T_e}\right) - 1 \right) + 1 \right)^{-1} \quad 10-6$$

Der Fehler  $\Delta T$  der Temperaturbestimmung wurde nach folgender Formel berechnet:

$$\Delta T = \left( \left( \frac{\partial T}{\partial \epsilon_{\lambda}(T)} \Delta \epsilon \right)^2 + \left( \frac{\partial T}{\partial T_E} \Delta T_E \right)^2 + \left( \frac{\partial T}{\partial U_{P,E}} \Delta U_{P,E} \right)^2 + \right. \\ \left. + \left( \frac{\partial T}{\partial U_P} \Delta U_P \right)^2 \right)^{1/2} \quad 10-7$$

Die einzelnen Differentialquotienten werden im Anhang A-2 angegeben.

Der Fehler  $\Delta T_E$  der Eichtemperatur (2408 K) der zur Eichung des Pyrometers verwendeten Wolframband-Lampe wurde von der Eichbehörde im Eichprotokoll mit 3K angegeben. Die Standardabweichung bei der Messung des Eichsignals (39,18 mV) betrug 0,09 mV. Das Meßsignal konnte mit einer Genauigkeit von 0,2 mV aufgezeichnet werden. Die Unsicherheit von  $\epsilon_{\lambda}(T)$  läßt sich aus den Fehlern der Reflexionsgrade  $r_p$  und  $r_s$  ableiten. Mit

$$\epsilon_{\lambda}(T) = 1 - 0,5(r_p(T, \lambda) + r_s(T, \lambda)) \quad 10-8$$

berechnet sich der Fehler  $\Delta \epsilon_{\lambda}(T)$  zu:

$$\Delta \epsilon_{\lambda}(T) = \left( \left( -1/2 \cdot \Delta r_p \right)^2 + \left( -1/2 \cdot \Delta r_s \right)^2 \right)^{1/2} \quad 10-9$$

Unter Berücksichtigung der in Kapitel 10.1 angegebenen Werte für  $\Delta r_p$  und  $\Delta r_s$  ergibt sich  $\Delta \epsilon_{\lambda}(T)$  aufgerundet zu:

$$\Delta \epsilon_{\lambda}(T) = 0,011 \quad 10-10$$

In der Abbildung 10.5 ist der Meßfehler der Oberflächentemperatur sowohl für UC als auch für ThC im Temperaturbereich zwischen 2750 K und 4100 K bzw. 3900 K dargestellt.

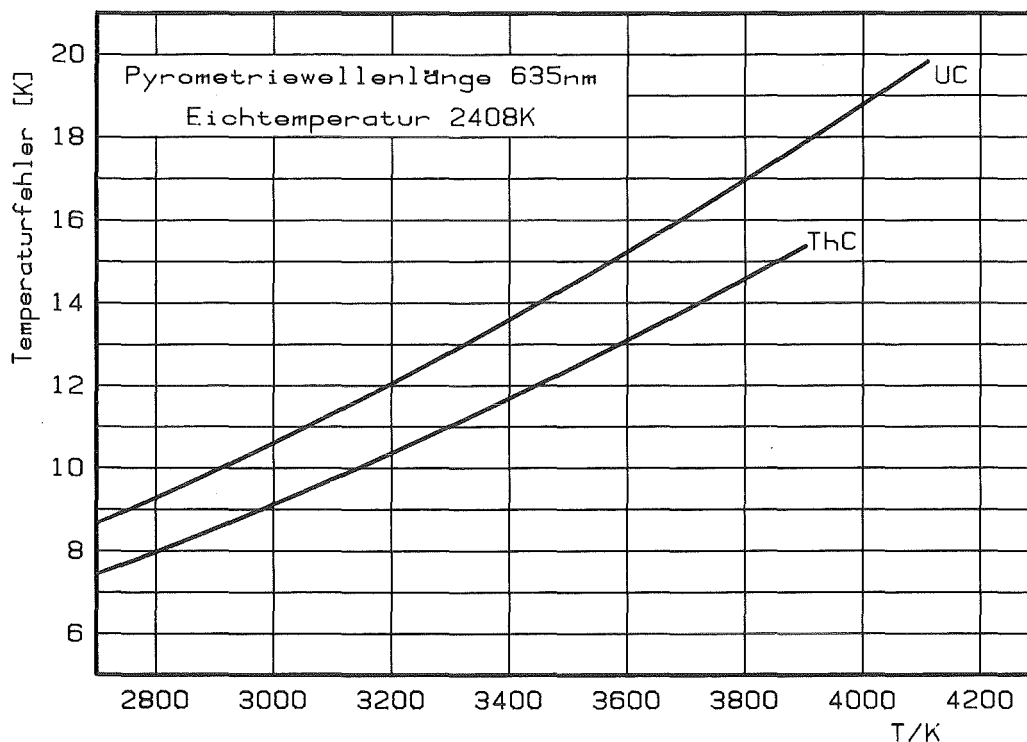


Abb. 10.5: der Meßfehler bei der Bestimmung der Oberflächentemperatur der Meßproben

Der Temperaturfehler bei den Messungen an UC ist größer als der bei den Messungen an ThC, da der spektrale Emissionsgrad  $\epsilon_{\lambda}(T)$  von UC kleiner als der von ThC ist. Der Schmelzpunkt beider Materialien ( $\approx 2780$  K) läßt sich mit einer Unsicherheit von etwa 8K bestimmen. Die Größe des Fehlers nimmt mit steigender Temperatur überproportional zu und erreicht für ThC bei 3900 K einen Wert von 15,5 K. Bei 4100 K beträgt der Temperaturfehler bei Messungen an UC 20 K.



### 10.3 Der Einfluß der Unsicherheit des Reflexionswinkels und der Streubreite der Meßwerte auf die Berechnung der optischen Konstanten

Die in Kapitel 10.1 beschriebene Fehlerrechnung wurde ohne Berücksichtigung der Streubreite der Meßwerte für den spektralen Reflexionsgrad  $r_p$  bzw.  $r_s$  wiederholt. Lediglich die Reflexionswinkel wurden um  $\pm 1,3^\circ$  variiert. Die Ergebnisse dieser Rechnungen sind in den Abbildungen 10.6 und 10.7 in graphischer Form dargestellt. In gleicher Weise wurde der Einfluß der Streubreite der Meßwerte unter Vernachlässigung der Unsicherheit des Reflexionswinkels abgeschätzt. In den Abbildungen 10.8 und 10.9 sind die Resultate dieser Rechnungen ebenfalls in graphischer Form dargestellt. Die Abbildungen 10.6 bis 10.9 sind im gleichen Maßstab wie die Abbildungen 10.1 und 10.2 gehalten. Im Vergleich der Abbildung wird deutlich, daß für numerische Werte des Brechungsindex  $n$  kleiner als etwa 2,5 der Einfluß der Streubreite der Meßwerte überwiegt. Auch der Fehler der Absorptionskonstante  $K$  wird um so mehr von der Streubreite der Meßwerte verursacht, je kleiner die numerischen Werte der optischen Konstanten sind.

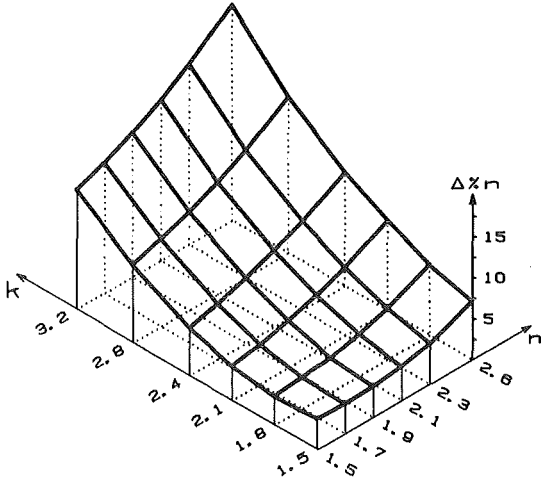


Abb.10.6: der nur durch die Streuung der Meßwerte verursachte prozentuale Fehler des Brechungsindex  $n$

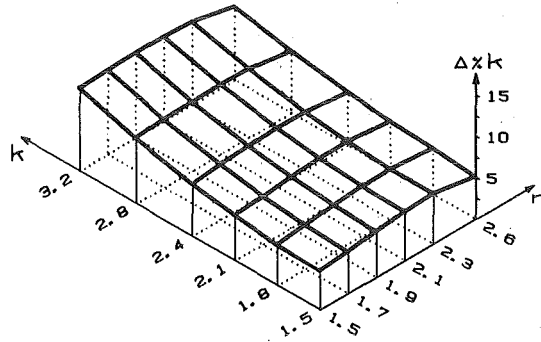


Abb.10.7: der nur durch die Streuung der Meßwerte verursachte prozentuale Fehler der Absorptionskonstante  $k$

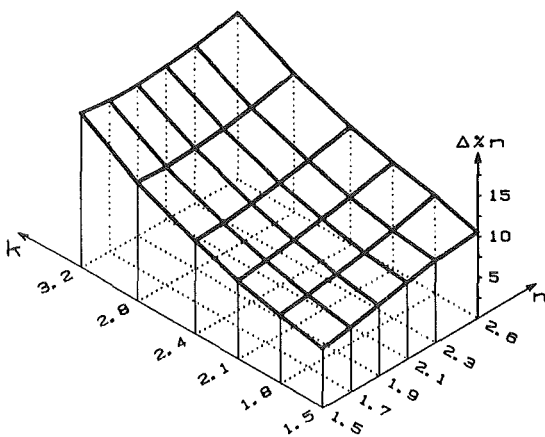


Abb.10.8: der nur durch die Unsicherheit der Reflexionswinkel verursachte proz. Fehler  $\delta$ . Brechungsindex  $n$

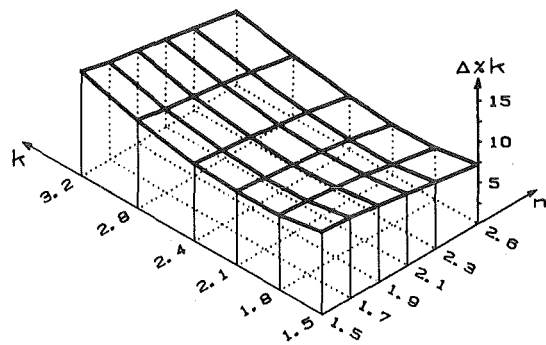


Abb.10.9: der nur durch die Unsicherheit der Reflexionswinkel verursachte proz. Fehler d. Absorptionskonstante  $k$

#### 10.4 Der Einfluß des Polarisationsgrades des zu reflektierenden Lichts

Bei den bisherigen Berechnungen wurde vorausgesetzt, daß das zur Messung verwendete Licht vollständig polarisiert ist. Alle im Strahlengang befindlichen optischen Bauteile, ob Filter, Spiegel, Fenster oder Linsen, bewirken jedoch aufgrund von Oberflächenstörungen oder Materialinhomogenitäten in gewissem Umfang eine Depolarisierung des einfallenden Strahls. Das zu reflektierende Licht ist dann aus zwei Komponenten zusammengesetzt, von denen die eine parallel zur Einfallsebene und die andere senkrecht dazu polarisiert ist.

Das Ausmaß der Depolarisierung wird durch den Polarisationsgrad  $G$  beschrieben, der folgendermaßen definiert ist:

$$G = \frac{P - S}{P + S} . \quad 10-11$$

$P$  ist die Intensität der parallel zur Einfallsebene polarisierten Komponente und

$S$  ist die Intensität der Komponente, die senkrecht dazu polarisiert ist.

Für depolarisiertes Licht sind auch die Reflexionssignale  $M'_p$  und  $M'_s$  aus zwei Komponenten zusammengesetzt:

$$M'_p = P \cdot r_p + S \cdot r_s , \quad (P > S) \quad 10-12$$

$$M'_s = S \cdot r_p + P \cdot r_s , \quad (S > P) \quad 10-13$$

Da der Reflexionsgrad für parallel zur Einfallsebene polarisiertes Licht  $r_p$  immer kleiner als der Reflexionsgrad für senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht  $r_s$  ist (siehe dazu Abbildung 3.2, Kurven "P" und "S"), gelten die folgenden Beziehungen:

$$M'_p > M_p \text{ und } M'_s < M_s \quad 10-14$$

$M_p$  und  $M_s$  sind die Meßsignale, die man erhalten würde, wenn das einfallende Licht entweder vollständig parallel ( $G=1$ ) oder vollständig senkrecht ( $G=-1$ ) zur Einfallsebene polarisiert wäre.

Für das aus den Reflexionssignalen gebildete Meßwertverhältnis  $v'$  gilt dann ebenfalls analog zu Gleichung 3.11:

$$v' = \frac{M'_p}{M'_s} \quad 10-15$$

und unter Berücksichtigung von 10-14:

$$v' > v \quad 10-16$$

Bei dem im Rahmen der hier beschriebenen Experimente verwendeten Meßaufbau lag der erzielte Polarisationsgrad bei mehreren Kontrollmessungen im Mittel bei 0,985. Der kleinste festgestellte Wert des Polarisationsgrades betrug 0,975.

Die aus einem Polarisationsgrad von 0,97 resultierenden Fehler der optischen Konstanten sind in graphischer Form in den Abbildungen 10.10 und 10.11 dargestellt.

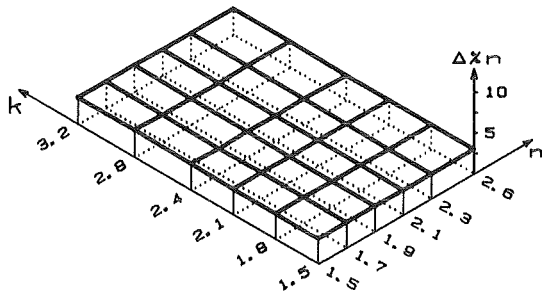


Abb.10.10: der von der unvollständigen Polarisation des Meß-Lichtes verursachte prozentuale Fehler des Brechungsindex  $n$

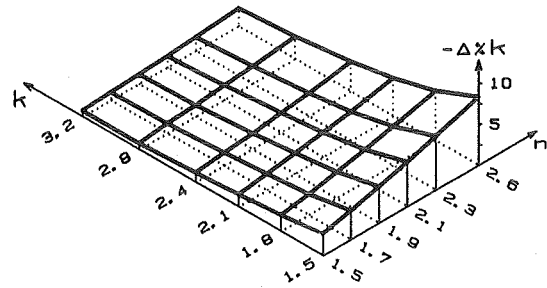


Abb.10.11: der von der unvollständigen Polarisation des Meß-Lichtes verursachte prozentuale Fehler der Absorptionskonstante  $k$

Man sieht, daß der prozentuale Fehler  $\Delta\%n$  des Brechungsindex  $n$  im gesamten untersuchten Wertebereich der optischen Konstanten praktisch konstant ist und einen Wert von etwa 3% hat. Der gemessene Wert  $n'$  des Brechungsindex ist dabei immer kleiner als der wahre Wert  $n$ .

Der prozentuale Fehler  $\Delta\%k$  der Absorptionskonstanten  $k$  ist umso größer, je kleiner der numerische Wert der Absorptionskonstante selbst ist. Mit steigendem Wert des Brechungsindex  $n$  nimmt er ebenfalls zu. Im Gegensatz zum Verhalten des gemessenen Brechungsindex  $n'$  ist der wahre Wert der Absorptionskonstante  $k$  stets kleiner als der gemessene Wert  $k'$ .

### 10.5 Abschätzung der aus der Verwendung von fokussiertem Licht resultierenden Fehler

Bei der Verwendung von fokussiertem Licht ist sowohl der Reflexionswinkel als auch der Polarisationszustand in Abhängigkeit vom Strahldurchmesser und von der Brennweite der Abbildungsoptik  $k$  über einen Wertebereich um den Zentralwert herum verteilt. Der Öffnungswinkel  $\beta$  des Strahles berechnet sich folgendermaßen:

$$\tan \beta = \frac{D}{2f} \quad 10-17$$

$D$  ist der wirksame Durchmesser des parallelen Lichtbündels vor der Abbildungsoptik und  $f$  ist die Brennweite der Abbildungsoptik.

Bei den hier beschriebenen Experimenten wurden Laserstrahlen mit einem wirksamen Durchmesser von etwa 1 mm und eine Linse mit einer Brennweite von 150 mm verwendet. Aus diesen Werten folgt ein Öffnungswinkel des Lichtstrahls von  $0,2^\circ$ .

Die radiale Energieverteilung eines Laserstrahls wird im Grundmode durch eine Gauß-Verteilung beschrieben:

$$I(r) = I_0 \cdot e^{-2 r^2/a^2} \quad 10-18$$

$a$  ist der Radius des Kreises bei dem die Intensität auf 13,5% ( $\hat{=} 1/e^2$ ) der Intensität im Zentrum des Strahles ( $I_0$ ) abgefallen ist. Der wirksame Durchmesser  $D$  hat den Wert  $2a$ .

Berücksichtigt man diese radiale Energieverteilung des Laserstrahls, so wird der wirksame Öffnungswinkel des Strahles noch kleiner ( $< 0,1^\circ$ ). Deshalb mußte der dadurch verursachte Fehler nicht berücksichtigt werden.

### 10.6 Berechnung der durch die Bildung von Schmelzkratern auf der Probenoberfläche verursachten Fehler

Infolge der lokalen Aufheizung der Probenoberflächen durch den Leistungslaser bilden sich Schmelzkrater (siehe Abb.7.8). Deshalb kann eine geringe, nicht kontrollierbare Änderung der Neigung der Reflexionsfläche (im Bodes des Kraters) während den Messungen nicht ausgeschlossen werden (siehe dazu auch Kapitel 7.4). Für eine Neigungsänderung der Reflexionsfläche in beliebiger Richtung um bis zu  $1,3^\circ$  wurden für 36 Wertekombinationen der optischen Konstanten die Abweichungen der so berechneten Werte  $n'$  und  $k'$  von den wahren Werten der Absorptionskonstante  $k$  und des Brechungsindex  $n$  berechnet. Die Berechnung, die unter Anwendung elementarer Gesetze der Vektorrechnung durchgeführt wurde, ist im Anhang A-3 ausführlich beschrieben. In den Abbildungen 10.12 und 10.13 sind in graphischer Form die so berechneten prozentualen Fehler der optischen Konstanten dargestellt.

Wie man durch Vergleich mit den Abbildungen 10.6 und 10.7 feststellen kann, sind die so berechneten Fehler wesentlich kleiner als die, die in Kapitel 10.3 unter Vernachlässigung

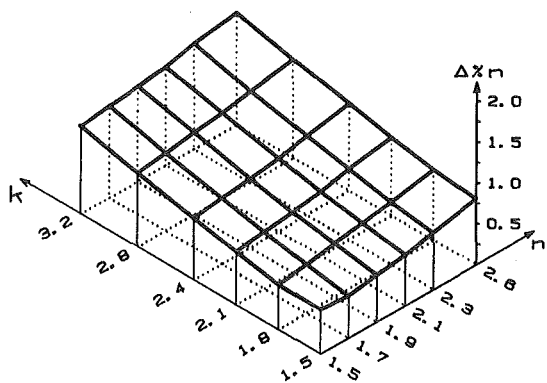


Abb.10.12: der durch das Aufschmelzen der Probenoberfläche verursachte prozentuale Fehler des Brechungsindex  $n$

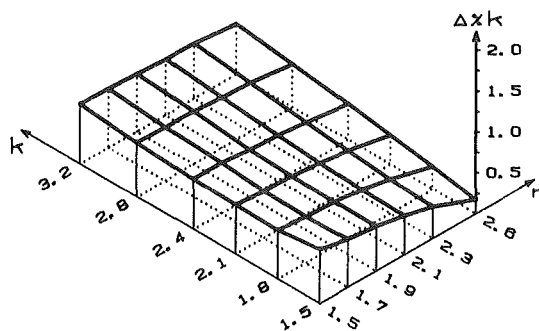


Abb.10.13: der durch das Aufschmelzen der Probenoberfläche verursachte prozentuale Fehler der Absorptionskonstante  $k$

der Änderung des Polarisationszustandes des einfallenden Lichts bezüglich der Einfallsebene berechnet wurden. Durch die von der Reflexionswinkeländerung verursachte Verminderung des Polarisationsgrades werden die Auswirkungen der Winkelfehler zumindest teilweise kompensiert. Der durch das Aufschmelzen der Probenoberfläche hervorgerufene Fehler des Brechungsindex  $n$  bleibt deshalb im untersuchten Wertebereich der optischen Konstanten kleiner als 1,5%, der Fehler der Absorptionskonstante bleibt sogar kleiner als 1%.

Die in diesem und in den vorangegangenen Abschnitten dieses Kapitels berechneten Fehler müssen im Bereich großer Werte der optischen Konstanten  $n$  und  $k$  als konservative Abschätzung der tatsächlichen Fehler angegeben werden. Wie in Kapitel 3 dargelegt wurde, garantieren die den Berechnungen zugrunde gelegten Reflexionswinkel von  $45^\circ$ ,  $59^\circ$  und  $71^\circ$  nur dann eine gute Sensitivität des Meßverfahrens, wenn die Werte der optischen Konstanten im Bereich zwischen 1,7 und 2,6 liegen. Die in der Abbildung 10.1 dargestellten großen Fehler des Brechungsindex  $n$  in den Wertebereichen der optischen Konstanten, in denen sowohl der Brechungsindex  $n$  selbst als auch die Absorptionskonstante  $k$  Werte größer als 2,5 aufweisen, werden größtenteils durch die diesen Materialverhältnissen nicht optimal angepaßten Reflexionswinkel verursacht und stellen keine grundsätzliche Schwäche des Meßverfahrens dar.



## 11. Zusammenfassung

Zur Bestimmung der optischen Stoffdaten, d.h. des spektralen Reflexionsgrades, des spektralen Emissionsgrades, der optischen Konstanten und des spektralen Absorptionskoeffizienten, von Schmelzen aus Urancarbid (UC) bzw. Thoriumcarbid (ThC) wurde ein Autoklav-Laserreflektometer gebaut. In dieser Apparatur wurde unter einem Schutzgasdruck von bis zu 11 bar der spektrale Reflexionsgrad der untersuchten Materialien im Temperaturbereich zwischen 2780 K und 4100 K gemessen.

Die pelletförmigen Proben wurden lokal durch den Strahl eines Nd-YAG-Lasers mit einer Leistung von bis zu 10 kW aufgeheizt. Die Maximaltemperaturen wurden in 3 msec erreicht, die Gesamtdauer einer Messung betrug 5 msec. Aus dem Verlauf der mit einem Pyrometer registrierten Temperatursignale wurden die Schmelztemperaturen von UC und ThC bestimmt.

Thoriumcarbid-Pellets wurden durch Heißpressen von leicht überstöchiometrischem Pulver in mit Wolframblech verkleideten Graphitmatrizen in reiner Argonatmosphäre bei einer Temperatur von 1950°C und einem Druck von 173 M Pa hergestellt. Dazu wurde eine vorhandene hydraulische Presse entsprechend modifiziert. Die Heizung der Matrizen erfolgte induktiv mit einem Hochfrequenzsender.

Die hergestellten ThC-Pellets mit einer Dichte von mehr als 96% der theoretischen Dichte hatten einen Durchmesser von 10 mm und waren etwa 10 mm hoch. Die mechanische und keramographische Bearbeitung der Meßproben fand in sauerstofffreier Argonatmosphäre statt. Für die verwendeten Geräte wurden entsprechende Handschuhkästen gebaut.

Die Reflexionsmessungen wurden sowohl mit parallel als auch senkrecht zur Einfallsebene polarisiertem Laserlicht bei den Wellenlängen 458 nm, 515 nm, 647 nm und 753 nm durchgeführt.

Bei jeder der vier Wellenlängen wurde der Reflexionsgrad bei drei Reflexionswinkeln ( $45^\circ$ ,  $59^\circ$  bzw.  $61^\circ$  und  $71^\circ$ ) bestimmt.

Aus den jeweils beim Reflexionswinkel  $45^\circ$  gemessenen Werten des spektralen Reflexionsgrades wurde der spektrale, gerichtete Emissionsgrad berechnet.

Unter Verwendung der Fresnelschen Gleichungen für die Reflexion von polarisiertem Licht an spiegelnden Flächen wurden die optischen Konstanten, der Brechungsindex  $n$  und die Absorptionskonstante  $k$ , von flüssigem Urancarbid bzw. Thoriumcarbid berechnet.

Unter verschiedenen grundsätzlich möglichen Meßverfahren zur Bestimmung der optischen Konstanten aus Reflexionsmessungen wurde die den untersuchten Materialien am besten angepaßte Methode ausgewählt und ausführlich in Hinblick auf die zu erwartende Genauigkeit untersucht. Zusätzlich wurde eine umfangreiche Analyse der möglichen Auswirkungen von Meßfehlern durchgeführt. Es wurde ein Verfahren angegeben, das es ermöglicht, die Reflexionswinkel so zu wählen, daß die größtmögliche Sensitivität des Meßverfahrens erzielt wird.

Mit Hilfe der Rosseland-Approximation für optisch dichte Medien wurde unter Verwendung der berechneten Werte der optischen Konstanten die Strahlungswärmeleitfähigkeit von geschmolzenem Urancarbid bzw. Thoriumcarbid abgeschätzt.

Die Kenntnis der optischen Konstanten ermöglichte die Berechnung des spektralen Verlaufs des Absorptionskoeffizienten. Durch Vergleich der Absorptionsspektren von Urancarbid und Thoriumcarbid konnten Rückschlüsse auf die elektronische Struktur von Urancarbid gezogen werden.

Im Einzelnen wurden folgende Werte gemessen bzw. aus den Meßdaten berechnet:

Die Schmelztemperatur von UC beträgt 2778 K +/-19K, die von ThC 2781 K +/-23K.

Der spektrale gerichtete Emissionsgrad  $\epsilon_{\lambda}(45^{\circ}, T)$  von UC hat am Schmelzpunkt im untersuchten Spektralbereich Werte zwischen 0,46 und 0,51. Mit zunehmender Temperatur wird er größer und hat bei 4100 K Werte zwischen 0,54 und 0,58.

Die Werte des spektralen gerichteten Emissionsgrades  $\epsilon_{\lambda}(45^{\circ}, T)$  von Thoriumcarbid sind größer als die von Urancarbid. Sie liegen am Schmelzpunkt im Bereich zwischen 0,53 und 0,62. Auch bei Thoriumcarbid nimmt der spektrale Emissionsgrad mit steigender Temperatur zu. Bei 3900 K hat er im untersuchten Spektralbereich zwischen 458 nm und 753 nm Werte von 0,62 bis 0,68. Der Fehler der angegebenen Werte des spektralen gerichteten Emissionsgrades  $\epsilon_{\lambda}(45^{\circ}, T)$  von UC bzw. ThC beträgt  $\pm 0,011$ .

Der Brechungsindex  $n$  von Urancarbid hat im untersuchten Spektralbereich Werte zwischen 1,6 und 2,5. Die Werte der Absorptionskonstante  $k$  überstreichen den Bereich zwischen 2,3 und 3,1. Der spektrale Verlauf der optischen Konstanten von UC ist sehr unregelmäßig. Auffällig sind die besonders großen Werte bei 647 nm.

Die optischen Konstanten von ThC zeigen einen regelmäßigen Verlauf mit der Temperatur und der Wellenlänge. Beide Größen werden mit zunehmender Temperatur und abnehmender Wellenlänge kleiner. Die Werte des Brechungsindex  $n$  streuen nicht so stark wie die von UC, sie liegen im Bereich zwischen 1,6 und 2,0. Die Absorptionskonstante  $k$  hat im untersuchten Temperaturbereich Werte zwischen 1,7 und 2,5. Der Brechungsindex  $n$  von UC konnte mit einer Genauigkeit von etwa 20%, die Absorptionskonstante  $k$  von UC mit einer Genauigkeit von etwa 10% bestimmt werden.

Der Brechungsindex  $n$  von ThC konnte mit einer Genauigkeit von etwa 15%, die Absorptionskonstante  $k$  mit einer Genauigkeit von 10% bestimmt werden.

Der größere Fehler bei der Bestimmung des Brechungsindex  $n$  von UC wird durch die besonders großen Werte der optischen Konstanten von UC bei der Wellenlänge 647 nm verursacht.

Die Absorptionsspektren von UC und ThC verlaufen grundsätzlich ähnlich. Sowohl mit steigender Temperatur als auch mit zunehmender Wellenlänge wird der Absorptionskoeffizient  $K$  kleiner. Die über den untersuchten Temperaturbereich gemittelten Werte fallen von  $6,9 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$  bei 458 nm auf  $4,1 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$  bei 753 nm. Der Absorptionskoeffizient  $K$  von ThC hat bei 458 nm im Mittel den Wert  $4,9 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$  und fällt mit zunehmender Wellenlänge stetig auf einen mittleren Wert von  $3,9 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$  bei 753 nm.

Der im Vergleich zu dem von Thoriumcarbid deutlich unterschiedliche spektrale Gang des Absorptionskoeffizienten von geschmolzenem UC stellt eine experimentelle Bestätigung für die aus theoretischen Berechnungen folgende Annahme dar, daß die 5f-Elektronen des Uran-Atoms nicht lokalisiert sind, sondern an der kovalenten Bindung beteiligt sind.

12. Anhang

A-1 Herleitung der Formeln für die Reflexion von polarisiertem Licht nach Fresnel

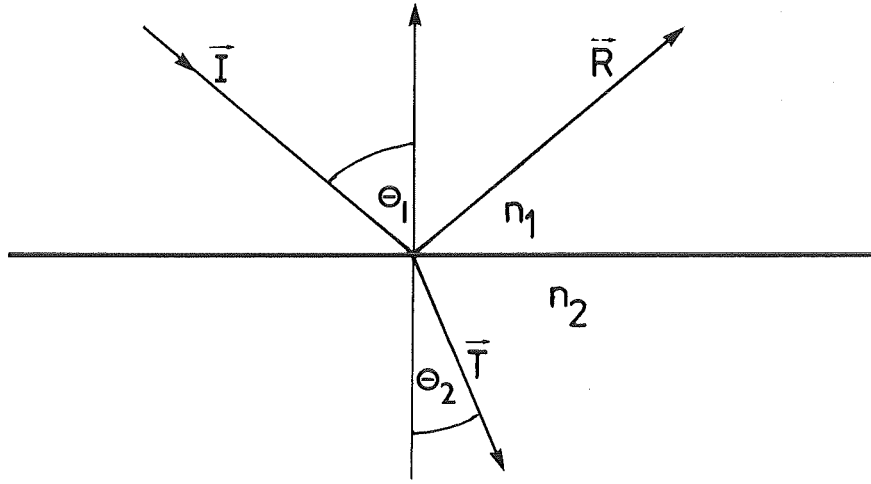


Abb.A1.1: Brechung und Reflexion von Licht an der Grenzfläche zweier Medien

Die Brechung von Lichtwellen an der Grenzfläche zweier Medien wird durch das Snellius'sche Gesetz beschrieben, das für dielektrische Stoffe ( $K \approx 0$ ) folgende einfache Form hat:

$$\frac{\sin \theta_1}{\sin \theta_2} = \frac{n_2}{n_1} \quad \text{A1-1}$$

Die Bedeutung der einzelnen Größen geht aus der Abbildung A1-1 hervor.

Falls beide Medien nicht ideale Isolatoren sind was zur Folge hat, daß die Absorptionskonstanten  $k_1$  und  $k_2$  sich deutlich von 0 unterscheiden, wird der Brechungsindex komplex, und das Snellsche Gesetz lautet deshalb.

$$\frac{\sin \theta_1}{\sin \theta_2} = \frac{n_2 - ik_2}{n_1 - ik_1} = \frac{N_2}{N_1} \quad \text{A1-2}$$

Die Größen  $N_1$  und  $N_2$  sind die komplexen Brechungsindices der beiden Medien.

Die allgemeinen Fresnelschen Gleichungen für die Reflexion von elektromagnetischen Wellen an Grenzschichten lauten wie folgt / 7 /:

$$\frac{E_{r,s}}{E_{e,s}} = - \frac{\sin(\theta_1 - \theta_2)}{\sin(\theta_1 + \theta_2)} \quad \text{A1-3}$$

und

$$\frac{E_{r,p}}{E_{e,p}} = \frac{\tan(\theta_1 - \theta_2)}{\tan(\theta_1 + \theta_2)} \quad \text{A1-4}$$

$E_{r,s}$  bzw.  $E_{r,p}$  und  $E_{e,s}$  bzw.  $E_{e,p}$  sind die senkrecht bzw. parallel zur Einfallsebene orientierten Komponenten der einfallenden (e) bzw. reflektierten (r) elektromagnetischen Welle.

Die von der Welle transportierte Energie ist proportional zum Quadrat der elektrischen Feldstärke E. Deshalb gilt:

$$\bar{r}_s = \left( \frac{E_{r,p}}{E_{e,s}} \right)^2, \quad \bar{r}_p = \left( \frac{E_{r,p}}{E_{e,p}} \right)^2 \quad \text{A1-5}$$

Durch den Querstrich wird markiert, daß die Größen  $\bar{r}_p$  und  $\bar{r}_s$  komplex sind.

Kombiniert man die Gleichungen A1-3 bzw. A1-4 mit der Gleichung A1-2, so erhält man unter Berücksichtigung von Gleichung A1-5 folgende Gleichungen für die komplexen Reflexionsgrade  $\bar{r}_p$  und  $\bar{r}_s$ :

$$\bar{r}_p = \left( \frac{(\cos\theta_2/\cos\theta_1) - (N_1/N_2)}{(\cos\theta_2/\cos\theta_1) + (N_1/N_2)} \right)^2 \quad \text{A1-6}$$

$$\bar{r}_s = \left( \frac{(\cos\theta_1/\cos\theta_2) - (N_1/N_2)}{(\cos\theta_1/\cos\theta_2) + (N_1/N_2)} \right)^2 \quad \text{A1-7}$$

Zur Vereinfachung der weiteren Ableitung wird vorausgesetzt, daß Medium 1 Vakuum bzw. Luft ist ( $n=1, k=0$ ).

Der relative Brechungsindex  $N$ , der über die Gleichung

$$N = \frac{N_1}{N_2} \quad \text{A1-8}$$

definiert ist, vereinfacht sich deshalb zu:

$$N = n_2 - ik_2 \quad \text{A1-9}$$

Unter Verwendung der von König /48/ eingeführten Substitution:

$$a - ib = (N^2 - \sin^2\theta_1)^{1/2} \quad \text{A1-10}$$

können die Gleichungen A1-6 und A1-7 umgeschrieben werden:

$$\bar{r}_s(\theta_1) = \frac{(a-ib) - \cos\theta_1}{(a-ib) + \cos\theta_1} \quad \text{A1-11}$$

$$\bar{r}_p(\theta_1) = \bar{r}_s \cdot \frac{(a-ib) - \sin\theta_1 \cdot \tan\theta_1}{(a-ib) + \sin\theta_1 \cdot \tan\theta_1} \quad \text{A1-12}$$

Durch Berechnung der Absolutwerte der komplexen Größen  $\bar{r}_s$  und  $\bar{r}_p$  erhält man die realen Reflexionsgrade  $r_s$  und  $r_p$ .  
Es gilt:

$$r_s = \sqrt{(\bar{r}_s \cdot \bar{r}_s^+)} = \frac{(a - \cos\theta_1)^2 + b^2}{(a + \cos\theta_1)^2 + b^2}, \quad \text{A1-13}$$

$$r_p = \sqrt{(\bar{r}_p \cdot \bar{r}_p^+)} = r_s \frac{(a - \sin\theta_1) \cdot \tan\theta_1)^2 + b^2}{(a + \sin\theta_1) \cdot \tan\theta_1)^2 + b^2}. \quad \text{A1-14}$$

Die Größen  $a$  und  $b$  werden durch Kombination der Gleichungen A1-9 und A1-10 bestimmt. Durch Einsetzen von Glg. A1-9 in Glg. A1-10, Quadrieren der Gleichung und Gleichsetzung der Real- bzw. Imaginärteile beider Seiten der Gleichung erhält man:

$$a^2 - b^2 = n^2 - k^2 - \sin^2\theta_1 \quad \text{A1-15}$$

und

$$a \cdot b = n \cdot k \quad \text{A1-16}$$

Durch Kombination von Glg. A1-16 mit Glg. A1-15 erhält man die Bestimmungsgleichungen für die Größen  $a$  und  $b$ :

$$a^2 = 1/2 \cdot ((n^2 - k^2 - \sin^2\theta_1) + \sqrt{(n^2 - k^2 - \sin^2\theta_1) + 4n^2k^2}), \quad \text{A1-17}$$

$$b^2 = 1/2 \cdot (-(n^2 - k^2 - \sin^2\theta_1) + \sqrt{(n^2 - k^2 - \sin^2\theta_1) + 4n^2k^2}). \quad \text{A1-18}$$



A-2 Anhang zur Berechnung des Temperaturfehlers  $\Delta T$

Die Gleichung zur Bestimmung der Oberflächentemperatur der Meßproben lautet:

$$T = \frac{c_2}{\lambda} \cdot \left( \ln(\varepsilon_\lambda(T)) \cdot \frac{U_{P,E}}{U_P} \left( \exp \frac{c_2}{\lambda \cdot T_E} - 1 \right) + 1 \right)^{-1} \quad A2-1$$

Zur Vereinfachung werden die folgenden Abkürzungen eingeführt:

$$\exp \left( \frac{c_2}{\lambda \cdot T_E} \right) - 1 = K_1, \quad A2-2$$

$$\varepsilon_\lambda(T) \cdot \frac{U_{P,E}}{U_P} \cdot K_1 + 1 = K_2 \quad A2-3$$

$$\frac{c_2}{K_2 \cdot \lambda (\ln(K_2))^2} = K_3 \quad A2-4$$

Unter Verwendung dieser Abkürzungen lauten die in Kapitel 10.2 verwendeten Differentialquotienten wie folgt:

$$\frac{\partial T}{\partial \varepsilon_\lambda(T)} = (K_2 - 1) \cdot \frac{K_3}{\varepsilon_\lambda(T)} \quad A2-5$$

$$\frac{\partial T}{\partial U_{P,E}} = (K_2 - 1) \cdot \frac{K_3}{U_{P,E}} \quad A2-6$$

$$\frac{\partial T}{\partial U_P} = -(K_2 - 1) \cdot \frac{K_3}{U_P} \quad A2-7$$

$$\frac{\partial T}{\partial T_E} = -(K_2 - 1) \cdot \frac{K_3}{K_1} \cdot (K_1 - 1) \cdot \frac{c_2}{\lambda \cdot T_E^2} \quad \text{A2-8}$$

Der unter Verwendung dieser Differentialquotienten berechnete Temperaturfehler ist in Abb. 10.7 dargestellt.

A-3 Abschätzung der aus einer unkontrollierten Änderung der Neigung der Reflexionsfläche (Aufschmelzen der Probenoberfläche) resultierenden Fehler bei der Bestimmung der optischen Konstanten

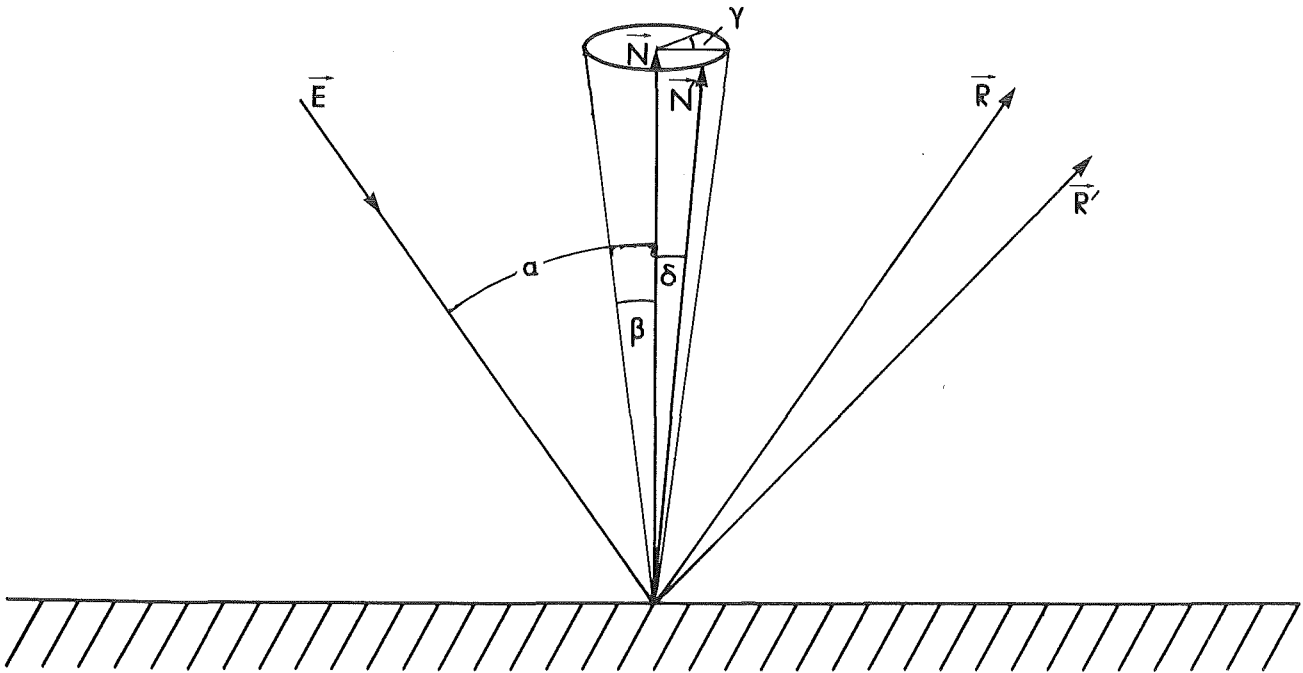


Abb. A3.1: die geometrischen Verhältnisse bei der Reflexion an einer sich verändernden Oberfläche

Der Normalenvektor  $\vec{N}'$  der sich statistisch ändernden Probenoberfläche beschreibt einen Kegel mit dem Öffnungswinkel  $\beta$  um den Normalenvektor  $\vec{N}$  der ungestörten Probenoberfläche. Der Öffnungswinkel  $\beta$  entspricht der Neigungsänderung der Reflexionsfläche. Die Darstellung in Abbildung A3.1 wurde so gewählt, daß für ungestörte Reflexion die Einfallsebene, die aus den Vektoren  $\vec{N}$  und  $\vec{E}$  (und  $\vec{R}$ ) aufgespannt wird, mit der Papierebene zusammenfällt. Der Reflexionswinkel für ungestörte Reflexion ist über die folgende Gleichung definiert:

$$\alpha = \arccos \frac{\vec{N} \cdot \vec{E}}{|\vec{N}| \cdot |\vec{E}|}$$

Um die nachfolgenden Berechnungen zu vereinfachen wird allen Vektoren die Länge 1 zugewiesen. Gleichung A3-1 vereinfacht sich dann zu:

$$\alpha = \arccos \vec{N} \cdot \vec{E} \quad \text{A3-2}$$

Für die in der Abbildung A3.1 dargestellte Geometrie haben die einzelnen Vektorkomponenten folgende Werte:

$$\begin{aligned} \vec{N} &= (0, 0, 1) \\ \vec{E} &= (\sin\alpha, 0, \cos\alpha) \end{aligned} \quad \text{A3-3}$$

Bei einer Änderung der Probenneigung ändert sich die Orientierung der Probennormalen. Die Probennormale  $\vec{N}'$  der veränderten Reflexionsfläche lautet dann:

$$\vec{N}' = (\sin\beta \cdot \cos\gamma, \sin\beta \cdot \sin\gamma, \cos\beta) \quad \text{A3-5}$$

Analog zu Gleichung A3-2 berechnet sich der geänderte Reflexionswinkel  $\alpha'$  zu:

$$\begin{aligned} \alpha' &= \arccos \vec{N}' \cdot \vec{E} \\ &= \arccos (\sin\alpha \cdot \sin\beta \cdot \cos\gamma + \cos\alpha \cdot \cos\beta) \end{aligned} \quad \text{A3-6}$$

Aufgrund der geänderten Probenneigung muß die Polarisations-ebene des einfallenden Strahlens  $\vec{E}$  neu eingestellt werden. Dazu muß sie um den Winkel  $\delta$  korrigiert werden. Dieser Korrekturwinkel kann ebenfalls leicht berechnet werden. Für senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht steht der Polarisationsvektor  $\vec{P}$  senkrecht auf der Einfallsebene. Es gilt also:

$$\vec{P} = \vec{E} \times \vec{N} \quad \text{A3-7}$$

beziehungsweise

$$\vec{P}' = \vec{E} \times \vec{N}' . \quad \text{A3-8}$$

Der Korrekturwinkel  $\delta$  berechnet sich somit analog zu Gleichung A3-2 zu:

$$\delta = \text{arc cos} \frac{\vec{P} \cdot \vec{P}'}{|\vec{P}| \cdot |\vec{P}'|} \quad \text{A3-9}$$

Da sich die Neigung der Reflexionsfläche beim Aufschmelzen der Probenoberfläche unkontrollierbar ändert, ist eine Korrektur der Polarisierungseinstellung während der Messung nicht möglich. Sowohl die daraus resultierende Verminderung des Polarisationsgrades als auch die Änderung des Reflexionswinkels verursachen Fehler bei der Bestimmung der optischen Konstanten  $n$  und  $k$ .

Diese Fehler wurden abgeschätzt durch Variation des Winkels  $\gamma$  (siehe Abb. A3.1) im Bereich zwischen  $0^\circ$  und  $180^\circ$  unter Berücksichtigung der Gleichungen A3-6 und A3-9. Die Ergebnisse dieser Rechnungen sind in den Abbildungen 10.10 und 10.11 in graphischer Form dargestellt. Die so berechneten Abweichungen sind eine sehr konservative Abschätzung der zu erwartenden Fehler, da für den Winkel  $\beta$  (siehe Abb. A3.1) immer dessen Maximalwert in die Gleichung A3-6 eingesetzt wurde.

13. Literaturverzeichnis

- /1/ R.D. Baker:  
"Advanced Fast Reactor Fuels Program, First Annual Report,  
FY 1975"  
Los Alamos Scientific Laboratory, Report-LA-6353-PR (1976)
- /2/ K. Kummerer, F. Thümmeler:  
"Karbidge Kernbrennstoffe für schnelle Brutreaktoren"  
Kernforschungszentrum Karlsruhe, Report KfK 1111 (1969)
- /3/ R.A.M. Wolters:  
"Synthesis, Sintering Properties and Thermal Conductivity  
of Uranium Carbonitrides", Report ECN-48 (1978)
- /4/ B.W. Veal:  
"Optical Properties and Electronic Structure of the  
Actinides" in  
"The Actinides Electronic Structure and Related Properties",  
Band 2, Academic Press, New York, 1974
- /5/ F.Y. Fradin:  
"Localized vs. Itinerant 5f Electrons: A Review of  
Experimental Evidence" in  
"Plutonium and Other Actinides", North-Holland, Amsterdam,  
1976
- /6/ H.U. Karow:  
"On the Determination of the Optical Constants and Radiative  
Heat Conductivity from Reflection Experiments on Nuclear  
Fuel Material in the Liquid Phase up to above 4000 K"  
Kernforschungszentrum Karlsruhe Report KfK 2653 (1979)
- /7/ M.N. Özisik:  
"Radiative Transfer"  
Wiley, New York, 1973

- /8/ M. Born:  
"Optik", 2. Auflage, Springer-Verlag, Berlin, 1965
- /9/ D.G. Avery:  
"An Improved Method for Measurements of Optical Constants by Reflection", Proc. Phys. Soc. B65 (1952) 425-428.
- /10/ S.P.F. Humphreys-Owen:  
"Comparison of Reflection Methods for Measuring Optical Constants without Polarimetric Analysis, and Proposal for New Methods based on the Brewster Angle"  
Proc. Phys. Soc. (London) 77 (1961) 949-957
- /11/ W.R. Hunter:  
"Errors in Using the Reflectance vs. Angle of Incidence Method for Measuring Optical Constants", J. Opt. Soc. Am. 55, (1965) 1197-1204.
- /12/ I. Simon:  
"Spectroscopy in Infrared by Reflection and its Use for Highly Absorbing Substances"  
J. Opt. Soc. Am. 41 (1951) 336-345
- /13/ J.R. Collins, R.O. Bock:  
"Determination of Optical Constants of Metals by Reflectivity Measurements"  
Rev. Sci. Instr. 14 (1943) 135-141
- /14/ R. Tousey:  
"On Calculating the Optical Constants from Reflection Coefficients"  
J. Opt. Soc. Am. 29 (1939) 235-239
- /15/ M. Bober, J. Singer: unveröffentlicht  
Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik  
Kernforschungszentrum Karlsruhe
- /16/ R. Eggmann: unveröffentlicht  
ibid.

- /17/ J. Euler, R. Ludwig:  
"Arbeitsmethoden der optischen Pyrometrie"  
G. Braun, Karlsruhe, 1960
- /18/ J.C. deVos:  
"The emissivity of tungsten - ribbon"  
Diss. Univ. Amsterdam 1953 and Physica 20 (1954) 690-714
- /19/ H.O. McMahon:  
"Thermal Radiation from Partially Transparent Reflecting  
Bodies",  
J. Opt. Soc. Am. 40 (1950) 376-381
- /20/ G. Kortum:  
"Reflexionsspektroskopie"  
Springer-Verlag, Berlin, 1969
- /21/ P. Browning:  
"On the Relative Importance of the Electronic and  
Radiative Contributions to the Thermal Conductivity  
of Uranium Dioxide", J. Nucl. Mater. 92 (1980) 33-38.
- /22/ M.B. Sears, T.M. Kegley, L.M. Ferris, B.C. Leslie:  
"Metallographic Preparation of Arc-Cast Thorium Carbides  
and Correlation of their Microstructures with Composition"  
Oak Ridge National Laboratory, Report ORNL-4354 (1969)
- /23/ C.E. Holley, E.K. Storms:  
"Actinide Carbides: A Review of Thermodynamic Properties"  
Los Alamos Scientific Laboratory, Report LA-DC-8881 (1967)
- /24/ J. Laugier, P.L. Blum:  
"Le diagramme metastable UC-UC<sub>2</sub>"  
J. Nucl. Mater. 39 (1971) 245-252
- /25/ R. Benz, P.L. Stone:  
"Thorium-Carbon Phase Equilibria"  
High Temp. Sci. 1 (1969) 114-127



- /26/ J.K. Fink, M.G. Chasanov, L. Leibowitz:  
"Thermophysical Properties of Thorium and Uranium Systems  
for Use in Reactor Safety Analysis"  
Argonne National Laboratory, Report ANL-CEN-RSD-77-1 (1977)
- /27/ F. Grum, M. Saltzman:  
"New White Standard of Reflectance", P-75-77 , Comptes  
Rendus 18<sup>e</sup> Session, Londres 1975, CIE Publication Paris  
No. 36, 1966, pp.91-97.
- /28/ D.K. Edwards:  
"Integrating Sphere for Imperfectly Diffuse Samples"  
J. Opt. Soc. Am. 51 (1961) 179-186
- /29/ F. Kohlrausch:  
"Praktische Physik", G. Teubner, Stuttgart, 1968
- /30/ Information Sheet on the Optical Properties of Pressed  
Halon, Radiometric Physics Division, National Bureau of  
Standards USA, 1977
- /31/ H.U. Karow, M. Bober:  
"Experimental Investigations into the Spectral Reflectivity  
and Emissivity of Liquid  $UO_2$ , UC,  $ThO_2$ , and  $Nd_2O_3$ "  
Proc. IAEA Symposium on Thermodynamics of Nuclear Materials  
- Jülich 1979
- /32/ M. Bober, H.U. Karow, K. Müller  
"Study of the spectral reflectivity and emissivity of  
liquid ceramics",  
High Temperatures - High Pressures 12 (1980) 161-168
- /33/ C.E. Johnson (Herausgeber):  
"Thermophysical and Mechanical Properties of Advanced  
Carbide and Nitride Fuels"  
Argonne National Laboratory, Report ANL-AFP-27 (1976)
- /34/ J. Henney, J.W.S. Jones:  
"Phase Equilibria in the Thorium-Carbon System"  
UKAEA Report AERE-R 4993 (1965)

/35/ K. Müller:

"Messung des spektralen Emissionsvermögens von keramischen Materialien im festen und im flüssigen Zustand mit einem Laser-Reflektometer", Report KfK 2803, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Federal Republic of Germany (1979)

/36/ A. Sheth, L. Leibowitz:

"Equation of State and Transport Properties of Uranium and Plutonium Carbides"

Los Alamos Scientific Laboratory Report ANL-AFP-11 (1975)

/37/ M. Pasta, P. Soardo, G. Ruffino:

"Calibration of two-colour pyrometers"

High Temperatures - High Pressures 7 (1978) 595-598

/38/ P.B. Coates:

"Multi-Wavelength Pyrometry"

Metrologica 17 (1981) 103-109

/39/ M. Born, E. Wolf:

"Principles of Optics", Pergamon Press, Oxford, 1975.

/40/ M. Bober, J. Singer, K. Wagner

"Determination of the Optical Constants of Liquid Urania from Reflectivity Measurements"

8th Symp. on Thermophysical Properties, National Bureau of Standards Gaithersburg, USA, 1980, 234-244.

/41/ V.P. Joukov, V.A. Gubanov:

"Electronic Structure of UC and UN and its Comparison with Photoemission Spectra"

J. inorg. nucl. Chem. 42 (1980) 727-730

/42/ S-K. Chan, D.J. Lam:

"Crystal-Field Effect and the Magnetic Properties of NaCl-Type Actinide Compounds" in "Plutonium and Other Actinides", North-Holland, Amsterdam, 1971

- /43/ L.F. Bates, P.B. Unstead:  
"The magnetic susceptibility of some carbides of uranium  
and thorium"  
Brit. J. Appl. Phys. 15 (1964) 543-549
- /44/ H. Adachi, S. Imoto:  
"Energy Band Structure of Uranium Compounds with NaCl  
Type Structure"  
J. Nucl. Sci. Techn. 6 (1969) 371-379
- /45/ C.-H. de Novion, P. Costa:  
"Propriétés Electroniques des Carbonitrides d'Uranium  
 $U(C_{1-x}N_x)$ "  
Le Journal de Physique 33 (1972) 257-271
- /46/ H.L. Davis:  
"Band Structure of Actinide Compounds" in  
"The Actinides Electronic Structure and Related  
Properties", Band 1, Academic Press, New York, 1974
- /47/ J.L. Boutard:  
"Etude par résonance magnétique nucléaire des propriétés  
electroniques des carbures et nitrures d'actinides"  
(Commissariat à l'Energie Atomique) Report CEA-R-4797  
(1976)
- /48/ W. König:  
"Handbuch der Physik", Band 20, 190-192  
Springer-Verlag, Berlin, 1928