

**EUR 4504 d**

KOMMISSION DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

UNTERSUCHUNG BESTRAHLTER  
MATERIALIEN MIT DER MIKROSONDE  
ERLÄUTERT AN  $UO_2$ - $Mo$ - UND  
 $UO_2$ -ZIRKALOY-SPALTSTOFFCERMETS

von

G. GIACCHETTI und J. RÄNSCH

1970



Gemeinsame Kernforschungsstelle  
Forschungsanstalt Karlsruhe - Deutschland

Europäisches Institut für Transurane



## HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist im Rahmen des Forschungsprogramms der Kommission der Europäischen Gemeinschaften ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, daß die Kommission der Europäischen Gemeinschaften, ihre Vertragspartner und die in deren Namen handelnden Personen :

keine Gewähr dafür übernehmen, daß die in diesem Dokument enthaltenen Informationen richtig und vollständig sind, oder daß die Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen, oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden und Verfahren nicht gegen gewerbliche Schutzrechte verstößt;

keine Haftung für die Schäden übernehmen, die infolge der Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen, oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden oder Verfahren entstehen könnten.

Dieser Bericht wird in den auf der vierten Umschlagseite genannten Vertriebsstellen

zum Preise von DM 5,10	FF 7,75	FB 70,—	Lit. 870	Fl. 5,10
------------------------	---------	---------	----------	----------

verkauft.

Es wird gebeten, bei Bestellungen die EUR-Nummer und den Titel anzugeben, die auf dem Umschlag jedes Berichts aufgeführt sind.

Gedruckt von Guyot, s.a., Brüssel  
Luxemburg, Juni 1970

Das vorliegende Dokument wurde an Hand des besten Abdruckes vervielfältigt, der zur Verfügung stand.



## EUR 4504 d

UNTERSUCHUNG BESTRAHLTER MATERIALIEN MIT DER MIKRO-  
Sonde ERLÄUTERT AN  $UO_2$ -Mo- UND  $UO_2$ -ZIRKALOY-SPALT-  
STOFFCERMETS von G. GIACCHETTI und J. RÄNSCH

Kommission der Europäischen Gemeinschaften  
Gemeinsame Kernforschungsstelle - Forschungsanstalt Karlsruhe (Deutschland)  
Europäisches Institut für Transurane  
Luxemburg, Juni 1970 - 56 Seiten - 31 Abbildungen - FB 70,—

Die Kenntnis des chemisch-physikalischen Verhaltens der Brennelemente und der Reaktorkomponenten im Core ist von entscheidender Wichtigkeit hinsichtlich der Funktion und Lebensdauer eines Reaktors.

Zur Analyse stehen zwar grundsätzlich alle bisher auch für unbestrahlte Proben angewandten Methoden zur Verfügung, wie z.B. physikalische Kontrollen, Gasanalyse, Röntgenspektrometrie,  $\alpha$  und  $\beta$  Autoradiographie-technik und metallographische Untersuchungen, aber um Aufschluss über die Spaltproduktverteilung in den Brennelementen, Diffusionsvorgänge oder Korrosionserscheinungen an Hüllmaterialien usw. zu erhalten, sollte die Mikro-

## EUR 4504 d

INSPECTION OF IRRADIATED MATERIALS BY MEANS OF A MICRO-  
PROBE AS ILLUSTRATED BY  $UO_2$ -Mo AND  $UO_2$ -ZIRCALOY NUCLEAR  
FUEL CERMETS by G. GIACCHETTI and J. RÄNSCH

Commission of the European Communities  
Joint Nuclear Research Center - Karlsruhe Establishment (Germany)  
European Institute for Transuranium Elements  
Luxembourg, June 1970 - 56 Pages - 31 Figures - FB 70,—

Knowledge of the chemico-physical behaviour of the fuel elements and reactor components in the core is of crucial importance with regard to the functioning and useful life of a reactor.

Although in principle all methods which have hitherto been used, even for non-irradiated samples, such as physical inspection, gas analysis, X-ray spectrometry, alpha and beta autoradiography and metallographic inspection, may be applied, microanalysis by the electron beam microprobe appears to be particularly suitable as a means of obtaining information on the distribution

## EUR 4504 d

INSPECTION OF IRRADIATED MATERIALS BY MEANS OF A MICRO-  
PROBE AS ILLUSTRATED BY  $UO_2$ -Mo AND  $UO_2$ -ZIRCALOY NUCLEAR  
FUEL CERMETS by G. GIACCHETTI and J. RÄNSCH

Commission of the European Communities  
Joint Nuclear Research Center - Karlsruhe Establishment (Germany)  
European Institute for Transuranium Elements  
Luxembourg, June 1970 - 56 Pages - 31 Figures - FB 70,—

Knowledge of the chemico-physical behaviour of the fuel elements and reactor components in the core is of crucial importance with regard to the functioning and useful life of a reactor.

Although in principle all methods which have hitherto been used, even for non-irradiated samples, such as physical inspection, gas analysis, X-ray spectrometry, alpha and beta autoradiography and metallographic inspection, may be applied, microanalysis by the electron beam microprobe appears to be particularly suitable as a means of obtaining information on the distribution

## EUR 4504 d

INSPECTION OF IRRADIATED MATERIALS BY MEANS OF A MICRO-  
PROBE AS ILLUSTRATED BY  $UO_2$ -Mo AND  $UO_2$ -ZIRCALOY NUCLEAR  
FUEL CERMETS by G. GIACCHETTI and J. RÄNSCH

Commission of the European Communities  
Joint Nuclear Research Center - Karlsruhe Establishment (Germany)  
European Institute for Transuranium Elements  
Luxembourg, June 1970 - 56 Pages - 31 Figures - FB 70,—

Knowledge of the chemico-physical behaviour of the fuel elements and reactor components in the core is of crucial importance with regard to the functioning and useful life of a reactor.

Although in principle all methods which have hitherto been used, even for non-irradiated samples, such as physical inspection, gas analysis, X-ray spectrometry, alpha and beta autoradiography and metallographic inspection, may be applied, microanalysis by the electron beam microprobe appears to be particularly suitable as a means of obtaining information on the distribution

analyse mit der Elektronenstrahlmikrosonde besonders geeignet sein. (Mikrosondenprinzip siehe Anhang I.)

of fission products in the fuel elements, diffusion processes or corrosion phenomena in cladding materials, etc. (for microprobe principle, see Appendix I).

of fission products in the fuel elements, diffusion processes or corrosion phenomena in cladding materials, etc. (for microprobe principle, see Appendix I).

of fission products in the fuel elements, diffusion processes or corrosion phenomena in cladding materials, etc. (for microprobe principle, see Appendix I).

**EUR 4504 d**

KOMMISSION DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

UNTERSUCHUNG BESTRAHLTER  
MATERIALIEN MIT DER MIKROSONDE  
ERLÄUTERT AN  $UO_2$ - $Mo$ - UND  
 $UO_2$ -ZIRKALOY-SPALTSTOFFCERMETS

von

G. GIACCHETTI und J. RÄNSCH

1970



Gemeinsame Kernforschungsstelle  
Forschungsanstalt Karlsruhe - Deutschland

Europäisches Institut für Transurane

## ZUSAMMENFASSUNG

Die Kenntnis des chemisch-physikalischen Verhaltens der Brennelemente und der Reaktorkomponenten im Core ist von entscheidender Wichtigkeit hinsichtlich der Funktion und Lebensdauer eines Reaktors.

Zur Analyse stehen zwar grundsätzlich alle bisher auch für unbestrahlte Proben angewandten Methoden zur Verfügung, wie z.B. physikalische Kontrollen, Gasanalyse, Röntgenspektrometrietechnik,  $\alpha$  und  $\beta$  Autoradiographietechnik und metallographische Untersuchungen, aber um Aufschluss über die Spaltproduktverteilung in den Brennelementen, Diffusionsvorgänge oder Korrosionserscheinungen an Hüllmaterialien usw. zu erhalten, sollte die Mikroanalyse mit der Elektronenstrahlmikrosonde besonders geeignet sein. (Mikrosondenprinzip siehe Anhang I.)

## SCHLAGWORTE

RPT	METALLOGRAPHY
CONTROL	FISSION PRODUCTS
CHEMICAL ANALYSIS	FUEL ELEMENTS
RADIATION DOSES	SOUND
RADIOAUTOGRAPHY	

Dieser Bericht ist als Mitteilung am 8. Juli 1968 unter der Nummer 2007 erschienen.

## INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
1. Einleitung	1
1.1. Literaturübersicht	1
1.2. Folgerungen aus der Literaturübersicht	10
2. Eigene Arbeiten	13
2.1. Vorversuche mit $\gamma$ -aktiven Proben	13
2.3. Umbau der Mikrosonde	19
2.3.1. Verminderung der $\beta$ - und $\gamma$ -Störeffekte	19
2.3.2. Maßnahmen zum Schutz des Personals	25
3. Mikroanalyse bestrahlter Proben	30
3.1. Verträglichkeitsuntersuchung an einem bestrahlten Emitter	30
3.2. Untersuchung von Diffusion und Korrosion an einem Leistungsbrennstab	36
3.2.1. Analyse der Probe AEG III <sup>a</sup> 2.2.	38
3.2.2. Analyse der Probe AEG I <sup>a</sup> 3.3.	40
4. Schlußfolgerungen	45
Tabelle 1	47
Tabelle 2	48
Literatur	52
Anhang I : Funktionsprinzip der Mikrosonde	54

## VERZEICHNIS DER ABBILDUNGEN

	Seite
Abb. 1 - Qualitative und quantitative Analyse und Untergrund-Schätzung	5
Abb. 2 - Radialer Urankonzentrationsverlauf im Brennstoffstab	7
Abb. 3 - a) Ti-Eichkurve für die Nb-3 % Ti-Legierung b) Spektrometerscanning der Nb-3 % Ti-Legierung	8 8
Abb. 4 - Teilschnitt durch die CAMECA-Mikrosonde	13
Abb. 5 - Blockschaltbild der Impuls-Meßanordnung	13
Abb. 6 - Spektrometerscanning: Störimpulse der <sup>60</sup> Co-Quelle in den CAMECA-Zählrohren, (L = Abstand Probe - Kristall) a) linkes Spektrometer      b) rechtes Spektrometer	14
Abb. 7 - $\gamma$ -Spektrum der KVE 16 - Probe	15
Abb. 8 - a,b) Spektrometerscanning: Störimpulse von der KVE-16-Probe (100 mR/h $\gamma$ in 30 cm) in den Zählrohren	16, 17
Abb. 9 - Einfluß der Spektrometerstellung auf das von den Zählrohren gelieferte Energie-Spektrum des Untergrundes	18
Abb. 10 - Von den Zählrohren geliefertes Spektrum	18
Abb. 11 - Schematische Darstellung des abgeschirmten Spektrometers rechts	19
Abb. 12 - CAMECA-Spektrometer rechts a) ohne Abschirmung      b) mit Abschirmung	20
Abb. 13 - a,b) Mittelteil der Spektrometerabschirmung mit eingesetzten Kollimatoren	20
Abb. 14 - $U_{M\beta}$ -Linie einer unbestrahlten $UO_2$ -Probe a) ohne Kollimator      b) mit Kollimator	21
Abb. 15 - a,b,c,d) Spektrometerscanning: Einfluß der Abschirmung und der Impulshöhendiskriminierung auf die Störimpulsrate	23, 24



	Seite
Abb. 16 - Zentralteil der Mikrosonde mit und ohne Abschirmung	25
Abb. 17 - Probenkammer mit und ohne Abschirmung	26
Abb. 18 - Bleiburg	26
a) geschlossen	27
b) teilweise geöffnet	27
Abb. 19 - Fahrbarer Bleibehälter	28
Abb. 20 - Teilansicht des Emitterquerschnitts (x 10)	31
Abb. 21 - UO <sub>2</sub> -Partikel, dessen Umhüllung mit der Wand zusammen- gewachsen ist (x 500)	31
Abb. 22 - $\gamma$ -Spektrum der Emitter-Probe	32
Abb. 23 - a) Mo-Röntgenbild 100 $\mu$ x 100 $\mu$ (90 min. bel.)	35
b) Probenstrom-Rasterbild 100 $\mu$ x 100 $\mu$	
Abb. 24 - a) Mo-Röntgenbild 200 $\mu$ x 200 $\mu$ (10 min. bel.)	35
b) U-Röntgenbild 200 $\mu$ x 200 $\mu$ (10 min. bel.)	
c) Probenstrom-Rasterbild 200 $\mu$ x 200 $\mu$	
Abb. 25 - $\gamma$ -Spektrum der AEG-Probe	37
Abb. 26 - a) Pu-Röntgenbild 150 $\mu$ x 150 $\mu$ (60 min. bel.)	39
b) U-Röntgenbild 150 $\mu$ x 150 $\mu$ (10 min. bel.)	
Abb. 27 - a) Ur-Röntgenbild 150 $\mu$ x 150 $\mu$ (10 min. bel.)	39
b) U-Röntgenbild 150 $\mu$ x 150 $\mu$ (10 min. bel.)	
c) Probenstrom-Rasterbild 150 $\mu$ x 150 $\mu$	
Abb. 28 - Optische Aufnahme der Zr-2 Korrosionsschicht (x 320)	41
Abb. 29 - Zr-Linearsscanning über die Zr-2 Korrosionsschicht (Kühlmittelseite)	41
Abb. 30 - a) Zr-Röntgenbild der Korrosionsschicht 150 $\mu$ x 150 $\mu$	42
b) Probenstrom-Rasterbild 150 $\mu$ x 150 $\mu$	
Abb. 31 - Zr-Linearsscanning über den Brennstoffrand	43



## 1. EINLEITUNG

Die Kenntnis des chemisch-physikalischen Verhaltens der Brennelemente und der Reaktorkomponenten im Core ist von entscheidender Wichtigkeit hinsichtlich der Funktion und Lebensdauer eines Reaktors.

Zur Analyse stehen zwar grundsätzlich alle bisher auch für unbestrahlte Proben angewandten Methoden zur Verfügung, wie z.B. physikalische Kontrollen, Gasanalyse, Röntgenspektrometrietechnik,  $\alpha$  und  $\beta$  Autoradiographietechnik und metallographische Untersuchungen, aber um Aufschluss über die Spaltproduktverteilung in den Brennelementen, Diffusionsvorgänge oder Korrosionserscheinungen an Hüllmaterialien usw. zu erhalten, sollte die Mikroanalyse mit der Elektronenstrahlmikrosonde besonders geeignet sein. (Mikrosondenprinzip siehe Anhang I).

### 1.1. Literaturübersicht

Das Interesse an der Mikroanalyse bestrahlter Proben wird durch zahlreiche Arbeiten verdeutlicht. Folgende Mikrosonden wurden dabei verwendet :

1) CAMECA-Mikrosonde, Typ MS 85 (alte Ausführung)

In Ispra (I) : Ref. 1, Ref. 2

In Harwell (UK) : Ref. 3

2) AEI-Mikrosonde, Typ SEM 2

In Berkeley (UK) : Ref. 4, Ref. 5

In Dounreay (UK) : Ref. 6

3) ARL-Mikrosonde, Typ EMX

In Pittsburgh (USA) : Ref. 7

4) NORELCO-Mikrosonde, Typ AMR/3

In Middletown (USA) : Ref. 8

5) MAC-Mikrosonde, Typ 400

In (USA) : Ref. 9



Außerdem ist durch private Mitteilungen bekannt, daß in folgenden Laboratorien Mikrosonden zur Analyse aktiver Proben in Vorbereitung sind :

General Electric	in Vallecitos	(USA)
Nat. Lab.	in Argonne	(USA)
	in Los Alamos	(USA)
	in Oak Ridge	(USA)
CEA	in Saclay	(F)

Die verschiedenen Mikrosonden wurden von den Autoren im einzelnen auf folgende Weise für die Arbeit mit aktiven Proben modifiziert, und folgende Ergebnisse wurden erzielt :

CAMECA-Mikrosonde, Typ MS 85 (vollfokussierende Spektrometer) :

Theisen und Lecoq [1] :

i) Die normale Ausführung der Säule der Mikrosonde aus Messing (Dicke 3 cm  $\hat{=}$  1 cm Blei) wurde für den biologischen Schutz als ausreichend betrachtet. Dagegen wurde das Spektrometer gegen die Probenkammer mit 2 cm Blei abgeschirmt.

ii) Probe : metall. U nat. Pellet  
Bestr. Dauer : 24 Stunden  
Therm. Neutronenfluß :  $10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>sec

[ Da Probengröße und Abklingzeit nicht angegeben wurden, können wir annehmen, daß die Probe folgende Abmessungen hatte :  $\varnothing = 4$  mm, Höhe = 4 mm, und bei einer Abklingzeit  $\geq 6$  Monate (geschätzt). Nach ORNL-2127 beträgt die  $\gamma$ -Aktivität ( $E > 0,25$  MeV) weniger als 3 mCi ].

Ergebnis : Bei der Verwendung von Proportionalzählrohren in Verbindung mit  
Quarz 1340 ( $\theta_B = 22^{\circ}45'$ ) und  
Quarz 1011 ( $\theta_B = 7^{\circ}49'$ )  
Kristallen wurde ein Verhältnis

$$\frac{\text{UL}\alpha_1 \text{ (Linie)}}{\text{Untergrund (ohne Strahl)}} \cong 30$$

erreicht.

Quataert und Schleicher [2] :

i) An der Sonde von Theisen und Lecoq wurde die Abschirmung zwischen Spektrometer und Probenkammer auf 3 cm Blei verstärkt.

ii) Probe :  $\text{UC}_2$  bestrahlt  
Dosisleistung : 1 R/h in 5 cm Abstand

Es ist nicht spezifiziert, ob es sich um eine  $\gamma$  oder  $\beta + \gamma$  Dosis handelt; es ist keine Abklingzeit angegeben; die  $\gamma$ -Aktivität war aber bestimmt kleiner als 2 mCi.

Ergebnis : Bei der Verwendung von Proportionalzählrohren und  
Mica ( $\theta_B = 10^\circ 40'$ ) bzw.  
Gips ( $\theta_B = 14^\circ 10'$ )  
Kristallen wurden für die beiden Kristalle folgende "peak to background"-Verhältnisse festgestellt :

$$\frac{\text{UMB (Linie)}}{\text{Untergrund (mit Strahl)}} = \begin{cases} 19 \text{ (Mica)} \\ 47 \text{ (Gips)} \end{cases}$$

Ferner wurden geringe Uran-Gehalte in Graphit nachgewiesen.

Bradbury et al. [3] :

i) Bei der Analyse war die Mikrosonde nicht abgeschirmt.

ii) Probe :  $\text{UO}_2$  bestrahlt

Das Verhältnis  $\beta$ -Dosis/ $\gamma$ -Dosis weist auf eine lange Abklingzeit hin. Die Aktivität dürfte 1 mCi kaum erreicht haben. Als Detektor wurde ein Szintillator wahrscheinlich in Verbindung mit Quarz- und Mica-Kristallen benutzt.

Ergebnis : Es wurden als Hauptbestandteile der weißen Phase im Brennstoff identifiziert: Mo, Ru, Ce, Ba.

AEI-Mikrosonde, Typ SEM 2 (vollfokussierend) :

Williamson [4] und Jeffery [5] :

- i) Die Sonde war mit einem NaI-Detektor ausgerüstet. Dieser hatte eine Schwermetallabschirmung gegen die direkte Strahlung der Probe. Der Detektor wurde später [5] gegen ein Proportionalzählrohr wegen des besseren Auflösungsvermögens ausgetauscht.
- ii) In dem Bericht [4] wird eine Relation zwischen der  $\gamma$ -Aktivität der Probe und der Nachweisgrenze einer Mikrosonde im allgemeinen angegeben. Da diese Angabe jedoch stark vom konstruktiven Aufbau der Mikrosonde abhängt, dürfte sie nur für den verwendeten Mikrosondentyp zutreffen. Leider fehlen alle Angaben über die untersuchte Probe.

Nach dem Bericht [5] wurden folgende Untersuchungen durchgeführt :

Probe :  $UO_2$  angereichert  
Abbrand : 4,6 At.% ( $T < 1500^\circ C$ )  
Dosisleistung : 1 mR/h  $\gamma$  in 30 cm Abstand

Zur Analyse wurden LiF- und Mica-Kristalle in Verbindung mit Durchflußproportionalzählrohren verwendet. Das Linie/Untergrund-Verhältnis wird nicht angegeben.



Ergebnis : Die Einschlüsse in der Probe wurden analysiert. Die  $UO_2$ -Matrix wurde ebenfalls geprüft. Die angegebene Nachweisgrenze soll bei 0,5 Gew.%  $\pm$  0,05 liegen; dieses Ergebnis wurde anhand einer Punktanalyse von Zr in der  $UO_2$ -Matrix gefunden (Abb. 1). Allerdings werden keine Angaben über die Errechnung des statistischen Fehlers gemacht.

Typical semi-quantitative analyses of inclusions

Type of inclusion	Major constituents (wt%)								Minor constituents (each < 5 wt%)
	Rh	Ru	Tc	Mo	Zr	Co	Ba	U	
1	5	18	13	41	nd	nd	nd	12-20	To, Pd, Nd
2	-	9	6	21	10	6	20	10-30	Sr, Nd, Rh
3	nd	nd	nd	-	10	5	25	25-50	Sr, Nd, Mo

nd=not detected.

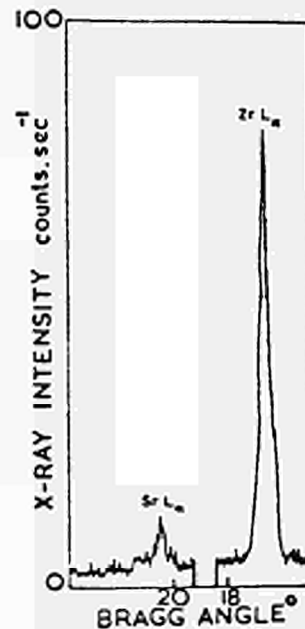
The absence of standards for technetium, strontium and barium has required an estimate of the count rates from each pure element. These values, necessary for determining concentrations, have been interpolated from elements of adjacent atomic number.

Analysis of  $UO_2$  matrix

Element	Calculated (wt%)	Measured (wt%)
Zr	0.48	0.5 $\pm$ 0.05
Nd	0.51	0.7 $\pm$ 0.3
Co	0.30	0.6 $\pm$ 0.4
La	0.15	0.5 $\pm$ 0.4
Pr	0.14	0.4 $\pm$ 0.3
Y	0.075	Not detected
Sm	0.11	Not detected

The calculated concentration (wt%) assumes the total yield of each fission product is homogeneously distributed throughout the matrix.

The measured concentration (wt%) is derived from the observed intensity ratio; no corrections have been made for absorption, atomic number effect or fluorescence.



Spectrometer scan of a type (2) inclusion showing the presence of zirconium and strontium.

Abb. 1 - (aus Ref. 5) : Qualitative und quantitative Analyse und Untergrund-Schätzung

Bramman et al. [6] :

- i) Das Zählrohr wurde durch eine Wolframplatte gegen die direkte  $\gamma$ -Strahlung der Probe abgeschirmt und damit für  $\theta = 15^\circ$  eine 2,5-fache Untergrundabschwächung erreicht.

Im übrigen wurde die Sonde ohne weitere zusätzliche Abschirmung betrieben.

ii) Probe :  $(U_{0,85}-Pu_{0,15})O_2$

Abbrand : 8 - 8,5 At% ( $T \geq 2000^\circ C$ )

Dosisleistung : 0,3 R/h  $\gamma$

15 R/h  $\beta + \gamma$

in 30 cm Abstand

Ergebnis : Die Konzentration und die Zusammensetzung der Spaltprodukte in den Einschlüssen und in der Matrix wurden gemessen. Die Nachweisgrenze wird mit 0,6 Gew.% für Mo angegeben.

ARL-Mikrosonde, Typ EMX (vollfokussierend) :

Padden und al. [7] :

i) Der Versuch wurde ohne Abschirmung der Mikrosonde durchgeführt.

ii) Probe :  $\text{ThO}_2$  - 5,3 Gew.%  $\text{UO}_2$  (93 %  $^{235}\text{U}/\text{U}$ )  
Abbrand :  $1,6 \times 10^{20}$  Spaltungen/cc  
Bestr. Dauer : 8 Monate  
Dosisleistung: 6 mR/h  $\gamma$   
80 mR/h  $\beta + \gamma$   
in 30 cm Abstand

Ergebnis : Es wurde der radiale Urankonzentrationsverlauf eines Brennstoffstabs bestimmt (Abb. 2).

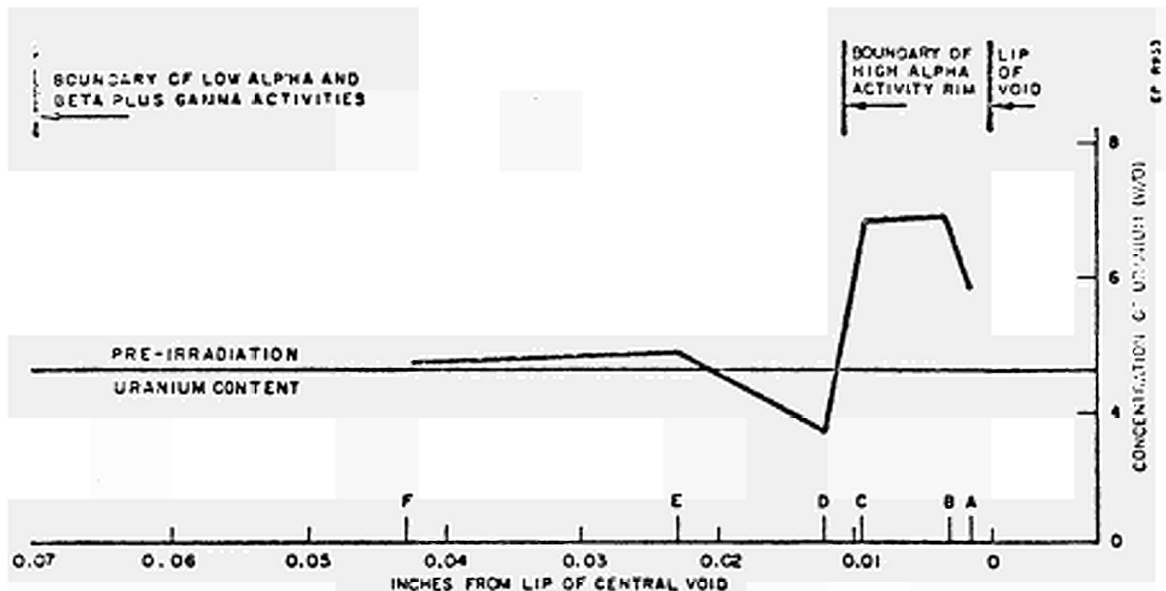


Abb. 2 - (aus Ref.7): Radialer Urankonzentrationsverlauf im Brennstoffstab. (Jeder Punkt wurde über drei Messungen gemittelt).



NORELCO-Mikrosonde, Typ AMR/3 (halbfokussierend) :

Scotti et al. [8] :

i) Der Abstand zwischen Spektrometer und Probe wurde vergrößert und eine Abschirmung von 7,5 cm Blei dazwischen gesetzt, sowie auch Sonde und Probenkammer mit einer Bleiabschirmung versehen.

ii) Probe : Bestrahlter Brennstoff mit Bohrungen, in die Drähte einer Nb-Ti 3 Gew.% Legierung eingebracht waren.

Dosisleistung : 12 R/h  $\gamma$  in 30 cm Abstand

250 R/h  $\beta + \gamma$  in 2,5 cm Abstand

Ergebnis: Es wurde eine Eichkurve  $I/I_0$  (Gew.%) (Abb. 3a) und ein  $I(\lambda)$  Profil angegeben (Abb. 3b)

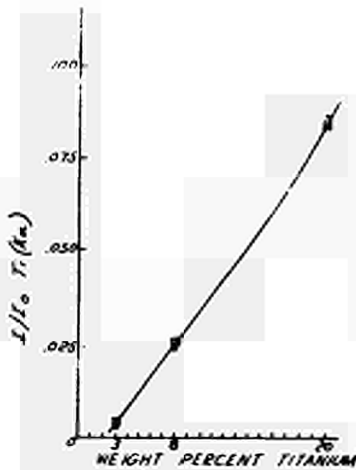


Abb. 3a - Ti-Eichkurve für die Nb-3% Ti-Legierung

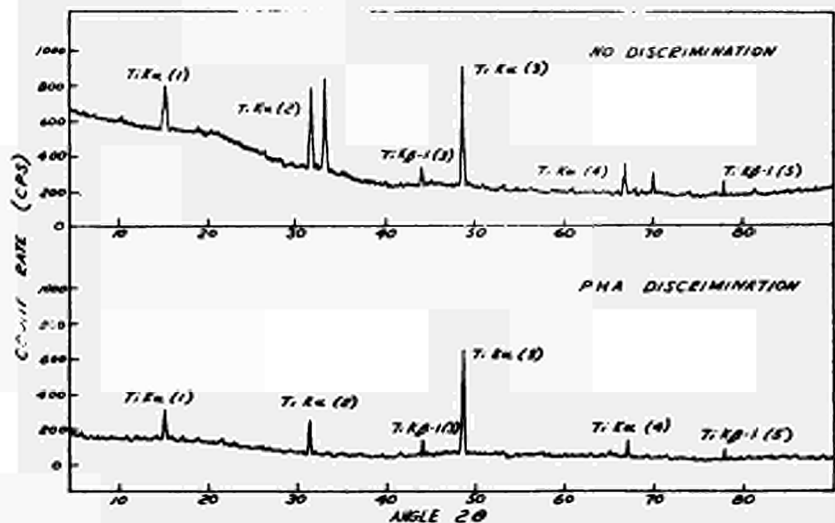


Abb. 3b - (aus Ref. 8): Spektrometerscanning der Nb - 3 % Ti-Legierung

In der Eichkurve (3a) wird die Ti-Konzentration dem Verhältnis  $I/I_0$  gegenübergestellt. ( $I$  = Röntgenintensität in der Legierung,  $I_0$  = Röntgenintensität auf reinem Ti).

Der Spektrometerscanning (Abb. 3b) ist ohne und mit Diskriminierung aufgenommen worden. Dabei fällt zunächst auf, daß die Impulsrate der  $Ti\ K\alpha_1(I)$ -Linie niedriger ist als die der  $Ti\ K\alpha_1(III)$ -Linie. Außerdem erscheint uns die Intensität von 600 cps für die  $Ti\ K\alpha_1(III)$ -Linie auf der angegebenen Nb-3% Ti-Legierung zu hoch.

Das geht aus folgender Tabelle hervor, in der das Meßergebnis mit Messungen, die an der CAMECA-Mikrosonde durchgeführt wurden, verglichen wird.

	NORELCO-Sonde	CAMECA-Sonde
X-Ray Abnahmewinkel	: 15°	18°
X-Ray Öffnungswinkel	: 3°	4°
Kristall	: Mica	Mica
Linie	: $Ti\ K\alpha_1(III)$	$Ti\ K\alpha_1(III)$
Anregungsspannung	: 30 kV	20 kV
Strahlstrom	: 300 nA (200 nA auf Nb)	100 nA
Impulsrate für $Ti\ K\alpha_1(III)$ auf 100 % Ti	: $1,6 \cdot 10^5$ cps*	$3 \cdot 10^3$ cps

Dieser Wert ( $1,6 \cdot 10^5$  cps für 100 % Ti) scheint um den Faktor 10 zu groß zu sein.

---

\* Geht aus der Kurve 3a hervor ( $\frac{I}{I_0} = 0,0037$  bei 600 cps für 3 % Ti)

## 1.2. Folgerungen aus der Literaturübersicht

Die hier erwähnten Arbeiten beziehen sich auf zwei Arten handelsüblicher Mikrosonden :

- 1) Mikrosonden mit halbfokussierenden Spektrometern :  
NORELCO-AMR/3
- 2) Mikrosonden mit vollfokussierenden Spektrometern :  
ARL-EMX, AEI-SEM 2, CAMECA-MS 85, MAC-400.

Die Sonden wurden im wesentlichen auf folgende Weise für die Untersuchungen  $\gamma$ -aktiver Proben verändert :

- 1a) Einbau einer starken Abschirmung zwischen Probenkammer und Spektrometer bei halbfokussierenden Mikrosonden. Da bei diesen Spektrometern das Abstandsverhältnis Probe-Kristall zu Kristall-Detektor nicht kritisch ist, können die Spektrometer von der Säule der Mikrosonde geometrisch getrennt werden. In den Zwischenraum kann nun eine entsprechend dicke Abschirmung eingebracht werden, die die Störeffekte der  $\gamma$ -Strahlung im Detektor vermindert.
- 1b) Bei den vollfokussierenden Sonden kann die Anordnung der Röntgenoptik nicht verändert werden. Der Einbau einer Bleiabschirmung zwischen Probenkammer und Spektrometer hängt deshalb direkt von der Konstruktion des Gerätes ab und ist nur begrenzt möglich.
- 2) Teilweise Abschirmung des Detektors von der direkten Strahlung der Probe durch eine kleine Schwermetallplatte.
- 3) Verkleinern der Probe und damit Reduzierung der Aktivität so weit, bis die interessierenden Elemente noch unter einer Konzentration von einem Gewichtsprozent nachgewiesen werden können.



Um die Leistungsfähigkeit der hier aufgeführten modifizierten Sonden vergleichen zu können, sollte man eigentlich folgende Angaben besitzen :

- a) Angabe über die Radioaktivität der Probe und die Art ihrer Messung :
  - Strahlungsart und Energiespektrum
  - Strahlungsintensität
  - Abstand Probe - Messkopf
  - Messgerätetyp
  
- b) Angabe über die Mikroanalyse :
  - Strahlstromintensität und Anregungsspannung
  - Untergrundeffekt mit und ohne Strahlstrom
  - "Peak to background"-Verhältnis
  - Angabe der Rechenmethode zur Bestimmung der Nachweisgrenze.

Da die meisten dieser Angaben fehlen, läßt sich nur folgendes, grob qualitatives Bild gewinnen :

1. Man kann mit Proben relativ geringer  $\gamma$ -Dosisleistung ohne großen Aufwand noch Analysen machen. Die Literaturangaben reichen jedoch nicht aus, um exakte Schlüsse über die Nachweisgrenze für einzelne Elemente zu ziehen.
  
2. Das Einbringen einer Abschirmung zwischen Probe und Spektrometer erscheint als wirkungsvollste Maßnahme, um den Störpegel im Detektor zu senken.  
Der Gewinn ist auch bei vollfokussierenden Spektrometern sehr beträchtlich.
  
3. Die Abschirmung des Detektors selbst kann ebenfalls vorteilhaft sein. Sie ist aus Gewichtsgründen aber nur begrenzt möglich.

Über eine mögliche Kontamination der verwendeten Geräte wurde in den Berichten nicht gesprochen.

Da beim Umbaubeginn unserer Mikrosonde nur wenige Angaben über die auftretenden Probleme und deren Lösung existierten, wurde der Umbau auf Grund eigener Vorversuche unternommen.

## 2. EIGENE ARBEITEN

### 2.1. Einführung

Ziel unserer Arbeit war es, eine bereits vorhandene handelsübliche Anlage Typ MS 46 der Fa. CAMECA für die Untersuchungen von  $\gamma$ -aktiven Proben umzurüsten, ohne das Grundgerät an sich zu verändern.

Zur Veranschaulichung ist nachstehend die standardmäßige Meßanordnung der CAMECA-Mikrosonde dargestellt (Abb. 4 und 5).

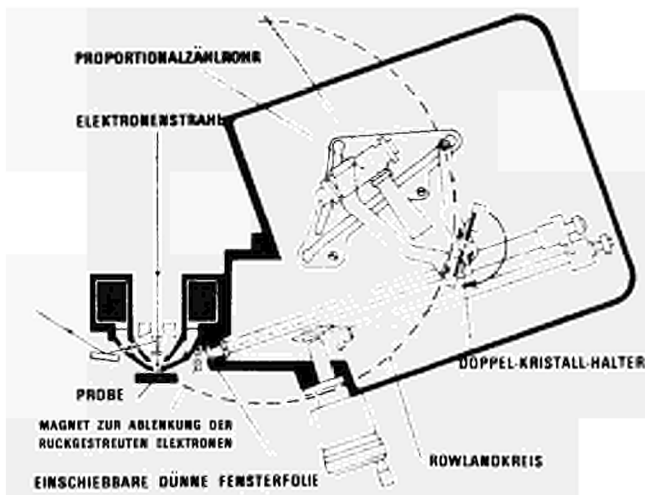
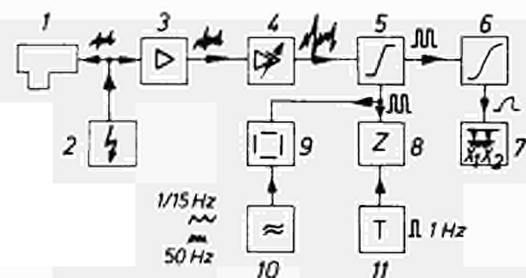


Abb. 4 - Teilschnitt durch die CAMECA-Mikrosonde



- |                        |                               |
|------------------------|-------------------------------|
| 1 Zählrohr             | 7 $x_1, x_2$ -Linienschreiber |
| 2 Hochspannungseinheit | 8 Zähler                      |
| 3 Vorverstärker        | 9 Oszillograph                |
| 4 Hauptverstärker      | 10 Zeitbasis                  |
| 5 Diskriminator        | 11 Zeitbasis                  |
| 6 Integrator           |                               |

Abb. 5 - Blockschaltbild der Impuls-Meßanordnung

Das von den Zählrohren gelieferte Impulsspektrum wird zunächst linear verstärkt. Mit Hilfe des nachgeschalteten Einkanaldiskriminators werden aus diesem Spektrum die jeweils interessierenden Impulse bestimmter Energie herausgesiebt und anschließend mittels eines Integrators bzw. Zählers analog bzw. digital registriert.

### 2.2. Vorversuche mit $\gamma$ -aktiven Proben

Die ersten Versuche wurden an der nicht abgeschirmten Mikrosonde durchgeführt, um Art und Intensität des Störuntergrundes zu bestimmen.

1) Probe :  $^{60}\text{Co}$ -Eichstandard

$\gamma$ -Linien bei 1,17 bzw. 1,33 MeV

Aktivität am Tage der Untersuchung : 1,27 mCi.

Die vier Spektrometer der Mikrosonde waren mit konventionellen Kristallen (Quarz 1120, 1011, 1010 und Mica) und serienmäßigen Proportionalzählrohren bestückt. Die von den Zählrohren gelieferten Impulse wurden wie üblich verarbeitet. Zu diesem Zweck wurden in der Mitte des Energiebereiches eines jeden der vier Spektrometer die Impulshöhen (Energie)-Diskriminierung auf den jeweils dazugehörigen Wert eingestellt. Die daran anschließend aufgenommenen Untergrundintensitäten, abhängig von der Spektrometereinstellung, sind in Abb. 6 dargestellt. Die bei diesem Versuch gemessene Dosisleistung am Operatorplatz betrug 30 mR/h.

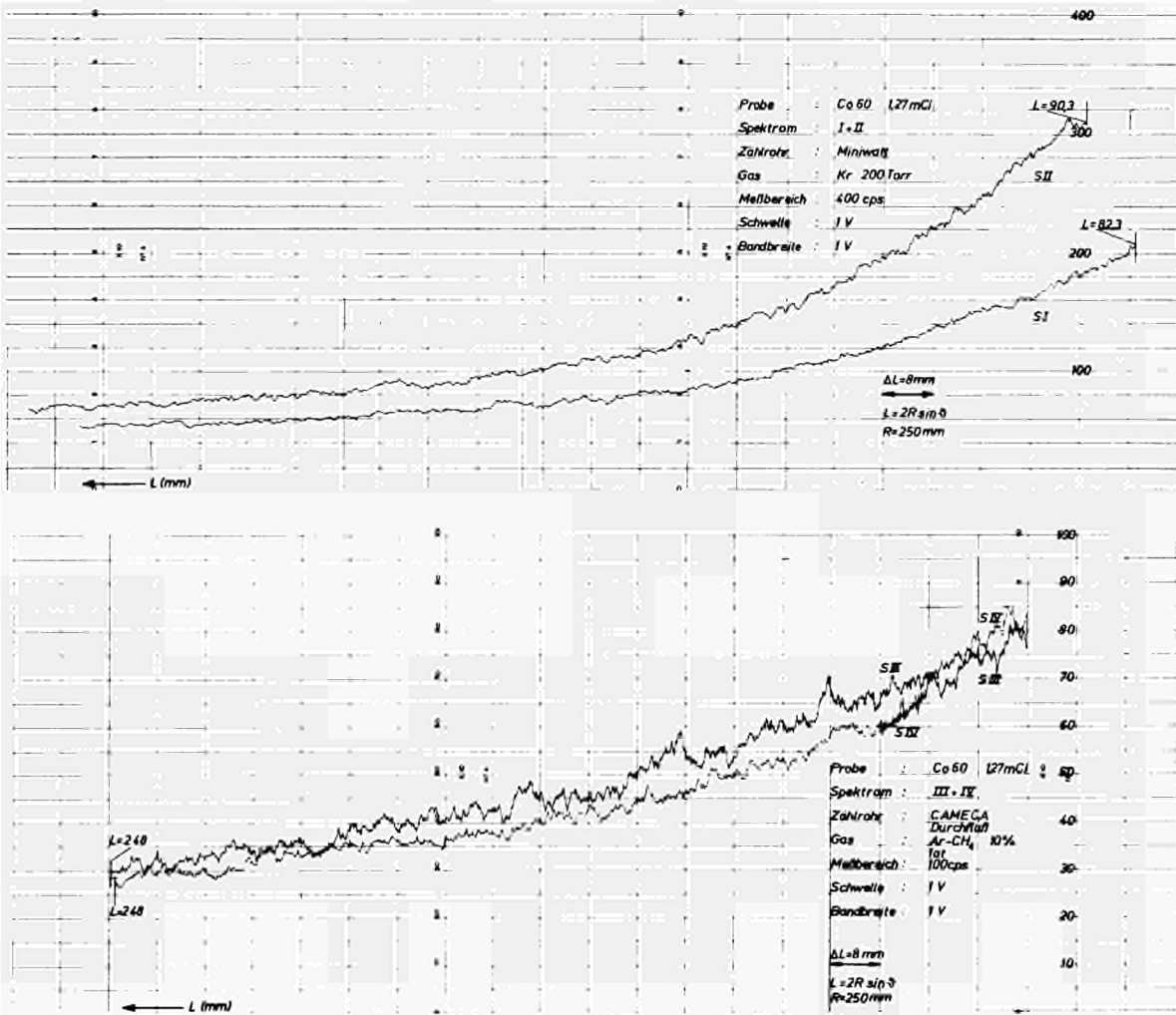


Abb. 6 - Spektrometerscanning :  
Störimpulse der  $^{60}\text{Co}$ -Quelle in  
den CAMECA-Zählrohren  
(L = Abstand Probe - Kristall)

a) linkes Spektrometer  
b) rechtes Spektrometer



2) Probe : KVE-16 (Programm der RB/HZ)

UO<sub>2</sub> - CeO<sub>2</sub> (9,7 Gew.% CeO<sub>2</sub>)

UO<sub>2</sub> 3,4% angereichert

Abbrand : 2750 Mwd/t U bzw. 77800 Mwd/t <sup>235</sup>U

Abklingzeit : 6 Monate

Dosisleistung : 100 mR/h  $\gamma$  in 30 cm Abstand

Abb. 7 zeigt das mit einem NaI-Szintillator aufgenommene  $\gamma$ -Spektrum dieses Prüflings.

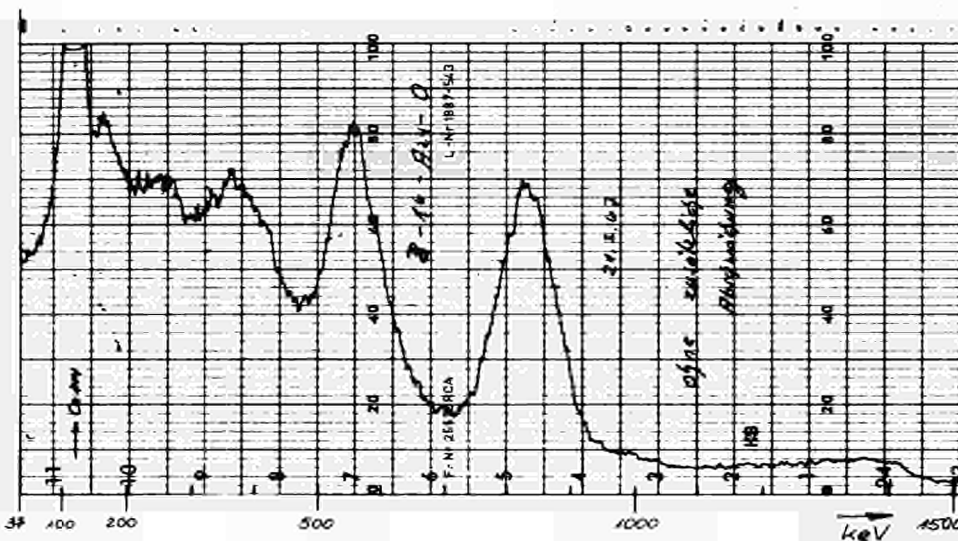


Abb. 7  $\gamma$ -Spektrum der KVE 16-Probe (aufgenommen mit einem NaI-Kristall)

Bei diesem Versuch stellten wir bei allen vier Zählrohren ein Impulsratenmaximum fest, das unabhängig von der Spektrometereinstellung war. Die Energie, d.h. die Lage dieses Maximums wurde mit Hilfe der als Einkanaldiskriminatoren betriebenen Meßketten bestimmt.

Die in Abb. 8a bzw. 8b dargestellten Untergrundprofile wurden in gleicher Weise hergestellt wie in Abb. 6. Die Profile in Abb. 8a zeigen den Verlauf bei der Diskriminierung im Maximum, in Abb. 8b den Verlauf im Minimum.

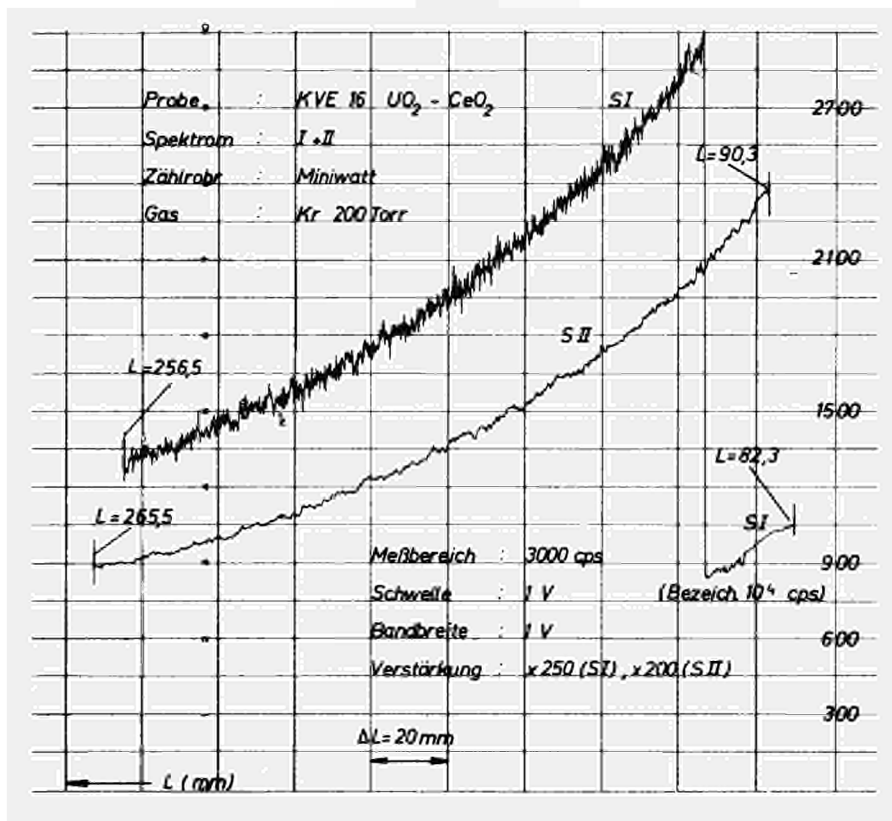


Abb. 8a (1) - Spektrometer links

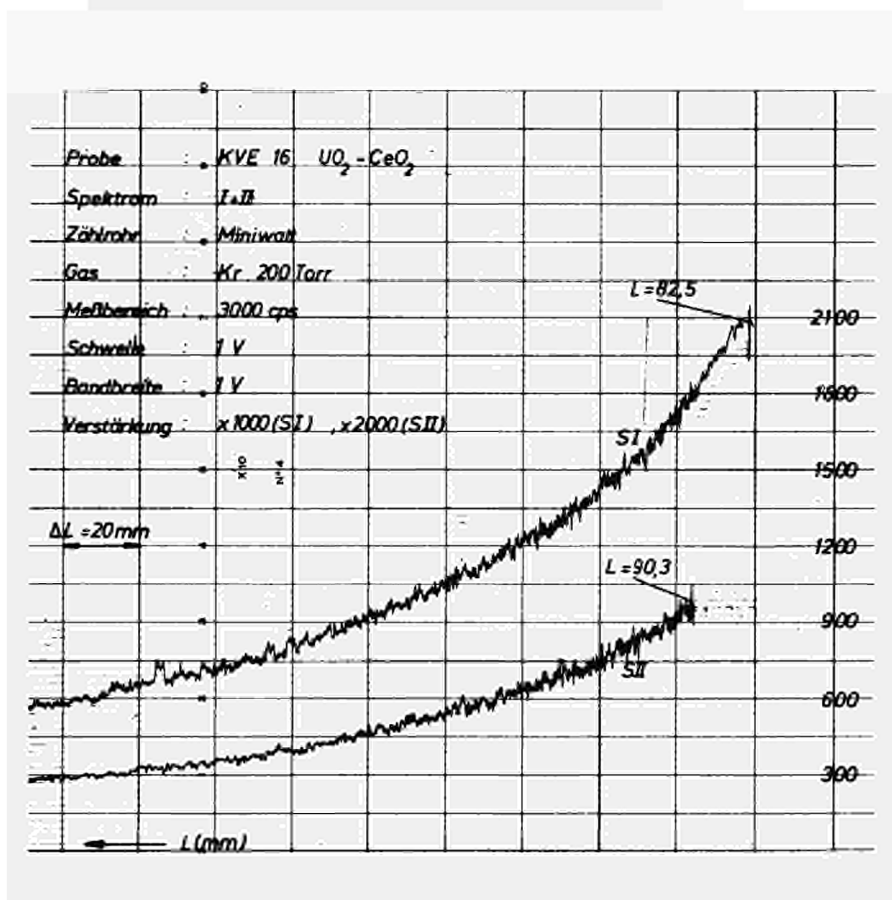


Abb. 8b (1) - Spektrometer links

Abb. 8a,b - Spektrometerscanning: Störimpulse von der KVE-16 Probe (100 mR/h  $\gamma$  in 30 cm) in den Zählrohren

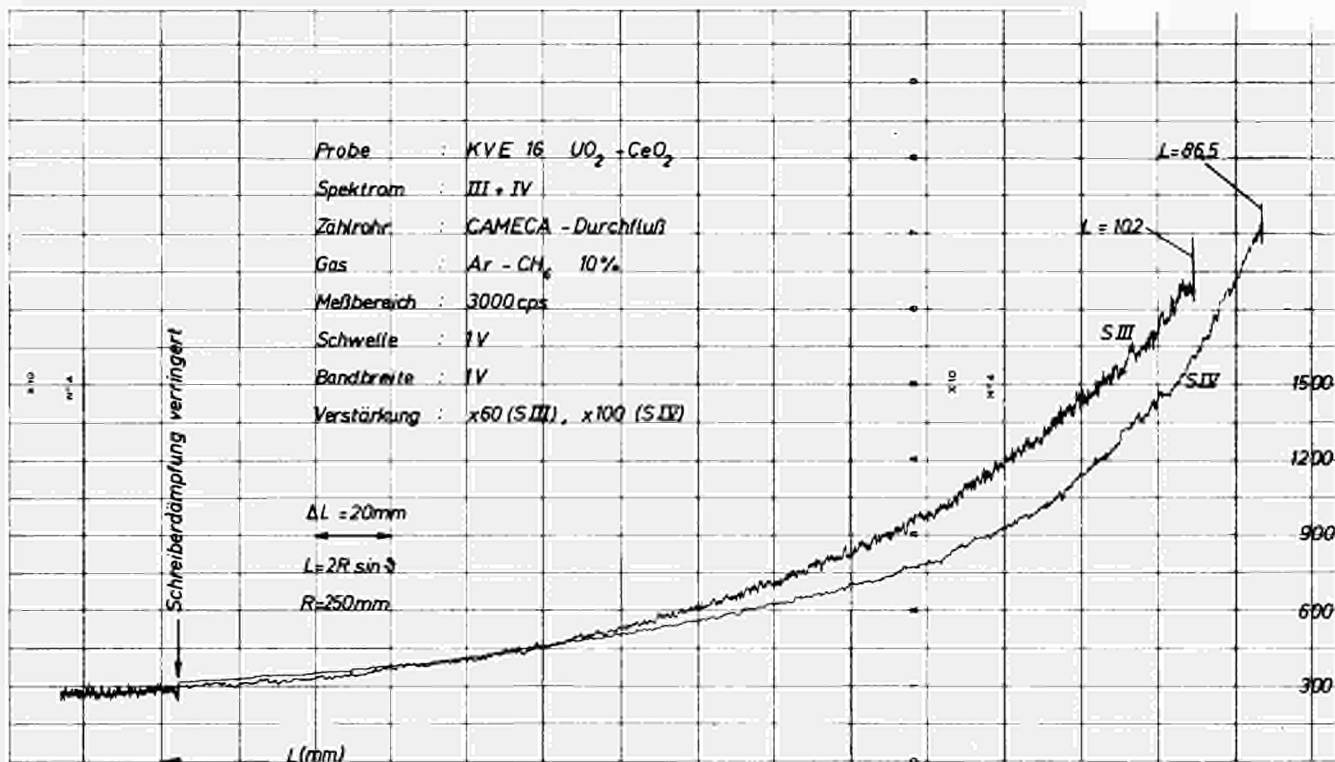


Abb. 8a (2) - Spektrometer rechts

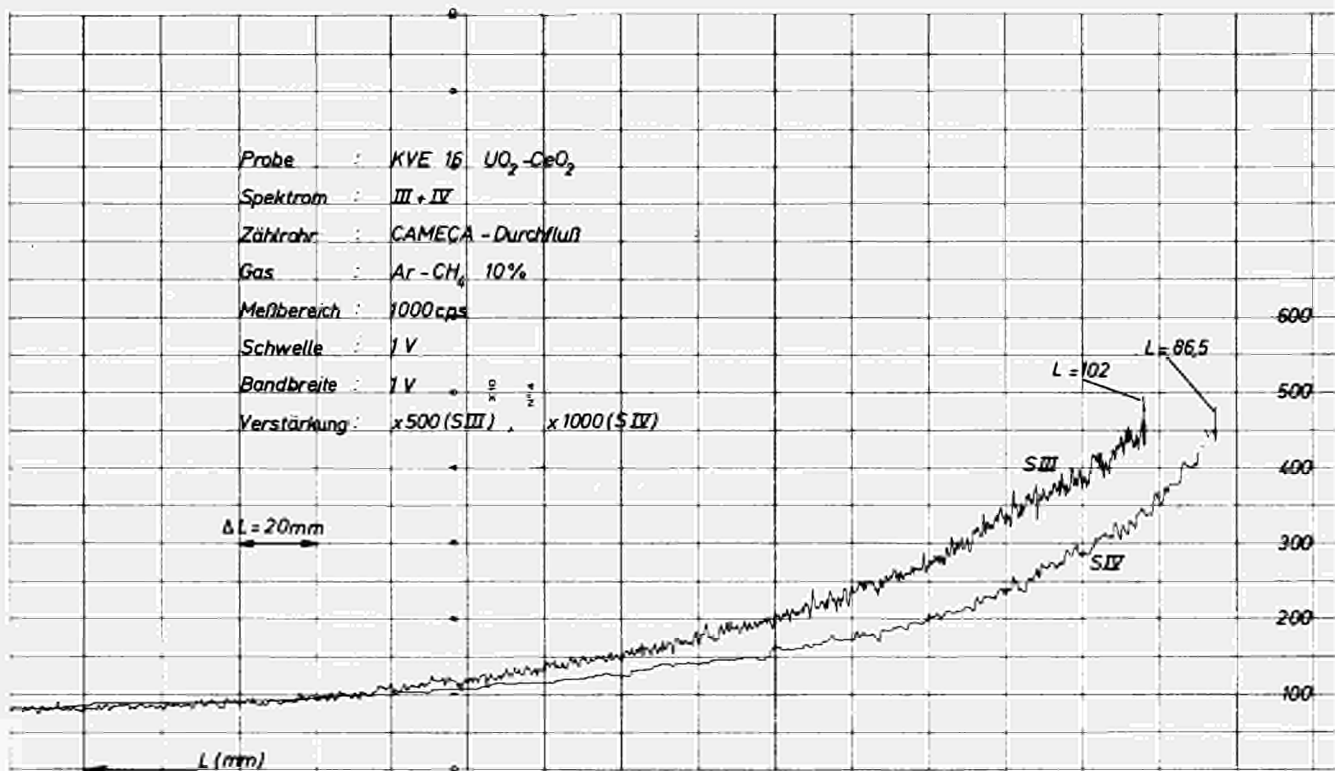


Abb. 8b (2) - Spektrometer rechts

Abb. 8a (1,2) - Diskriminierung im Maximum

Abb. 8b (1,2) - Diskriminierung im Minimum

Um eine grob qualitative Aussage über die Abhängigkeit der Lage des Spektrum von der Spektrometereinstellung zu erhalten, wurden die in Abb. 8a und 8b dargestellten Kurven ohne bzw. mit Diskriminierung zueinander ins Verhältnis gesetzt (Abb. 9). Der Verlauf läßt darauf schließen, daß das Spektrum nur unwesentlich von der Spektrometereinstellung beeinflußt wird. (Bei einem horizontalen Verlauf wäre dieser Einfluß gleich null).

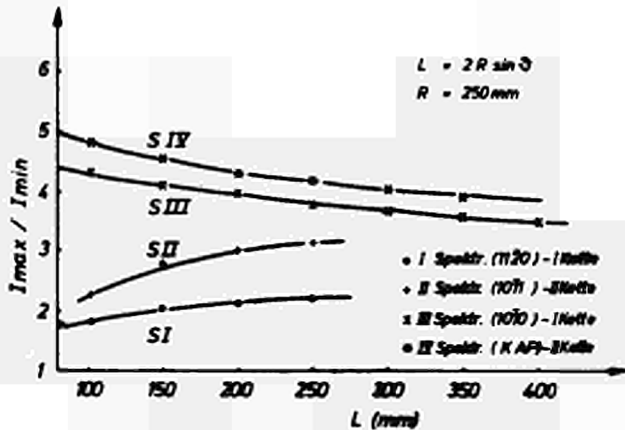


Abb. 9 - Einfluß der Spektrometereinstellung auf das von den Zählrohren gelieferte Energie-Spektrum des Untergrundes

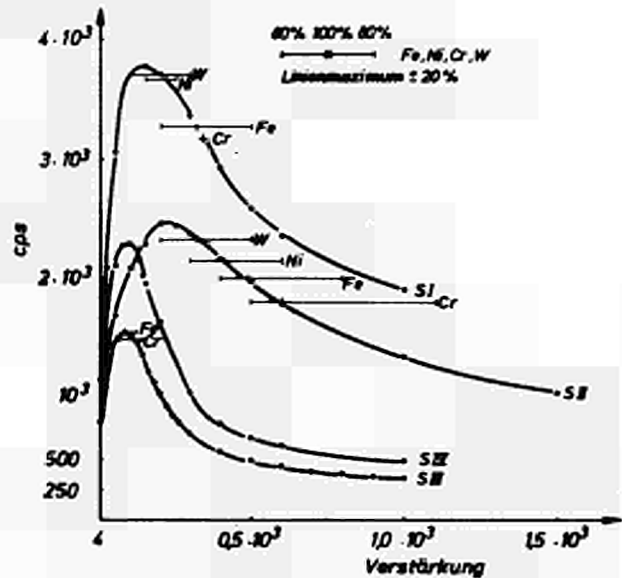


Abb. 10 - Von den Zählrohren geliefertes Spektrum

Ferner wurde die Breite und Lage des Impulsratenmaximums für jedes der vier Zählrohre punktweise aufgenommen (Abb.10). Die Spektrometer waren auf die kleinst möglichen Bragg-Winkel eingestellt; das heißt  $\theta_B = 10^\circ 40'$  für Spektrometer I und II und  $\theta_B = 11^\circ 20'$  für Spektrometer III und IV. Zur Aufnahme der Lage des Maximums für jedes Zählrohr wurde die Schwelle und die Bandbreite (Fenster) des Diskriminators jeweils auf den festen Wert 1 V eingestellt und das Energiespektrum am Fenster des Diskriminators vorbeigeschoben, indem der Verstärkungsfaktor des Hauptverstärkers geändert wurde.

Da diese Maxima auf einen Fluoreszenzeffekt der Zählrohrwände (Stahl 18/10) hindeuteten, wurden anschließend die Röntgenintensitäten der Komponenten des verwendeten Stahls mit Hilfe von Eichproben bei unverän-

derter Einstellung der Zählketten gemessen. Die Ergebnisse bestätigten unsere Vermutung, d.h. das Maximum des von den  $\gamma$ -aktiven Proben angeregten Fluoreszenzspektrums liegt im Bereich der Röntgenlinien der einzelnen Komponenten des Stahles.

### 2.3. Umbau der Mikrosonde

Diese Vorversuche haben u.a. gezeigt, daß eine genügend starke Abschirmung zwischen der radioaktiven Probe und den Detektoren unbedingt erforderlich ist. Eine wirksame direkte Abschirmung der Detektoren ist wegen des Gewichts der Abschirmung nur begrenzt möglich; die Doppel-Reflexions-Technik scheidet wegen der geringen Röntgenstrahlintensitäten aus.

#### 2.3.1. Verminderung der $\beta$ - und $\gamma$ -Störeffekte

Zwischen Proben- und der rechten Spektrokammer wurde deshalb eine Pb-8,5% Sb-Abschirmung angeordnet (Abb. 11).

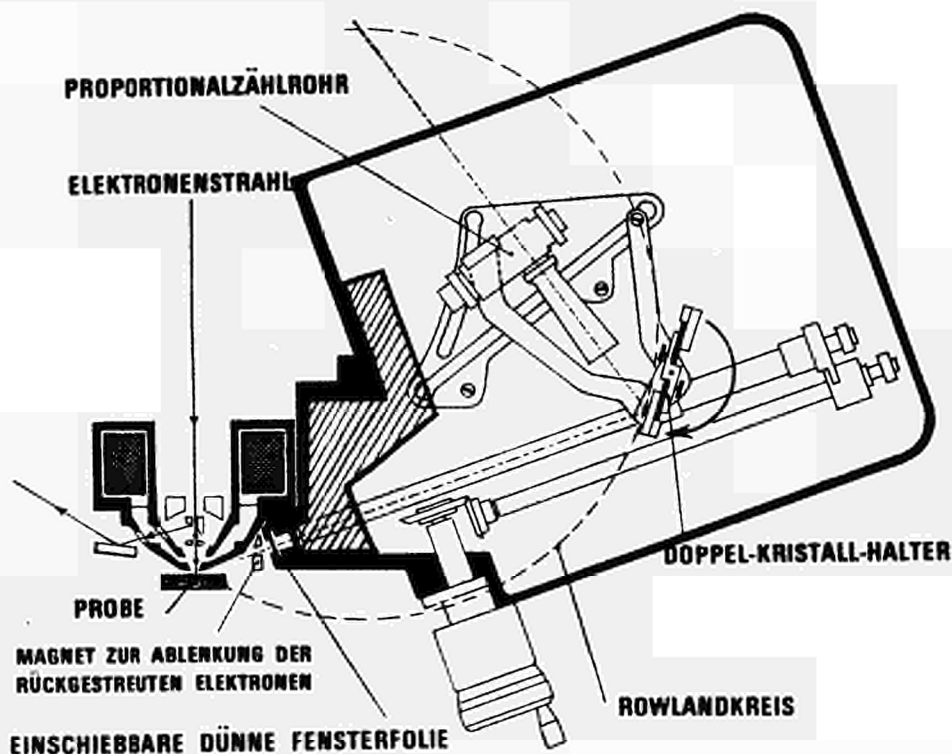


Abb. 11 - Schematische Darstellung des abgeschirmten Spektrometers rechts



Sie ist so ausgelegt, daß sie bei Bedarf auf einfache Weise aus- und eingebaut werden kann (Abb. 12).

Die Röntgenoptik wird durch die Wahl geeigneter auswechselbarer Kollimatoren (Abb. 13), die dem Strahlengang genau angepaßt sind, nicht beeinflußt.

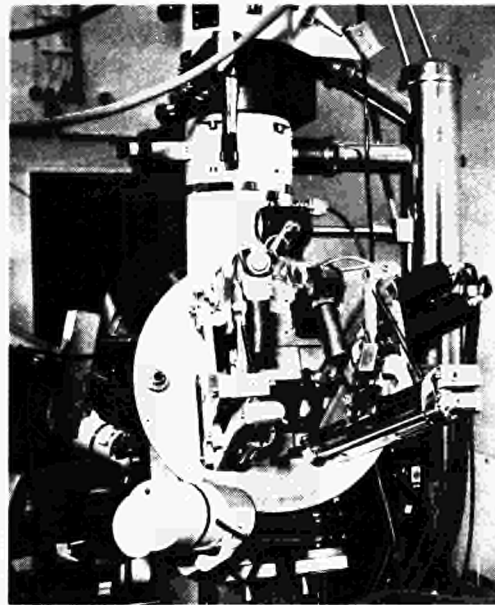
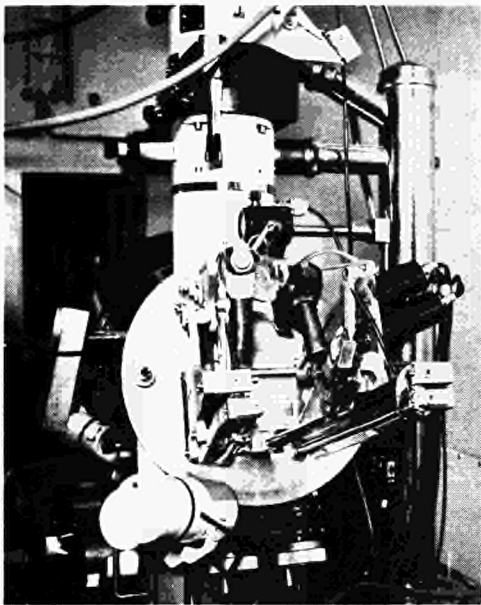


Abb. 12 - CAMECA-Spektrometer rechts

a) ohne Abschirmung

b) mit Abschirmung



Abb. 13 a,b - Mittelteil der Spektrometerabschirmung mit eingesetzten Kollimatoren

Auf diese Weise werden bei ein- und ausgebauter Abschirmung über den ausgenutzten Spektrometerbereich gleiche Linienintensitäten gemessen.

Abb. 14 zeigt dies am Beispiel des  $UM_{\beta}$ -Profils eines gesinter-ten  $UO_2$ -Pellets.

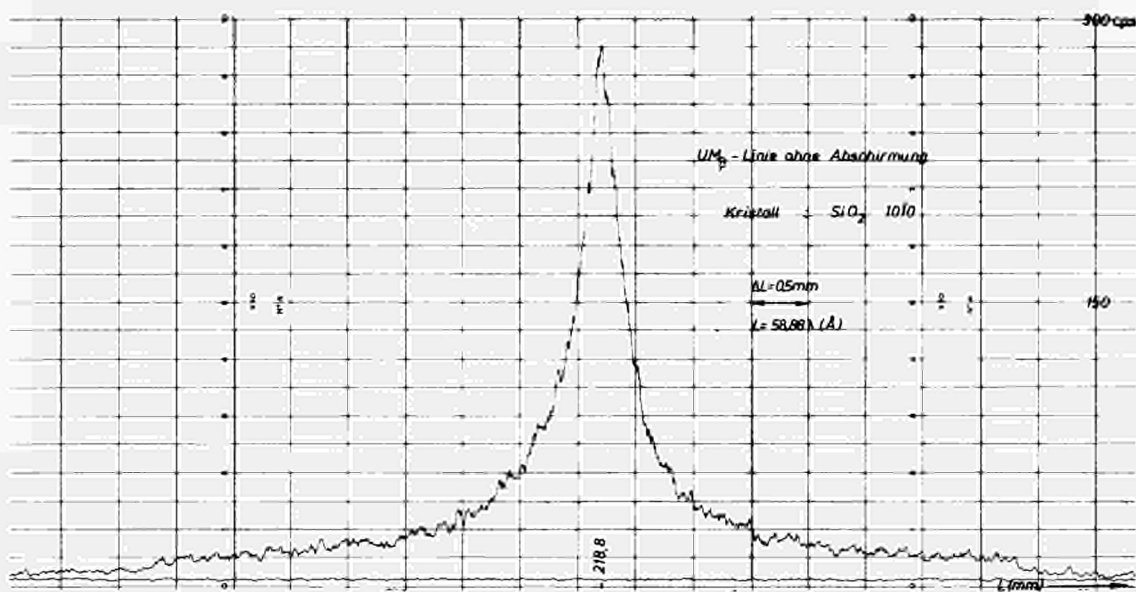
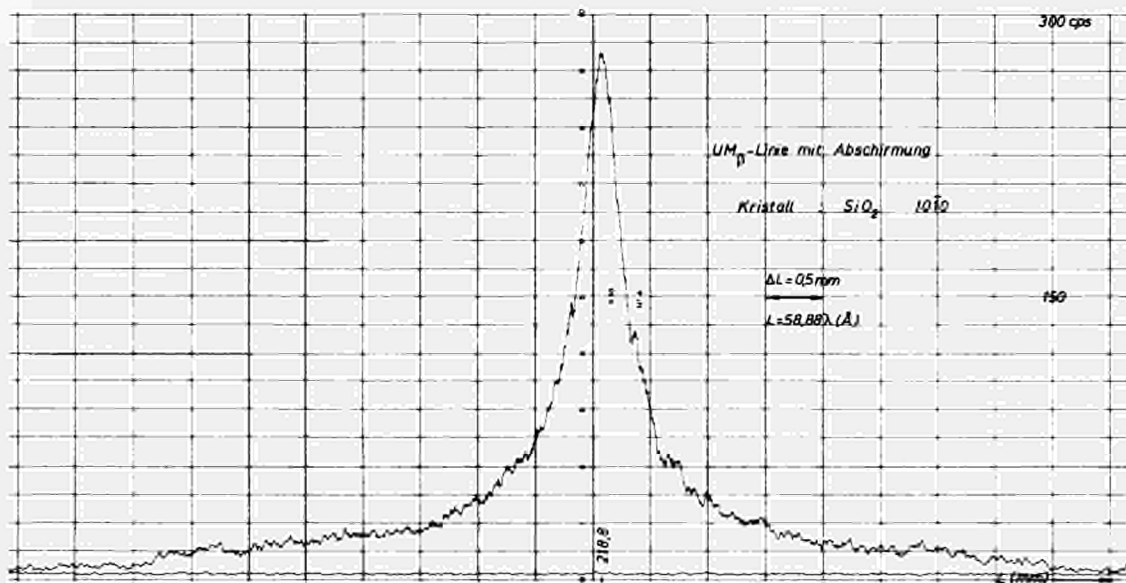


Abb. 14 -  $UM_{\beta}$ -Linie einer unbestrahlten  $UO_2$ -Probe

a) ohne Kollimator



b) mit Kollimator

Die Abschirmungsdicke ist so dimensioniert, daß die für kleine Winkel verlorenen  $\lambda$ -Bereiche, durch verlängerte Standardspektrometer und die Wahl geeigneter Kristallkombinationen kompensiert werden. In Tab. 1 sind als Beispiel Kristalle für eine derartige Ausrüstung zusammengestellt.

Der wirksame Blei-Querschnitt der Spektrometerabschirmung beträgt bei unserer Mikrosonde je nach Spektrometerstellung zwischen 50 und 120 mm. Der direkte Abschwächungsfaktor der Abschirmung geht aus dem Vergleich der Intensitäten der integral aufgenommenen Untergrundprofile hervor (15 a,b), da auf diese Weise die Störeffekte des gesamten Untergrundspektrums berücksichtigt werden. Die Kenntnis der Störeffekte des gesamten Spektrums ist wegen der möglichen Sättigung des Zählrohrgases unbedingt erforderlich. Die Abschirmung bewirkt, neben der Abschwächung auch eine Energieverschiebung des Untergrundspektrums. Um den Nutzeffekt der Abschirmung beurteilen zu können, müssen daher die Intensitäten der diskriminierten Profile verglichen werden (15 c,d). Die erreichten Abschwächungsfaktoren liegen für  $L = 170$  mm ( $\theta = 20^\circ$ ) bei 23 (integral) bzw. bei 70 (diskriminiert). (Entspricht 50 mm Pb).

Eine 3 mm starke Zählrohrabschirmung würde eine zusätzliche Verbesserung um den Faktor 2 bewirken (siehe Abschn. 3.2).

Weiterhin läßt sich durch Wahl geeigneter Zählrohrmaterialien die unter 2.2. beschriebene Fluoreszenz die Zählrohrwände weitgehend vermeiden.

Die Restfluoreszenz kann dann mit Hilfe zusätzlicher mechanischer und elektronischer Maßnahmen auf ein Minimum reduziert werden (Pat. angem.). Zur Zeit werden im Institut für Transurane (EURATOM) verschiedene Zählrohre gebaut und erprobt. Die Meßergebnisse werden nach Abschluß der Versuche in einem gesonderten Bericht dargestellt.

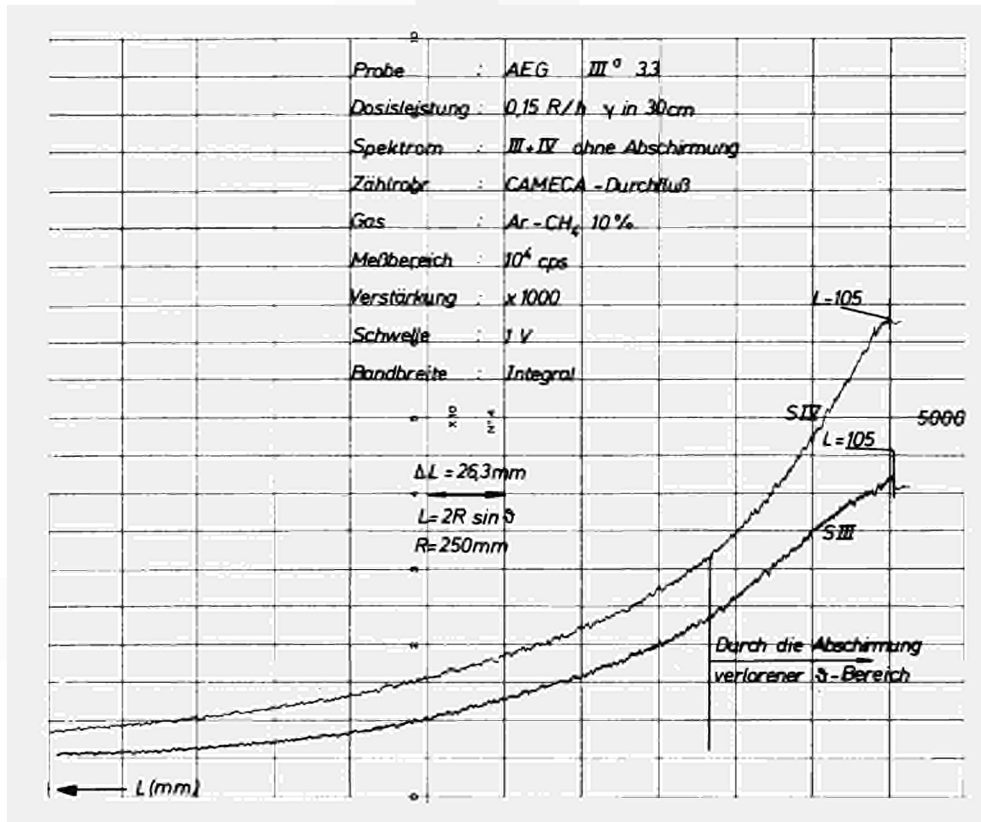


Abb. 15 a) ohne Abschirmung integral

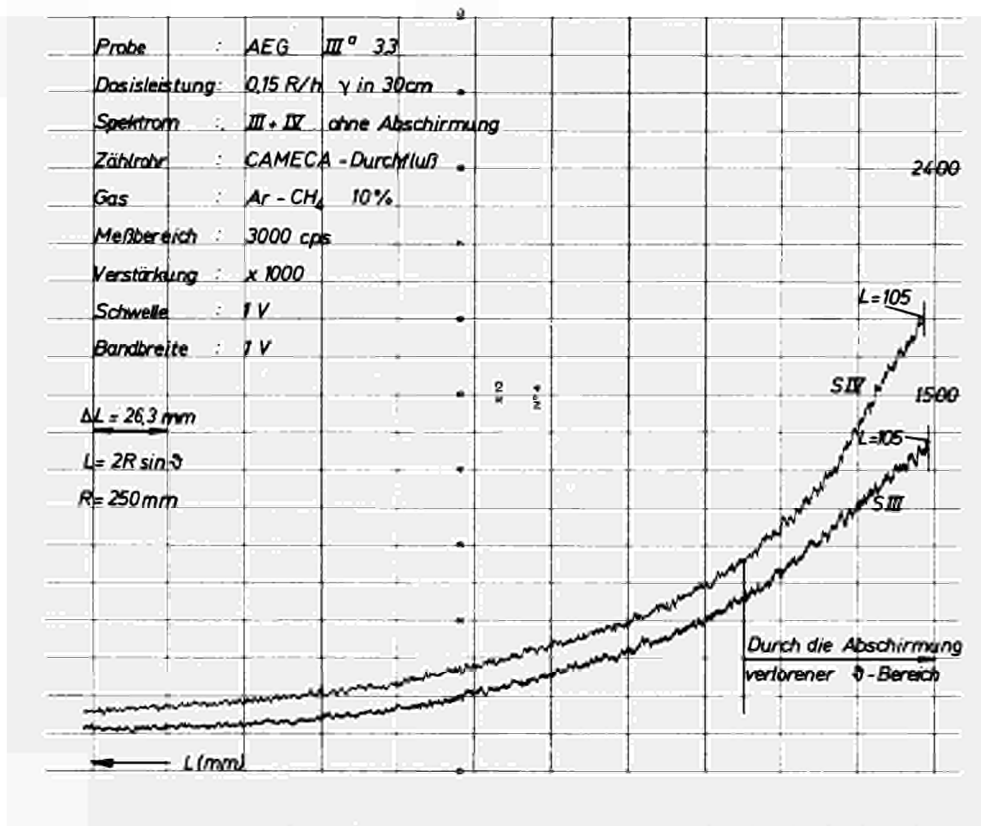


Abb. 15 c) ohne Abschirmung diskriminiert

Abb. 15 - Spektrometerscanning: Einfluß der Abschirmung und der Impulshöhendiskriminierung auf die Störimpulsrate

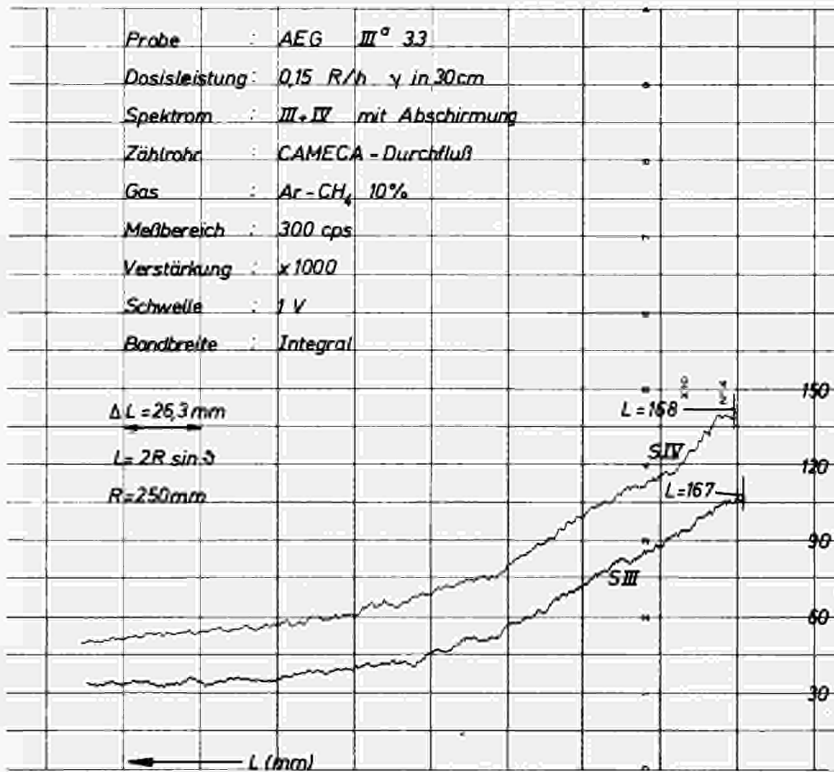


Abb. 15 b) mit Abschirmung integral

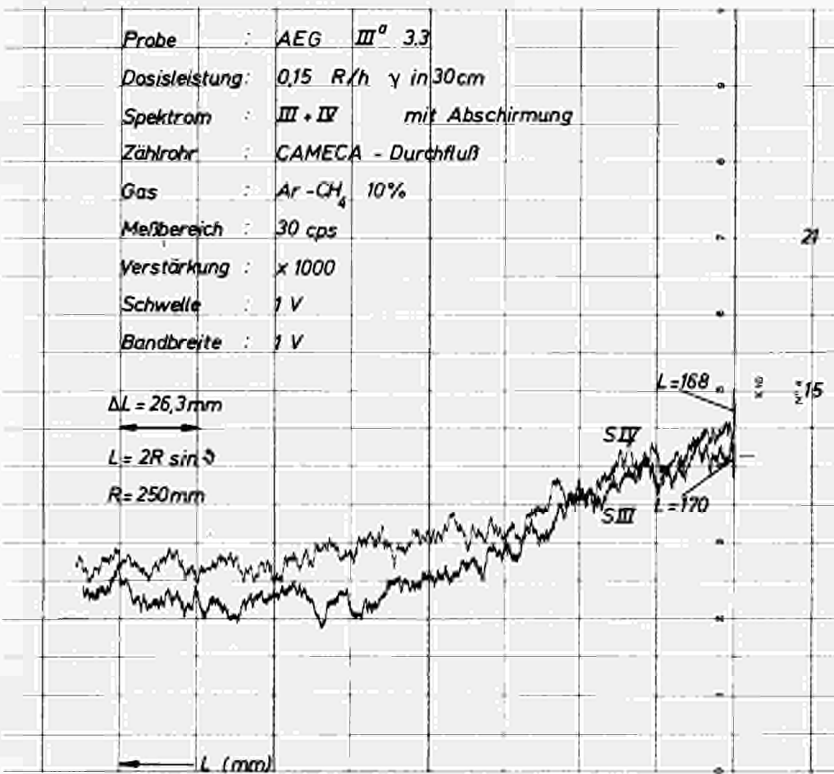


Abb. 15 d) mit Abschirmung diskriminiert



### 2.3.2. Maßnahmen zum Schutz des Personals

Außer der Spektrometerabschirmung ist bei der Analyse bestrahlter Proben eine biologische Abschirmung der Mikrosonde notwendig. Diese Abschirmung wurde, so weit dies möglich war, direkt an der Mikrosonde angebracht und besteht aus folgenden Teilen :

I) Abschirmung des Zentralteils (Abb. 16) der Mikrosonde nach vorn 4 cm Pb  
Abschirmung des Zentralsteils der Mikrosonde nach oben 4 cm Pb

II) Abschirmung der Probenkammer (Abb.17) nach vorn 4cm Pb  
" " " der Seite 3cm Pb  
" " " hinten 2cm Pb  
" " " unten 1cm Denal \*

In Probenhöhe wurde an Stelle einer Bleiabschirmung eine 11 mm hohe und 10 - 50 mm breite, den Oberteil des Probenbehälters ringförmig umschließende Denalplatte verwendet (Abb. 17).

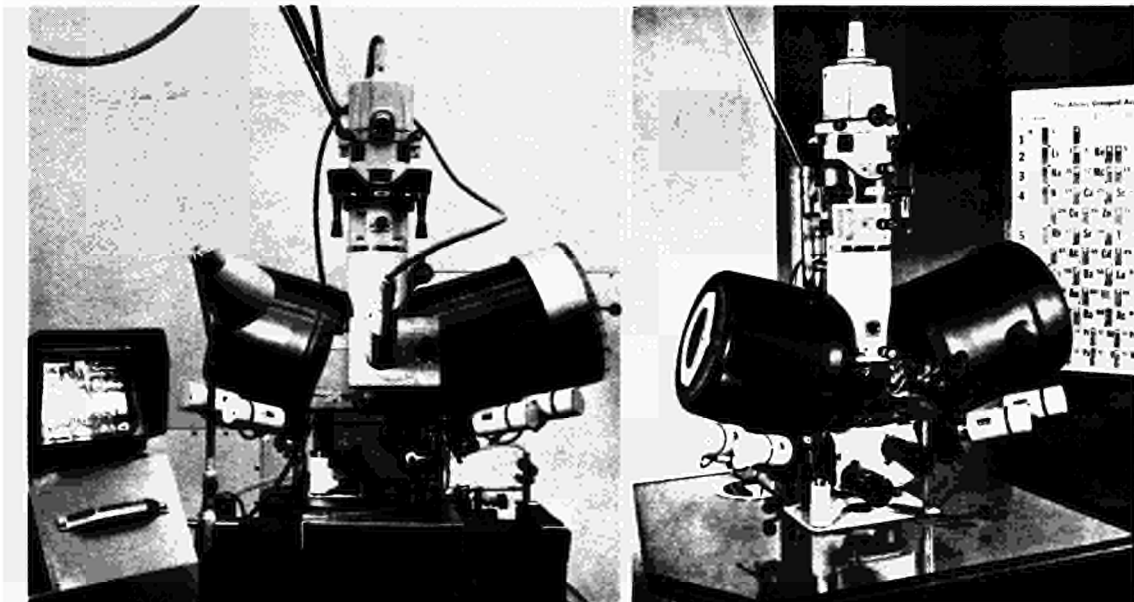


Abb. 16 - Zentralteil der Mikrosonde mit und ohne Abschirmung

\* Pseudolegierung aus Wolfram, hergestellt von Ugine Carbone, Grenoble

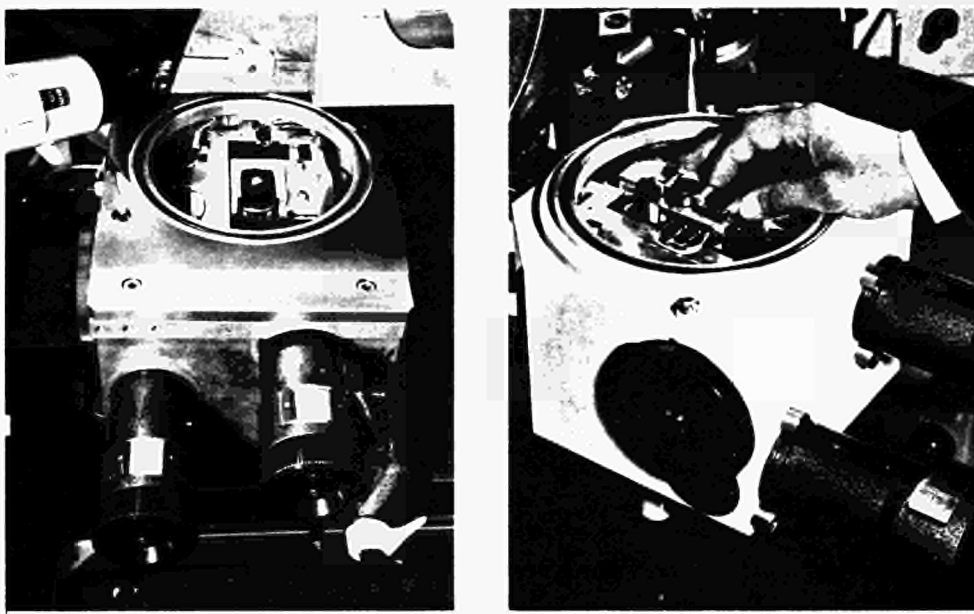


Abb. 17 - Probenkammer mit und ohne Abschirmung

Diese äußere Abschirmung vermindert die Dosisleistung am Ort des Operators um einen Faktor 50 - 100.

Die Sonde wird bei Proben mit Dosisleistungen, die größer sind als etwa 0,2 R/h,  $\gamma$ -Strahlung in 30 cm, hinter einer Bleiabschirmung von 10 cm Dicke betrieben (Abb. 18).

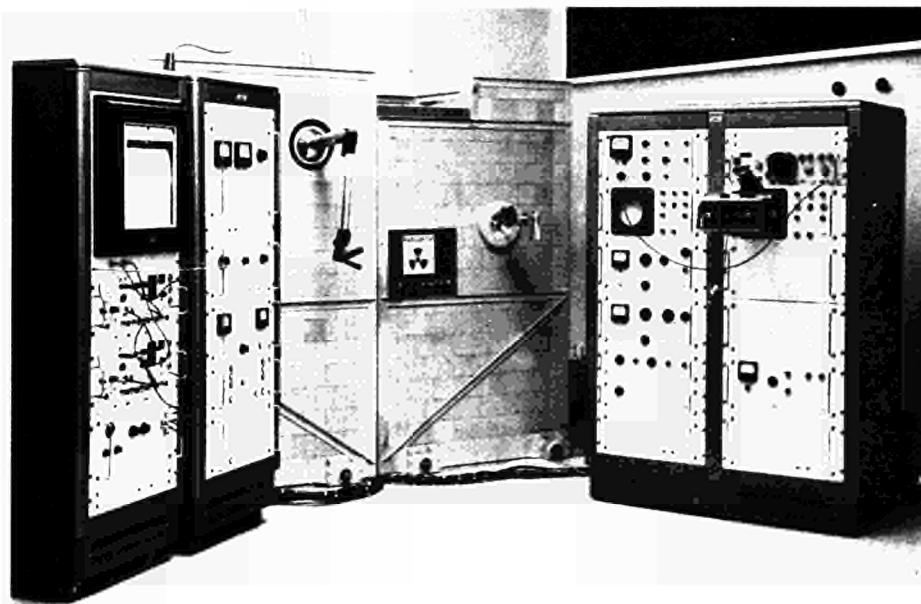
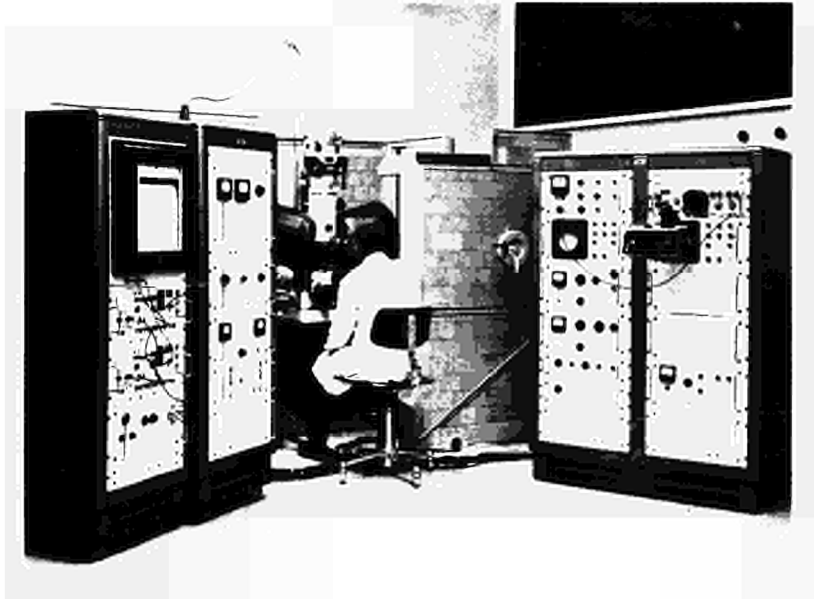


Abb. 18 - Bleiburg : a) geschlossen



18 b) teilweise geöffnet

Zur Fokussierung des Elektronenstrahls und zur Beobachtung der Probe bei "heißem Betrieb" der Sonde, wird an Stelle des Mikroskopokulars eine Fernsehkamera (Grundig) verwendet (Abb. 16).

Die außergewöhnlich gute Auflösung des übertragenen Bildes wird durch die hohe Zeilenzahl von 875 und die große Video-Bandbreite ( $> 10$  MHz) der Anlage erreicht. Das auf dem Monitorschirm wiedergegebene Bild entspricht einem Ausschnitt von etwa  $300 \mu \times 400 \mu$ . Die Vergrößerung ist bei dem verwendeten Bildschirm etwa 700-fach.

Während des Betriebs der Sonde hinter der Bleiabschirmung (Abb. 18a) können alle notwendigen Einstellungen mit Hilfe einer zweiten beweglichen Fernsehkamera beobachtet werden. Dies trifft vor allem auf das Ablesen der Skalen für die Proben- und Spektrometerbewegung zu.

Da die Fernsehanlage jedoch kein räumliches Bild übermitteln kann, wird das Einschleusen der Probe in die Mikrosonde besser durch ein in die Wand der Bleiburg einzulassendes Bleiglasfenster überwacht.

Die Probe selbst wird in einem fahrbaren Bleibehälter (Abb. 19) aus den heißen Zellen zur Mikrosonde transportiert.

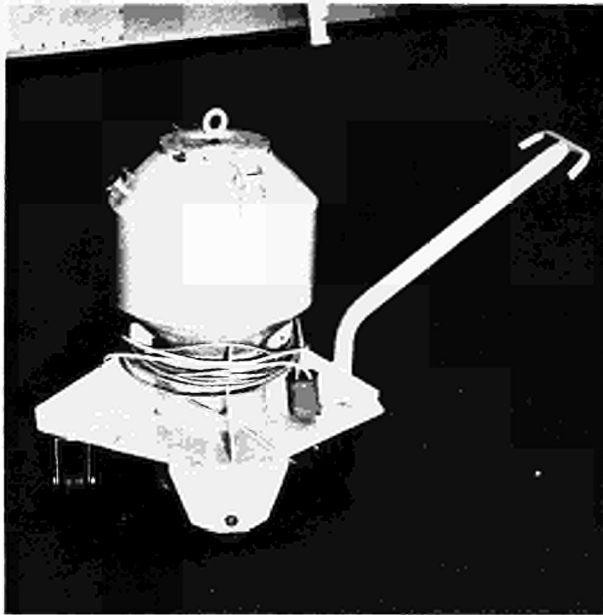


Abb. 19 - Fahrbarer Bleibehälter

Der Behälter besitzt einen wirksamen Bleiquerschnitt von 18 cm. Zum einfacheren Transport dieses Behälters wurde ein lenkbarer Wagen konstruiert, der mit einer elektrisch gesteuerten Teleskop-Aushebevorrichtung versehen ist, mit deren Hilfe die zylindrische Probenkammer ohne weitere Hilfsmittel (Flaschenzug, Manipulator etc.) aus dem Behälter herausgedrückt werden kann und umgekehrt. Das geschieht aus einer, für das Personal sicheren Entfernung, bzw. hinter der geschlossenen Bleiburg.

Die Proben werden nun mit einem einfachen Direktgreifer der Probenkammer des Behälters entnommen und in die der Sonde gebracht.

Dieses Verfahren hat sich bewährt und bietet gleichzeitig den größtmöglichen Schutz gegen die direkte  $\gamma$ -Strahlung.

Da die Kontaminationsgefahr durch radioaktive Teilchen, die sich beim Transport und während der Untersuchung von der Probe lösen können, ebenfalls groß ist, wurden aus diesem Grunde alle Proben mit der gebotenen Sorgfalt und großem Zeitaufwand dekontaminiert. Die Freigabe zur Analyse erfolgte erst, nachdem die fünf letzten der in einer Reihe aufeinanderfolgenden Wischtests eine freie Kontamination von weniger als 20 Imp/min. für  $\alpha$ - bzw. 1000 Imp/min. für  $\beta$ -Strahlung aufwiesen. Diese Werte wurden im Einverständnis mit den örtlichen Strahlenschutzverantwortlichen festgelegt.

Aus Sicherheitsgründen und zur Verbesserung der Leitfähigkeit wurden die Proben anschließend mit Gold bedampft.

### 3. MIKROANALYSE BESTRAHLTER PROBEN

Nach dem Umbau der Mikrosonde wurden  $\alpha, \beta, \gamma$ -strahlende metallographische Schiffe aus Projekten der Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe, und des Instituts für Transurane (EURATOM) untersucht. Anhand der Ergebnisse von drei Mikroanalysen, die an Proben unterschiedlicher Zusammensetzung und Strahlung durchgeführt wurden, läßt sich die Einsatzmöglichkeit der Mikrosonde auf diesem Gebiet abschätzen.

#### 3.1. Verträglichkeitsuntersuchung an einem bestrahlten Emitter \*

(aus dem Projekt 4 der RB/HZ)

Direkt mit Kernbrennstoff beheizte thermionische Energiewandler (Emitter), wie sie zum Bau von Thermionik-Reaktoren benötigt werden, sind wegen der Betriebstemperaturen von etwa  $2000^{\circ}\text{C}$  hohen Belastungen ausgesetzt.

Im Rahmen der Entwicklung solcher Energieumwandler (Ref. 10) wurden am FR-2 Reaktor Bestrahlungsversuche an verschiedenen Wandlern unternommen. Die Materialzusammensetzung war in allen Fällen die gleiche; aus thermodynamischen Stabilitätsgründen war als Emittermaterial Molybdän und als Brennstoff Urandioxid gewählt worden. Das Interesse richtete sich nun vor allen Dingen auf das chemische und physikalische Verhalten der Emitterkomponenten bei Bestrahlung, da alle bis dahin bekannten Untersuchungen an unbestrahlten  $\text{UO}_2$ -Mo-Systemen durchgeführt worden waren.

Abb. 20 zeigt einen Teil des Emitterquerschnitts. In den heißen Zellen wurde für die Mikroanalyse ein Segment aus dieser Probe herausgeschnitten (siehe Trennungslinie in Abb. 20).

Die Analyse wurde in der Zone des mittleren der drei mit Brennstoff gefüllten Kanäle durchgeführt, wobei eine Stelle ausgewählt wurde, an der infolge Umkristallisation während des Bestrahlungsversuchs die Umhüllung eines  $\text{UO}_2$ -Partikels mit der Emitterwand zusammengewachsen war (Abb. 21).

---

\* Im Auftrag der Firma Brown, Boveri & Cie., Mannheim



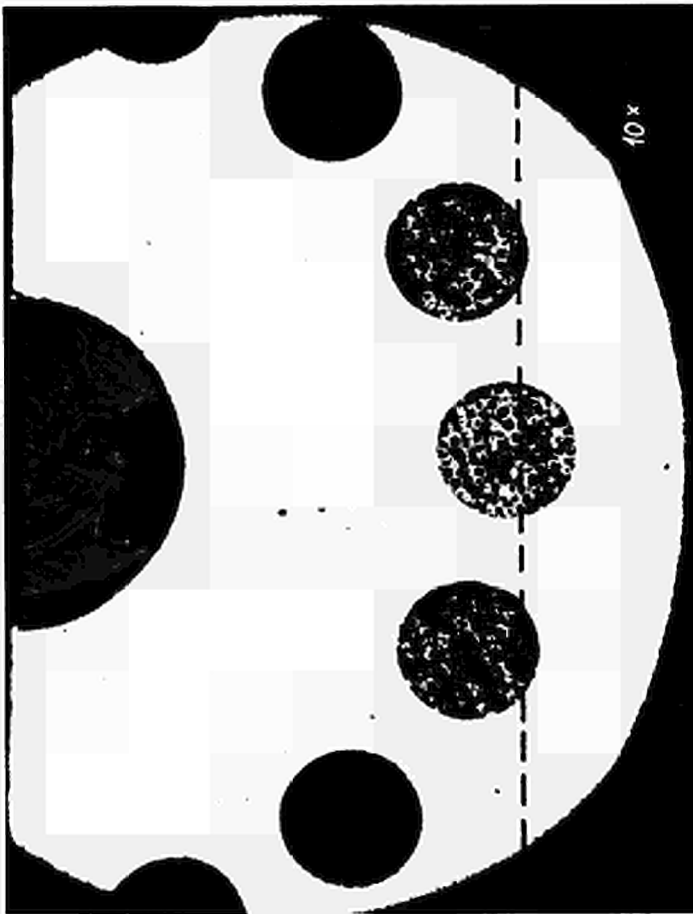


Abb. 20 -

Teilansicht des Emitter-  
querschnitts (x 10)



Abb. 21 -

UO<sub>2</sub>-Partikel, dessen  
Umhüllung mit der  
Wand zusammengewachsen  
ist (x 500)

Daten der analysierten Probe :

Material :  $UO_2$ -Teilchen mit Molybdän beschichtet  
 $UO_2$  33 % angereichert

Bestrahlungsdauer : 1200 h bei  $2000^\circ C$

Abbrand : 15000 Mwd/t

Abklingzeit am Tag  
der Mikroanalyse : 17 Monate

$\gamma$ -Spektrum : Abb. 22

Dosisleistung  
(gemessen mit  
Jordan-Meßgerät) : 100 mR/h  $\beta + \gamma$  in 30 cm  
10 mR/h  $\gamma$  in 30 cm

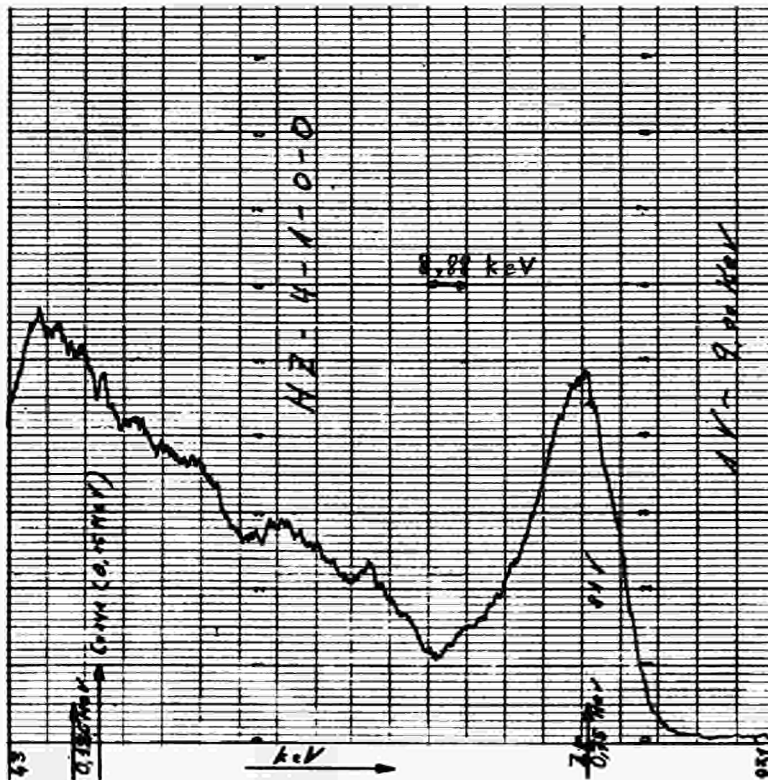


Abb. 22  $\gamma$ -Spektrum der Emitter-Probe

Analysenbedingungen :

Anregungsspannung : 20 kV  
Strahlstrom : 200 nA  
Zählrohr : CAMECA Durchflußproportionalzählrohr  
Gas : Ar-CH<sub>4</sub> 10 %, 1 at

Untersuchte Elemente	:	U	Mo
Linie	:	Ma <sub>1</sub>	La <sub>1</sub>
Kristall	:	SiO <sub>2</sub> 10T0	SiO <sub>2</sub> 10T0
Meßzeit / Punkt	:	100 sec	100 sec
Schwelle	:	0,6 V	0,44 V
Bandbreite	:	0,5 V	0,5 V

Meßwerte

Linienintensität	:	438 cps auf UO <sub>2</sub>	627 cps auf Mo-Hülle
Linie/Untergrund (+36')	:	80 auf UO <sub>2</sub>	220 auf UO <sub>2</sub>
		145 auf Mo	165 auf Mo
Störimpulse ohne Strahl:		0,12 cps	0,12 cps
Nachweisgrenze	:	1200 ppm in Mo	640 ppm in UO <sub>2</sub>

Angewendete Formel [11]:  $I_T = \frac{36_B}{P-B}$        $\sigma_B = \sqrt{B}$   
[17]

wobei P = Linienimpulse

B = Untergrundimpulse

Zum Nachweis einer evtl. vorhandenen Diffusion von U in die Mo-Hülle wurde eine radiale Punktanalyse in Schritten von 5  $\mu$ , ab 100  $\mu$  in Schritten von jeweils 100  $\mu$ , ausgehend von der Wand des mittleren Brennstoffkanals bis zum Außenrand der Emitterhülle durchgeführt. Diese Messungen wurden an der um 180° gedrehten Probe wiederholt, um geometriebedingte Fehler auszugleichen.

Bei dieser Analyse konnte oberhalb der Nachweisgrenze von 1200 ppm keine Diffusion von Brennstoff in die Molybdänhülle festgestellt werden. Punktanalysen auf den Mo-Hüllen der  $\text{UO}_2$ -Partikel in der Mitte des Brennstoffkanals führten zum gleichen Ergebnis, wie es anhand einer Kontrolluntersuchung an einem ge-  
glühten, aber nicht bestrahlten Emitter gefunden wurde.

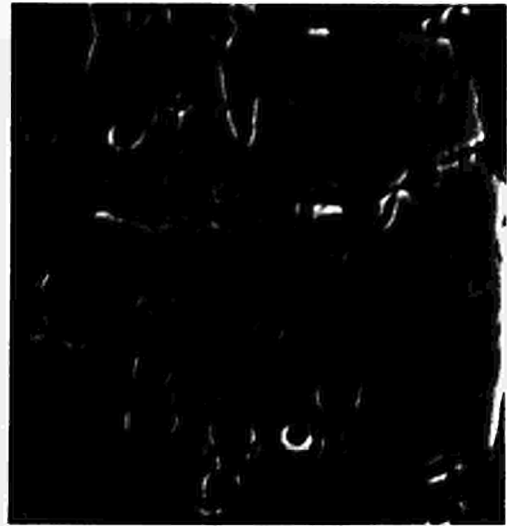
Um andererseits festzustellen, ob Molybdän durch Reaktionen oder Löslichkeiten in die  $\text{UO}_2$ -Phase gelangt, wurden Punktanalysen an mehreren  $\text{UO}_2$ -Teilchen durchgeführt. Zur Sicherstellung möglicher Unterschiede wurden wiederum bestrahlte und unbestrahlte Proben untersucht. Sie ergaben einen geringen Mo-Gehalt von 1700-1800ppm beim bestrahlten und 1500 - 1600 ppm beim unbestrahlten Material. Diese Werte liegen in der Nähe der Nachweisgrenze (640 ppm). Erfahrungen aus anderen Untersuchungen legen die Vermutung nahe, daß es sich um Molybdän handelt, welches durch die metallografische Präparation an der Oberfläche der etwas porösen  $\text{UO}_2$ -Phase hängen geblieben ist. Alle an den Porenrändern gefundenen metallischen Phasen sind Molybdän (siehe Mo- und U-Röntgen- sowie elektronische Rasterbilder eines  $\text{UO}_2$ -Teilchens bei verschiedener Vergrößerung und Belichtungszeit, Abb. 23 und 24).

Aufgrund der Temperaturbedingungen unter Bestrahlung müssen die Proben im thermodynamischen Gleichgewicht gewesen sein. Damit kann aus der obigen Analyse geschlossen werden, daß in dem System  $\text{UO}_2$ -Mo eine mögliche Löslichkeit von  $\text{UO}_2$  und Mo auf jeden Fall kleiner als 1200 ppm (Nachweisgrenze) sein sollte.

Im ungünstigsten Fall kann die Löslichkeit von Mo in  $\text{UO}_2$  höchstens ca. 1600 ppm betragen (Nachweisgrenze 640 ppm), jedoch liegt sie wahrscheinlich erheblich unter diesem Wert. Für das Zustandsdiagramm  $\text{UO}_2$ -Mo existieren bisher keine Angaben für Mo-Konzentrationen unterhalb 3 At.% Mo und oberhalb ca. 95 At.% Mo, (siehe Ref. 12 bis 15).



Abb. 23 - a) Mo-Röntgenbild  
100  $\mu$  x 100  $\mu$  (90 min. bel.)



b) Probenstrom-Rasterbild  
100  $\mu$  x 100  $\mu$

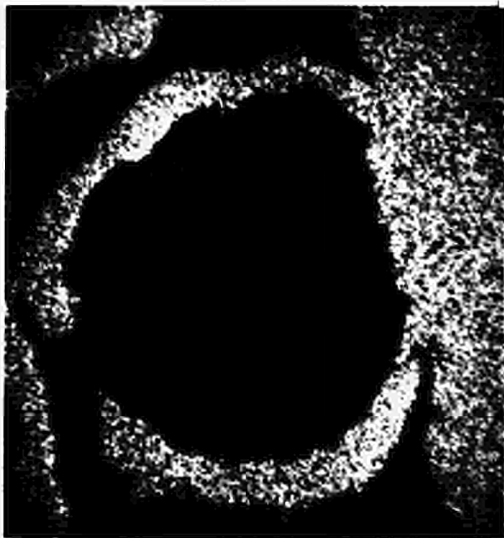
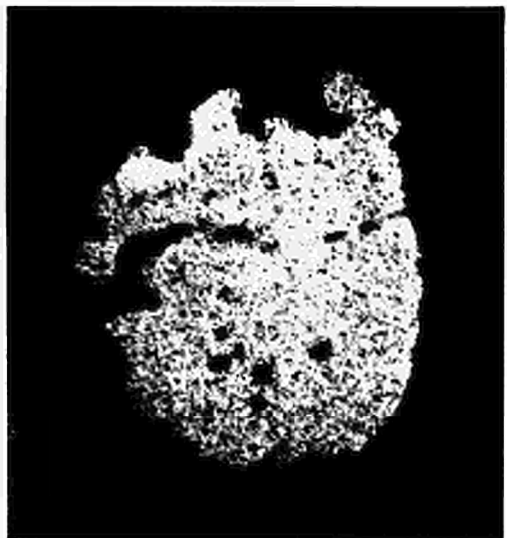


Abb. 24 - a) Mo-Röntgenbild  
200  $\mu$  x 200  $\mu$  (10 min. bel.)



b) U-Röntgenbild  
200  $\mu$  x 200  $\mu$  (10 min. bel.)



c) Probenstrom-Rasterbild  
200  $\mu$  x 200  $\mu$

### 3.2. Untersuchung von Diffusion und Korrosion an einem Leistungs- brennstab

Im Rahmen der im Institut für Transurane (EURATOM) durchgeführten Untersuchung des Brennstoffbündels eines Siedewasserreaktors wurden einem der Außenstäbe sowie dem Zentralbrennstab des Bündels für die Mikroanalyse je eine Querschnittsprobe entnommen. Die Proben unterschieden sich im Gesamtvolumen und damit in ihrer Dosisleistung.

Zur Aufnahme der stärker strahlenden 20 mm hohen 1 1/4"-Probe mußte für die Mikrosonde ein neuer Probenhalter angefertigt werden, da die Normalausführung nur für die Aufnahme von 8 mm hohen 1"-Proben vorgesehen ist.

Der Probenhalter konnte allerdings nicht mit der üblichen mechanischen Scanning-Einrichtung versehen werden. Alle Röntgen- und Probenstrombilder wurden daher mit der im Polschuh der Mikrosonde eingebauten statischen xy-Ablenkung hergestellt. Die schwächer strahlende Probe wurde dagegen so präpariert, daß der normale Probenhalter verwendet werden konnte. Die Analysen wurden in einem Labor des TU-Instituts durchgeführt, in dem keine Bleiburg für die Mikrosonde zur Verfügung stand. Für die Dauer der Analysen wurde deshalb die biologische Abschirmung der Mikrosonde nach vorn durch 5 cm starke Bleiziegel verstärkt.

Außerdem wurde das zur Analyse verwendete Zählrohr zur besseren Abschwächung der strahlungsbedingten Störeffekte mit einem 3 mm starken Bleimantel umgeben. Diese Abschirmung verminderte den Rest-Störpegel um die Hälfte.



Daten der analysierten Proben :

Material	:	UO <sub>2</sub> - Zr-2
Anreicherung	:	2,3 - 2,7 %
Bestrahlungsdauer	:	3 Jahre
Abbrand	:	15000 Mwd/t
Abklingzeit am Tag der Mikroanalyse	:	2 Jahre
γ-Spektrum	:	Abb. 25
Dosisleistung	:	1.) Probe III <sup>a</sup> 2.2. (Zentralstab) 0,5 R/h β + γ in 30 cm 0,15 R/h γ in 30 cm 2.) Probe I <sup>a</sup> 3.3. (Außenstab) 15 R/h β + γ in 30 cm 5 R/h γ in 30 cm

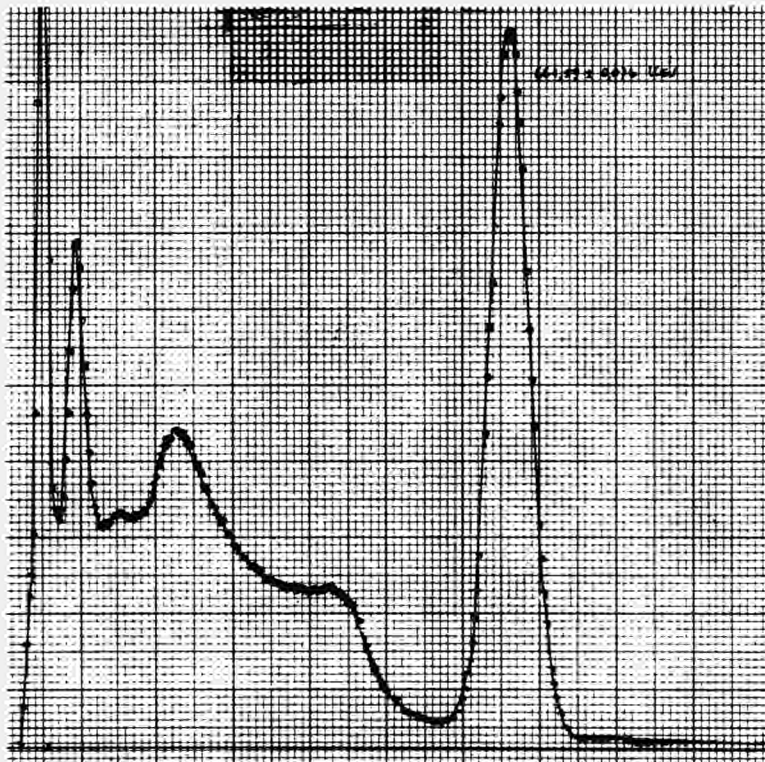


Abb. 25 γ-Spektrum der AEG-Proben

3.2.1. Analyse der Probe AEG III<sup>a</sup> 2.2.

Analysenbedingungen :

Anregungsspannung	:	20 kV		
Strahlstrom	:	200 nA		
Zählrohr	:	CAMECA-Durchflußzählrohr		
Gas	:	Ar-CH <sub>4</sub> 10 %, 1 at		
Untersuchte Elemente	:	Zr	U	Pu
Linie	:	L $\alpha_1$	M $\alpha_1$	M $\beta$
Kristall	:	SiO <sub>2</sub> 10 $\bar{1}0$	SiO <sub>2</sub> 10 $\bar{1}0$	SiO <sub>2</sub> 10 $\bar{1}0$

Zum Nachweis der Pu-Anreicherung am Brennstoffrand wurden an verschiedenen Stellen der Probe Linearscannings über diese Zone gelegt. Wir stellten hier eine 70 - 100  $\mu$  breite, ringförmig den Brennstoffkern umschließende Pu-Anreicherung fest, deren Konzentration bei 1,5 % lag.<sup>\*)</sup> In Abb. 26 sind die Pu M $\beta$  und U M $\alpha_1$ -Röntgenaufnahmen (150  $\mu$  x 150  $\mu$ ) einer der untersuchten Stellen dargestellt.

An der Kontaktstelle von Brennstoff und Hülle stellten wir im UO<sub>2</sub> eine etwa 5  $\mu$  breite Schicht fest, die Zr enthielt. Die Abb. 27 a, b, c zeigen die Zr L $\alpha_1$ - und U M $\beta$ -Röntgenaufnahmen sowie das zugehörige Probenstrombild des 150  $\mu$  x 150  $\mu$  großen Ausschnitts dieser Stelle. Diese Schicht konnte jedoch nur an einer Stelle der Probe nachgewiesen werden, da an allen anderen Stellen die Berührungszone von Brennstoff und Hülle durch die Vorbereitung der Probe zerstört worden war.

Da auch die Korrosionsschicht auf der Kühlmittelseite zerstört war, wurde die Untersuchung der Hüllmaterial-Korrosion an der zweiten Probe (I<sup>a</sup> 3.3 Außenstab) durchgeführt.

Die Verteilung der Spaltprodukte konnte nicht bestimmt werden, da keine Standardproben zur Verfügung standen.

\*) Infolge der langen Belichtungszeit tritt in Abb. 26a der Untergrund der Störimpulse stärker auf.

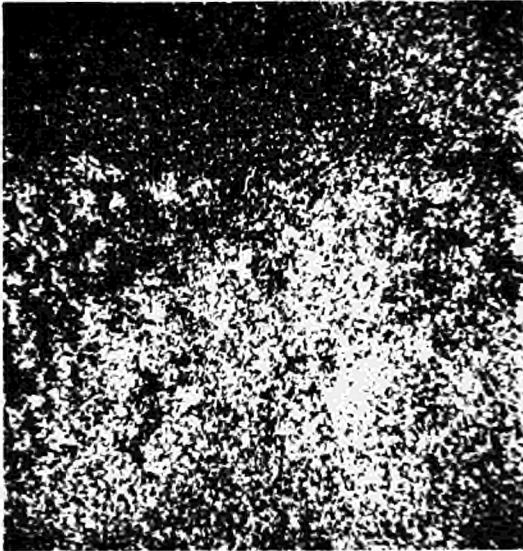
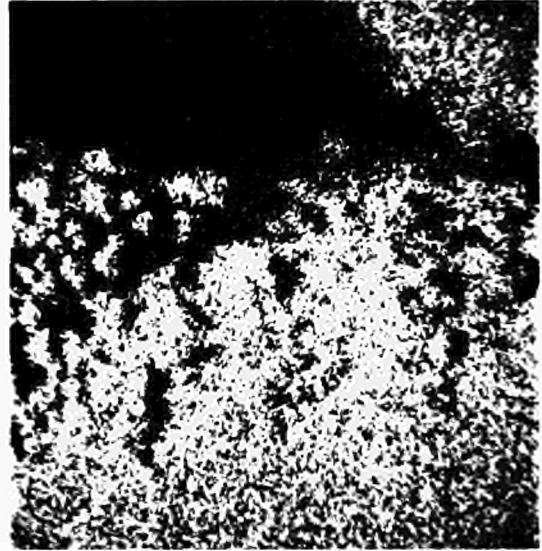


Abb. 26 - a) Pu-Röntgenbild  
150  $\mu$  x 150  $\mu$  (60 min. bel.)



b) U-Röntgenbild 150  $\mu$  x 150  $\mu$   
(10 min. belichtet)



Abb. 27 - a) Zr-Röntgenbild  
150  $\mu$  x 150  $\mu$  (10 min. bel.)



b) U-Röntgenbild 150  $\mu$  x 150  $\mu$   
(10 min. belichtet)



c) Probenstrom-Rasterbild  
150  $\mu$  x 150  $\mu$

3.2.2. Analyse der Probe AEG I<sup>a</sup> 3.3.

Analysenbedingungen :

Anregungsspannung	:	25 kV	
Strahlstrom	:	300 nA	
Zählrohr	:	CAMECA-Durchfluß	
Gas	:	Ar-CH <sub>4</sub> 10 %, 1 at	
Untersuchte Elemente	:	U	Zr
Linie	:	Ma <sub>1</sub>	La <sub>1</sub>
Kristall	:	SiO <sub>2</sub> 10 $\bar{1}$ 0	SiO <sub>2</sub> 10 $\bar{1}$ 0
Meßzeit/Punkt	:	200 s	200 s
Zählrohrspannung	:	1,6 kV	1,6 kV
Verstärkungsfaktor	:	90	90
Schwelle	:	0,15 V	0,12 V
Bandbreite	:	0,08 V	0,08 V

Meßwerte :

Linienintensität	:	327 cps auf UO <sub>2</sub>	554 cps auf Zr-2
Linie/Untergrund	:	40 auf Zr-2	100 auf UO <sub>2</sub>
Störimpulse ohne Strahl	:	4 cps	4 cps
Nachweisgrenze	:	2700 ppm	1300 ppm

(nach Ref.11, 17)

Bei der Analyse dieser Probe wurde erstmals die Impulselektronik der Firma Berthold eingesetzt, die in Zukunft die bisher verwendete Mesco-Elektronik der Mikrosonde ersetzen wird. Die Berthold-Elektronik besitzt eine bessere Auflösung und bietet größere Variationsmöglichkeiten hinsichtlich der Energiediskriminierung.

Zur Untersuchung der Korrosionsschicht (Abb. 28) auf der Kühlmittel-seite wurden an verschiedenen Stellen radiale Linearscannings über die bis zu 200  $\mu$  breite Korrosionszone gelegt. In Abb. 29 ist das Zr-Intensitätsprofil dieser Zone dargestellt.



Abb. 28 - Optische Aufnahme der Zr-2 Korrosionsschicht (x 320)

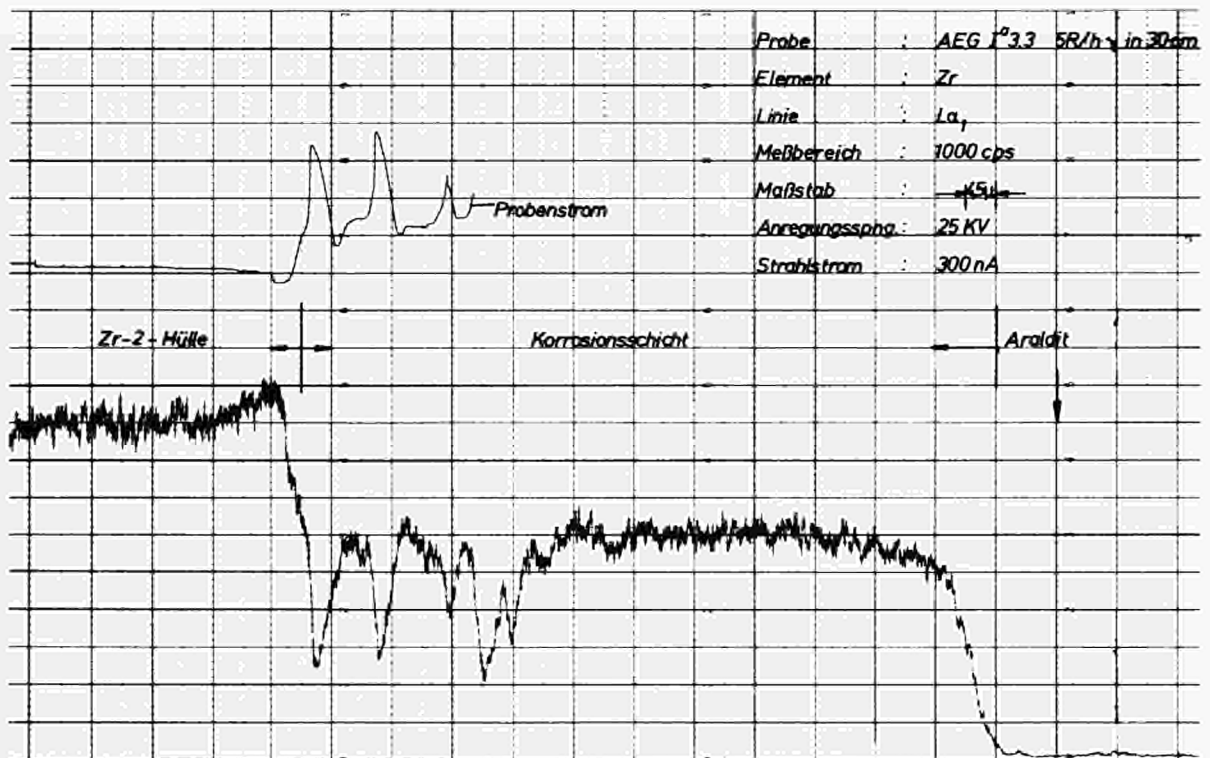


Abb. 29 - Zr-Linearscanning über die Zr-2 Korrosionsschicht (Kühlmittel-seite)

Die Abb. 30 a, b zeigen das Zr-Röntgen- bzw. das Probenstrombild (150  $\mu$  x 150  $\mu$ ) der untersuchten Stelle. Punktanalysen ergaben, daß sich hier  $ZrO_2$  gebildet hatte, das durch das Kühlmittel ( $H_2O$ -Dampf bei 170°C und 70 at) aufoxidiert war.

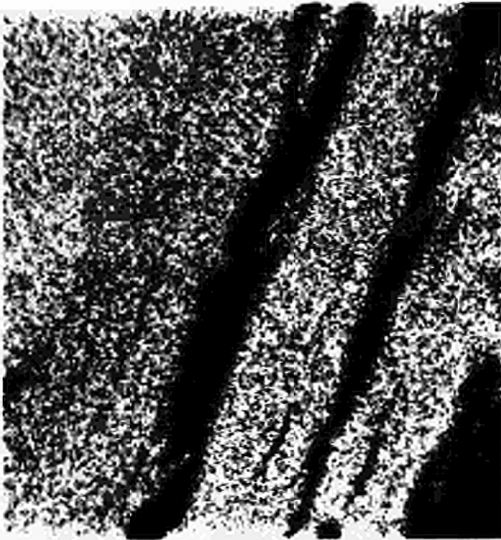


Abb. 30 - a) Zr-Röntgenbild der  
Korrosionsschicht  
150  $\mu$  x 150  $\mu$   
(10 min. bel.)

b) Probenstrom-Rasterbild  
150  $\mu$  x 150  $\mu$

Eine eventuell vorhandene Korrosionsschicht auf der Brennstoffseite der Probe blieb bei der Probenvorbereitung nicht erhalten. Der entstandene, bis zu 50  $\mu$  breite Zwischenraum war bei der Präparation mit Araldit gefüllt worden. Ein Zr-Linearscanning der senkrecht über die Brennstoffgrenze gelegt wurde (Abb. 31), erbrachte aber eine geringe Zr-Konzentration am Brennstoffrand in einer Breite von einigen  $\mu$ .

Diese Anreicherung geht auch aus den Abb. 27 hervor. Zur vollständigen Klärung bedarf es weiterer gezielter Analysen, die in nächster Zeit durchgeführt werden.

Eine bei der metallographischen Auswertung der Probe gefundene Korrosionsschicht an der Innenseite der Zr-2-Hülle wurde mit der Mikrosonde nicht nachgewiesen.

Alle anderen Analysenergebnisse stimmten mit den Ergebnissen der chemischen Analyse überein. (siehe Ref. 16).

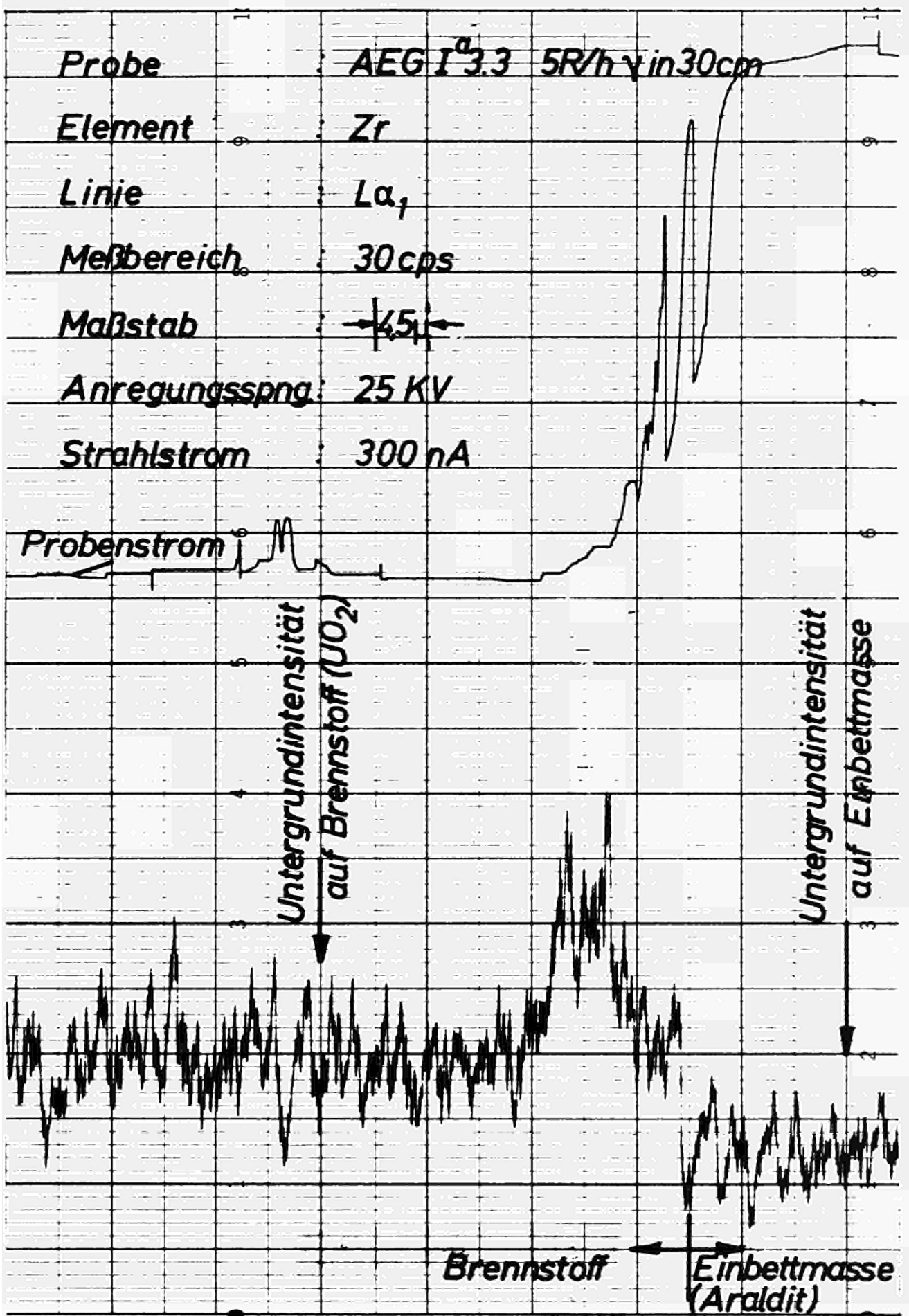


Abb. 31 - Zr-Linearscanning über den Brennstoffrand



Die wesentlichsten Analysenergebnisse sind neben den Daten der untersuchten Proben in Tab. 2, Seite 48, den entsprechenden Angaben der in Abschnitt 1.1., Seite 2 ff. aufgeführten Arbeiten gegenübergestellt.

Proben mit größerer Aktivität, als sie die letzte der analysierten Probe aufwies, waren zum Zeitpunkt der beschriebenen Tests nicht greifbar.

Im Laufe der Versuche mit bestrahlten Proben entstand am Polschuh der Mikrosonde eine leichte, in Aceton lösliche,  $\beta$ -Kontamination, die wahrscheinlich von verdampfender Einbettmasse (Araldit) beim Auftreffen des Elektronenstrahls verursacht worden war. Das übrige Gerät war kontaminationsfrei.

#### 4. SCHLUSSFOLGERUNGEN

Die Versuche haben bestätigt, daß wir mit der umgebauten CAMECA-Mikrosonde, Typ MS 46, Proben untersuchen können, deren  $\gamma$ -Dosis einige R/h in 30 cm Abstand beträgt. Die Vorteile, die diese vollfokussierende Mikrosonde bietet, können somit auch für die Analyse bestrahlter Proben hoher Dosisleistung ausgenutzt werden.

In einer im Bau befindlichen CAMECA-Mikrosonde für das Institut für Transurane, sind diese Maßnahmen berücksichtigt worden. Damit wird erwartet, daß Proben mit einer Dosisleistung bis 100 R/h in 30 cm Abstand noch untersucht werden können, ohne daß die Nachweisgrenzen gegenüber unbestrahlter Proben wesentlich schlechter sind.

Die Untersuchung von  $\alpha$  -  $\gamma$  -aktiven Proben bietet keine erheblichen Schwierigkeiten, wenn man die Dekontamination der Präparate nach einem geeigneten Verfahren durchführt, ehe man sie aus den heißen Zellen ausschleust.

Die Leistungsfähigkeit der Mikrosonde kann durch folgende Maßnahmen verbessert werden:

- 1) Ersetzen der kurzen Spektrometer 1 und 2 durch verlängerte Spektrometer und Einbau der entsprechenden Abschirmteile.
- 2) Ersetzen der Blei-Abschirmung durch eine Abschirmung aus Denal (W).
- 3) Einbau weiterer geeigneter Analysatorkristalle (siehe Tab. 1, Seite 47).

4) Verwendung von Zählrohren aus möglichst leichten Materialien, u.U. in einer Ausführung, die eine Antikoinzidenzschaltung erlaubt.

(siehe Abschn. 2.3.1., Seite 22).

Tabelle 1

Ausnützbare  $\lambda$ -Bereiche in erster Ordnung (Mikrosonde abgeschirmt)

Kristall	LiF	SiO <sub>2</sub>	PET	ADP	KAP	LM*	LSD**
Gitterebene	100	10 $\bar{1}1$					
Ebenenabstand 2 d [Å]	4,026	6,686	8,75	10,648	26,6	80	100,5
K = R/d ***	124,19	74,78	57,143	46,96	18,8	6	5
Spektrometer	I	I	II u. III	II	III	IV	IV
$\lambda$ -Min. [Å]	1,29	2,14	2,8	3,41	8,5	26,7	32
$\lambda$ -Max. [Å]	3,22	5,35	7,0	8,53	21,3	66,5	80

\* LM = Bleimyrstat

\*\* LSD = Bleistearat

\*\*\* Abstand Probe - Kristall = L [mm] = K [Å]  
 wobei  $K = \frac{R \text{ [mm]}}{d \text{ [Å]}}$

Tabelle 2

Mikrosonde

Typ

Verfasser

<u>Probe</u>	:	Material	. . . . .	
		Anreicherung	. , . . . . .	
		Bestr. Dauer	. . . . .	
		Therm. Neutronenfluß	. . . . .	$\lceil n/cm^2 sec \rceil$
		Abbrand	. . . . .	
		Abklingzeit	. . . . .	
		Dosisleistung $\beta + \gamma$	. . . . .	$\lceil mR/h \rceil$
		" $\gamma$	. . . . .	$\lceil mR/h \rceil$

<u>Mikrosonde</u>	:	Spektrometerabschirmung	. . . . .	$\lceil cm \rceil$	
		Detektor	. . . . .		1)
		"	. . . . .		2)
		Kristall	. . . . .		1)
		"	. . . . .		2)
		Elektronenstrahlstrom	. . . . .	$\lceil nA \rceil$	1)
		"	. . . . .	"	2)
		Anregungsspannung	. . . . .	$\lceil kV \rceil$	1)
		"	. . . . .	"	2)

<u>Ergebnis</u>	:	Linienintensität	. . . . .	$\lceil c/sec \rceil$	1)
		"	. . . . .	"	2)
		Linie/Untergrund (mit Strahl)	. . . . .		1)
		"	. . . . .		2)
		Untergrund ohne Elektronenstrahl	. . . . .	$\lceil c/sec \rceil$	1)
		"	. . . . .	"	2)
		Nachweisgrenze	. . . . .	$\lceil Gew. \% \rceil$	1)
		"	. . . . .	"	2)

AEI  
SEM 2

Ref. 3	Ref. 5	Ref. 6
UO <sub>2</sub>	UO <sub>2</sub>	(U <sub>0,85</sub> Pu <sub>0,15</sub> )
-	-	-
-	-	-
-	-	-
U 4,6 %	4,6 %	8 %
-	-	-
220 in 30 cm	-	15.10 <sup>3</sup> in 30
12 in 30 cm	1 in 30 cm	300 in 30 cm
keine	am Detektor	am Detektor
NaI Szintillator	Durchfluß.Prop.Zählr.	-
NaI Szintillator	Durchfl.Prop.Zählr.	-
Mica	Mica	Mica
SiO <sub>2</sub> 1011	LiF	-
-	-	-
-	-	-
17	-	-
17	-	-
-	-	-
-	-	-
-	-	-
-	-	-
-	-	-
-	-	-
-	0,5±0,05 Zr in UO <sub>2</sub>	0,6 Mo in UC
-	-	-

sich um  $\gamma$ - oder  $\beta+\gamma$ -Strahlung handelt  
 Stärke der apparativ bedingten Trennwand  
 Kammer

1)  
 : 3 mm Blei abgeschirmt





Die Verfasser danken allen Herren, die zum Gelingen der vorliegenden Arbeit beigetragen haben.

Insbesondere danken wir: Den Herren Professoren Häfele und Thümmler für die Erlaubnis, diese Arbeit im Rahmen des Schnellen-Brüter-Projekts durchzuführen und für die Bereitstellung der erforderlichen Mittel, Herrn Dr. Theisen, der uns als erster die Anwendung der Mikrosonde für die Untersuchung bestrahlter Materialien vorgeschlagen hat, der technischen Abteilung und der Hauptwerkstatt der GfK für die Hilfe beim Umbau der Sonde.

Herr Dipl.Ing. Scheeder hat uns sehr bei der Lösung der ersten Dekontaminationsprobleme geholfen.

Wir danken ferner Herrn Dr. Blank für die freundliche Unterstützung bei der Abfassung des Manuskripts.

LITERATUR

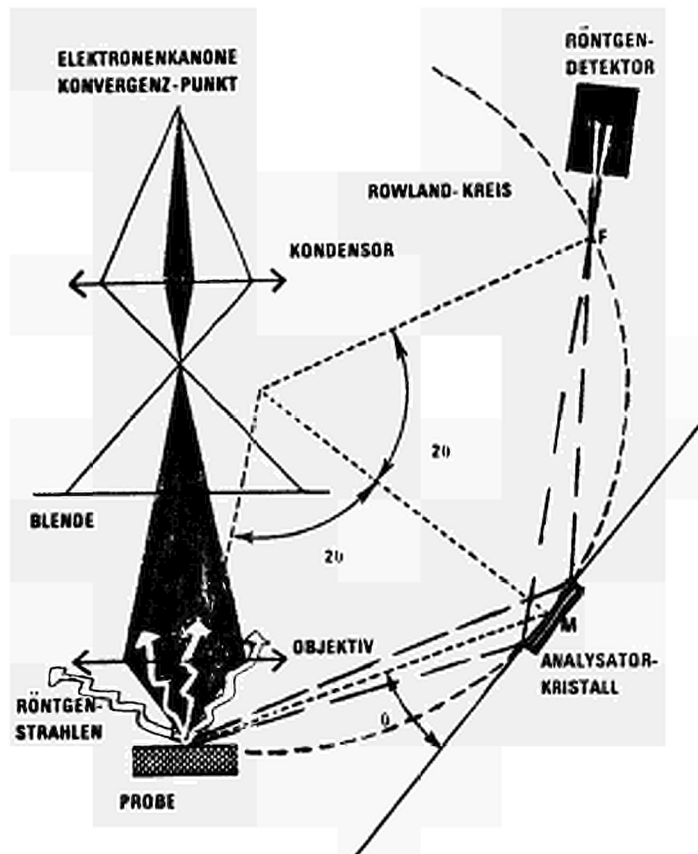
- Ref. 1 : R. Theisen, J.P. Lecoq  
Proceedings of the 10th Colloquium Spectroscopium  
Internationale (1963), S. 383-9  
Washington: Spartan Books.
- Ref. 2 : D. Quataert, H.W. Schleicher  
Journal of Nuclear Materials 19 (1966), S. 221-33.
- Ref. 3 : B.T. Bradbury, J.T. Demant, P.M. Martin, D.M. Poole  
Journal of Nuclear Materials 17 (1965), S. 227-36.
- Ref. 4 : B.M. Jeffery, G.K. Williamson  
J. of Scientific Instruments 41 (3/64), S. 172-4.
- Ref. 5 : B.M. Jeffery  
Journal of Nuclear Materials 22 (1967), S. 33-40.
- Ref. 6 : J.I. Bramman, R.M. Sharpe, D. Thom, G. Yates  
Journal of Nuclear Materials 25 (1968), S. 201-15.
- Ref. 7 : T.R. Padden, R. Burton, C.E. Campbell  
WAPD-TM-644 (5/67).
- Ref. 8 : V.G. Scotti, J.M. Johnson, R.T. Cunningham  
Advanced in X-Ray Analysis, Vol. 9, S. 314-22.  
Proceedings of Denver Conference (8/65).
- Ref. 9 : W.F. Zelezny  
IV Nat. Meeting of Soc. Appl. Spectr.  
Denver (30/8/65)  
(Siehe Ref. 7, Seite 1).
- Ref. 10 : BBC-Broschüre 1201/S  
Forschung über Direktumwandlung in elektrische Energie .

- Ref. 11 : Täffner, R. Theisen  
Calculation of the Detection Threshold and the  
Detection Limit in Electron Microprobe Analysis  
EUR 1819 - e (1964), S. 27 - 36.
- Ref. 12 : E. Gebhardt, G. Ondracek  
Journal of Nuclear Materials 13 (1964), S. 220 - 8.
- Ref. 13 : R.W. Dayton, R.F. Dickerson et al.  
BMI - 1607 (1962), Sect. D-1.
- Ref. 14 : R.W. Dayton, R.F. Dickerson et al.  
BMI - 1644 (1963), Sect. D-1.
- Ref. 15 : R.W. Dayton, R.F. Dickerson et al.  
BMI - 1659 (1964), Sect. D-1.
- Ref. 16 : EURATOM Mitteilung 2007 (1968).
- Ref. 17 : H.S. Rosenbaum, W.V. Cummings,  
T.A. Lauritzen, R.T. Peterson  
GEAP 5344

A N H A N G

I. FUNKTIONSPRINZIP DER MIKROSONDE

(Auszug aus dem CAMECA-Prospekt)



Ein Elektronenbündel wird mit Hilfe von zwei magnetischen Linsen auf die Probe fokussiert. Dieses Strahlenbündel, dessen Durchmesser weniger als  $1\mu$  beträgt, bildet die Sonde. Unter dem Einfluß des Elektronenbeschusses erzeugt die Probe eine Röntgenstrahlung, die alle charakteristischen Linien solcher Elemente enthält, deren Anregungsschwelle kleiner als die Beschleunigungsspannung der Elektronen ist. Diese Linien können von einem Röntgenspektrometer analysiert werden.

Das Spektrometer besteht aus einem gebogenen Analysator-Kristall und einem Detektor. Beide bewegen sich auf einem Kreis (Rowland-Kreis)

der durch den zu analysierenden Punkt geht. Wenn die Oberfläche des Analysatorkristalles den Rowland-Kreis berührt (Kristallmitte im Punkt M), arbeitet er für Röntgenstrahlung, die vom Punkt E auf der Präparationsoberfläche ausgeht, wie ein fokussierender Monochromator für die Wellenlänge  $\lambda_0$ , dem dazugehörigen Braggwinkel  $\theta$  und dem Fokussierungspunkt F. E, M und F liegen auf dem Rowlandkreis.

Verändert man den Braggwinkel (d.h. Abstände  $\overline{EM}$  und  $\overline{MF}$ ), so ändert man auch die Wellenlänge  $\lambda_0$ , die am Kristall reflektiert werden kann.

Die Punkte E, M und die Punkte M, F haben vom Mittelpunkt des Rowlandkreises ausgehend je einen Winkel von  $2\theta$ .

Ein Detektor, der ständig die gleiche Richtung hat wie die Strecke MF, kann die Intensität des reflektierten monochromatisierten Röntgenstrahls messen. In erster Näherung ist das Intensitätsverhältnis der charakteristischen Röntgenstrahlung eines Elementes A in zum untersuchenden Präparat zu der Strahlung eines reinen Präparats aus dem Element A gleich der Konzentration des Elementes A in dem zu untersuchenden Präparat.

Wenn die Konzentration eines Elementes in einer Probe genauer bestimmt werden soll, sind verschiedene Korrekturen nötig, die Fluoreszenz- und Absorptionerscheinungen im Zusammenhang mit der Ordnungszahl des Elementes berücksichtigen.





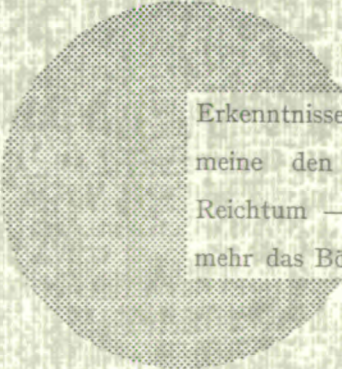
**AN UNSERE LESER**

Alle Euratom-Berichte werden nach Erscheinen in der von der Zentralstelle für Information und Dokumentation (CID) herausgegebenen Monatszeitschrift „euro abstracts“ angezeigt. Abonnements (1 Jahr : DM 60) und Probehefte sind erhältlich bei :

**Handelsblatt GmbH**  
**„euro abstracts“**  
**Postfach 1102**  
**D-4 Düsseldorf 1 (Deutschland)**

oder

**Office de vente des publications officielles**  
**des Communautés européennes**  
**37, rue Glesener**  
**Luxembourg**



Erkenntnisse verbreiten ist soviel wie Wohlstand verbreiten — ich meine den allgemeinen Wohlstand, nicht den individuellen Reichtum — denn mit dem Wohlstand verschwindet mehr und mehr das Böse, das uns aus dunkler Zeit vererbt ist.

Alfred Nobel



## VERTRIEBSSTELLEN

Alle von der Kommission der Europäischen Gemeinschaften veröffentlichten Berichte sind bei folgenden Stellen zu den auf der ersten Rückseite des Umschlags angegebenen Preisen erhältlich. Bei schriftlicher Bestellung bitte die EUR-Nummer und den Titel, die beide auf der ersten Umschlagseite jedes Berichts stehen, deutlich angeben.

### VERTRIEBSSTELLE DER AMTLICHEN VERÖFFENTLICHUNGEN DER EUROPÄISCHEN GEMEINSCHAFTEN

37, rue Glesener, Luxembourg (Compte chèque postal N° 191-90)

#### BELGIQUE — BELGIË

MONITEUR BELGE  
40-42, rue de Louvain - 1000 Bruxelles  
BELGISCH STAATSBLAD  
Leuvenseweg 40-42 - 1000 Brussel

#### LUXEMBOURG

OFFICE DE VENTE DES  
PUBLICATIONS OFFICIELLES DES  
COMMUNAUTES EUROPEENNES  
37, rue Glesener - Luxembourg

#### DEUTSCHLAND

BUNDESANZEIGER  
Postfach - 5000 Köln 1

#### NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ  
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

#### FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE  
DES PUBLICATIONS DES  
COMMUNAUTES EUROPEENNES  
26, rue Desaix - 75 Paris 15<sup>e</sup>

#### ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO  
Piazza G. Verdi, 10 - 00198 Roma

#### UNITED KINGDOM

H. M. STATIONERY OFFICE  
P. O. Box 569 - London S.E.1

Kommission der  
Europäischen Gemeinschaften  
G.D. XIII - C.I.D.  
29, rue Aldringer  
Luxembourg

CDNA04504DEC