

Vol. 14. No. 4. 1966

**KEFKI**

**KÖZLEMÉNYEK**

СООБЩЕНИЯ ЦЕНТРАЛЬНОГО ИНСТИТУТА ФИЗИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

REPORTS OF THE CENTRAL RESEARCH INSTITUTE FOR PHYSICS

Szerkeszti: Adám András  
Главный редактор: А. Адам  
Editor: A. Ádám

A KÖZPONTI FIZIKAI KUTATÓ INTÉZET KIADÓI CSOPORTJA  
ИЗДАТЕЛЬСКАЯ ГРУППА ЦЕНТРАЛЬНОГО ИНСТИТУТА ФИЗИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ  
PUBLISHING GROUP OF THE CENTRAL RESEARCH INSTITUTE FOR PHYSICS  
BUDAPEST, 114. POB 49.

Technikai szerkesztő: Nagy Imréné

Példányszám: 320

Megjelent: 1966. aug. 5.

Rotaszám: 2735

A kiadásért felelős: Jánossy Lajos

Megjelenik: kéthavonta

Előfizethető: az MNB 100.015-70 bevételi számlán  
Előfizetési díj: egyes szám 5,-Ft, egy évre: 30,-Ft /6 szám/

# KFKI

## KÖZLEMÉNYEK

### T A R T A L O M

1. Pintér György, Surányi Péter és Tóth Kálmán: A spontán szimmetriasértési feltevés ellenőrzése a K-mezonok leptonikus bomlásaiban . . . . . 193
2. Dolinszky Tamás: Effektív egyrészecekskeállapotok átrendeződéses magreakciókban . . . . . 197
3. Szőke Sándor és Vizeszy Mária: A benzol molekula erő-állandóinak számítása a mátrix invariancia elv alapján . . . . . 207
4. Jancsó Gábor: Deuteroetanol és etanol párolgáshőkülönbségének számítása spektroszkópiai adatokból . . . 219
5. Tompa Kálmán: Knight eltolódás réz fóliákban . . . . . 227
6. Hortobágyi Tibor és Vigassy József: Mikroszervezetek a csillebérci atomreaktor sugárzásoknak kitett vizköreiben . . . . . 235
7. Erdeyné-Schneer Anna, Csada Imréné és Szabó Elek: A KFKI VVRSZ-reaktor primér vizkörében lévő radioaktív anyagok kvalitatív vizsgálata . . . . . 245
8. Vályi László, Gombos Péter és Roósz József: Hosszu élet-tartamu rádiófrekvenciás ionforrás emittanciájának vizsgálata . . . . . 259
9. Andrási Andor, Deme Sándor és Nagy Judit: Neutronforrások abszolút hozamának mérése  $MnSO_4$  aktiválási módszerrel . . . . . 267



## Резюме

### 1. Контроль предположения спонтанного нарушения симметрии в лептонных распадах К-мезонов

Д. Пинтер, П. Шурани и К. Тот

Отклонение от строгой  $SU(3)$  симметрии вызывается или средне-сильным взаимодействием, или внутренним спонтанным нарушением симметрии. Если имеется спонтанное нарушение, тогда на отношение форм факторов распадов  $K_{13}$  получается простая энергетическая зависимость, которая не согласуется с экспериментальной энергетической зависимостью. Возможно, что это говорит не против спонтанного нарушения, а против сегодня принятого характера слабого тока гадронов.

### 2. Эффективные одночастичные состояния в ядерных реакциях с перераспределением

Т. Долински

Мы ищем такие одночастичные состояния, описанный которыми процесс, с динамической точки зрения, в данной ядерной реакции, можно считать аналогами частных процессов, относящимися к разным входным и выходным каналам. Как в входных, так и в выходных каналах найдем один-один нелокальный одночастичный потенциал; вероятность рассеяния, происходящего на них, воспроизводит вероятность перехода между начальным и конечным состояниями. Для определения совокупности аналоговых рассеивающих состояний служит система сцепных линейных дифференциальных уравнений. Нами доказывалось, что эффективные одночастичные состояния являются обобщениями численных радиальных сомножителей, определенных с помощью радиуса канала в теориях ядерной реакции Гумблет-Розенфелда и Вигнер-Эйзенбуда, на всю радиальную область.

3. Расчёт силовых постоянных молекулы бензола на основании принципа инвариантности матриц

Ш. Сёке и Мария Визеши

На основании отнесения Маира и Горнига, нами был проведен расчёт серии силовых постоянных, которая является оптимально пригодной для расчёта силовых полей молекул производных бензола. Принцип инвариантности [G] был использован нами для контроля известных в литературе серий силовых постоянных.

4. Расчёт разности энтальпий парообразования дейтерозэтанола и этанола из спектроскопических данных

Г. Янчо

На основании данных инфракрасной спектроскопии, при использовании соответствующих приближений, рассчитана разность энтальпий парообразования между дейтерозэтанолом и этанолом при температуре 25°C. Соответствие между расчётным значениям (142 кал/моль) и полученным экспериментально по измерению давлений паров (157±10 кал/моль) считается нами удовлетворительным.

5. Кнайтовское перемещение на фольгах меди

К. Томпа

Нами было измерено кнайтовское перемещение магнитного резонансного сигнала ядра медных фольг текстурой  $\{100\}$ ,  $\langle 001 \rangle$ , непосредственно в кристаллографических направлениях типа  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$  и  $\langle 111 \rangle$ . Значение относительного перемещения в рамках экспериментальной погрешности ( $\pm 1 \cdot 10^{-5}$ ) независимо от кристаллографического направления, значение его 0,232% сходится с литературным значением, измеренным на порошковых образцах.

6. Микроорганизмы в водяных контурах, облученные в венгерском атомном реакторе типа ВВР-С

Т.Хортобадьи и Й.Вигаши

В облученных водах первичного и вторичного контуров, а также бака для хранения выгоренных ТВЭЛ-ов экспериментального атомного реактора (Чиллеберц) мощностью 2,5 мвт были обнаружены живые микроорганизмы. В статье описаны четыре найденных организма и характеризуется условие их жизни. Интересно отметить, что в воде первичного контура удалось обнаружить один из видов сине-зелёных водорослей.

7. Качественное определение радиоактивных изотопов первичного водяного контура реактора ВВРС в ЦИФИ

Анна Эрдеи-Шнер, Габриелла И.Чада и Э.Сабо

Предложен простой метод для определения короткоживущих изотопов  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  и  $^{64}\text{Cu}$  присутствующих в циркулирующей охлаждающей воде реактора. Долгоживущие изотопы  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  и  $^{124}\text{Sb}$ , в начале выделялись из воды осаждением или при помощи метода бумажной хроматографии, а затем измерялись их гамма спектры. Неактивные ионы  $\text{Al}^{3+}$  и  $\text{Cu}^{2+}$  были определены химическим путем после их отделения методом бумажной хроматографии.

8. Исследование испускательной способности долгоживущего радиочастотного ионного источника

Л.Вали, П.Гомбош и Й.Рос

Была измерена испускательная способность радиочастотного ионного источника электростатического ускорителя EG-2 при напряжении вытягивания 2; 2,5 и 3 квт. Метод измерения давал возможность отделить ионный пучок от следствия переразрядки нейтрализованного пучка и так получили диаграммы испускательной способности ионного пучка.

9. Измерение абсолютной интенсивности источников нейтронов активационным методом  $MnSO_4$

А. Андраши, Ш. Деме и Юдит Надь

Абсолютная интенсивность источников быстрых нейтронов была определена на основе активации раствора  $MnSO_4$ . Активность образовавшегося  $Mn^{56}$  была определена сцинтилляционной измерительной установкой, которая была калибрована раствором  $Mn^{56}$  большой удельной активностью, измеренной в  $4\pi$   $\beta$ -счетчике.

Вышеуказанным методом была измерена интенсивность одного Ra-Be источника, найденное значение  $3,35 \cdot 10^6$  н/сек. Стандартная погрешность нашего измерения  $\pm 1,5$  %, полученное значение меньше на 3%-а, чем заданное заводом значение интенсивности.

Подробно описывается метод измерения, ход расчета интенсивности источника и факторы, имеющие влияние на точность измерения.



S u m m a r i e s

1. On the Assumption of a Spontaneous Breakdown of Symmetry in the Leptonic Decays of K-mesons

Gy.Pintér, P.Surányi, K.Tóth

The deviation from the exact SU /3/ symmetry may be due either to a medium strong interaction or to an internal, spontaneous breakdown of symmetry. In the latter case a simple energy dependence should describe the relation between the form factors of the  $K_{13}$  decays, which, however, does not agree with the energy dependence observed experimentally. It is possible, on the other hand, that this is not in contradiction with a spontaneous breakdown of symmetry but with the nowadays assumed nature of the hadron weak current.

2. Effective Single Particle States in Nuclear Rearrangement Reactions

T.Dolinszky

Single particle model states are introduced which are analogous from the dynamical aspect to given transitions of the reaction. Non-local one particle potentials are derived for both the initial and the final channels the scattering probabilities in either of these model problems reproducing the transition probability from the initial to the final states in the physical problem. A system of coupled differential equations specifies the effective single-particle states which may be also interpreted as the extension of the numerical "radial factors" of the R-matrix and the complex poles theories from the channel entrance over the whole configuration space.

3. Calculation of the Benzene Molecule Force Constants on the Basis of the Matrix Invariance Principle

S.Szóke and Mary Vizessy

Accepting the Mair-Hornig assignment, force constants of the benzene molecule were recalculated by attributing enhanced importance to the invariance of the deuterated[G]matrix determinant. The same invariance principle was also applied to check the results of approximate calculations.

4. Calculation of the Difference in the Heats of Vaporization for Deuteroethanol and Ethanol from Spectroscopic Data

G.Jancsó

Using some suitable approximations, the difference in the heats of vaporization of deuteroethanol and ethanol at 25°C has been evaluated from infrared spectroscopic data. The thus predicted value of 142 cal/mol is in a fair agreement with the difference of 157±10 cal/mol obtained by measurements on the vapour pressures of the two compounds.

5. Knight Shift in Copper Sheets

K.Tompa

Direct measurements on the Knight shift in the  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$  and  $\langle 111 \rangle$  crystallographic directions have been performed on copper sheets with  $\{100\} \langle 001 \rangle$ -type recrystallization texture. The relative value of the shift, measured as  $0,232 \pm 0,001 \%$ , was found to be independent of the crystallographic directions and to agree with that obtained on powder samples.

6. Microorganisms in the Water Circuits of the VVR-S Reactor

T.Hortobágyi and J.Vigassy

Living microorganisms have been detected in the water circuits of the 2,5 MW research reactor at Csillőbérc exposed to radiation, namely in the secondary and the primary circuits as well as in the pool for the disposal of burnt out fuel elements. Four microorganisms which could be identified are described and their living conditions

are discussed. It is surprising that a blue alga has been detected even in the water of the primary circuit.

7. Qualitative Analysis of the Activities in the Cooling Water of the VVR-S Reactor

Anna Schmeer-Erdey, Gábor I. Csada, E. Szabó

A simple method has been developed for the identification of the short-lived isotopes  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  and  $^{64}\text{Cu}$  present in the cooling water circulated in the reactor core. The long-lived isotopes  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  and  $^{124}\text{Sb}$  had to be first separated from the water by precipitation or paper chromatography, then identified by gamma spectrometry. For  $\text{Al}^{3+}$  and  $\text{Cu}^{2+}$  ions the analysis could be performed by chemical methods after their separation by paper chromatography.

8. Investigation of the Emittance of a Long-lifetime RF Ion Source

L. Vályi, P. Gombos, J. Roósz

The emittance of the RF Ion Source used in the electrostatic accelerator EG-2 has been measured at extracting voltages of 2, 2,5 and 3 kV. The measuring technique permitted to separate the ion beam from that neutralized by charge exchange and to plot the emittance diagram of the ion beam.

9. Absolute Calibration of Neutron Sources by  $\text{MnSO}_4$  Activation

A. Andrásfi, S. Deme, Judith Nagy

The absolute neutron emission rate has been determined for fast neutron sources from the activation of  $\text{MnSO}_4$  solution. The  $^{56}\text{Mn}$  activity produced in the solution was measured by scintillation counter assembly calibrated with high specific activity  $^{56}\text{Mn}$  solution standardized previously by  $4\pi$   $\beta$ -counter.

With the use of this method the neutron emission rate of a Ra-Be source was measured as  $3.35 \cdot 10^6$  n/sec. The standard error of the measurement was  $\pm 1.5\%$ . The measured value is 3% less than the rated yield of the source. The measuring technique, the calculation process and the factors affecting the accuracy of the method are discussed.



## A SPONTÁN SZIMMETRIASÉRTÉSI FELTEVÉS ELLENŐRZÉSE A $K$ -MEZONOK LEPTONIKUS BOMLÁSAIBAN

Irta: Pintér György, Suranyi Péter és Tóth Kálmán

### Összefoglalás

Az egzakt  $SU(3)$  szimmetriától való eltérést vagy középerős kölcsönhatás, vagy belső, spontán szimmetriasértés okozza. Ha spontán sértés van, a  $K_b$  bomlások formfaktorainak viszonyára egyszerű energiafüggetlenség adódik, ami nem egyezik meg a kísérleti energiafüggéssel. Lehetséges, hogy ez nem a spontán sértés ellen, hanem a hadron gyenge áram ma elfogadott jellege ellen szól.

Az erős kölcsönhatások tulajdonságait illetően általánosan elfogadott tény, hogy azok között alapvető szerepet játszik az  $SU(3)$  szimmetria. Ennek alapján sorolják multiplettekbe az ismert elemi részecskék közül a "stabilis" barionokat, pszeudoskalár és vektormezonokat, a legalacsonyabban fekvő barionrezonanciákat. Az egy-egy multipletten belüli részecskék tömegei azonban szembetűnően különböznek. Ez első pillantásra ellentmondásban látszik lenni azzal, hogy az erős kölcsönhatásoknak az  $SU(3)$  egzakt szimmetriája. A tömegkülönbségek megmagyarázására irányuló első törekvések valóban abból is indultak ki, hogy az  $SU(3)$  közelítő szimmetria, pontosabban, hogy az elektromágneses és a gyenge kölcsönhatásokon kívül létezik egy olyan középerős kölcsönhatás, amely meghatározott módon sérti az  $SU(3)$ -at. Noha az ily módon kapott tömegformulák /Gell-Mann-Okubo/ a tapasztalattal elég jól egyeznek, a probléma ilyen megoldása nem a legkedvezőbb amiatt, hogy feltételez egy újabb típusu kölcsönhatást, amelyről majdnem csak annyit tudunk, hogy az  $SU(3)$ -at sérti.

Ezt akarják elkerülni azok a próbálkozások, amelyek az egzakt szimmetriának elképzelt  $SU(3)$  spontán sértésével igyekeznek megmagyarázni az  $SU(3)$  multipletteken belüli tömegfelhasadást [1], [2]. A spontán sértés gondolata azért is termékenyebbnek látszik, mert a sértési mechanizmus megértésére való törekvés a tulajdonképpeni célhoz, az erős kölcsönhatás dinamikájának a megértéséhez is közelebb visz.

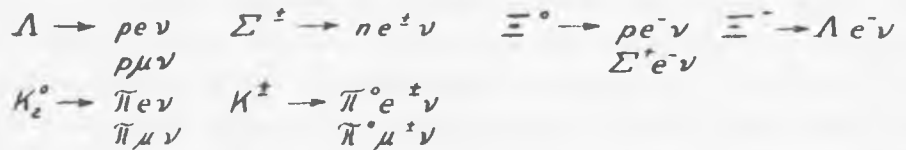
A spontán sértést feltételező legújabb számolások [2] kb. 6%-os pontossággal reprodukálják a fizikai bariontömegeket. /Hasonló kvantitatív eredmény mezonokra nincs./ Az említett két SU(3) sértési lehetőség között a részecskék tömegeinek a vizsgálatával tehát nem tudunk dönteni.

Másik lehetőségként kínálkozik a  $H_i \rightarrow H_f + l + \nu$ ,  $\Delta S \neq 0$  típusu leptonikus gyenge bomlások vizsgálata. / $H_i$  és  $H_f$  a barion vagy pszeudoskálár mezon oktett különböző ritkaságu tagjai/. Spontán SU(3) sértés feltételezése azt jelenti, hogy a hadronok vektor gyenge áramának a ritkaságváltoztató része is megmarad, azaz

$$\langle f | \partial_\mu S_\mu | i \rangle = 0 \quad (1)$$

Ez egy összefüggést ad a folyamatot jellemző formfaktorok között, amely kísérletileg ellenőrizhető. Ha az /1/-ből kapott eredményünk a kísérleti adatoktól lényegesen eltér, ez érv lehet amellett, hogy az SU(3) nem spontán sérül. Ha egyezés vagy nem lényeges eltérés van, ez nem szól egyértelműen a spontán sértés mellett, mert nem tudjuk, hogy egy feltételezendő középéros kölcsönhatás a formfaktorokat illetően milyen eredményt adna.

A mondott típusu megfigyelt bomlások:



Ezek közül csak a  $K$  -bomlások mennek végbe számottevő valószínűséggel, a formfaktorokra vonatkozó mérések is csak ezekre léteznek.

A  $K$  -bomlásokra /1/,  $S_\mu$  Lorentz-strukturáját felhasználva impulzustérben így írható:

$$(p_\mu^K - p_\mu^\pi)^2 f_- + (p_\mu^K - p_\mu^\pi)(p_\mu^K + p_\mu^\pi) f_+ = 0.$$

Itt  $p^K$  és  $p^\pi$  a  $K$  és  $\pi$  mezon négyesimpulzusa, az  $f_-$  és  $f_+$  formfaktorok az impulzusok invariáns függvényei.

A  $K$  -mezon nyugalmi rendszerében:

$$\frac{f_-}{f_+} = \xi = - \frac{m_K^2 - m_\pi^2}{m_K^2 + m_\pi^2 - 2m_K \sqrt{m_\pi^2 + p_K^2}} \quad (2)$$

vagyis a két formfaktor hányadosa csak a kijövő  $\pi$ -mezon impulzusától függ.

A legtöbbet vizsgált  $K_{\mu 3}^+$ -bomlásokra vonatkozó méréseket összefoglaló legutóbbi cikkek [3], [4], illetve legújabb mérések [5] szerint a formfaktorok alig függenek a  $\pi$ -mezon impulzustól, és a mérésekben szereplő 50-200 MeV/c impulzustartományban igazoltnak látszik, hogy az

$$\begin{aligned} f_- &= B \left( 1 + \lambda \frac{t}{m_\pi^2} \right) \\ f_+ &= A \left( 1 + \lambda' \frac{t}{m_\pi^2} \right) \end{aligned} \quad (3)$$

feltevés a formfaktorok pionenergiafüggésére jogos. Itt  $A, B, \lambda, \lambda'$  konstansok,  $t = m_{\kappa^+}^2 + m_\pi^2 - 2m_{\kappa^+} \sqrt{m_\pi^2 + p_\pi^2}$ . A mérések szerint  $\lambda = -0,01 \pm 0,02$ ,  $B/A = -0,08 \pm 0,7$ ,  $\lambda'$ -re megbízható mérés nincs, a mérések kiértékelésénél általában felteszik, hogy  $\lambda = \lambda'$ .

Ez azt jelenti, hogy  $\xi$  abszolút értéke kicsi, és a  $\pi$  mezon energiától csak kicsit függ /  $\lambda = \lambda'$ -esetben egyáltalán nem/, ami nem látszik összeegyeztethetőnek a spontán sértést feltételezve kapott eredményünkkel. A/2/ képlet alapján ugyanis:

$ p_\pi  / \text{MeV}/c$	$\xi$
0	-1,75
100	-2,85
150	-5,06
200	-36,5

/3/ fennállása mellett szól az is, hogy a formfaktorok  $\pi$ -mezon energiafüggését elhanyagolva kapható

$$R \left( \frac{K_{\mu 3}^+}{K_{e 3}^+} \right) = 0,651 + 0,126 \xi + 0,015 \xi^2$$

képletből a  $\mu_\nu$  és  $e_\nu$  bomlási módusok elágazási arányának  $R = 0,65 \pm 0,10$ / felhasználásával kapott eredmény egyezik a korábbi B/A értékkel.

A  $K_2^0$  bomlására vonatkozó adatok [6] a  $K^+$ -hoz hasonlók.

Természetesen, a kérdést ezzel nem tekinthetjük eldöntöttnek. A  $\xi$  energiafüggését nem ismerjük elég jól: valamennyi mérés kiértékelése

a /3/ feltevés alapul vételével történt, s a mérések pontatlansága miatt a valódi  $\xi$  ettől lényegesen eltérhet.

A spontán szimmetriasértés nincs teljesen kizárva abban az esetben sem, ha a kísérleti adatok valóban ellentmondanak /2/-nek. Ekkor meg lehet vizsgálni annak a lehetőségét, hogy a leptonáramhoz nem az  $SU(3)$  áram van csatolva, hanem valamilyen más módon definiált áramoperátor. Természetesen, ha ezt az áramot az elmélet nem tudja meghatározni egyértelműen, akkor minden előnyét elveszti egy nem spontán szimmetriasértő elmélettel szemben.

Megjegyezzük, hogy a spontán sértés lehetősége és a  $K_6$  bomlások közötti esetleges ellentmondásról M.Suzuki is említést tett [7].

#### I r o d a l o m

- [1] Baker, M., Glashow, S.L.: Phys. Rev. 128, 2462 /1962/  
Glashow, S.L.: Phys. Rev. 130, 2132 /1962/  
Suzuki, M: Progr.Theoret. Phys. 31, 222 /1964/, 31, 1073 /1964/
- [2] Byrne, N., Iddings, C., Shrauner, E.: Phys. Rev. 139B 918 /1965/
- [3] Shaker, F.S., Jensen, G.L., Roe, B.P., Sinclair, D.: Phys. Rev. 136B  
1431 /1964/
- [4] Bisi V. et al.: Phys. Rev. 139B. 1068 /1965/
- [5] Borreani G. et al: Phys. Rev. 140B, 1686 /1965/
- [6] Luers D. et al: Phys. Rev. 133B, 1276 /1964/
- [7] Suzuki, M.: Phys. Rev. 136B, 769 /1964/

Érkezett: 1966. máj. 16.

KFKI Közl. 14.évf. 4.szám, 1966.



## EFFEKTIV EGYRÉSZECSEÁLLAPOTOK ÁTRENDEZŐDÉSES MAGREAKCIÓKBAN

Írta: Dolinszky Tamás

### Összefoglalás

Keresünk olyan egyrészecskeállapotokat, amelyek által leírt folyamat dinamikai szempontból adott magreakcióban a különböző be- és kimenő csatornához tartozó részfolyamatok analógonjának tekinthető. Mind a bemenő, mind a kimenő csatornában találunk egy-egy nem-lokális egyrészecskepotenciált; a rajtuk történő szóródás valószínűsége reprodukálja a kezdő és végállapotok közötti átmenet valószínűségét. Az analóg szórásállapotok összességének meghatározására csatolt lineáris differenciálegyenletrendszer szolgál. Az effektív egyrészecskeállapotok összességének meghatározására csatolt lineáris differenciálegyenletrendszer szolgál. Az effektív egyrészecskeállapotokról kimutatjuk, hogy azok a Humblet-Rossfeld és a Wigner-Eisenbud féle magreakcióelméletekben a csatornasugar segítségével definiált numerikus radiális tényezőknek az egész radiális tartományra való általánosításai.

### I. Bevezetés

Kvantummechanikai töbtestprobléma esetén, kéttest-erők mellett, nem beszélhetünk az egyes részecskék állapotáról. Mégis: gyakran találunk az effektív egyrészecskeállapot fogalmával. Így akkor, amikor a rendszer kötött állapotában olyan fogalmakat, mint a fizikai térbeli töltéseloszlás, anyageloszlás, fluxuseloszlás, akarunk definiálni. Ilyenkor a soktestrendszer hullámfüggvényének konfigurációs-térbeli eloszlásából vezetünk le a 3-dimenziós fizikai térre vonatkozó egyrészecske-eloszlást. Az effektív állapot, az effektív sűrűség fogalma megjelent a szórási problémák területén is. Feshbach elméletében [1] a soktestprobléma rugalmas és rugalmatlan szórási folyamatát heurisztikusan definiált egyrészecskeállapotokkal írja le.

Dolgozatunk célja, hogy a reakciót leíró szórási állapotok esetére követelményeink pontos megfogalmazásával definiáljuk az effektív egyrészecskeállapotok fogalmát, bizonyítsuk existenciájukat és megad-

jük előállításuk módját a legáltalánosabb szórásprobléma: az átrendeződéses ütközés esetére.

## 2. Az effektív egyrészecskeállapot definíciója

A  $C$  compound rendszerhez egyértelmű módon az  $R_{ba}^{\circ}(r_{\beta}, E)$  effektív egyrészecskeállapotokból álló kétdimenziós függvény-mátrixot rendelünk a következő követelménnyel. Az  $\alpha$  szeparációhoz tartozó  $|a\rangle$  és a  $\beta$  szeparációhoz tartozó  $|b\rangle$  csatornapárra vonatkozóan a soktest-probléma  $T_{ba}(E)$  szórási mátrixeleme pontosan egyezzen meg az  $R_{ba}^{\circ}(r_{\beta}, E)$  egyrészecskeállapot /rugalmas/ szórási-mátrixelemével.

A fenti definíciót kielégítő  $R_{ba}^{\circ}(r_{\beta}, E)$  állapotmárix existenciájának bizonyítása és az állapotok explicit előállítása a következő feladatunk.

## 3. A rugalmas szórás mátrixeleme egytestprobléma esetére

Az effektív egyrészecskeállapot bevezetéséhez szükségünk lesz a szórási amplitúdónak a szokásostól eltérő előállítására. A szórási állapotot leíró hullámfüggvény az  $|a\rangle = |k, l, \lambda\rangle$  beeső hullám esetén az egész térben:

$$\Phi_a^{\circ}(r, E) = \frac{1}{r} R_a^{\circ}(r, E) Y_{\lambda}^l(\hat{r}). \quad (1)$$

Véges hatótávolságu kölcsönhatást feltételezve, az  $R_a^{\circ}(r, E)$  radiális faktor aszimptotikus ( $r > \rho$ ,  $\rho$  = csatornasugár) viselkedése és a  $T_l(E)$  szórási amplitúdó között fennálló kapcsolat:

$$R_l^{\circ}(r, E) = 1 \cdot w_l^{\circ}(r, k) + T_l(E) \cdot w_l^{\ast}(r, k), \quad (2)$$

$$R_l^{\circ(1)}(r, E) = 1 \cdot w_l^{\circ(1)}(r, k) + T_l(E) \cdot w_l^{\ast(1)}(r, k), \quad (3)$$

ahol a  $w_l^{\circ}$  és  $w_l^{\ast}$  szabad-mozgás-hullámfüggvények normalálási előírása:

$$w_l^{\circ}(r, k) \equiv r j_l(kr) \sim \sin(kr - l \frac{\pi}{2}) \quad r \rightarrow \infty, \quad (4)$$

$$w_l^{\ast}(r, k) \equiv r h_l^{(1)}(kr) \sim e^{i(kr - \frac{1}{2}l\pi)} \quad r \rightarrow \infty, \quad (5)$$

A két egyenletből a szórási mátrixelemre a következőt kapjuk az

$$R_l^{\ast}(r, E) \equiv T_l(E) w_l^{\ast}(r, k)$$

jelölés bevezetésével:

$$T_{\ell}(E) = \frac{W_{\beta} \{R_{\ell}^{+}(r, E); w_{\ell}^{+}(r, k)\}}{W_{\beta} \{w_{\ell}^{+}(r, E); w_{\ell}^{+}(r, k)\}} \quad (6)$$

Nevezetes tulajdonsága a /6/ előállításának az, hogy benne csak hullámfüggvények szerepelnek. A kölcsönhatási potenciál sem a szórás-mátrixelem /6/ alakjában, sem ennek levezetésében explicite nem lép fel. Nem kell feltételeznünk semmit a kölcsönhatás jellegéről és a kölcsönhatási operátor és hullámfüggvény kapcsolatáról. Így, a kölcsönhatásnak lokálisnak sem kell lennie.

#### 4. Átrendeződéses reakció: az effektív egyrészecskeállapot

Legyen  $|a\rangle = |A l_a \lambda_a s_a \sigma_a\rangle$  az  $\alpha$  szeparációhoz tartozó csatornaállapot. Fejtsük ki az  $|a\rangle$  beeső hullámhoz tartozó  $\psi_a^{+}$  reakcióállapotot a  $\beta$  szeparációhoz tartozó  $|b\rangle = |B l_b \lambda_b s_b \sigma_b\rangle$  csatornaállapotok teljes rendszere szerint az  $\hat{r}_{\beta}, \xi_{\beta}$  térben:

$$\begin{aligned} \psi_a^{+}(\underline{r}, E) &= \psi_a^{+}(r_{\beta}, \hat{r}_{\beta}, \xi_{\beta}, E) = \\ &= \sum_{b(\beta)} \frac{1}{r} R_{ba}^{+}(r_{\beta}, E) Y_{\lambda_b}^{l_b}(\hat{r}_{\beta}) X_{\sigma_b}^{B s_b}(\xi_{\beta}). \end{aligned} \quad (7)$$

Az itt szereplő függvényeket meghatározó egyenletek:

$$H = H(\underline{r}) = K_{\beta}(r_{\beta}) + H_{\beta}(\xi_{\beta}) + V_{\beta}(r_{\beta}, \xi_{\beta}), \quad (8)$$

$$H \psi_a^{+}(\underline{r}, E) = E \psi_a^{+}(\underline{r}, E), \quad (9)$$

$$H_{\beta} X_{\sigma_b}^{B s_b}(\xi_{\beta}) = \epsilon_b X_{\sigma_b}^{B s_b}(\xi_{\beta}). \quad (10)$$

Az  $R_{ba}^{+}(r_{\beta}, E)$  függvényeket /7/-ben minden  $r_{\beta}$  - értékre, sorfejtési együtthatóként definiáltuk. A fenti sorfejtés az egész konfigurációs térben előállítja a szórás állapotot, de az abszolút és egyenletes konvergencia csak az  $\hat{r}_{\beta}, \xi_{\beta}$  változóknál biztosított. A továbbiakban igazoljuk, hogy az  $\psi_a$  teljes félegyenesen így bevezetett  $R_{ba}^{+}(r_{\beta}, E)$  függvények segítségével definiált  $R_{ba}^0 = w_{ba}^0 + R_{ba}^{+}$  szórás állapotok teljesítik az effektív egyrészecskeállapotok szórt hullámára fent kirótt követelményeket.

5. Az effektív egyrészecskeállapot és a szórási mátrixelem

Fejtsük ki most a  $\psi_a^+$  szórási állapotot valamennyi koordinátájában:  $r_\beta, \hat{r}_\beta, \xi_\beta$  -ban, a /8/-adta  $H$  teljes Hamilton-operátor sajátfüggvényei szerint. Ez a sorfejtés a  $\beta$  szeeparációnak megfelelő  $r_\beta \geq \varrho_\beta$  csatornatartományban ( $\varrho_\beta =$  csatornasugár) elvezet a szórási mátrixelem értelmezéséhez:

$$\psi_a^+(r_\beta, \hat{r}_\beta, \xi_\beta, E) = \sum_{b(\beta)} \frac{1}{r_\beta} [\delta_{ba} w_{l_b}^o(r_\beta, k_b) + T_{ba}(E) w_{l_b}^+(r_\beta, k_b)] Y_{l_b}^{l_b}(\hat{r}_\beta) X_{\varrho_b}^{B_{\beta b}}(\xi_\beta), \quad r_\beta \geq \varrho_\beta, \quad (11)$$

ahol  $\hbar^2 k_b^2 = 2m_\beta (E - \epsilon_b)$ .

Az összegezés a  $\beta$  szeeparáció minden nyitott és zárt csatornájára kiterjed.

A reakcióhullámfüggvénynek /7/ és /11/ formájában két előállítása van, és a  $\beta$  -csatornatartományban mindkettő érvényes. Ezért /7/ és /11/ egybevetésétől, a csatornaállapotok függetlenségének figyelembevételével az  $r_\beta \geq \varrho_\beta$  értékekre igaz:

$$R_{ba}^+(r_\beta, E) = \delta_{ba} w_{l_b}^o(r_\beta, k_b) + T_{ba}(E) w_{l_b}^+(r_\beta, k_b) \quad (12)$$

Eszerint, bármilyen bonyolult legyen is  $R_{ba}^+(r_\beta, E)$  viselkedése az  $r_\beta < \varrho_\beta$  belső tartományban, a  $\beta$  -csatornában azonossá válik a  $\psi_a^+$  radiális függésével és így itt szabad mozgást ír le. A  $T_{ba}(E)$  mátrix és az  $R_{ba}^+(r_\beta, E)$  ill.  $R_{ba}^{+(1)}(r_\beta, E)$  mátrixok közötti kapcsolat létesítése céljából írjuk fel a /12/ egyenletet és  $r_\beta$  szerinti deriváltját az  $r_\beta = \varrho_\beta$  csatornabejáraton:

$$R_{ba}^+(\varrho_\beta, E) = \delta_{ba} w_{l_b}^o(\varrho_\beta, k_b) + T_{ba}(E) w_{l_b}^+(\varrho_\beta, k_b); \quad (13)$$

$$R_{ba}^{+(1)}(\varrho_\beta, E) = \delta_{ba} w_{l_b}^{o(1)}(\varrho_\beta, k_b) + T_{ba}(E) w_{l_b}^{+(1)}(\varrho_\beta, k_b). \quad (14)$$

A /13/, /14/ egyenletpárból a  $T_{ba}(E)$  és a  $\delta_{ba}$  mennyiségeket kifejezve kapjuk:

$$T_{ba}(E) = \frac{w_{\varrho_\beta} \{R_{ba}^+(r_\beta, E), w_{l_b}^o(r_\beta, k_b)\}}{w_{\varrho_\beta} \{w_{l_b}^+(r_\beta, E), w_{l_b}^o(r_\beta, k_b)\}}, \quad (15)$$

$$\sigma_{ba} = \frac{W_{\rho\beta} \{R_{ba}^+(r_\beta, E); w_{ib}^+(r_\beta, k_b)\}}{W_{\rho\beta} \{w_{ib}^+(r_\beta, k_b); w_{ib}^0(r_\beta, k_b)\}}. \quad (16)$$

Az /16/ egyenlet  $b=a$  esetén az  $R_{ba}^+$  függvény normálását és  $b \neq a$  mellett tiszta kifutó aszimptotikáját juttatja kifejezésre. A /15/ egyenlet megadja a  $T_{ba}(E)$  szórási mátrix kifejezését az  $R_{ba}^+(r_\beta, E)$  és  $R_{ba}^{+(1)}(r_\beta, E)$  mátrixokkal.

Más megfogalmazásban azt is mondhatjuk: /15/ összekapcsolja a soktestprobléma minden  $T_{ba}(E)$  mátrixelemét egy-egy  $R_{ba}^+(r_\beta, E)$  egyrészecske-függvénnyel. Ez a kapcsolat emellett igen nevezetes formában létesült: A  $b=b(\beta) \neq a$  csatornában konstruált  $R_{ba}^0(r_\beta, E) \equiv w_{ib}^0(r_\beta, k_b) + R_{ba}^+$  rugalmas szórási egyrészecske-állapot rugalmas szórási mátrixeleme, /6/ és /15/ összevetése szerint, szerkezetileg és numerikusan megegyezik a soktestprobléma  $T_{ba}(E)$  mátrixelemével. Ezek szerint az  $a(\alpha)$  kezdőállapotból kifejlődő  $\Psi_a^+(r, E)$  szórási állapotnak a  $b(\beta)$  csatornaállapotok szerinti /7/ kifejtésével sorfejtési együtthatóként olyan  $R_{ba}^+(r_\beta, E)$  függvényeket definiáltunk, amelyeket ( $a, b(\beta)$  csatornában) egyrészecske-szórási állapotok szórt hullámaként felfogva, rugalmas szórási mátrixelemekként az  $a \rightarrow b$  átmenetekhez tartozó reakció-szórási mátrixelemet kapjuk vissza. Minden  $\{a, b\}$  csatornapárhoz egy-egy  $T_{ba}(E)$  szórási mátrixelem és  $R_{ba}^0(r_\beta, E)$  egyrészecskeállapot tartozik.

Ezek szerint, véges-hatótáv esetén, a soktestprobléma dinamikai szempontból az  $\{a, b\}$  kezdő és végcsatornapárok szerint parametrizált  $R_{ba}^0(r_\beta, E)$  egytestprobléma sereggel ekvivalens.

Ezzel az  $R_{ba}^0(r_\beta, E)$  függvényekben megtaláltuk a 2. szakaszban definiált effektív egyrészecskeállapotokat; egyúttal existenciájukat is bizonyítottuk. A soktestprobléma szórási mátrixelemei exakt meghatározását így elvben visszavezettük alkalmas egytestprobléma rugalmas szórási mátrixelemének kiszámítására.

#### 6. Az effektív egyrészecskeállapot explicit alakja

Az  $R_{ba}^+(r_\beta, E)$  függvényeknek /7/ definíciójából azonnal következik kapcsolatuk a  $\Psi_a^+$  szórási állapottal. A  $|b\rangle$  bázisrendszer ortho-normáltsága miatt minden  $r_\beta$  -ra igaz:

$$R_{ba}^+(r_\beta, E) = r_\beta \iint Y_{\lambda_b}^{*l_b}(\hat{r}_\beta) X_{\sigma_b}^{B_{5b}}(\xi_\beta) \Psi_a^+(r_\beta, \hat{r}_\beta, \xi_\beta) d\hat{r}_\beta d\xi_\beta. \quad (17)$$

A szórási mátrixelem kiszámításához azonban az  $R_{ba}^+(r_\beta, E)$  egyrészesce-keállapot meghatározására olyan eljárást keresünk, amely nem tételezi fel a  $H$  probléma előzetes megoldását, azaz  $\gamma_a^+(r, E)$  ismeretét.

7. Csatolt differenciálegyenletrendszer az  $R_{ba}^+(r_\beta, E)$  -k meghatározására

A reakcióállapot /9/ Schrödinger egyenlete a /7/ definíció alapján az  $R_{ba}^+(r_\beta, E)$  effektív egyrészesceállapot meghatározására a következő differenciálegyenlettel ekvivalens:

$$\sum_{b'(\beta)} \{K_b(r_\beta) + H_\beta(\xi_\beta) + V_\beta(r_\beta, \xi_\beta)\} \cdot \frac{1}{r_\beta} R_{ba}^+(r_\beta, E) \gamma_{\lambda_b}^{l_b'}(r_\beta) \chi_{\sigma_b}^{B_{s_b}'}(\xi_\beta) = 0 \quad (18)$$

A hullámgörvénynek baloldaltól  $\chi_{\sigma_b}^{*B_{s_b}''}$  -val való szorzása és a  $\xi_\beta$  - térben való integrálása esetén kapjuk:

$$\sum_{b'(\beta)} \{ \delta_{b'b} [K_\beta(r_\beta) + \epsilon_{b'} - E] + V_{b'b}(r_\beta) \} \cdot \frac{1}{r_\beta} R_{ba}^+(r_\beta, E) \gamma_{\lambda_b}^{l_b'}(r_\beta) = 0, \quad (19)$$

ahol

$$V_{b'b}(r_\beta) \equiv \int \chi_{\sigma_b}^{*B_{s_b}'}(\xi_\beta) V_\beta(r_\beta, \xi_\beta) \chi_{\sigma_b}^{B_{s_b}'}(\xi_\beta) d\xi_\beta. \quad (20)$$

A  $|b\rangle$  állapotok mindegyikére kapunk egy-egy /19/ szerkezetű egyenletet, és ezek összessége az  $R_{ba}^+(r_\beta, E)$  állapotoknak a  $|b\rangle$  változó mellettti segégre jelent csatolt differenciálegyenletrendszert.

Ezzel, adott  $|a\rangle$  kezdőállapothoz és a  $\beta$  végszeparációhoz tartozó összes  $R_{ba}^+(r_\beta, E)$  szimultán meghatározására közös differenciálegyenlet rendszerre jutottunk.

Kérdés, hogyan lehet ebből egyetlen  $R_{ba}^+$  -ra vonatkozó önálló differenciálegyenletet lezárni. A csatolt lineáris differenciálegyenletrendszerek megoldásának szokásos útját követve a /19/ egyenletrendszert írjuk fel két részletben; az  $R_{ba}^+$  meghatározása céljából a  $b=b$  egyenletet így írjuk: a

$$\phi_{ba}^+(r_\beta, E) \equiv \frac{1}{r_\beta} \psi_{ba}^+(r_\beta) Y_{\lambda_b}^{l_b}(r_\beta) \quad (21)$$

jelöléssel /19/-ből:

$$\{K_\beta + \epsilon_b - E + V_{bb}\} \phi_{ba}^+ = \sum_{b' \neq b} V_{bb'} \phi_{b'a}^+ \quad (22)$$

A  $b' \neq b$  differenciálegyenletek rendszere:

$$\sum_{b' \neq b} \{ \delta_{bb'} [K_\beta + \epsilon_b - E] + V_{bb'} \} \phi_{b'a}^+ = -V_{b'b} \phi_{ba}^+ \quad (23)$$

minden  $b' \neq b$  -re. Vezessük be most a  $|b\rangle$  elhagyásával kapott csonka függvénytérben a  $\underline{\Phi}_+^{ba}$  állapotvektort, a  $\underline{V}^b$  operátorvektort és a  $\underline{H}^b$  operátormátrixot:

$$(\underline{\Phi}_+^{ba})_{b'} \equiv \phi_{b'a}^+(r_\beta, E); \quad b' \neq b; \quad (24)$$

$$(\underline{V}^b)_{b'} \equiv V_{b'b}(r_\beta); \quad b' \neq b; \quad (25)$$

$$(\underline{H}^b)_{bb'} \equiv \delta_{bb'} K_\beta + V_{bb'}; \quad b', b' \neq b \quad (26)$$

Felhasználásukkal a /22/ és /23/ differenciálegyenletrendszer a

$$\{K_\beta + \epsilon_b - E + V_{bb}\} \phi_{ba}^+ = -\underline{V}^b \underline{\Phi}_+^{ba} \quad (27)$$

skaláregyenlettel és a

$$\{\underline{H}^b - (E - \epsilon_b)\} \underline{\Phi}_+^{ba} = -\underline{V}^b \phi_{ba}^+ \quad (28)$$

vektoregyenlettel lesz ekvivalens.

A feladat most az egyetlen  $\phi_{ba}^+$  egyrészecske függvényre vonatkozó független differenciálegyenlet felállítására. A /28/ egyenlet - megfelelő határfeltételek előírása mellett - alkalmas arra, hogy segítségével a  $\underline{\Phi}_+^{ba}$  állapotvektort  $\phi_{ba}^+$  útján előállítsuk és így /27/-ből kiküszöbölhessük. Mivel /12/ értelmében  $b \neq a$  esetén  $R_{ba}^+$  tisztán kitérítő jellegű, ezért a  $\underline{\Phi}_+^{ba}$  vektor minden komponense is ilyen és

$$\underline{\Phi}_+^{ba} = [\underline{H}^b - E + \epsilon_b + i\epsilon]^{-1} \underline{V}^b \phi_{ba}^+ \quad (30)$$

Most /27/, és /29/ kombinálásából a  $\phi_{ba}^+(r_\beta, E)$ -t meghatározó differenciál-  
egyenlet:

$$\{K_\beta - E + \varepsilon_b + V_{bb}\} \phi_{ba}^+ = -V^b [E - \varepsilon_b - \underline{H}^b + i\varepsilon]^{-1} V^b \phi_{ba}^+ . \quad (30)$$

Átrendezés után

$$\{K_\beta + V_{bb} + V^b [(E - \varepsilon_b) - \underline{H}^b + i\varepsilon]^{-1} V^b\} \phi_{ba}^+ = (E - \varepsilon_b) \phi_{ba}^+ \quad (31)$$

A  $\phi_{ba}^+(r_\beta, E)$ , az effektív egyrészecskeállapot szórt hulláma, esze-  
rint az energiafüggő

$$V_b(r_\beta, E) = V_{bb}(r_\beta) + V^b \frac{1}{(E - \varepsilon_b) - \underline{H}^b(r_\beta) + i\varepsilon} V^b(r_\beta) \quad (32)$$

"effektív potenciál"-hoz tartozó kifutó hullám a  $b(\beta)$  csatornában.

A  $\phi_{ba}^+$  meghatározására szolgáló /31/ differenciálegyenlet szer-  
kezete független  $|a\rangle$ -tól és így nyilván nem alkalmas  $\phi_{ba}^+$  teljes de-  
finiálására.  $\phi_{ba}^+$  határozatlansága onnan ered, hogy normálásáról eddig  
nem történt gondoskodás. Ez a normálás a /15/ szórás matrixelem kiszámi-  
tásakor döntő. A  $\phi_{ba}^+$  megfelelő normálására és  $|a\rangle$ -függésére egyszer-  
re jutunk el, ha a /16/-os normálási előírást a  $b=a$  -esetre alkalmaz-  
zuk:

$$\frac{W_{g_a} \{R_{aa}^+(r_a, E); w_{l_a}^o(r_a, k_a)\}}{W_{g_a} \{w_{l_a}^+(r_a, k_a); w_{l_a}^o(r_a, k_a)\}} = 1 \quad (33)$$

Ezek szerint a  $\phi_{ba}^+$  effektív egyrészecskeállapot a /31/ differenciál-  
egyenletnek  $b \neq a$  esetében tiszta kifutó jellegű megoldása a /33/ nor-  
málás és a /21/-es definíció mellett. Az eredeti soktestprobléma kiszámi-  
tani kívánt szórás matrixelemét az így nyert  $R_{ba}^+(r_\beta, E)$  radiális  
hullámfüggvénynek /15/-be történő behelyettesítésével kapjuk meg. Reak-  
ció és rugalmatlan szórás esetében ( $b \neq a$ ) egyszerűen

$$T_{ba}(E) = \frac{R_{ba}^+(g_\beta, E)}{w_{l_b}^+(g_\beta, k_b)} \quad (34)$$



## 7. Az effektív egyrészcsekepotenciál tulajdonságai

Az átrendeződékes magreakció effektív egyrészcsekepotenciálja szerkezetileg azonos a rugalmas szórás esetére Feshbach [1] által levezetett effektív potenciállal, amellyel így kvalitatív tulajdonságai is megegyeznek. Elegendő felsorolni a Feshbach dolgozatában igazolt néhány sajátosságát. A /32/-ben fellépő inverz operátor ekvivalens egy az energianevezőkkel súlyozott, projekciós operátorral a  $H^0(r, \beta)$  operátormátrix sajátfüggvényeinek terében. Innen azonnal következik, hogy az effektív egyrészcsekepotenciál nem-lokális. A /32/ elgállítás energianevezője mutatja, hogy az effektív potenciál komplex és energiafüggő. Egyszerűen belátható, hogy imaginárius része negatív definit. Végül, a valós és imaginárius részei diszperziós reláción keresztül kapcsolódnak egymáshoz.

## 9. Diszkusszió

A soktestprobléma reakciót leíró szórás matrixelemének az egytestprobléma rugalmas szórás matrixelemével analóg szerkezetét felismerve, a reakció  $a \rightarrow b$  részfolyamatainak rugalmas szórás folyamatokat feltethettünk meg. Ez a hozzárendelés akkor is elérhető volt, amikor a kezdő és végszeparáció különbözött egymástól. Az analóg rugalmas szórás folyamat a végszatomában zajlik le és ez első pillanatra aszimmetrikus jelenség. Megszűnik az aszimmetria akkor, ha - a reciprocitás elvének feltételezésével - a soktestprobléma szórás matrixelemének időtükrözött alakjából indulunk ki. Az így nyert analóg egyrészcseke-folyamat a beeső csatornában zajlik le.

Ezek szerint a reakció minden  $a \rightarrow b$  részfolyamatához akár a bemenő akár a kimenő csatornában egy-egy rugalmas szórás folyamatot és egy-egy effektív nem-lokális egyrészcsekepotenciált rendelhetünk úgy, hogy mindkét egyrészcseke-állapot szórás matrixeleme külön-külön is reprodukálja a soktestprobléma  $\{a, b\}$  csatornák közötti szórás matrixelemét. Az "egyrészcseke" - kifejezést a kötött állapotok problémáikájából kölcsönöztük: ha pontosak akarunk lenni, szórásproblémáknál a "kétrészcseke" - fogalmazást kell használnunk.

Meggondolásaainknak kettős eredetük van. A kiindulás, a szórás matrixelem fent levezetett kifejezése rokon azzal, amellyel Humblet és

Rosenfeld [2] ad meg; formulájuk azonban közvetlenül nem alkalmas a soktest - egytest analógia meglátására; a szórási mátrixot ezért módosított alakban állítottuk elő. A célkitűzés viszont rokon Feshbach [1] célkitűzésével, aki a soktestproblémát rugalmas folyamat esetére tárgyalta - heurisztikus módon - egytestproblémaként. Gondolatmenetünk igazolja Feshbach eljárását rugalmas szórással és általánosítja soktest probléma esetére.

Az  $R_{ba}^{\circ}(r_{\beta}, E)$  effektív egytestállapotfüggvény-sereg az  $R_{ba}^{\circ(l)}(r_{\beta}, E)$  deriváltakkal együtt a csatornabejáratokon egy tömegfüggő faktortól eltekintve numerikusan átmegegy a Wigner-Eisenbud-féle  $V_c$  és  $D_c$  mennyiségekbe és pontosan visszaadják a Humblet-Rosenfeld féle  $\phi_{c'c}$ ,  $\phi'_{c'c}$  numerikus radiális faktorokat. Gondolatmenetünk döntő mozzanata éppen az, hogy ezeknek a számszerű radiális tényezőknek értelmezését a csatornabejáratról kiterjesztette a belső és külső tartományokra is; ezzel a holt konstansokból az egész  $0 \leq r_{\beta} < \infty$  félegyenesen élő radiális hullámfüggvényekre, a keresett effektív egyrészesecskeállapotokra jutottunk.

A szórási mátrixelem numerikus kiszámítása céljától még megoldandó feladatként marad a /33/ által előírt normálás gyakorlati keresztülvitele. A szeparációk  $\beta \rightarrow \alpha$  transzformálása bonyolult feladatnak látszik.

- - - - -

Jelen dolgozat szerkesztőségi lektora Graff György volt; tragikus halála most már meggátol abban, hogy fáradságúért és az értékes diszkusszióért köszönetemet eljuttassam részére.

Lovas István több észrevételét a dolgozat végleges szövegében figyelembe vettük és értük köszönetet mondunk.

#### I r o d a l o m

- [ 1 ] Feshbach, H.: Ann. of Physics 5, 357 /1958/
- [ 2 ] Humblet, J., Rosenfeld, L.: Nuclear Physics 26, 529 /1961/
- [ 3 ] Wigner, E.P., Eisenbud, L.: Phys. Rev. 72, 29 /1947/

Érkezett: 1966. ápr. 15.

KFKI Közl. 14.évf. 4.szám, 1966.

## A BENZOL MOLEKULA ERŐÁLLANDÓINAK SZÁMITÁSA A MÁTRIX INVARIANCIA ELV ALAPJÁN

Irta: Szőke Sándor és Vizessy Mária

### Összefoglalás

A Mair-Hornig hozzárendelés alapulvételével olyan erőállandó sorozatot állítottunk elő, amely optimálisan alkalmas derivált benzol molekulák erőterének számítására. A [G] invariancia elvet több, az irodalomban ismert erőállandó sorozat ellenőrzésére alkalmaztuk.

A molekulát felépítő atomok elmozdulása során a vegyértékerők vagy csak irányukat tekintve deformálódnak, vagy nagyságuk is megváltozik. A potenciális energia leírására tehát két egymástól lényegesen eltérő jellegű mozgáslehetőség analízise kínálkozik. Energetikai szempontból a vegyértékerők megváltoztatása nagyobb hatásnak tulajdonítható, mint az egyszerű deformáció. Az utóbbi időben általánosan elfogadott elv vált az, hogy a kölcsönhatások kisebb energiaváltozásokkal legyenek jellemezhetők, mint az egyes kötés, vagy vegyértékszög koordináták értékének módosulásai [1].

A potenciális energia egyenletek értelmezése azon az alapon történik, hogy az összenergia értékeket frekvenciaértékekkel jellemezzük. A kinetikus energia komponens egyszerűen számítható, s a kialakult számítási formalizmus feladata a potenciális energia konstansok mátrixának előállítására szorítkozik. A potenciális energia kifejezés konstansai a szekuláris egyenletek sorba fejtése útján adhatók meg, feltéve, hogy elegendő frekvenciaadattal rendelkezünk a racionális számítás céljaira.

A benzolra vonatkozó erőállandó értékek számításában a legnagyobb nehézséget az asszignáció bizonytalan volta jelentette. Az Ingold, illetve a Mair-Hornig-féle  $B_{2u}$  besorolás például merőben különböző erőállandó sorozathoz vezet [2]. A  $B_{2u}$  reprezentációban a C-C kötéshez rendelt frekvenciaértékek annyira eltérő erőállandó értéket adnak, hogy a

szokásos orto, meta, para felbontás [3] egymásnak lényegesen ellentmondó adatokhoz vezet.

A dolgozat célja a legismertebb erőállandó számítási eredmények, s a felhasznált adatok összevetésén és ellenőrzésén túl, olyan erőállandó sorozat előállítás, amelyre a szubsztituensek számításánál támaszkodni lehet.

Mint ismeretes, a kísérleti  $\nu$  [cm<sup>-1</sup>] értékekből

$$\lambda_i [\text{sec}^{-2}] = 4\pi^2 c^2 \nu_i^2 = \nu_i^2 / 1,6975 \quad (1)$$

összefüggés alapján számítható  $\lambda_i$  energiaértékek elméleti uton az alábbi determináns, illetve a megfelelő polinom megoldásaiként adódnak;

$$\begin{bmatrix} \sum_n G_{1n} F_{n1}^{-\lambda} & \sum_n G_{1n} F_{n2} & \dots & \sum_n G_{1n} F_{nn} \\ \sum_n G_{2n} F_{n1} & \sum_n G_{2n} F_{n2}^{-\lambda} & \dots & \sum_n G_{2n} F_{nn} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \sum_n G_{nn} F_{n1} & \sum_n G_{nn} F_{n2} & \dots & \sum_n G_{nn} F_{nn}^{-\lambda} \end{bmatrix} = 0$$

A két mátrix közül /amelyek mátrixszorzataként a fenti determináns előállítható/ [G] a kinetikus, [F] pedig a potenciális energia egyenlet megfelelő elemeit tartalmazza. A szekuláris determinánst röviden [GF]-fel jelölve az alábbi összefüggés áll fenn a benzol normálrezgéseivel, illetve /1/ alapján azok energiaértékeivel:

$$[G] \cdot [F] = [GF] = \prod_{i=1}^n \lambda_i \quad (2)$$

ahol  $n$  a benzol adott szimmetriaspéciesében szereplő alaprezgések számát jelenti. Minthogy benzol esetében az alapállapotban lévő molekula geometriai viszonyai pontosan ismertek, [G] mátrixelemei az egyszerű modell molekulákban egyértelműen meghatározhatók, azonos számítási elvet feltételezve. Következésképpen [G] mátrix számértékének minden vonatkozó számítás esetén azonosnak kell lennie, akár megadják azt külön a szerzők, akár implicite foglaltatik benne eredményeikben.

Az I.-VI. táblázatokban a  $D_{6h}$  pontcsoport egyes specieseire különböző szerzők által megadott asszignációkat, spur- és determinánsértékeket, valamint a [F] mátrix determináns értékét adtuk meg. Csak az alap

és teljesen deuterizált benzol molekulára tértünk ki [ 4, 5, 6].

Az  $[F] = \sum f_{kl}$  mátrix összes különálló elemét megadó "f paraméter sorozat" számítása már elvileg is különböző meggondolásokból indulhat ki, gyakorlati kivitelezése pedig több szubjektív döntést tesz lehetővé. De az összértéknek /2/ alapján ki kell elégítenie az alábbi feltételt:

$$[F] = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \dots \lambda_n}{[G]}, \quad (3)$$

s így eltérő  $\lambda_j$  -ket eredményező asszignációk esetén különböző [F] értékeket kell kapnunk. A /3/ képletben szereplő [G] értékeket a VII. táblázatban ismertetett szimmetriakoordinátáknak megfelelően szerkesztett kinetikus mátrixelemek felhasználásával kaptuk /VIII. táblázat/.

Az I.-VI. táblázatokban közölt adatok alapján - tekintettel arra, hogy az [F] mátrix a deuterizált és az alapmolekula viszonylatában invariáns - lehetőség nyílik a valószínűtlen frekvenciaadatok, azaz a hibás asszignációk kiküszöbölésére. Részben saját felvételek, részben irodalmi adatok alapján [7] megadjuk saját asszignációnkat /IX. táblázat/, amelyhez a szimmetria koordináták felhasználásával felírtuk a potenciális energia egyenletet, s a szokásos módon kiszámítottuk az [F] mátrix elemeit [1, 3b, 5, 6].

Az elmondottak értelmében csak a Duinker-féle  $E_{2g}$  asszignációban találtunk kérdéses elemet. Saját számítási módszerünket viszont úgy alkalmaztuk, hogy az invariancia kritériumot tudatosan figyelembe vettük.

A kapott f-paraméter sorozat értékeit, a legismertebb szerzők eredményeivel összehasonlítva, a X. táblázatban ismertetjük.

A XI. táblázatban a Mair-Hornig asszignációnak megfelelő C-C vegyértékrezgés orto-, meta- és para-felbontását adjuk meg.

I. táblázat

A<sub>1g</sub> species

	Ingold		Brodersen-Langseth		Kakiuti	
	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>
$\nu_1$	992	943	993	945	985	948
$\nu_2$	3062	2293	3073	2303	3088	2267
$\lambda_1$	0,579	0,523	0,580	0,526	0,571	0,529
$\lambda_2$	5,523	3,097	5,563	3,144	5,617	3,027
$\Sigma \lambda_i$	6,102	3,620	6,143	3,670	6,188	3,556
$\pi \lambda_i$	3,198	1,620	3,227	1,654	3,207	1,601
[F] <sub>A<sub>1g</sub></sub>	38,857	39,320	39,210	40,145	38,967	38,859

II. táblázat

A<sub>2g</sub> species

	Ingold		Duinker		Kakiuti	
	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>
$\nu_3$	1326	1037	1350	1059	1354	1053
$\lambda_3$	1,035	0,633	1,073	0,661	1,080	0,653
[F] <sub>A<sub>2g</sub></sub>	0,824	0,833	0,854	0,871	0,860	0,860

III. táblázat

B<sub>1u</sub> species

	Ingold		Duinker		Kakiuti	
	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>
$\nu_{12}$	1010	963	1010	970	1005	965
$\nu_{13}$	3060	2290	3057	2285	3094	2277
$\lambda_{12}$	0,601	0,546	0,601	0,554	0,595	0,548
$\lambda_{13}$	5,516	3,089	5,505	3,075	5,639	3,054
$\Sigma \lambda_i$	6,117	3,635	6,106	3,629	6,234	3,602
$\bar{\pi} \lambda_i$	3,315	1,687	3,309	1,704	3,355	1,674
[F] <sub>B<sub>1u</sub></sub>	3,345	3,408	3,339	3,442	3,385	3,381

IV. táblázat

B<sub>2u</sub> species

	Ingold		Meir-Hornig		Kakiuti	
	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>
$\nu_{14}$	1648	1571	1309	1282	1577	1577
$\nu_{15}$	1110	825	1146	824	1203	851
$\lambda_{14}$	1,599	1,453	1,009	0,968	1,465	1,465
$\lambda_{15}$	0,725	0,400	0,773	0,399	0,852	0,426
$\Sigma \lambda_i$	2,324	1,853	1,782	1,367	2,317	1,891
$\bar{\pi} \lambda_i$	1,159	0,581	0,730	0,386	1,248	0,624
[F] <sub>B<sub>2u</sub></sub>	4,673	4,685	3,145	3,112	5,032	5,032

V. táblázat

$E_{1u}$  species

	Ingold		Duinker		Kakiuti	
	$C_6H_6$	$C_6D_6$	$C_6H_6$	$C_6D_6$	$C_6H_6$	$C_6D_6$
$\nu_{18}$	1037	813	1037	814	1054	810
$\nu_{19}$	1485	1333	1482	1333	1456	1342
$\nu_{20}$	3080	2294	3064	2282	3087	2262
$\lambda_{18}$	0,633	0,389	0,633	0,391	0,654	0,386
$\lambda_{19}$	1,299	1,046	1,295	1,048	1,248	1,060
$\lambda_{20}$	5,508	3,100	5,536	3,067	5,613	3,014
$\Sigma \lambda_i$	7,520	4,535	7,464	4,506	7,515	4,460
$\bar{\pi} \lambda_i$	4,595	1,261	4,6198	1,2569	4,581	1,233
$[F]_{E_{1u}}$	17,236	16,334	17,329	16,281	17,183	15,972

VI. táblázat

$E_{2g}$  species

	Ingold		Duinker		Kakiuti	
	$C_6H_6$	$C_6D_6$	$C_6H_6$	$C_6D_6$	$C_6H_6$	$C_6D_6$
$\nu_6$	606	577	606	594	601	582
$\nu_7$	3047	2265	3056	2282	3094	2268
$\nu_8$	1596	1552	1599	1580	1590	1571
$\nu_9$	1178	867	1178	1101	1189	846
$\lambda_6$	0,216	0,196	0,216	0,203	0,212	0,199
$\lambda_7$	5,469	3,022	5,501	3,067	5,639	3,030
$\lambda_8$	1,500	1,418	1,506	1,470	1,489	1,453
$\lambda_9$	0,817	0,442	0,817	0,714	0,832	0,421
$\Sigma \lambda_i$	8,002	5,073	8,040	5,459	8,161	5,103
$\bar{\pi} \lambda_i$	1,448	0,371	1,463	0,670	1,478	0,369
$[F]_{E_{2g}}$	17,637	18,098	17,10	32,880	18,002	18,000



VII. táblázat

A benzol sikrezgések szimmetriakoordinátái  
/VFSC = U x VFC transzformáció elemei/

Species	VFSC	koefficiensek; i =						N	VFC
		1	2	3	4	5	6		
A <sub>1g</sub>	s <sub>1</sub>	1	1	1	1	1	1	6 <sup>-1/2</sup>	t <sub>i</sub>
	s <sub>2</sub>	1	1	1	1	1	1	6 <sup>-1/2</sup>	s <sub>i</sub>
A <sub>2g</sub>	s <sub>3</sub>	1	1	1	1	1	1	6 <sup>-1/2</sup>	Rβ <sub>i</sub>
B <sub>1u</sub>	s <sub>12</sub>	1	-1	1	-1	1	-1	6 <sup>-1/2</sup>	Dα <sub>i</sub>
	s <sub>13</sub>	1	-1	1	-1	1	-1	6 <sup>-1/2</sup>	s <sub>i</sub>
B <sub>2u</sub>	s <sub>14</sub>	1	-1	1	-1	1	-1	6 <sup>-1/2</sup>	t <sub>i</sub>
	s <sub>15</sub>	1	-1	1	-1	1	-1	6 <sup>-1/2</sup>	Rβ <sub>i</sub>
E <sub>2g(a)</sub>	s <sub>6a</sub>	2	-1	-1	2	-1	-1	12 <sup>-1/2</sup>	Dα <sub>i</sub>
	s <sub>7a</sub>	2	-1	-1	2	-1	-1	12 <sup>-1/2</sup>	s <sub>i</sub>
	s <sub>8a</sub>	1	-2	1	1	-2	1	12 <sup>-1/2</sup>	t <sub>i</sub>
	s <sub>9a</sub>	0	1	-1	0	1	-1	2 <sup>-1</sup>	Rβ <sub>i</sub>
E <sub>2g(b)</sub>	s <sub>6b</sub>	0	-1	1	0	-1	1	2 <sup>-1</sup>	Dα <sub>i</sub>
	s <sub>7b</sub>	0	-1	1	0	-1	1	2 <sup>-1</sup>	s <sub>i</sub>
	s <sub>8b</sub>	-1	0	1	-1	0	1	2 <sup>-1</sup>	t <sub>i</sub>
	s <sub>9b</sub>	2	-1	-1	2	-1	-1	12 <sup>-1/2</sup>	Rβ <sub>i</sub>
E <sub>1u(a)</sub>	s <sub>18a</sub>	0	1	1	0	-1	-1	2 <sup>-1</sup>	Rβ <sub>i</sub>
	s <sub>19a</sub>	1	0	-1	-1	0	1	2 <sup>-1</sup>	t <sub>i</sub>
	s <sub>20a</sub>	2	1	-1	-2	-1	1	12 <sup>-1/2</sup>	s <sub>i</sub>
	s <sub>21a</sub>	2	1	-1	-2	-1	1	12 <sup>-1/2</sup>	Dα <sub>i</sub>
E <sub>1u(b)</sub>	s <sub>18b</sub>	2	1	-1	-2	-1	1	12 <sup>-1/2</sup>	Rβ <sub>i</sub>
	s <sub>19b</sub>	-1	-2	-1	1	2	1	12 <sup>-1/2</sup>	t <sub>i</sub>
	s <sub>20b</sub>	0	-1	-1	0	1	1	2 <sup>-1</sup>	s <sub>i</sub>
	s <sub>21b</sub>	0	-1	-1	0	1	1	2 <sup>-1</sup>	Dα <sub>i</sub>

VIII. táblázat

[G] mátrix-értékek az egyes specierekre

Species	[G]	
	benzol	benzol-d <sub>6</sub>
A <sub>1g</sub>	0,0823	0,0412
A <sub>2g</sub>	1,255	0,759
B <sub>1u</sub>	0,991	0,495
B <sub>2u</sub>	0,248	0,124
E <sub>2g</sub>	0,0821	0,0205
F <sub>1u</sub>	0,2666	0,0772

IX. táblázat

Species	Wilson f. je- lölés	$\nu_i$ [cm <sup>-1</sup> ]		$\lambda_i$		$\Sigma \lambda_i$		$\pi \lambda_i$		[F]	
		C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>6</sub> D <sub>6</sub>
A <sub>1g</sub>	$\nu_1$	992	948	0,579	0,529	6,102	3,556	3,198	1,601	38,857	38,859
	$\nu_2$	3062	2267	5,523	3,027						
A <sub>2g</sub>	$\nu_3$	1354	1053	1,080	0,653	-	-	-	-	0,860	0,860
B <sub>1u</sub>	$\nu_{12}$	1010	963	0,601	0,546	6,240	3,635	3,389	1,687	3,420	3,408
	$\nu_{13}$	3094	2290	5,639	3,089						
B <sub>2u</sub>	$\nu_{14}$	1309	1282	1,009	0,968	1,782	1,367	0,780	0,386	3,145	3,112
	$\nu_{15}$	1146	824	0,773	0,399						
E <sub>1u</sub>	$\nu_{18}$	1037	814	0,633	0,391	7,350	4,056	4,320	1,257	16,206	16,281
	$\nu_{19}$	1456	1333	1,248	1,048						
	$\nu_{20}$	3047	2282	5,469	3,067						
E <sub>2g</sub>	$\nu_6$	601	582	0,212	0,199	8,161	5,103	1,478	0,369	18,002	18,000
	$\nu_7$	3094	2268	5,639	3,030						
	$\nu_8$	1590	1571	1,489	1,453						
	$\nu_9$	1189	846	0,832	0,421						

X. táblázat

[F] mátrixelemek összefoglaló táblázata

Species	Szerző	tt	$\beta\beta$	$d\alpha$	ss	$t\beta$	$s\beta$	$t\alpha$	$s\alpha$	$\alpha\beta$	st
A <sub>1g</sub>	Whiffen	7,62			5,12						
	Crawford	7,83 (7,62)			5,00 (5,12)						-0,42(0)
	Duinker	7,546			5,125						0
	Kakiuti	7,442			5,300						0,800
	SAJAT	7,604			5,133						0,284
A <sub>2g</sub>	Whiffen		0,833								
	Crawford		0,83								
	Duinker		0,863								
	Kakiuti		0,860								
	SAJAT		0,854								
B <sub>1u</sub>	Whiffen			0,661	5,10						
	Crawford			0,667 (0,661)	5,00 (5,10)				0,106(0)		
	Duinker			0,664	5,125				-0,010		
	Kakiuti			0,645	5,300				-0,194		
	SAJAT			0,652	5,252				-0,100		
B <sub>2u</sub>	Whiffen	5,16 (5,94)	0,910 (0,822)			-0,13 (0,30)					
	Crawford	6,72 (4,99)	0,949			1,30 (-0,203)					
	Duinker	4,359	0,821			0,672					
	Kakiuti	6,198	0,860			0,542					
	SAJAT	4,316	0,837			-0,684					
E <sub>2g</sub>	Whiffen	5,78	0,851	0,846	5,02	0	0	-0,18	0	0,22	0
	Crawford	5,66	0,849	0,810	5,04	0	0	0	0	0,241	0
	Duinker	7,546	0,850	0,614	5,125	-0,582	0	0,316	-0,01	-0,073	0
	Kakiuti	6,509	0,860	0,645	5,300	-0,469	0	0	-0,194	0	0,400
	SAJAT	6,509	0,840	0,740	5,300	0,582	0	0	-0,194	0	0,400
E <sub>1u</sub>	Whiffen	3,67	0,914		5,15	0,127	0		0		
	Crawford	6,14 (3,92)	0,870		5,15	1,40 (0,139)	0		0		
	Duinker	3,483	0,952		5,125	0,186	0		0,007		
	Kakiuti	3,888	0,860		5,300	0,191	0		0,627		
	SAJAT	4,603	0,708		5,026	0,185	0		-0,039		

XI. táblázat

A vázvegyértékrezgés komponensei

$F_{tt}^1$	5,753
$F_{tt}^2$	0,104
$F_{tt}^3$	0,399
$F_{tt}^4$	0,846

I r o d a l o m

- [1] Whiffen, D.H.: Phil. Trans. Roy. Soc., 248, 131 /1955/  
[2] Ingold, C.K. et al.: J. Chem. Soc., 912 /1936/  
Mair, R.D. and Hornig, D.F.: J. Chem. Phys., 17, 1236 /1949/  
[3] Wilson, E.B., Decius, J.C. és Cross, C.: Molecular Vibrations -  
McGraw-Hill, 1955, New York  
Crawford, B.L. and Miller, F.A.: J. Chem. Phys. 17, 249 /1949/  
[4] Brodersen, S. and Langseth, A.: Mat. Fys. Skr. Dan. Vid. Selsk.,  
No. 1. /1956/  
[5] Kakiuti, Y.: J. Chem. Soc. Japan, Pure Chem. Sect., 75, 143 /1954/  
[6] Duinker, J.C.: Normal Coordinate Analysis of Molecules.  
Dissertation, Amsterdam 1964  
[7] Varsányi, G.: Vibrations of Polyatomic Molecules.  
Dissertation, Budapest 1960.

Érkezett: 1966. jan. 10.

KFKI Közl. 14.évf. 4.szám, 1956.



## DEUTEROETANOL ÉS ETANOL PÁROLGÁSHŐKÜLÖNBSÉGÉNEK SZÁMITÁSA SPEKTROSKÓPIAI ADATOKBÓL

Irta: Jancsó Gábor

### Összefoglalás

Infravörös spektroszkópiai adatok alapján, megfelelő közelítések alkalmazásával kiszámítottuk a deuterioetanol és etanol párolgáshői közötti különbséget  $25^{\circ}\text{C}$ -on. Az ily módon számított  $/142 \text{ cal/mol/}$  és a gőznyomásmérésekből adódó kísérleti érték  $/157 \pm 10 \text{ cal/mol/}$  közti egyezés kielégítő.

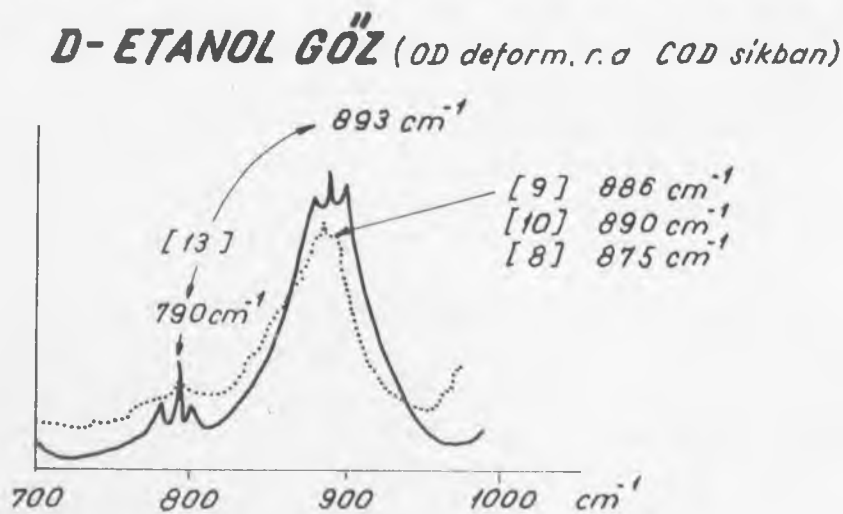
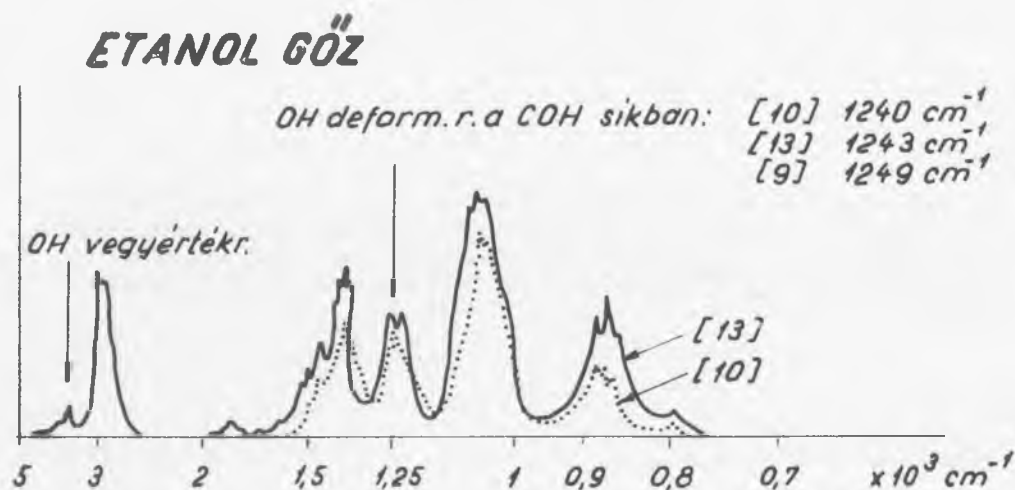
### Bevezetés

Alkoholok asszociációs viszonyainak tanulmányozásához értékes adatokat szolgáltathat a hidrogén és deutérium-kötés energiája közötti különbség megállapítása. Ennek egyik módja a *H* és *D* vegyületek gőznyomáskülönbségének meghatározása, amely adatokból a Clapeyron-Clausius egyenlet alapján kiszámítható az izotópalkoholok párolgáshőkülönbsége. Ez különböző alkoholok esetében  $25^{\circ}\text{C}$ -on  $100 \text{ cal/mol}$  nagyságrendűnek adódik [ 1, 2, 3, 4]. A hidroxilcsoport hidrogénjét deutériumra cserélve tehát, az alkoholok asszociációs energiája /azaz az asszociátum  $\rightleftharpoons$  monomer átalakulás energiája/ mintegy  $100 \text{ cal/mol}$ -al megnövekszik.

A másik módszer, a termodinamikai sajátságok számítása spektroszkópiai adatok alapján összetettebb molekulák esetében meglehetősen nehézbe ütközik. Leegyszerűsödik azonban a feladat, ha izotópvegyületek termodinamikai jellemzői közötti különbségeket kell meghatároznunk. Rabinovics [5] a  $\text{H}_2\text{O}$  és  $\text{D}_2\text{O}$ , ill.  $\text{CH}_3\text{OH}$  és  $\text{CH}_3\text{OD}$  párolgáshői közötti különbségeket számította ki e vegyületek infravörös spektruma alapján. A számított és kísérleti eredmények között elég jelentős eltérés adódott. Ugyanezen módszer alkalmazásával megismételtük a metanolra vonatkozó számításokat, és kiszámítottuk etanol és deuterioetanol párolgáshőinek különbségét is.

A számítási módszer és a felhasznált adatok

Az alkoholok asszociációs energiájának deutérium-szubsztitúcióra bekövetkező megváltozása első közelítésben a molekulák különböző rezgési és mozgási energiaértékeinek /szintjeinek/ eltolódására vezethető vissza. Ezekre a spektroszkópiai adatokból következtethetünk. Az alkoholoknak a számításokhoz szükséges infravörös spektroszkópiai adatai /folyadék és gőzfázisú/ csak hiányosan állnak rendelkezésre, és az egyes frekvenciák hozzárendelése a rezgési módokhoz sem egyértelmű minden szintkép esetében, kivéve a metanolt [ 6, 7].



1. ábra

A  $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$  és  $\text{C}_2\text{H}_5\text{OD}$  gőz infravörös spektrumainak összehasonlítása



A molekulamozgások közül azonban csak azokat vesszük számításba, amelyekben számottevő változást okozhat a deutériummal történő helyettesítés. Az irodalomban közölt spektrumok adatai [ 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14] között kisebb eltérések vannak, mint az az 1. ábrán bemutatott példából is látható. A számításokhoz kiválasztott, legmegbízhatóbbnak ítélt frekvenciaadatokat az 1. táblázat tartalmazza. Az adatokból látható, hogy

I. táblázat

Etanol és deuterietanol párolgáshőkülönbségének számításához felhasznált frekvenciaadatok

A rezgés fajtája	OH cm <sup>-1</sup>		OD cm <sup>-1</sup>	
	folyadék	gőz	folyadék	gőz
OH vegyértékrezgés	3330 [11]	3687 [14]	2475 [9]	2713 [9]
OH deformációs rezgés a COH síkban	1375 [8, 10]	1249 [8]	956 [8]	875 [8]
OH deformációs rezgés a COH síkon kívül	670 [10, 12]		475 [10, 12]	
O-H...O rezgés	170 [7]		165 [7]	

a deutériumos szubsztitúció során a hidroxilcsoport rezgéseinek /OH vegyértékrezgés, COH síkban deformációs rezgés, COH síkon kívüli deformációs rezgés, O-H...O rezgés/ frekvenciái csökkennek. Az is kitűnik, hogy az OH vegyértékrezgés frekvenciája asszociált állapotban lényegesen kisebb, mint monomer állapotban, másrészt a hidroxilcsoport COH síkban deformációs rezgésének /a hatom a COH síkban rezeg az -O-H kötésre merőlegesen/ frekvenciája valamivel nagyobb asszociált, mint monomer állapotban, és a különbség abszolút értéke kb. 1/3-a az OH vegyértékrezgés esetében kapottak.

Az összes alkoholok folyadékállapotban felvett infravörös spektruma 670 cm<sup>-1</sup> körül egy széles diffúz sávot mutat /deuteroalkohol eseté-

ben  $475 \text{ cm}^{-1}$ -nél/, melyet az OH csoport COH sikon kívüli deformációs rezgése idéz elő [12]. Ezen rezgés energiájának izotópeffektusa elég jelentős mértékű, mivel a rezgés alacsony frekvenciájú, és a deutériumos szubsztitúció során közel  $\sqrt{2}$ -ed részére csökken.

A hidrogénkötés rezgésének /O-H...O/ frekvenciája alkoholok esetében  $200 \text{ cm}^{-1}$  körül van, mely kb.  $5 \text{ cm}^{-1}$ -el csökken a deutériummal történő helyettesítés során.

A fenti rezgéseknek megfelelő energiát - a harmonikus oszcillátor közelítésben - a következő képlettel számoltuk:

$$E = RT \left\{ \frac{h\nu}{2kT} + \frac{\frac{h\nu}{kT}}{e^{\frac{h\nu}{kT}} - 1} \right\},$$

ahol  $E$  = a rezgés energiája;  $h$  = a Planck-állandó;  
 $k$  = a Boltzmann-állandó;  $T$  = az abszolút hőmérséklet;  
 $\nu$  = a rezgés frekvenciája.

Az állandók megfelelő értékeinek behelyettesítése után a következőt kapjuk:

$$E_{\text{cal/mol}} = 2,8592 \omega \left\{ 0,5 + \frac{1}{e^{2,8255 \cdot 10^{-4} \omega} - 1} \right\},$$

$\omega$  = a rezgés hullámszáma  $/\text{cm}^{-1}/$ . Az e képlet alapján  $T = 298^\circ\text{K}$ -ra számított energiaértékeket a 2. táblázatban foglaltuk össze.

Az alkoholmolekulák hidrogénkötések révén folyadékállapotban hosszú láncokká asszociálódnak, és az egyes molekulák a hidrogénkötések körül gátolt rezgéseket /librációt/ végeznek. Viz és nehézvizmolekulák esetében pl. a librációs frekvenciákban fennálló különbség  $/667 \text{ cm}^{-1}$ ,  $483 \text{ cm}^{-1}$  [15]/ a fő oka a  $\text{D}_2\text{O}$  molekulák asszociációs energiájának a  $\text{H}_2\text{O}$ -hoz viszonyított növekedésének  $/340 \text{ cal/mol}/$ . Metanol esetében a gátolt rezgések alacsony hőmérsékleten kísérletileg meghatározott frekvenciájából, alapul véve a  $\text{H}_2\text{O}$  és  $\text{D}_2\text{O}$  librációjának hőmérsékletfüggését [15, 16], Rabinovics kiszámította a  $\text{CH}_3\text{OH}$  és  $\text{CH}_3\text{OD}$  közti librációs energiakülönbséget, mely  $13 \text{ cal/mol}$ -nak adódott [5]. A mólsúly növekedtével csökken a libráció szerepe, és az etanol-deuteroetanol esetében a megfelelő különbséget  $10 \text{ cal/mol}$ -nak vehetjük.

Az alkoholok monomer állapotában a hidroxilcsoport gátolt rotációt végez a C-O tengely körül /ennek felel meg asszociált állapotban az OH csoport COH sikon kívüli deformációs rezgése/. A hidroxilcsoport hid-

2. táblázat

Etanol és deuterioetanol hidroxilcsoportja atomi rezgéseinek energiája /cal/mol/ 298°K-on

A rezgés fajtája	Gőz cal/mol			Folyadék cal/mol		
	$E_D$	$E_H$	$E_D - E_H$	$E_D$	$E_H$	$E_D - E_H$
OH vegyértékrezgés	3880	5271	-1391	3538	4761	-1223
OH deformációs rezgés a COH síkban	1288	1794	- 506	1395	1974	- 579
OH deformációs rezgés a COH síkon kívül				832	1036	- 204
O-H...O rezgés				624	626	-2
OH csoport gátolt rotációja			+ 29			
Alkoholmolekulák librációja						-10
$\Sigma$	5166	7065	-1868	6389	8397	-2018

rogénjét deutériummal helyettesítve az OH csoport tehetetlenségi nyomatéka nő, míg a szabad rotációt akadályozó potenciálgát magasságát változatlanak tekinthetjük. Bár etanol esetében az OH csoport forgásának potenciáaltere nem szimmetrikus [17, 18, 19], a potenciálgörbét szimmetrikusnak és a potenciálgát magasságát  $V_0 = 800$  cal/mol-nak véve a statisztikus számítások a kísérleti fajhőértékekkel és entrópiákkal megegyező eredményekhez vezetnek [20]. A hidroxilcsoport gátolt rotációjának energiáját Pitzer és Gwinn módszerével [21] számoltuk. E szerzőknek a gátolt rotáció energiaértékeit különböző paraméterek függvényében összefoglaló táblázatából /lásd pl. [22]/ kikerestük a megfelelő  $V_0/RT$  és  $1/Q_f$  -hez tartozó értékeket, ahol

$$Q_f = \frac{1}{n} \frac{(2\pi k T I_r)^{3/2}}{h} \cdot 2\pi$$

$Q_f$  = a pörgettyű állapotösszege szabad forgás esetén;  $n$  = a potenciálgörbe minimumainak száma;  $J_r$  = az OH csoport redukált tehetetlenségi nyomatéka.

A számításához felhasznált adatokat a 3. táblázat tartalmazza.

3. táblázat

A hidroxilcsoport gátolt rotációja energiájának számításához felhasznált adatok

	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OH	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OD
A potenciálgörbe minimumainak száma: $n$	3	3
Az OH /OD/ csoport redukált tehetetlenségi nyomatéka: $I_r$	$1,010 \cdot 10^{-40} \text{ gcm}^2$ [23]	$1,623 \cdot 10^{-40} \text{ gcm}^2$ [23]
A potenciálgát magassága: $V_o$	800 cal/mol [20]	800 cal/mol
$V_o/RT$	1,350	1,350
$1/Q_f$	0,619	0,488

A gátolt rotáció energiája etanol esetében 300 cal/mol, a deuteroetanol esetében 329 cal/mol.

A fenti különbségekhez még hozzájárul az izotópkoholok diszperziós kölcsönhatásának energiájában fellépő különbség. Az etanol párolgáshője [24] gőznyomásadataiból számolva 25°C-on 10206 cal/mol, melyből levonva egy mól gőz képződéséhez szükséges térfogati munkát  $RT/9614$  cal/mol-t kapunk. [25] számításai szerint a molekulák diszperziós kölcsönhatásának energiája ennek kb. 20%-a: 1923 cal/mol. Másrészt [26] szerint a diszperziós energiák hányadosa  $E_D/E_H = 0,9958$  etanol esetében, tehát a diszperziós energiában fellépő különbség -8 cal/mol.

Eredmények

Összegezve a figyelembevett különbségeket, azt kapjuk, hogy a deutériummal történő szubsztitúció következtében az etanol asszociációs

energiája 150 cal/mol-lal, párolgáshője pedig 142 cal/mol-lal nő 25°C-on. A rendelkezésre álló kísérleti gőznyomásadatokról [4] számítva a párolgáshőkülönbség 25°C-on 157  $\pm$  10 cal/mol-nak adódik.

Megismételtük a metanol-deuterometanolra vonatkozó számításokat, és Rabinovics adataival egyezően az asszociációs energia különbségre 82 cal/mol-t, a párolgáshőkülönbségre 77 cal/mol-t kaptunk, a kísérleti gőznyomásadatokról [4] számított párolgáshőkülönbség pedig 135  $\pm$  10 cal/mol. Itt tehát jelentős eltérés van a két meghatározás eredménye között. Először az OH csoport gátolt rotációjának potenciálgátjára vonatkozó értékek bizonytalansága okozhat jelentősebb hibát. Ugy látszik, hogy az etanol esetében a potenciálgátértékének becslése pontosabban sikerült. Így egyrészt ennek, másrészt feltehetően hasonló véletlennek tulajdonítható a spektroszkópiai és gőznyomás adatok alapján meghatározott párolgáshőkülönbségek jó egyezése.

Köszönetet mondok Kiss István laboratóriumvezetőnek értékes tanácsaiért.

#### I r o d a l o m

- [1] Beersmans, J., Jungers, J.C.: Bull. Soc. Chim. Belg. 56, 72 /1947/
- [2] Рабинович И.Б.: Успехи Хим. 31, 101 /1962/
- [3] Kiss I., Jákli Gy.: Dritte Arbeitstagung über stabile Isotope, Berlin 1963. Abh. d.D. Akademie d. Wissenschaften Kl. für Chemie Geologie und Biologie 1964, No. 7. 107
- [4] Kiss I., Jancsó G., Jákli Gy., Illy H.: Vierte Arbeitstagung über stabile Isotope Lipcse 1965
- [5] Рабинович И.Б.: Водородная связь. Эд. Соколов и Чулановский, Москва 1964. 50-73 стр.
- [6] Falk, M., Whalley, E.: J. Chem. Phys. 34, 1554 /1961/
- [7] Pimentel, G.C., Mc.Clellan, A.L.: The Hydrogen Bond, Freeman and C<sup>o</sup>, San Francisco and London 1960
- [8] Maclou, M., Henry, M.L.: Compt. Rend., 244, 1494 /1956/
- [9] Maclou, M., Corval, M.: J. Chim. Phys., 60, 1044 /1963/
- [10] Stuart, A.V., Sutherland, G.B.B.M.: J. Chem. Phys., 24, 559 /1956/
- [11] Quinan, J.R., Wiberley, S.E.: Anal. Chem., 26, 1762 /1954/
- [12] Stuart, A.V., Sutherland, G.B.B.M.: J. Chem. Phys. 20, 1977 /1952/
- [13] Tarte, P., Deponthiere, R.: Bull. Soc. Chim. Belg. 66, 525 /1957/

- [14] Plyler, E.K.: J. Research Natl. Bur. Standards, 48, 281 /1952/
- [15] Swain, C.G., Bader, R.F.W.: Tetrahedron, 10, 182 /1960/
- [16] Giguère, P.A., Harvey, K.B.: Canad. J. Chem., 34, 798 /1956/
- [17] Aston, J.G., Isserow, S., Szasz, J.G., Kennedy, R.M.: J. Chem. Phys., 12, 336 /1944/
- [18] Halford, J.O.: J. Chem. Phys., 17, 111 /1949/
- [19] Halford, J.O.: J. Chem. Phys., 18, 361 /1950/
- [20] Barrow, G.M.: J. Chem. Phys., 20, 1739 /1952/
- [21] Pitzer, K.S., Gwinn, W.D.: J. Chem. Phys., 10, 428 /1942/
- [22] Godnew, I.N.: Berechnung thermodynamischer Funktionen aus Moleküldaten, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften Berlin 1963
- [23] Ivash, E.V., Li, J.C.M., Pitzer, K.S.: J. Chem. Phys., 23, 1814 /1955/
- [24] Stull, D.R.: Ind. Eng. Chem., 39, 517-550 /1947/
- [25] London, F.: Uszp. Fiz. Nauk, 17, 421 /1937/
- [26] Рабинович, И.Б., Волохова З.В.: Д.А.Н., 122, 844 /1958/

Erkezett: 1966 márc. 14.

KFKI Közl. 14.évf. 4.szám, 1966.

## KNIGHT ELTOLÓDÁS RÉZ FÓLIÁKBAN

Irta: Tompa Kálmán

### Összefoglalás

{100} <001> texturájú réz fóliák mag mágneses rezonancia jelének Knight eltolódását mértük közvetlenül az <100>, <110> és <111> típusu kristálytani irányokban. Az eltolódás relatív értéke a kísérleti hibahatáron  $\pm 1 \cdot 10^{-5}$  belül független a kristálytani iránytól, értéke 0,232 %, megegyezik a por mintákon mért irodalmi értékkel.

### Bevezetés

Az atommagok és elektronok közti mágneses csatolás eredetére nézve kétféle lehet, vagy a kompenzálatlan spinű elektronok eredő mágneses momentumával, vagy a külső mágneses tér által indukált pályamomentummal való kölcsönhatásból származik. Mindkét esetben a rezonancia vonal eltolódását idézi elő. Az első típusu eltolódást - felfedezője után - Knight eltolódásnak, a másodikat pedig kémiai eltolódásnak nevezik. Mindkét eltolódás az atommagok helyén fellépő belső mágneses tér következménye. Dia- és paramágneses anyagokban az atommagok helyén lévő térerősségek átlagértéke csak külső mágneses tér alkalmazása esetén különbözik zérótól, és a külső tér térerősségével arányos.

A kémiai eltolódás eredete végeredményben ugyanaz mint a diamágnességé, és ugyanugy általános tulajdonsága minden elektront tartalmazó anyagnak, mint a diamágnesség. Az atommag helyén lévő térerősség  $H_0$  külső tér esetén:

$$H = H_0 (1 - \sigma) , \quad (1)$$

ahol a  $\sigma$  dimenziótlan mennyiség az árnyékolási állandó. Értéke protonok rezonancia spektrumában  $10^{-5}$  rendű, és a rendszám növekedésével nő. Tekintettel arra, hogy elektronok nélküli "csupasz" magok mag mágneses rezonancia /a továbbiakban MMR/ spektruma nem vehető fel, csak relatív kémiai eltolódás értékek mérhetők. A kémiai eltolódás hatását

szilárd testek MMR spektrumának kiértékelésénél - néhány esettől eltekintve - általában nem szokták figyelembe venni.

A továbbiakban kizárólag a kompenzálatlan spinű elektronok által, a mag helyén keltett mágneses tér kérdésével foglalkozunk [1].

Az elektron - magspin rendszer Hamilton operátora:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_e + \mathcal{H}_m + \mathcal{H}_{em} ,$$

ahol  $\mathcal{H}_m$  a különálló magspin rendszerre,  $\mathcal{H}_e$  a különálló elektronspin rendszerre és  $\mathcal{H}_{em}$  pedig a két rendszer kölcsönhatására vonatkozik. Ha nincs kölcsönhatás az elektronok és az atommagok között, úgy a magspin rendszer lehetséges energianívói a  $H_0$  külső térben lévő magok nivóinak felelnek meg, a nivók közti megengedett átmenetekhez tartozó körfrekvencia  $\omega_0 = \gamma_m H_0$  -lal, tehát a rezonancia jel eltolódása zéró.

Az atommagok között fellépő mágneses dipól-dipól kölcsönhatás következtében az egyes atommagok helyén lévő tér értéke különbözhet  $H_0$  -tól. Ez a lokális tér atommagtól atommagig változik és átlagértéke  $H_0$  [1], azaz a kölcsönhatás a rezonancia jel szélességét befolyásolja, de a jel középpontját nem tolja el. Eltolódásról csak abban az esetben beszélünk, ha mindenegyik atommag rezonanciája ugyanannyival tolódik el.

Ha az elektron mag kölcsönhatás nem zéró, a kompenzálatlan vezetési elektronok egy belső mágneses teret hoznak létre az atommag helyén és a térerősség értéke fémekben minden atommagnál ugyanakkora, tehát a vonalszélességhez nem ad járulékot, csak a rezonancia jel középpontját tolja el egy nemfémes referencia mintáéhoz viszonyítva.

Az elektronspin-magspin mágneses kölcsönhatás két részből tevődik össze, /lásd pl. [1] /

$$\mathcal{H}_{em} = \mathcal{H}_d + \mathcal{H}_s$$

ahol  $\mathcal{H}_d$  a jól ismert dipól-dipól kölcsönhatás, ami csak nem- $s$  -állapotú elektronok esetén ad járulékot az energiához, és  $\mathcal{H}_s$  járuléka pedig csak  $s$  -állapotú elektronokra különbözik zérótól. A  $\mathcal{H}_s$  Fermi-féle kontakt kölcsönhatás részletesen:

$$\mathcal{H}_s = \frac{8\pi}{3} \gamma_e \gamma_m \hbar^2 \sum_{j,k} (\mathcal{I}_k \bar{S}_j) \delta(r_{jk}) ,$$



ahol  $\delta_e$  ill.  $\delta_m$  az elektron, ill. mag giromágneses faktora,  $\hbar$  a  $2\pi$ -vel osztott Planck állandó,  $\bar{J}_k$ , ill.  $\bar{J}_j$ , a  $k$  mag, ill. a  $j$  elektronspin operátora és  $\sigma(\bar{r}_{jk})$  az  $\bar{r}_{jk}$  helyvektor  $\sigma$  függvénye.

A szokásos laboratóriumi terekben /  $\sim 10000$  oersted/ a mag elektron kölcsönhatás perturbációnak tekinthető a magok Zeeman energiája mellett, és a feladat az energiakorrekció kiszámítása, azaz

$$E_{em} = \int \psi^* \mathcal{H}_{em} \psi d\tau_e d\tau_m \quad (3)$$

az integrálás az elektron és magkoordinátákra történik, a hullámfüggvényt pedig az elektron és mag hullámfüggvények szorzataként állítjuk elő,  $\psi = \psi_e \psi_m$ . Méréseinknek megfelelően a magspin rendszer átmenetét vizsgáljuk  $\psi_m$  állapotból  $\psi_{m'}$  állapotba és feltételezzük, hogy azok az átmenetek az elektronspin rendszer  $\psi_e$  állapotait változatlanul hagyják. Csak az elektronspin koordinátákra integrálva /3/-ban olyan kifejezésre jutunk, amely az atommag helyén lévő effektív mágneses térerősség definíciójául szolgál, e kifejezésben a magkoordináták mint operátorok szerepelnek, tehát a feladat a

$$H_{em} = \int \psi^* \mathcal{H}_{em} \psi_e d\tau_e, \quad (4)$$

integrál kiszámítása.

Legyen az integrálban szereplő  $\psi_e$  hullámfüggvény a spin koordinátával kiegészített Bloch függvények szorzatából álló antiszimmetrikus sokelektron-hullámfüggvény, és vizsgáljuk a kollektivizált elektronok által közvetlenül keltett lokális tér kérdését. Foglalkozunk  $s$ -állapotú vezetési elektronokkal. A dipól-dipól kölcsönhatás hozzájárulása /4/-hez  $s$ -állapotú elektronokra zéró és hatása csak alacsonyabb szimmetriák esetén van.  $H_{em}$  állandó  $z$  irányu mágneses térbe helyezve a mintát a  $k$  mag hozzájárulása /4/-hez

$$-\gamma_m \hbar J_{zk} \left[ \frac{8\pi}{3} \langle |U(0)|^2 \rangle_F x_e^s H_{0m} \right], \quad (5)$$

ahol  $\langle |U(0)|^2 \rangle_F$ : a Fermi felületnél lévő elektron állapotokra átlagolt vezetési elektron sűrűség az atommag helyén, és  $x_e^s$  az egy atomra eső Pauli-szuszeptibilitás.

A hozzájárulás

$$\Delta H = \frac{8\pi}{3} \langle |U(0)|^2 \rangle_F x_e^s H_{0m}$$

extra mágneses térerősséggel ekvivalens /mert itt a Hamilton operátor  $-\gamma_m \hbar J_{zk} \Delta H$  alakú/.  $\Delta H$  független a mag  $k$  indexétől, tehát minden magra ugyanaz. A vezetési elektronok polarizációja következtében fellépő effektív térerősség relatív értékét nevezik Knight eltoló-

dásnak, tehát:

$$K = \frac{\Delta H}{H_{om}} = \frac{8\pi}{3} \langle |U(o)|^2 \rangle_F x_e^j \quad (6.a)$$

Amennyiben nem- $s$  hullámfüggvényekkel leírható, anizotróp elektron eloszlás esetén a dipól-dipól kölcsönhatás is hozzájárul a Knight eltolódáshoz, úgy az eltolódás anizotrópiáját vonja maga után [2].

A vázolt elmélet csak a vezetési elektronok által közvetlenül keltett tér hatását veszi figyelembe. A mágneses anyagokon végzett "belső - tér" vizsgálatok, valamint az átmeneti fémek és ötvözeteik Knight eltolódásának a vizsgálata hívta fel a figyelmet a "kicserélődési polarizációs", vagy más néven "törzspolarizációs" effektusnak az atommag helyén lévő térerősség kialakításában játszott szerepére. A törzspolarizáció lényeges szerepet játszik még az olyan egyszerű elektron strukturájú fémek Knight eltolódásának a kialakításában is, mint a  $Li$  és  $Na$  [3a]. A törzspolarizáció  $Li$  -nál 31 %,  $Na$  -nál 5,5 % járulékot ad a Knight eltolódáshoz.

A rézre vonatkozó számításokról [3b] -ben található említést. Ennek megfelelően a kicserélődési polarizációt is figyelembe véve, a Knight eltolódás a következő lesz:

$$\frac{\Delta H}{H_{om}} = \frac{8\pi}{3} x_e^j \langle |U(o)|^2 \rangle_F (1 + R_s) \quad (6.b)$$

Az összefüggés fizikailag nagyon jól érthető, hisz a belső  $s$  héjak polarizációját ugyanazok a kompenzálatlan spinű elektronok keltik, amelyek közvetlenül is kölcsönhatnak a maggal.  $R_s$  numerikus értékét azonban nem közlik a szerzők.

Tekintettel arra, hogy mérésünk célja a Knight eltolódás irányfüggésének közvetlen kísérleti meghatározása köbös fémekben, azért nem térünk ki az abszolútértékekkel kapcsolatos kérdésekre [4], és megelégszünk azzal, hogy /6/ összefüggés kvalitatíve jól írja le a Knight eltolódás jellegzetes tulajdonságait.

#### A korábbi kísérleti eredmények összefoglalása

Fémeknél a kísérletileg meghatározott mag mágneses rezonancia /MMR/ jel csak abban az esetben arányos az abszorpciós móduddal, ha a minta egy karakterisztikus dimenziója kisebb a szkinmélységnél. Ellenkező esetben a kapott MMR jel az abszorpció és diszperzió módusok

keveréke, és a regisztrált derivált jel középső zéró pontja eltolódik a szkin effektus következtében. Ezt az eltolódást ösvényáram-eltolódásnak nevezik [5]. Az irodalomban található mérések zömét pormintákon végezték, amelyek a vékony - a szkinmélységnél kisebb vastagságú - minták közül technikailag a legkönnyebben állíthatók elő. A pormintákon természetesen semmiféle irányfüggést nem vizsgálhattak.

Vékony fehér ón egykristályon Jones E.P. és tsai. [6] végeztek méréseket és a Knight eltolódást anizotrópnak találták.

Köbös szimmetriájú réz és alumínium egykristályokon csak vastag mintán végeztek méréseket [7]. A mérési eredmények közvetlenül nem a Knight eltolódás értékét adják, hanem a Knight eltolódás és az örvényárameltolódás összegét. Az általuk kidolgozott, a Kramers-Kronig összefüggéseken alapuló eljárás alapján numerikus módszerrel meghatározható a tiszta abszorpciós görbe és a Knight eltolódás a kísérleti görbéből. Eredményeik szerint az örvényáram eltolódás a Knight eltolódással ellentétes irányú és anizotróp, ugyanakkor a Knight eltolódás független a mágneses térerősségnek a kristálytani irányokhoz viszonyított helyzetétől.

Az irodalomban található mérési eredményeket az I. táblázatban foglaltuk össze.

I. táblázat

<sup>63</sup>Cu izotóp Knight eltolódása

Porminták			Hőmérs.	Ref. minta	Szerző. Ford.
0,252	%		szoba	CuCl	Knight [4]
0,237±0,001	%		"	CuBr	Gutowsky [8] <sup>+</sup>
0,232	%	++	"	CuCl	Benedek [9]
0,228	%		1,5 K <sup>0</sup>	-	Kobayashi [10]
0,234±0,001	%		"	CuCl	Sagalyu [7]
Vastag egykristály			"	CuCl	Sagalyu [7]
H <sub>0</sub>    <001>	H <sub>0</sub>    <110>	H <sub>0</sub>    <111>			
0,232±0,003	0,234±0,003	0,234±0,003			
%	%	%			

<sup>+</sup>Gutowsky [8] szerint a <sup>63</sup>Cu izotóp Knight eltolódása 0,23%.

<sup>++</sup>az ábrán alapján becsült négyzetes középhiba ± 3·10<sup>-6</sup>

### Anyagminta és mérési eredmények

Mérésünk célja a Knight eltolódás közvetlen mérése vékony mintákon különböző kristálytani irányokban. Feltételeztük, hogy a kockatexturás rézben [11] a rezonanciához járuló atommagok helyén a mágneses tér értéke ugyanaz, mint valódi egykristályokban. Az általunk használt {100} <001> texturájú lemezekben a krisztallitok elhelyezkedése nagyon jó közelítéssel azonos, továbbá feltételezzük, hogy a szemcsehatárokon lévő atommagok a kvadrupól effektus következtében a rezonanciához nem járulnak hozzá.

A mérés egy diamágneses só vagy oldat azonos izotópjának rezonancia jeléhez viszonyítva történik. Az azonos frekvencián, a mágneses térerősség lineáris változtatásával felvett referencia jel  $H_{or}$  a fém rezonancia jele pedig  $H_{om}$  térben jelenik meg. A rezonancia feltétel, valamint /1/ és /6/ összefüggések felhasználásával írhatjuk a fém, ill. referencia mintákra:

$$\omega_0 = \gamma_m H_{om} (1 + K - \sigma_m) ,$$

illetve

$$\omega_0 = \gamma_m H_{or} (1 - \sigma_r) ,$$

ahol  $\sigma_m$  a fém és  $\sigma_r$  a referencia minta árnyékolási állandója. Az összefüggések alapján

$$\frac{H_{or} - H_{om}}{H_{om}} = K + \frac{H_{or}}{H_{om}} \sigma_r - \sigma_m .$$

Feltételezve, hogy az árnyékolási állandó értéke mindkét mintában azonos, és figyelembe véve, hogy réz esetén  $5 \cdot 10^3$  oerstedes térben  $H_{or}/H_{om} \approx 1,002$ , az összefüggés közelítőleg a következő

$$\frac{H_{or} - H_{om}}{H_{om}} = \frac{\delta H}{H_{om}} \approx K .$$

Az irodalomban elterjedt /pl. [4]; [12]/ kiértékelési utasítás szerint viszont /ugyanolyan közelítés mellett/

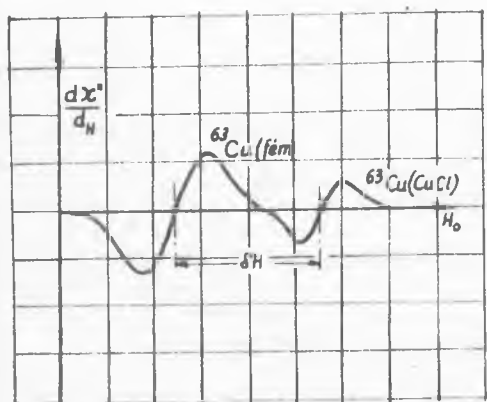
$$\frac{\delta H}{H_{or}} \approx \frac{H_{om}}{H_{or}} K ,$$

tehát a tényleges  $K$  -nál kisebb érték adódik. A kísérletileg meghatározható relativ eltolódás kétféle értéke az utolsó számjegyben különbözik.

Méréseinket [11]-ben leírt fólia-rakás típusu mintákon végeztünk. A minta a rádiófrekvenciás térrel párhuzamos, az állandó mágneses térre

merőleges tengely körül forgatható volt. A minták kb. 80 db, csillámmal szigetelt réz fóliát tartalmaztak. A  $\sim 15 \mu$  vastag fóliákat hideg hengerléssel /99,9 % vastagság csökkenés/ és vákuum hőkezeléssel /500 C°; 20 óra;  $\sim 10^{-5}$  Hgmm/ állítottuk elő. A fóliák texturája {100} <001> típusu un. kockatextura volt. A szkineffektus következtében fellépő jel-torzulás  $\sim 4$  %.

Referencia mintának poralaku CuCl-t használtunk. Tipikus jel-pár látható az 1. ábrán.



1. ábra

$^{63}\text{Cu}$  izotóp MMR jele fém- és CuCl-ben a mágneses térerősség függvényében

iránnyal esik egybe. A normális és a  $H_0$  tér által bezárt szöveget  $\theta$ -val jelölve a  $\kappa = 0^\circ$  és  $90^\circ$ -os mintákon  $\theta = 45^\circ$ -nál és a  $\kappa = 45^\circ$ -os mintán  $\theta = 90^\circ$ -nál az állandó mágneses tér egy <110> típusu iránnyal, a  $\kappa = 0^\circ$  és  $90^\circ$ -os mintákon  $\theta = 90^\circ$ -nál egy <100> típusu iránnyal és végül a  $\kappa = 45^\circ$ -os mintán  $\theta = 54^\circ 40'$ -nél egy <111> típusu iránnyal párhuzamos közelítőleg. A ponti szögeknél végezve méréseket, a következő eredményeket kaptuk /II. táblázat/.

II. táblázat

$^{63}\text{Cu}$  izotóp Knight eltolódása<sup>+</sup>

Irány	$H_0 \parallel \langle 100 \rangle$	$H_0 \parallel \langle 110 \rangle$	$H_0 \parallel \langle 111 \rangle$
$\frac{\delta H}{H_{0m}} \text{ [%]}$	0,252 $\pm 0,001$	0,251 $\pm 0,001$	0,251 $\pm 0,001$

<sup>+</sup> A  $^{65}\text{Cu}$  izotóp Knight eltolódása a mérési hibán belül azonos a  $^{63}\text{Cu}$  izotópéval

A közvetlenül mért eltolódás tehát független az orientációtól, és nagysága a kísérleti hibahatáron belül az irodalmi eredményekkel egyezik.

### Köszönetnyilvánítás

Köszönet illeti Konczos Géza tudományos munkatársat és Csoportját, valamint Antonighel Tibort az anyagminták és mintatartók elkészítéséért. Bánki Péternek a mérések elvégzésében és a kiértékelésben nyújtott segítségéért mondunk köszönetet.

### I r o d a l o m

- [1] Slichter, C.P. : Principles of Magnetic Resonance, Harper and Row, 1963
- [2] Abragam, A.: Principles of Nuclear Magnetism, Oxford, 1961
- [3a] Cohen, M.H., Goodings, D.A., Heine V.: Proc. Phys. Soc. 73, 811 /1959/
- [3b] Freeman, A.J., Watson, R.E.: Bull. Am. Phys. Soc. 6, 105 /1961/
- [4] Knight, W.D.: Solid State Physics 2, 93 /1956/
- [5] Chapman, A.C., Rhodes, P., Seymour, E.F.W.: Phys. Soc. B. 70, 345 /1957/
- [6] Jones, E.P., Williams, D.L.: Phys. Letters 1, 109 /1962/
- [7] Sagalyn, P.L., Hofman, J.A.: Phys. Rev. 127, 62 /1962/
- [8] Gutowsky, H.S., McGarvey, B.R. : J. Chem. Phys. 20, 1472 /1952/
- [9] Benedek, G.B., Kushida, T.: J. Phys. Chem. Solids 2, 241 /1948/
- [10] Kobayashi, S., Asayama, K., Itoh, J.: J. Phys. Soc. Japan 18, 1735 /1963/
- [11] Tompa K., Tóth F.: KFKI Közlemények 11, 216 /1963/  
Phys. Stat.Sol. 7, 547 /1964/
- [12] Rowland, T.J.: Progress in Materials Science 9, 1 /1961/

Erkezett: 1966. jan. 18.

KFKI Közl. 13.évf. 4.szám, 1966.

MIKROSZERVEZETEK A CSILLEBÉRCI ATOMREAKTOR SUGÁRZÁSOKNAK  
KITEJT VIZKÖREIBEN

Irta: Hortobágyi Tibor<sup>\*</sup>/ és Vigassy József

Összefoglalás

Élő mikroorganizmusokat mutatunk ki a 2,5 MW teljesítményű csillebéri kísérleti atomreaktor besugárzott vizeiben: a szekunder körben, a primer körben, valamint a kiegészítő fűtőelemek tárolására szolgáló tartály vizében. Leírunk négy kimutatott mikroorganizmust és jellemezzük életkörülményeiket. Feltűnő, hogy a primer kör vizében is sikerült kimutatni egy kékalgát.

Bevezetés

Az atomreaktorok és atomerőművek megjelenésével új típusú mesterséges környezet jelent meg, melynek élővilágát elméleti és gyakorlati szempontokból egyaránt kívánatos tanulmányozni. Ennek a környezetnek a kialakításában döntő szerepük van a nagy intenzitású nukleáris sugárzásoknak, elsősorban a gamma-és neutronsugárzásnak. Arra már számos vizsgálat történt, hogy egyes élőlények milyen mértékben viselik el a sugárzásokat. Így pl. L.M. Shields, L.W. Dürrell és A.H. Sparrow a nevadai kísérleti telep talajaiból izolált algák és gombák sugártűrését tanulmányozta. A különböző sugárkezelések a növény-nemesítői gyakorlatban is közismertek /új és jobb minőségű fajták, betegségekkel szembeni ellenállás fokozása/. Az atomrobbantások sugárhatásait is régtől vizsgálják.

Viszont kevés szerző foglalkozott az atomreaktorok vizköreinek élővilágával. E.B. Fowler, C.W. Christenson, E.T. Jurney és W.D. Schafer dolgozata *Pseudomonas* baktériumok anomális elszaporodását írja le az Omega West Reactor vizében.

---

<sup>\*</sup>/ Agrártudományi Egyetem, Gödöllő

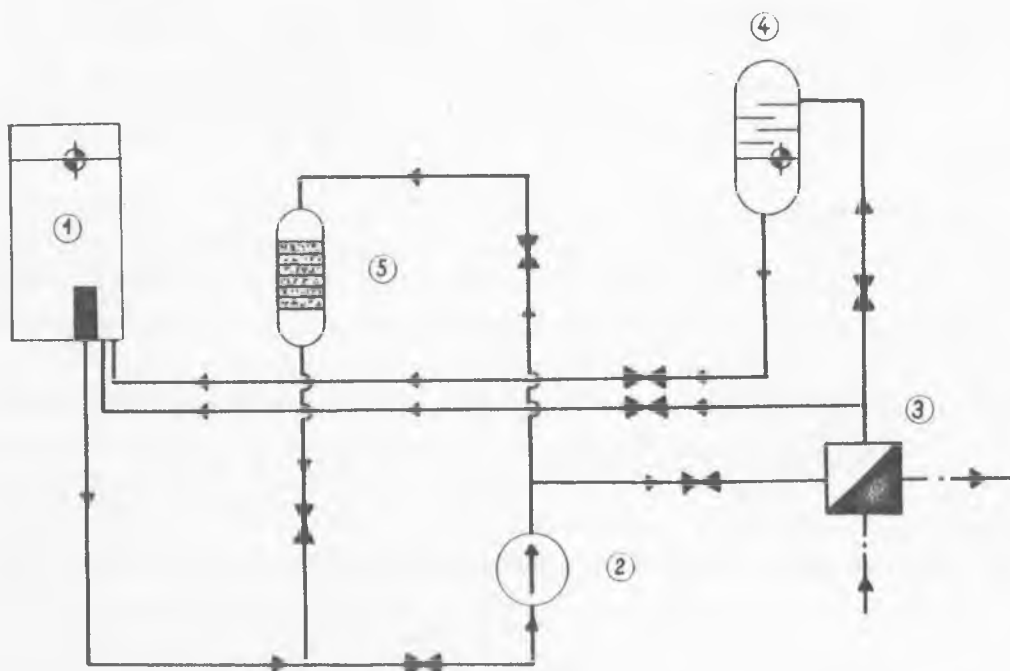
A következőkben hazánkban először közlünk adatokat arra vonatkozóan, hogy milyen mikroszervezetek honosodtak meg egy atomreaktor különböző módon besugárzott vízkörében. Először röviden leírjuk a csillebéri atomreaktor vízkörének fizikai, sugárfizikai és kémiai viszonyait, majd megadjuk a kimutatott és azonosított szervezeteket.

### Környezeti viszonyok

#### a/ Primer kör

Az atomreaktor hűtését két vízkör végzi. A primer kör vize átfolyik az uránt tartalmazó reaktorzónán, és az itt üzem közben fejlődő 2,5 MW hő a közbenső hőcserélőbe /továbbiakban: hőcserélőbe/ szállítja. A hőcserélőben a hő a szekunder kör vizébe jut. A szekunder kör vizét a hűtőtoronyban szabad levegő hűti.

A primer kör főbb berendezéseit az 1. ábrán láthatjuk.



1. ábra

A primer kör egyszerűsített vázlata  
1/ reaktortartály 2/ szivattyúház 3/ hőcserélő  
4/ gáztalanító 5/ ioncserélő szűrő  
☒ - szelep    ⊕ = víznívó

Az /1/ reaktortartályban helyezkedik el a reaktor. A reaktornak az a környezete, amelyben legintenzívebb a sugárzás, mintegy  $0,5 \text{ m}^3$ -re tehető.



A primer kör vizét 3 szivattyú, összesen  $1000 \text{ m}^3/\text{ó}$  teljesítménnyel tartja körforgásban. A víz nagy része a szivattyúból a hőcserélőbe /3/ jut. A hőcserélő primer oldalán kisebb a nyomás, mint a szekunder oldalon, így a szekunder kör vize meghibásodás esetén betörhet a primer körbe, primer víz azonban semmi esetre sem juthat ki. A gáztalanítóba /4/ az áramló primer víznek csak egy kis hányada kerül, ahol a gáztalanítást ellenáramoltatott közönséges levegő végzi. Az ioncserélő /5/ szűrő /Destionex, typ-AAK-5, félautomatikus,  $500 \text{ l}/\text{ó}$  teljesítménnyel/ időszakosan üzemel.

A primer víz hőmérséklete üzem közben kb.  $28^\circ\text{C}$ , üzemszünetben kb.  $24^\circ\text{C}$ . A víz pH-ja az alumíniumkorrózió szempontjából legelőnyösebb, kissé savanyu  $5,0$  érték körül van. A primer víz összmenyisége kb.  $25 \text{ m}^3$ . Minőségileg kétszer desztillált víz, melynek sótartalmát ioncserélő szűrők segítségével tartják a megkívánt szinten. Szűrés előtt a víz vezetőképessége nem haladhatja meg a  $10 \text{ } \mu\text{S}$  értéket. Szűrés után  $1-2 \text{ } \mu\text{S}$ -sel kell számolni. A mintavétel időpontjában  $7,9 \text{ } \mu\text{S}$ -et mértek. Ezek az értékek  $2-8 \text{ ppm}$  sótartalomnak felelnek meg.

Élő szervezetek a primer körbe a gáztalanítón, a reaktortartály felszínén, vagy az esetleg meghibásodott hőcserélőn keresztül kerülhetnek.

Üzem közben a primer körben rendkívül nagy sugárszintek lépnek fel. A zóna neutronsugárzása következtében a primer víz, a benne oldott levegő nitrogénje és a minimális mennyiségben oldott sók aktiválódnak, és így maga a primer víz is erősen sugároz. A reaktor legaktívabb környezetében a neutronsugárzás fluxusa  $10^{13} \text{ n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$  nagyságrendű, a gamma-sugárzás dózis-intenzitása kb.  $2 \times 10^8 \text{ R}/\text{ó}$ . Ezen túlmenően még intenzív beta sugárzással is lehet számolni. Másodlagos jelenség az u.n. Cserenkov-sugárzás, amelyet a reaktor erős beta sugárzása kelt. Kékes színű fénynek tekinthetjük. A víz aktivitása miatt sehol sem csökken a sugárzási szint a primer körben  $10 \text{ R}/\text{ó}$  alá. A kör felépítése következtében a primer víz rendkívül kis hányada kerülheti el azt, hogy minden  $1,5$  percen át ne haladjon az aktív zónán.

Üzemszünet alatt a primer kör vize áll, fajlagos aktivitása  $2-3 \times 10^{-7} \text{ C}/\text{l}$ . A leállítás után  $1\frac{1}{2}$  nappal az  $50 \text{ cm}^3$ -es minta felszínén a sugárintenzitás kb.  $0,5 \text{ mR}/\text{ó}$  volt. A zóna sugárzása ilyenkor kb.  $10^5 \text{ R}/\text{ó}$  erősségű.

#### b/ Szekunder kör

A szekunder kör vize a hőcserélőben veszi fel a primer kör felől jövő hőt, egyszersmind itt kerül a legradioaktívabb környezetbe. Te-

kintettel arra, hogy az itteni sugárzás csaknem kizárólag gamma sugárakból áll, a szekunder víz aktiválódásával nem kell számolni. A szekunder körben mintegy  $250 \text{ m}^3$  sótalanított vizet találunk, amelyből kb.  $4 \text{ m}^3$  van a hőcserélőben. A sugárzás intenzitása itt nagyságrendben  $10 \text{ R/ó}$ .

A hőcserélőből a szekunder víz a mesterséges cirkulációju hűtőtoronyba jut, ahol a  $36 \text{ 000 m}^3/\text{ó}$  ellenáramlásban lévő külső levegő hűti. Időjárástól függően jelentős csepp- és párolgási veszteség léphet fel, amit vízvezetéki vízből ioncserélő szűrőkkel sótalanított vízzel folyamatosan pótolnak. Átlagosan itt  $400 \text{ m}^3/\text{hét}$  mennyiségről van szó. A hűtőtorony alatt  $150 \text{ m}^3$  ürtartalmu vízmedence található. Ide csepeg a toronyban lehűlt víz. A medencébe a szél jelentős mennyiségű falevelet is hordott. Az itt lévő szabad vízfelszínen keresztül igen sokféle organizmus juthat be a szekunder körbe.

A medencéből a szekunder kör szivattyutelepe  $350 \text{ m}^3/\text{ó}$  vízmenyiséget hajt üzem közben a hőcserélőbe.

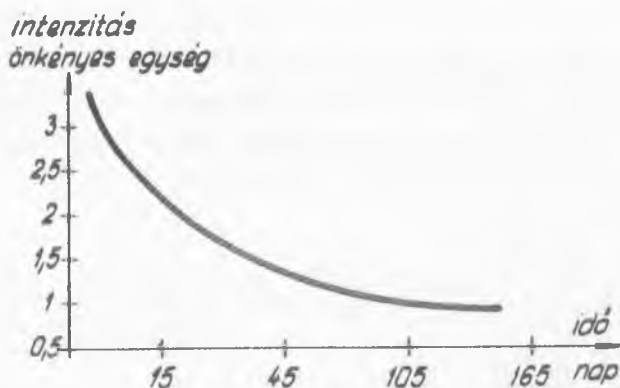
A szekunder kör hőmérséklete télen üzem közben  $17-18^\circ\text{C}$ . A mintavétel időpontjában a víz keménysége  $2,2 \text{ n.k.f.}$  vastartalma pedig  $0,2 \text{ mg/l}$  volt.

#### c/ Kiégett fűtőelem tároló

A kb.  $4 \text{ m}$  mély,  $10 \text{ m}^3$  vizet tartalmazó tartály arra szolgál, hogy a kiégett, de még igen erősen sugárzó urán fűtőelemeket mélyen a víz alatt az edény alján tárolhassák. Nincs nedves összeköttetésben sem a primer, sem a szekunder körrel. Mintegy kéthavonta kerül ide újabb kiégett fűtőelemköteg, amely a primer körből hozhat magával élő szervezeteket. A tartályt 1959-ben a primer kör vizével azonos minőségű kétszer desztillált vízzel töltötték fel. A természetes párolgás miatt vízvesztés lép fel, amit  $1 \mu\text{S}$  vezetőképességű sótalanított vízzel pótolnak. A tartály fala alumínium. A víz pH-ja kb.  $5,0$  hőmérséklete  $18^\circ\text{C}$ . A tárolóban technikai okokból néhány gumifelület is van, amelyeken, és az edény fenekén is szürkés-barnás lerakódás tapasztalható.

A sugárzás erőssége a víz felszínén  $10-20 \text{ mR/ó}$ . Értéke attól függ, hogy mikor került utoljára kiégett fűtőelem a tárolóba /lásd 2. ábra/. A sugárzás erőssége a tároló alján nagyságrendben a  $10^{11} \text{ R/ó}$  körül van. A sugárzás tiszta gammasugárzásnak tekinthető, így a tároló vize nem aktiv.

Természetes fény a tároló, vagy a primer kör vizét nagyon ritkán éri /cc kéthavonként/.



2. ábra

Kiégett fűtőelemek radioaktív bomlási görbéje.

### Mintavételek

A primer körből a vizmintát a mintavételi célokra szolgáló csővezeték segítségével megfelelő kifolytatás után vettük. A fűtőelemtárolóból kétféle mintát vettünk: egyet a vízfelszín közeléből, egyet pedig a fenékvizből a lerakódások felkavarása után, hogy valami információt kapjunk a lerakódások mibenlétéről. A szekunder körből két helyről vett minta érdemel figyelmet: egyiket a hőcserélőtől nem messze található mintavételi csővezetékéből vettük megfelelő kifolytatás után, a másik a hűtőtorny alatti vízmedence felkavart fenékvizéből való.

A mintavétel időpontja: 1966. február 18. 8<sup>30</sup> és 10<sup>30</sup> között. Ezt megelőzően a reaktor február 7. 10<sup>h</sup>-tól február 12. 6<sup>h</sup>-ig, és február 14. 10<sup>h</sup>-tól február 16. 16<sup>h</sup>-ig üzemelt 2,5 MW teljesítményen. A másfél napos pihentetésre azért volt szükség, hogy a primer vizminta aktivitása ne zavarja a vizsgálatokat. A reaktor átlagosan havi 300 órát üzemel.

A vizmintákban az alábbi szervezetek éltek:

### Enumeratio

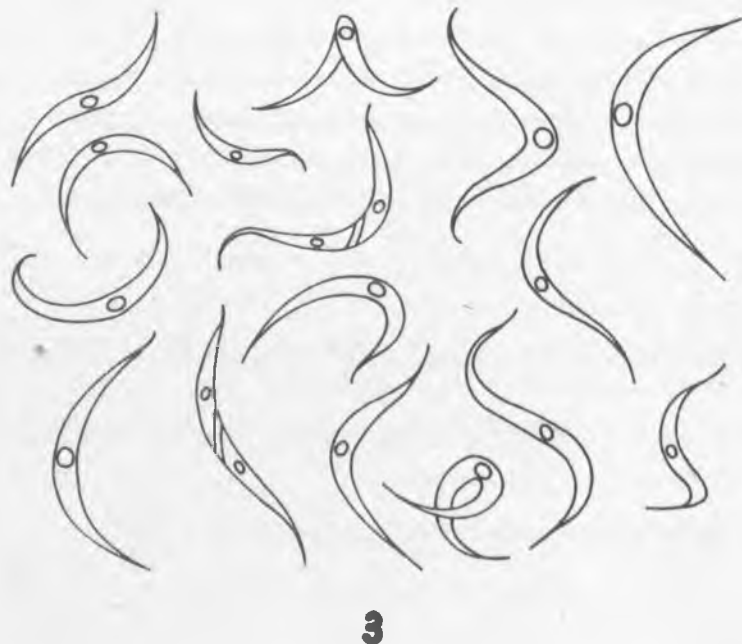
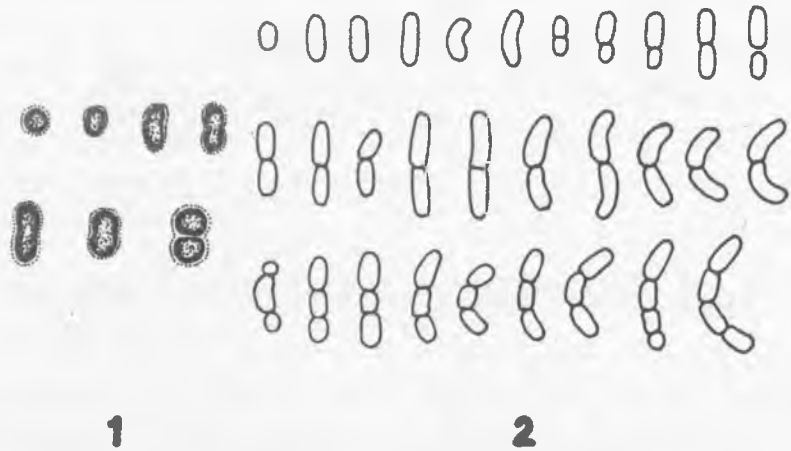
#### Schizomycophyta

1. Schizomycophyta sp. - Kusza fonálszövedék, a fonalak szélessége cca 0,4  $\mu$ .

Cyanophyta

Chroococcales

2. Synechocystis minuscula Woronichin - A sejtek gömbalakuak, osztódáskor megnyultak, piskótaalakuak. Egyenként vagy kettesével láthatók, átmérőjük 1,6 - 2,6  $\mu$ . Membrana vékony, sejttartalom homogén világoskék /3. ábra/.



3. ábra

- A reaktor vízköreibben talált algák
- 1 Synechocystis minuscula Woronichin - kékalga
  - 2 Romeria gracilis Koczw. - kékalga
  - 3 Ankistrodesmus falcatus - zöldalga

### Hormogonales

3. Romeria gracilis Koczw. - a trichomák 1 - 4 sejtűek, egyenesek vagy hajlottak. Az ugyancsak egyenes vagy hajlott sejtek hossza 1,3-4  $\mu$ , szélessége 1 - 1,4  $\mu$ , sarkaik legömbölyödöttek; oválisak, cylindricusak, olykor megnyult tojásalakúak. A sejttartalom homogén, világoskék. A sejtek, illetve a trichomák egyedül élnek, nincsenek nyálkába ágyazva.

### Chlorophyta

#### Chlorophyceae, Chlorococcales

4. Ankistrodesmus falcatus /Corda/Ralfs var. spirilliformis G.S. West = Raphidium contortum /Thuret/ Legn. - A sejtek nagyon változatos alakúak, mindkét végük fokozatosan vékonyodva tűhegyesen végződik. A sejtek hossza 14 - 28  $\mu$ , szélessége 1 - 2,6  $\mu$ .

### Megbeszélés

Legkevesebb szervezet a primer körben volt, itt a víz a mintát tartalmazó üveg külső felületén 0,5 mR/ó sugárzást mutatott. Az aktív vízben egyetlen kékalga élt, a Romeria gracilis, s egyedszáma is az összes vízminták szervezeteihez viszonyítottnan a legkevesebb volt.

A fűtőelemtároló vizében és a fenék felkavart vizében ugyancsak előfordult a Romeria gracilis kékalga, a vízben aránylag sok telepe élt, míg a fenékmintában kevesebb volt. Mindkét vízmintában még egyféle fonalas baktérium volt /Schizomycophyta/. A fűtőelemtároló fenekén lévő üledék részben tehát biológiai eredetű. A primer kör és a fűtőelem tároló vizét természetes fény nagyon ritkán, átlagosan kéthavonta éri. Szigorubb vizsgálat tárgya lehet, vajon a mindkét helyen élő Romeria gracilis kékalga asszimilációjához az atomreaktor sugárzásai szolgáltatják-e az energiát.

A szekunder vízkörben az előbb említett szervezetek közül csupán a fonalas baktériumot figyeltük meg, de egyedszáma nagyon kevés. Valamivel több Synechocystis minuscule kékalga és a nagyon változatos alakú Ankistrodesmus falcatus var. spirilliformis /Raphidium contortum/ zöldalga mutatkozott mellette.

A hűtőtorony vízmedencéjében mind a négyféle szervezet élt, közülük különösen sok példányban volt jelen a fonalas baktérium.

A négyféle mikroszervezet közül a Romeria gracilis a legellenállóbb; az aktív vízben éppugy előfordul, mint a nem aktívban. A fonalas baktérium viszont csupán az aktív vízben nem mutatkozott, a többiben élt.

A talált kéalgák és az egyetlen zöldalga a Cyanophyta és Chlorophyta törzseken belül a legegyszerűbb organizációs szinten álló szervezetekhez tartoznak. A kéalgák nagyon ellenállóak és elterjedtek. Fott szerint olyan helyeken is megtalálhatók, ahol más növények számára az életfeltételek nincsenek meg. Rendkívül alacsony hőmérsékletet -  $190\text{ C}^{\circ}$  - a hőforrásokból származó kéalgák hetekig elviselhetik /Fott, p.24/. Első megtelepedők a vulkánikus talajokon, az új termőhelyeken. Elsősorban a trópusi tájakon nagy jelentőségűek a talajokban. Legtöbbjük azonban édesvízi szervezet, a tengerekben sokkal kevesebb fajuk él.

Az előforduló Cyanophytonok közül a Synechocystis minusculát Woronichin Észak-Kaukázusból egy keserűsósforrásból írta le. A ritkább kéalgákhoz tartozik.

A másik Cyanophytont, a Romeria gracilist Koczwara Lwow mellett egy kis tóban figyelte meg. Szintén a ritkábban ismertetett kéalgákhoz sorolandó.

Az Ankistrodesmus falcatus var. spirilliformis, vagy újabb néven Raphidium contortum /Thuret/ Legn. azon Chlorococcalesek közé tartozik, amely szinte mindenütt gyakori /Fott, p. 258/. Hazánkban is nagyon elterjedt, de megtalálható Alaskában, Indiában, Vietnamban is. A Földön természetes körülmények között bármily sugárzási viszonyokat és hőingadozásokat, úgy látszik, elvisel. Nagy ökológiai valenciájára utal az atomreaktorban történő előfordulása is. A Chlorococcalesek - mint a Cyanophytonok - a normális és extrém életfeltételeket egyaránt kedvelik /jég, gleccser, hőforrások, talaj/. Az édesvizekre jellemzőek.

Az előforduló szervezetek sugártűrő képességéről Fott összefoglaló munkája nem emlékezik meg. Éppigy K.Starmach legújabb Cyanophyta könyvében sem találunk erre vonatkozó adatokat.

A KFKI VVRSZ típusu atomreaktorának primer vízkörében is van tehát élet, igazolva az algák nagy ellenállóképességét a sugárzásokkal szemben. A mikroszervezetek résztvesznek a fűtőelemtárolók lerakódásaiban.

Köszönetet mondunk a Reaktorüzem vezetőinek és dolgozóinak, akik a vizminták vételében, valamint az életkörülmények felmérésében segítségünkre voltak.

I r o d a l o m

- Fott, B.: Algenkunde. - Jena, 1959, 1 - 482.
- Fowler, E.B., Christenson, C.W., Juvney, E.T., Schafer W.S.:  
Bacterial "Infection" of the Omega West Reactor.  
Nucleonics 18/4, New York, 1960, 102-105.
- Geitler, L.: Cyanophyceae - in Dr. L. Rabenhorst's Krypt.-Fl.  
14, Leipzig, 1932, 1 - 1196.
- Legnerová, J.: The Genera Ankistrodesmus Corda and Raphidium Kützing  
and Their Position in the Family Ankistrodesmaceae. -  
Preslia 37/1. Praha, 1965, 1 - 8.
- Shields, L.M., Durrell, L.W., Sparrow, A.H.: Preliminary Observations  
on Radiosensitivity of Algae and Fungi from Soils  
of the Nevada Test Site. - Ecology 42/2. Durham,  
1961, 440 - 441.
- Starmach, K.: Cyanophyta - Sinice. Glaucophyta - Glaucofity. - Flora  
Slodkowodna Polski 2. Warszawa, 1966, 1 - 807.

Érkezett: 1966. máj. 11.

KFKI Közl. 14.évf. 4.szám, 1966.





A KFKI VVRSZ-REAKTOR PRIMÉR VIZKÖRÉBEN LÉVŐ RADIOAKTIV  
ANYAGOK KVALITATIV VIZSGÁLATA

Irta: Erdeyné-Schneer Anna, Csada Imréné és Szabó Elek

Összefoglalás

A VVRSZ-reaktor aktív zónáján át cirkuláló hűtővizben a rövid felezési idejű izotópok közül egyszerű módon megoldottuk a  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  és  $^{64}\text{Cu}$  kimutatását. A hosszú felezési idejűek közül, gamma-sugárzásuk alapján csapadékos, illetve papirkromatográfiás elválasztást használva a  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  és  $^{124}\text{Sb}$  izotópokat, valamint papirkromatográfiás elválasztás után kémiai módszerekkel a méréskor inaktív  $\text{Al}^{3+}$  és  $\text{Cu}^{2+}$ -ionokat azonosítottuk.

A KFKI VVRSZ-reaktor primér vizkörének vizsgálata a reaktor működése óta folyik. A vezetőképességet és pH-t, valamint a víz aktivitását rendszeresen üzemközben ellenőrizzük.

A víz aktivitásának mérésével párhuzamosan az aktivitást hordozó izotópok azonosítását is végezzük. Így lehetséges az egyes izotópok elválasztása után, azok aktivitását külön-külön is meghatározni, és a víz aktivitás változásának az okát eldönteni. A víz aktivitásának zömét a rövid felezési idejű izotópok adják. Ezek kimutatására módszert dolgoztunk ki. Így rendszeresen nyomon követjük a  $^{64}\text{Cu}$ ,  $^{56}\text{Mn}$ ,  $^{24}\text{Na}$  izotópok mennyiségének üzemközbeni változását. A hosszú felezési idejű izotópokat a reaktor leállása után, bepárolt vízből, kémiai elválasztás és papirkromatográfiás analízis útján határozzuk meg. A  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{124}\text{Sb}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{51}\text{Mn}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  izotópokat azonosítottuk.

Reaktorunk primér vizkörének rendszeres laboratóriumi vizsgálatáról előző közleményünkben már beszámoltunk /1/. A továbbiakban a víz aktivitását hordozó izotópok azonosítását tüztük ki feladatul. A mérésekhez 1,75x2 inches Nuclear Enterprises NaI/Tl/-kristályt és Zeiss /M 12 FS 60/ fotoelektronsokszorozót használtunk, mely KFKI tip. NK-103 Gy.sz. 63410/128 csatornás amplitudó analízátorhoz csatlakozott.

Néhány órás felezési idejű izotópok meghatározására és mennyiségük változásának nyomonkövetésére eljárást dolgoztunk ki. A reaktorvizben nagy mennyiségben jelenlévő izotópokat oxicellulózéra /2/ adszorbeáltattuk. Eljárásunk a következő volt: a reaktor működése közben vett vizminta 100 ml-ében 1 g Schulek és munkatársai módszerével /3/ általunk készített oxicellulózét 5 percig üvegbottal kevergettük, leszűrtük, megszáritottuk és gamma-spektrumát 128 csatornás analizátoron felvettük.

Az 1. ábrán látható 0,5, 0,84, 1,38, 1,74 MeV-es csucok azonosítása félidő méréssel történt.

I. táblázat

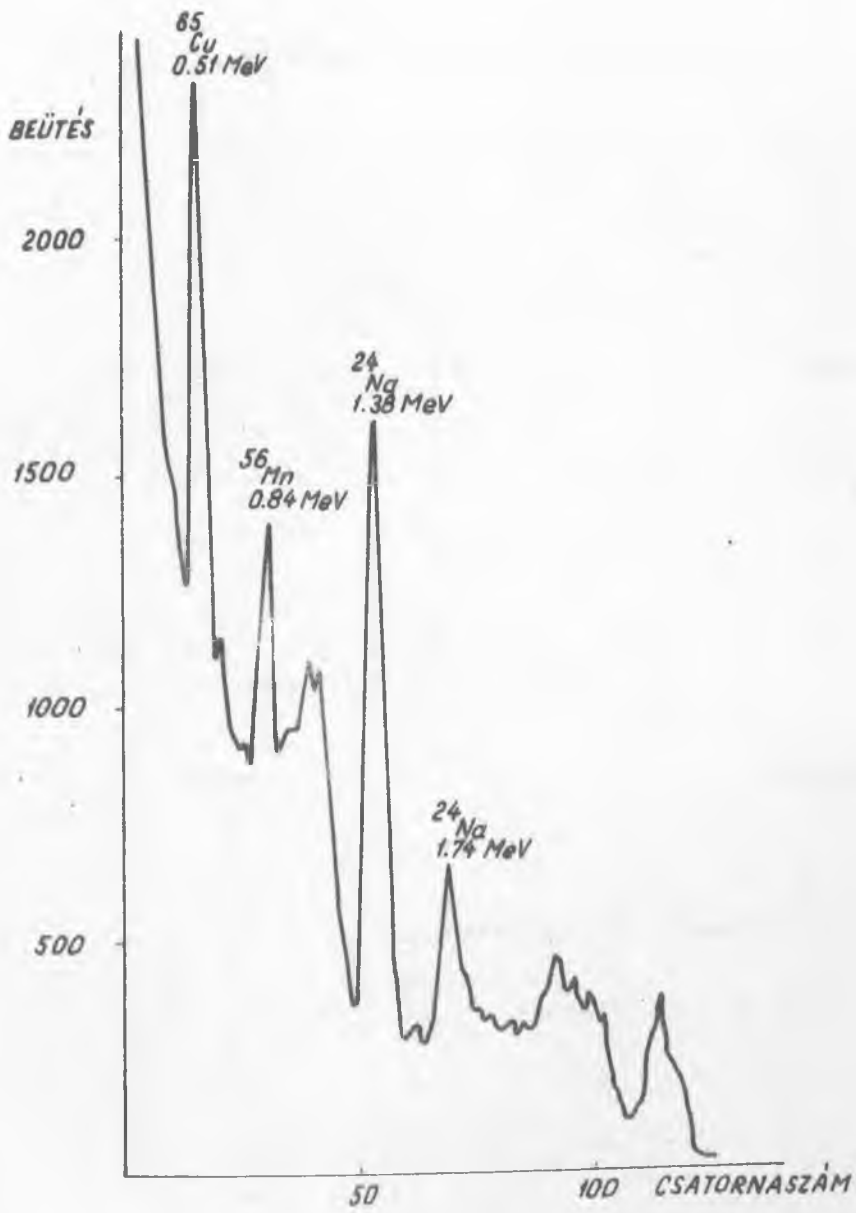
Azonosított rövid felezési idejű izotópok

Elem	Magreakció	Felezési idő	Energia MeV
$^{64}\text{Cu}$	$^{63}\text{Cu}/n, \gamma / ^{64}\text{Cu}$	12,8 h	0,5
$^{56}\text{Mn}$	$^{55}\text{Mn}/n, \gamma / ^{56}\text{Mn}$	2,58h	0,84
$^{24}\text{Na}$	$^{27}\text{Al}/n, \gamma / ^{24}\text{Na}$	15,0 h	1,38;1,74
	$^{23}\text{Na}/n, \gamma / ^{24}\text{Na}$		
	$^{24}\text{Mg}/n, p / ^{24}\text{Na}$		

A reaktor egyhetes üzemeltetésekor minden nap azonos időpontban vett vizminta vizsgálatával nyomon követtük ezen izotópok mennyiségének növekedését.

A reaktor leállása után vett vizmintából határoztuk meg a hosszu felezési idejű izotópokat. Az izotópok koncentrációja, ill. kinyerése és elválasztása több eljárással történt. A vizet minden esetben bepároltuk tizedére, századára, ill. szárazra.

Egy liter reaktorvizet kvarc desztillálóban 30-30 mg analitikai tisztaságú Sb-, Sn-, Fe/III/-, Cr/III/-, Co-, Mn- és Zn-só hozzáadása után 100 ml-re pároltunk be, majd az alábbi séma szerint különválasztottuk a szulfidokat és a hidroxidokat.

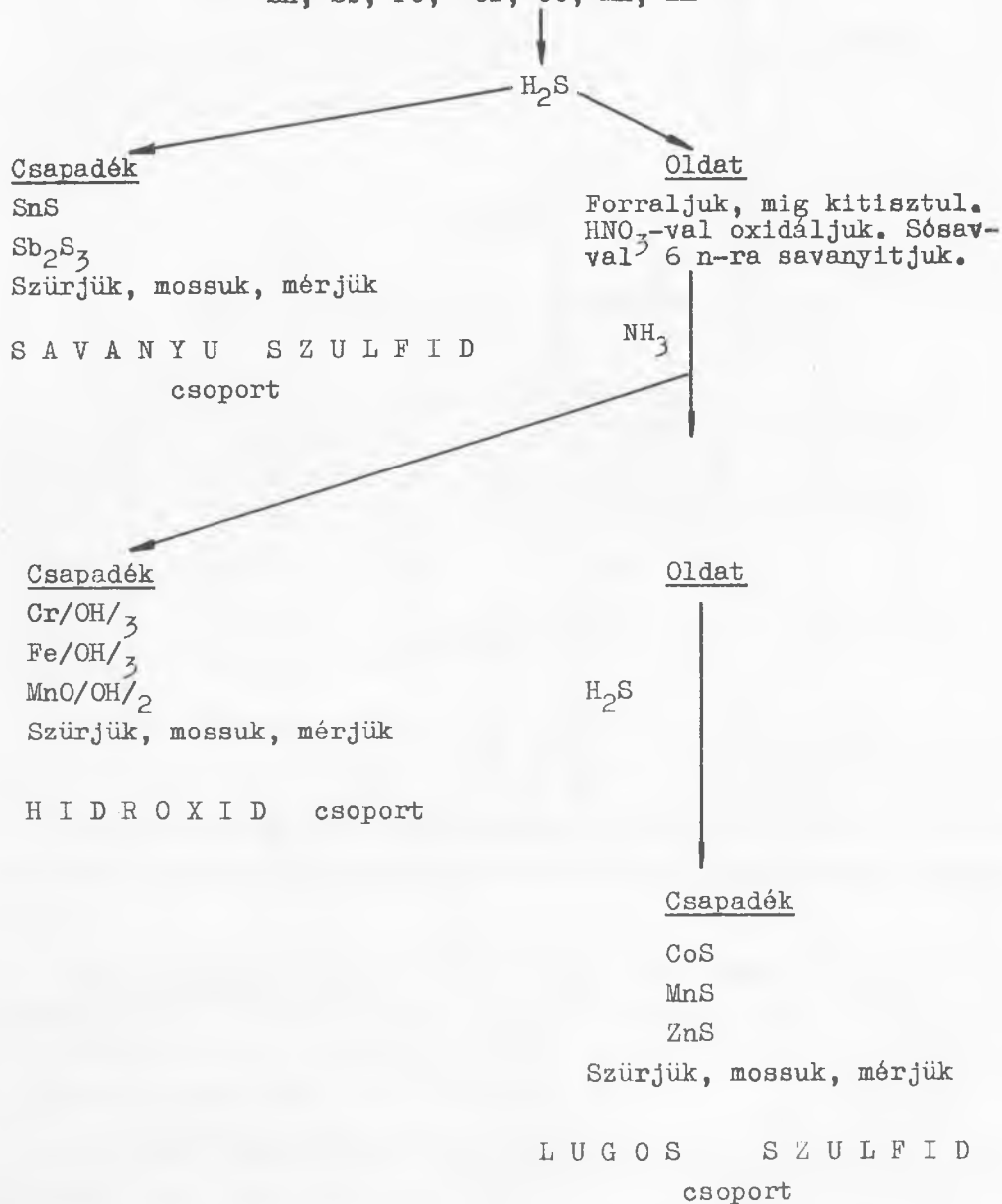


1. ábra  
30 perccel a vizminta vétele után készült  
gammaszpektrum.

Kémiai elválasztási séma

A vizet sósavval megsavanyítjuk

Sn, Sb, Fe, Cr, Co, Mn, Zn

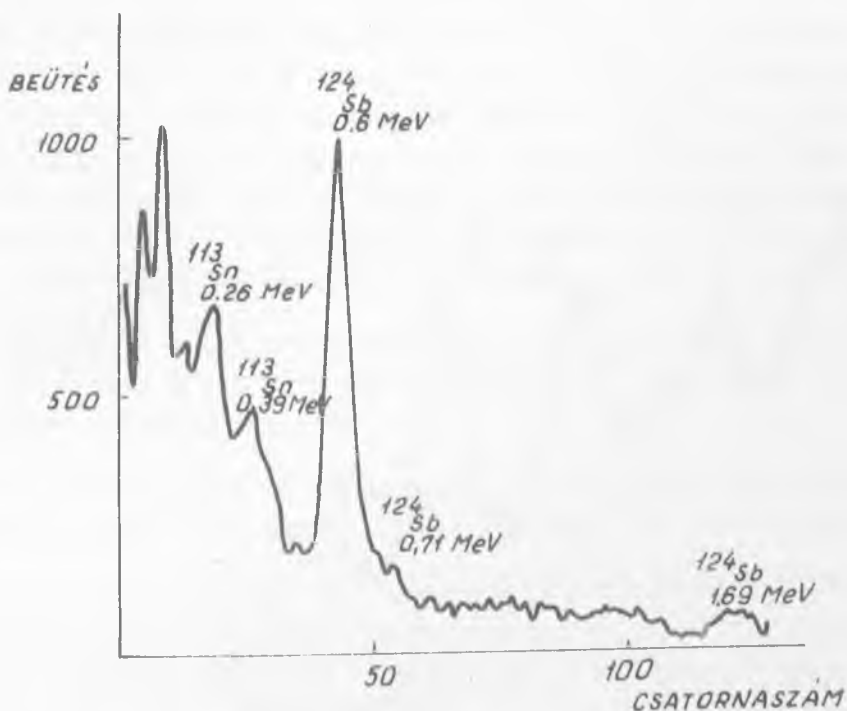


II. táblázat

Azonosított hosszú felezési idejű izotópok

Elem	Magreakció	Felezési idő	Energia MeV
$^{113}\text{Sn}$	$^{112}\text{Sn}/n, \gamma / ^{113}\text{Sn}$	119 d	0,26; 0,39
$^{124}\text{Sb}$	$^{123}\text{Sb}/n, \gamma / ^{124}\text{Sb}$	60,9 d	0,6; 0,71; 1,69
$^{51}\text{Cr}$	$^{50}\text{Cr}/n, \gamma / ^{51}\text{Cr}$	27 d	0,32
$^{54}\text{Mn}$	$^{54}\text{Fe}/n, p / ^{54}\text{Mn}$	291 d	0,84
$^{65}\text{Zn}$	$^{64}\text{Zn}/n, \gamma / ^{65}\text{Zn}$	245 d	1,12
$^{60}\text{Co}$	$^{59}\text{Co}/n, \gamma / ^{60}\text{Co}$	5,3	1,17; 1,33

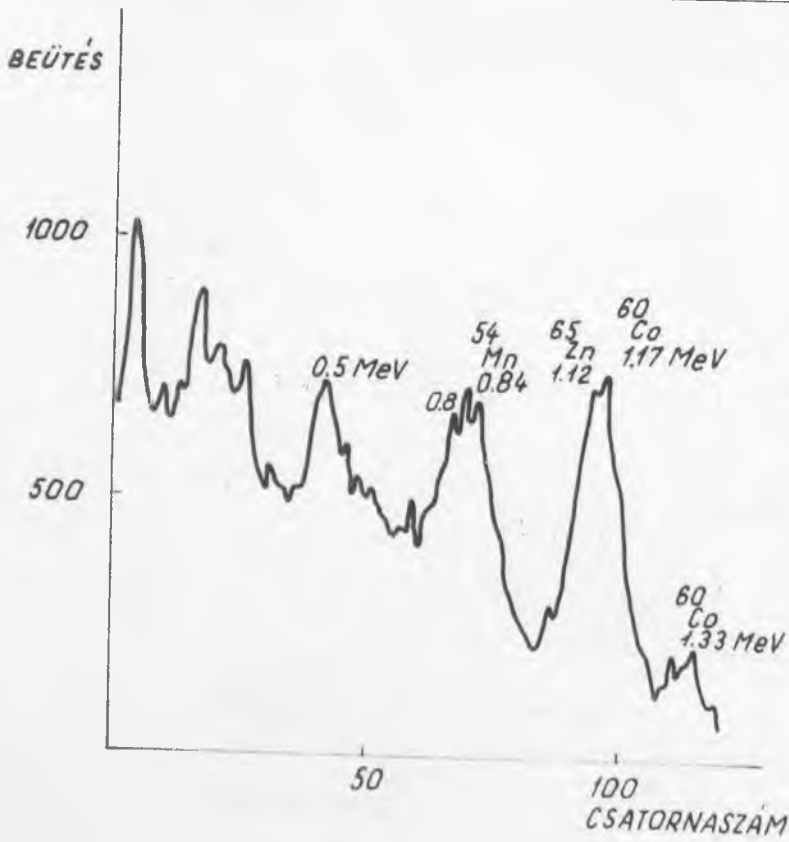
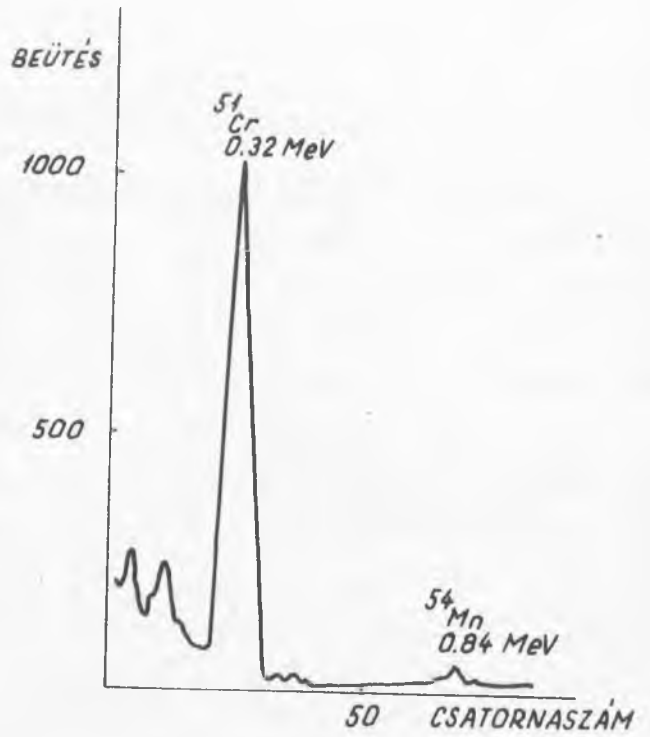
A 2. ábrán a savanyu szulfidok, a 3. ábrán a hidroxidok, a 4. ábrán a lugos szulfidok gammaespektruma látható.



2. ábra  
Savanyu szulfidok gammaespektruma

3. ábra

A hidroxid-csoportban le-  
vált fémionok gammaspektuma



4. ábra

Lugos szulfidok gamma-  
spektruma

A 2. ábrán a savanyu szulfidok csoportjában látható az  $^{113}\text{Sn}$  izotópnak 0,26 és 0,39 MeV-es, valamint a  $^{124}\text{Sb}$  izotóp 0,6, 0,7 és 1,69 MeV-es fotocsucsa.

A 3. ábrán a  $^{51}\text{Cr}$ , 0,32 MeV-es csucsát, valamint kevés  $^{54}\text{Mn}$ -nek 0,84 MeV-es csucsát azonosítottuk.

A 4. ábrán a lugos szulfidok csoportjának gammaspektrumában a  $^{54}\text{Mn}$  0,84 MeV-es, a  $^{65}\text{Zn}$  1,12 MeV-es, valamint a  $^{60}\text{Co}$  két jellemző fotocsucsa 1,17 és 1,33 MeV-nél látható.

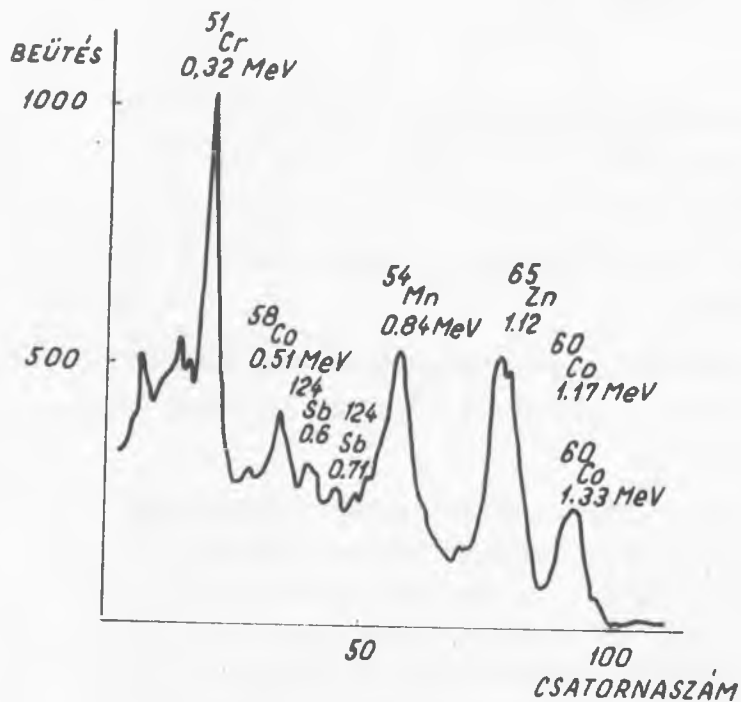
A hosszú felezési idejű izotópok szétválasztását papirkromatográfiásan is elvégeztük. A víz szárazmaradékát tömény sósavval felvettük, hidrogénperoxiddal felforraltuk, és kis térfogatra párolva, teljes mennyiségében felcseppentettük. A kromatografálást egyikünk /E-né/ minőségi analízis céljaira általánosan használható /5/ módszerével sósavas etanollal futtatva, felszálló technikával végeztük, és etanolos morinnal hívtuk elő. A kromatogramon u.v. fényben jól látható volt az alumíniumra jellemző zöld fluoreszkálás  $R_f = 0,3-0,4$  értéknél, valamint ammóniázás után megjelent a rézre jellemző sötét folt  $R_f = 0,5-0,6$  érték között, jelölül annak, hogy ezen két kation mennyisége az adott vízmennyiségben meghaladja kimutatási határukat. A papirkromatogram előhívásakor az aktivitást hordozó ionfajták nem voltak olyan mennyiségben jelen, hogy makroszkópicusan kémiai módszerekkel láthatók lettek volna.  $R_f$  értékük ismerete /5/ alapján azonban a papiros feldarabolását úgy végeztük, hogy az egyes izotópok teljes mennyisége egy-egy szakaszon legyen. Az ábrákon látható, hogy kevés  $^{51}\text{Cr}$  egyrészt a felcseppentés helyén marad, másrészt felhúzódik  $R_f = 0,4$  érték fölé.

Az 5. ábrán a teljes kromatogram gammaspektrumán jól láthatók a kémiai uton szétválasztott és már azonosított  $^{124}\text{Sb}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{60}\text{Co}$  izotópokra jellemző csucskok.

A 6. ábrán a papir alsó szélétől  $R_f = 0,5$  értékig felvett gammaspektrumon /1 perc/ láthatjuk a  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  és  $^{60}\text{Co}$  fotocsucseit.

A 7. ábrán a starttól  $R_f = 0,2$ -ig terjedő szakaszból készült gammaspektrum alapján számottevő mennyiségben csupán a  $^{51}\text{Cr}$  csucsa látható, ez az elem tehát nyomokban a felcseppentés helyén maradt.

A 8. ábrán  $R_f = 0,2-0,4$  érték között találtuk a  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$  fotocsucseit.

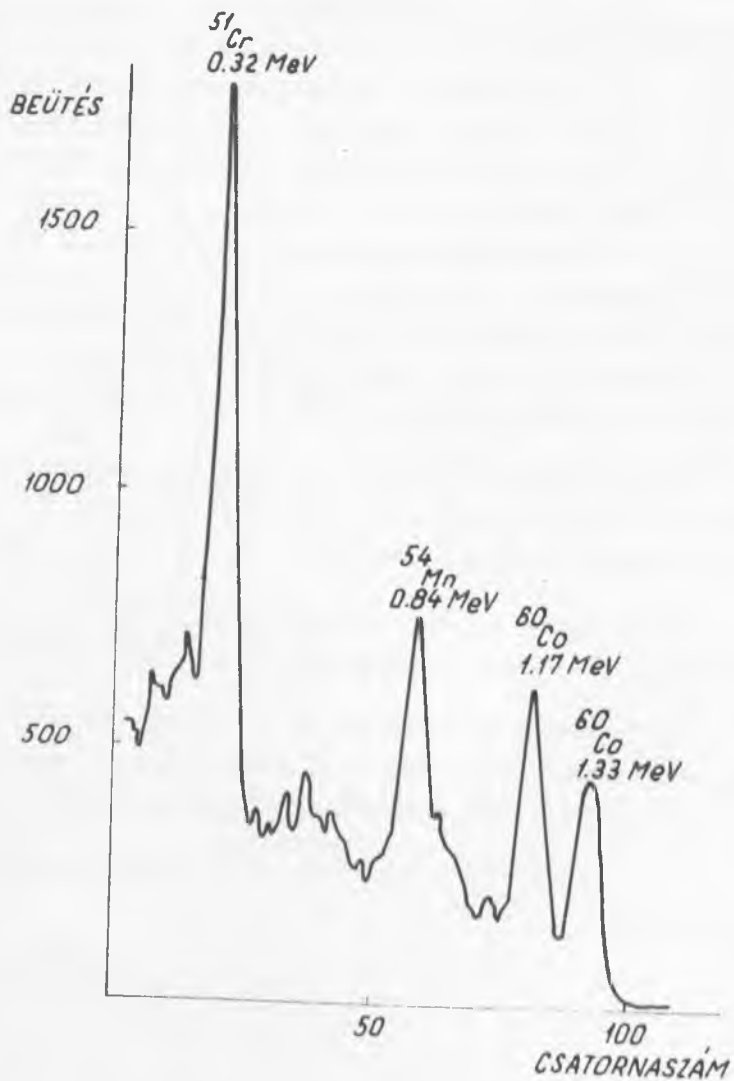


5. ábra

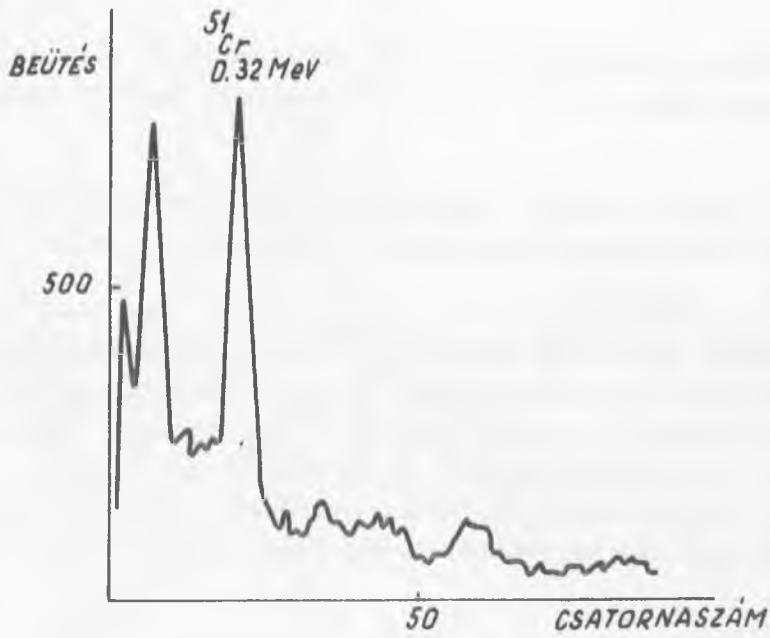
A teljes papirkromatogram gamma spektruma /t = 30 s/.

6. ábra

$R_f = 0,0-0,5$  között elhelyezkedő izotópok gamma spektruma /t = 1m /.

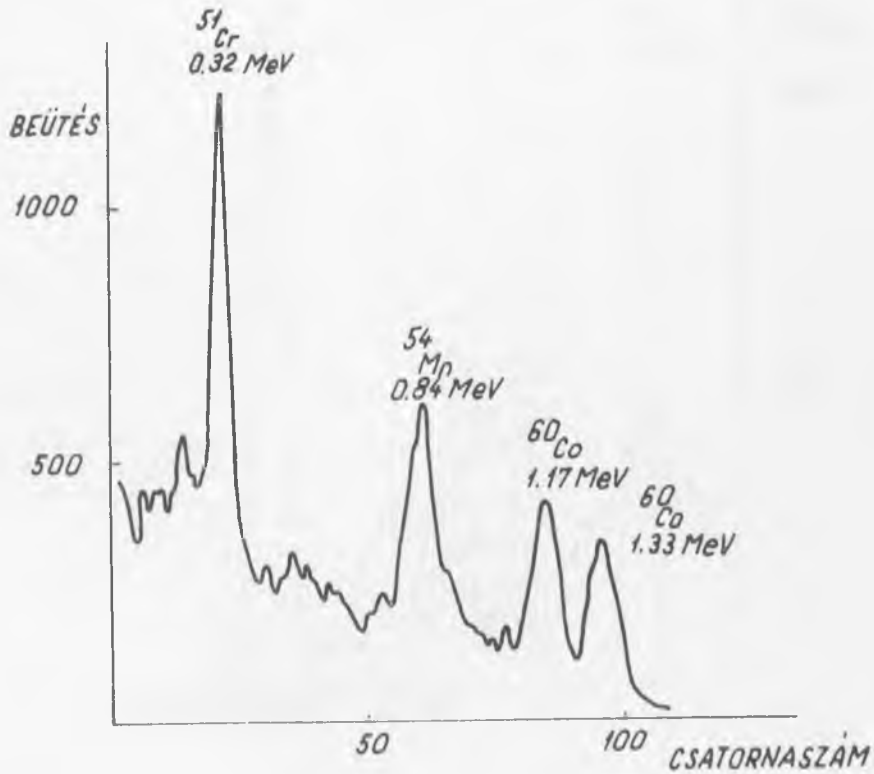






7. ábra

Rf = 0,0-0,2 között elhelyezkedő izotópok gamma spektruma  
/ t = 15 m /



8. ábra

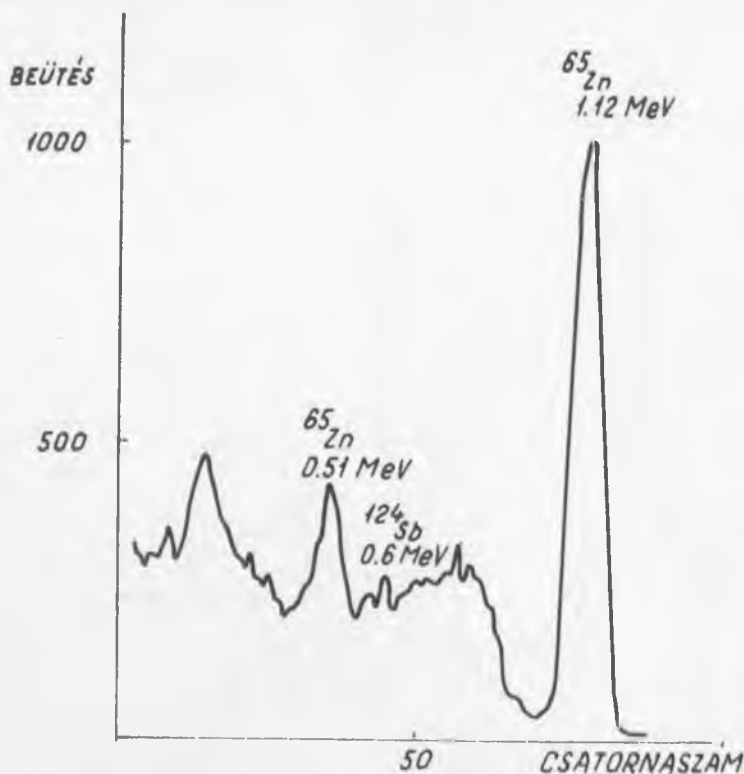
Rf = 0,2-0,4 között elhelyezkedő izotópok gamma-  
spektruma

A 9. ábrán a kromatogram felső fele látható. A nagy mennyiségben jelenlévő  $^{65}\text{Zn}$  aktivitása miatt célszerű a papiroost további részekre bontani.

Az  $R_f = 0,5-0,6$  közötti szakaszban számottevő aktivitás gamma-spektrometriásan nem mutatható ki. Ebben a szakaszban található azonban az inaktív réz.

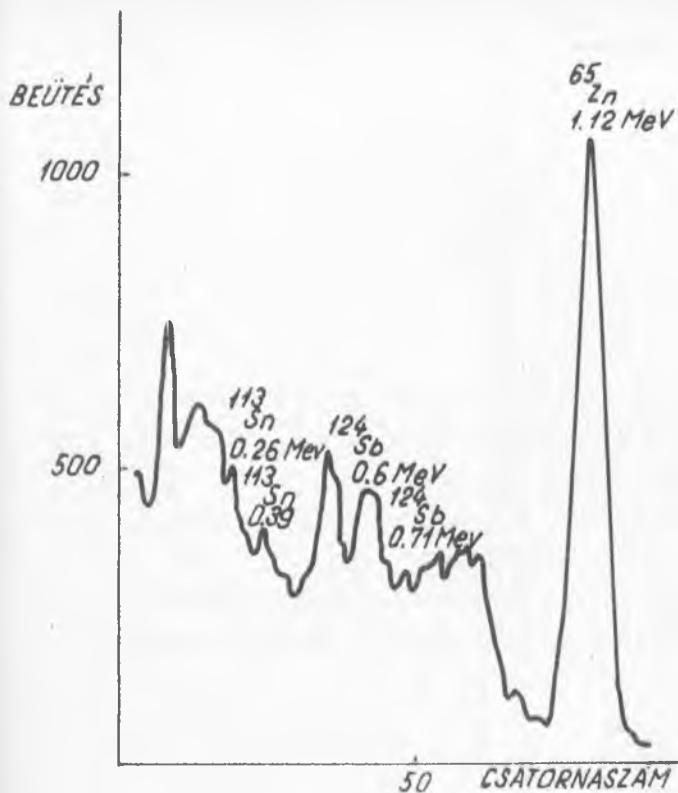
A 10. ábrán az összes jelenlévő  $^{65}\text{Zn}$  aktivitásához képest az ezen a szakaszon maradt kis mennyiségű  $^{65}\text{Zn}$  mellett láthatjuk az  $^{113}\text{Sn}$  és  $^{124}\text{Sb}$  jellemző csúcsait. Ahhoz, hogy az  $^{124}\text{Sb}$  izotópra jellemző nagyobb energiájú, 1,69 MeV-es csúcsot is láthassuk, az analizátor első 30 csatornájának kiiktatásával 30 perces felvételt készítettünk. Így sikerült a  $^{124}\text{Sb}$  1,69 MeV-es csúcsát kimutatnunk, mint azt a 11. ábrán láthatjuk.

A 12. ábrán jól láthatjuk a  $^{65}\text{Zn}$  1,12 MeV-es csúcsát.



9. ábra

$R_f = 0,5-1,0$  gammaspektruma  $t = 1$ .

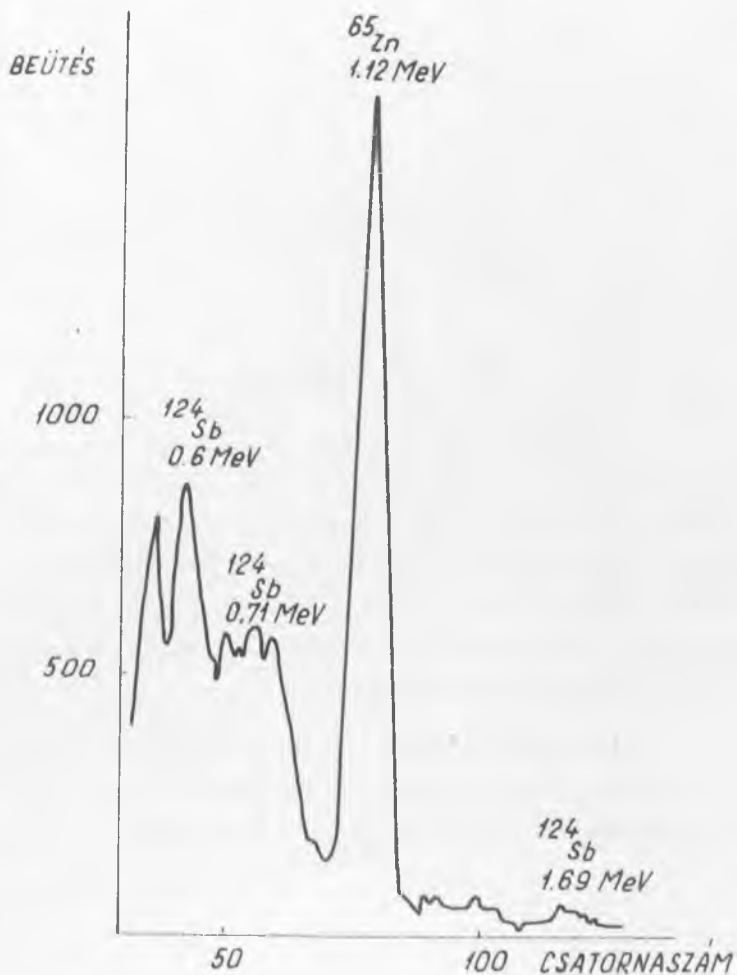


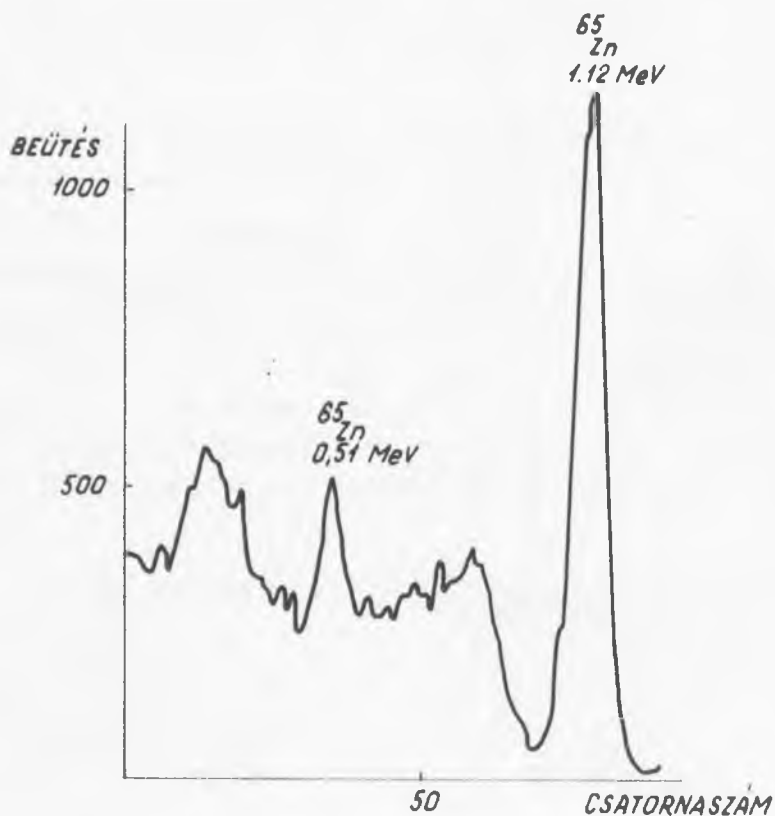
10. ábra

Rf = 0,6-0,9 gammaspektruma  
t = 15 m.

11. ábra

A 10. ábrán látható gamma-  
spektrum nagyobb energiá-  
jú szakasza /t=30 m/





12. ábra

A frontszakasz gammaespektruma /  $t = 1 \text{ m} /$

A 12. ábrán jól láthatjuk a  $^{65}\text{Zn}$  1,12 MeV-es csucsát.

A VVR-Sz reaktor aktív zónáján át cirkuláló hűtővizben a rövid felezési idejű izotópok közül egyszerű módon megoldottuk a  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{56}\text{Mn}$  és  $^{64}\text{Cu}$  kimutatását. A hosszú felezési idejűek közül, gamma-sugárzásuk alapján csapadékos, illetve papirkromatográfiás elválasztást használva a  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{113}\text{Sn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  és  $^{124}\text{Sb}$  izotópokat, valamint papirkromatográfiás elválasztás után kémiai módszerekkel a méréskor inaktív  $\text{Al}^{3+}$  és  $\text{Cu}^{2+}$  ionokat azonosítottuk.

A reaktor primér vízkörében kimutatott elemek közül a Cu, Na, Zn szerkezeti anyagokból, elsősorban Al-ból, a Co, Mn, Cr acélból, a Sb pedig csapágyötvetből kerülhet a vízbe.

I r o d a l o m

- [1] Erdeyné Schneer Anna és Csada Imréné: KFKI Közl. 13, 240 /1965/
- [2] Kőrös E., Remporné-Horváth, A., Lásztity, A., Schulek, E.:  
M.Kém.F., 71, 369 /1965/
- [3] Schulek, E., Zs.Remporné Horváth, A., Lásztity, A.: Talanta,  
10, 82I /1963/
- [4] Schneer-Erdey: Talanta 10, 591 /1963/  
Erdeyné-Schneer Anna: M.Kém.L., 19, 327 /1964/

Érkezett: 1966. márc. 18.

KFKI Közl. 14.évf. 4.szám, 1966.



## HOSSZU ÉLETTARTAMU RÁDIÓFREKVENCIÁS IONFORRÁS EMITTANCIÁJÁNAK VIZSGÁLATA

Irta: Vályi László, Gombos Péter és Roosz József

### Összefoglaló

Emittancia méréseket végeztünk az EG-2 elektrosztatikus gyorsító rádiófrekvenciás ionforrásán 2, 2,5 és 3 kV kiszivófeszültség mellett. A mérési módszerrel lehetséges volt az ionnyaláb és az áttöltéssel semlegesé vált nyaláb szétválasztása és az ionnyalábra vonatkozó emittanciadiagram felvétele.

### Bevezetés

Nagyfeszültségű iongyorsítóknál, mint ismeretes, az ionforrásból kijutó ionnyaláb előzetes nyalábalakítás után a gyorsítócsőben gyorsul fel. A felgyorsított nyaláb az ioncsatorna számos ionoptikai rendszerén áthaladva jut el a céltárgyhoz.

A nyaláb paramétereit az egyes ionoptikai rendszereken való áthaladás során változnak. Ezek a változások a veszteségmentes, maximális nyalábtvitel szempontjából lényegesen. A nyaláb tulajdonságainak vizsgálatára a mechanika alapelvei nyújtanak hasznos módszert /1/. E módszer lényege a következő.

Tekintsünk egy csoport azonos, egymással kölcsönhatásba nem lépő részecskét, mely külső erő hatására mozog. Veszteségmentes nyaláb minden részecskéje jellemezhető hely- és impulzuskoordinátaival. Ezek kanonikusan konjugált koordináták és impulzusok. A nyaláb részecskéinek tehát megfelel egy adott térfogat a fázistérben. Mivel a részecskék konzervatív rendszert alkotnak, alkalmazható a Liouville-tétel, így a nyalábot reprezentáló fázistérfogat a rendszer mozgásállandója.

Vizsgáljuk most a monoenergetikus töltött részecskéket derékszögű koordinátarendszerben. A részecskék mozgása történjen tulnyomórészt a

$x, y$  koordináták síkjával merőleges irányban. A nyaláb a  $Z$  tengely irányába mutató "optikai tengely" mentén bármely pontban jellemezhető az-  
zal a térfogattal, melyet a részecskék koordinátái az  $x, y, p_x, p_y$  négy-  
dimenziós fázistérben betöltenek.

A nyaláb határait  $x, y$  irányban az  $x_{max}, y_{max}$  értékekkel jel-  
lemzett geometriai keresztmetszet,  $p_x, p_y$  irányban pedig az  $\alpha_{x_{max}},$   
 $\alpha_{y_{max}}$  -mal jellemezett, a  $Z$  tengellyel bezárt legnagyobb pályaszög  
határozza meg ( $p_x = p_z \frac{dx}{dz} = p_z \operatorname{tg} \alpha_x \approx p_z \alpha_x$ ).

Tekintsünk egy töltött részecskéket adó forrást, mely nyílásán  
át adott térszögben emittál ionokat. Ehhez csatlakozik egy ionoptikai  
rendszer, mely tulajdonságainál fogva a nyalábot csak szintén meghatáro-  
zott térszög alatt fogja be.

Az emittált nyalábhoz tartozó fázistérfogatot /konstans faktor-  
tól eltekintve/ nevezik emittanciának, az optikai rendszer által befogha-  
tó idealizált nyalábhoz tartozó fázistérfogatot pedig akceptanciának  
/v. admittanciának/.

Ha az ionnyaláb hengersizmetrikus tulajdonságokat mutat, és li-  
nearis közelítést alkalmazunk, akkor elegendő a nyalábot kétdimenziós fá-  
zistérben reprezentálni. Ebben az esetben a fázistér koordinátái  $r$  és  
 $p_r = p_z \cdot \alpha$  .

Az olyan nyalábot, melynek fázistere ellipszis, "normál nyaláb"-  
nak nevezzük.

Az emittancia szokásos definíciója:  $\epsilon' = \frac{\oint p_r(r) dr}{\pi}$

Normál nyaláb esetén  $\epsilon' = r p_r = r \alpha p_z = r \alpha \sqrt{2m eV}$ , ahol  $m$  a részecs-  
ke tömege,  $eV$  pedig a nyaláb energiája. A továbbiakban áttérve proton  
tömegegységre, az emittancia kifejezése a következő alakot veszi fel:

$$\epsilon = r \alpha \sqrt{2 eV} \text{ cm rad / MeV }^{1/2}$$

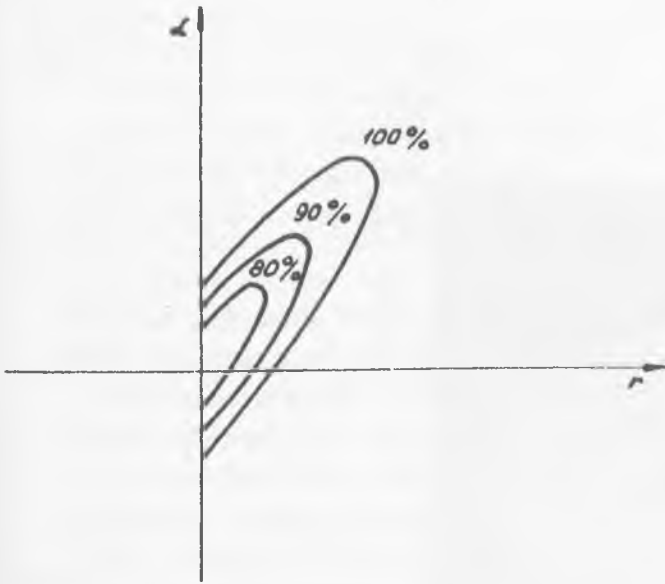
A nyaláb teljesen definiált, ha a fázistérfogat megadása mellett  
a nyaláb %-os intenzitását is fel tudjuk tüntetni /l. ábra/.

A nyaláb intenzitására jellemző adat még a nyaláb fényessége

$$B = \frac{JE}{\epsilon^2} \text{ mA/cm}^2 \cdot \text{sterad, ahol } J \text{ a nyaláb intenzi-}$$

tása,  $E$  az energia,  $\epsilon$  pedig az emittancia.





1. ábra

Intenzitás-viszonyokat feltüntetett emittanciadiagram.

A nyaláb emittanciával történő jellemzése azért hasznos, mert az elektromos és mágneses terek nem befolyásolják a fázistérben elfoglalt térfogatot. A nyaláb keresztmetszete és divergenciája bármilyen változáson is megy át, a fázistérfogat állandó marad.

A "z" tengely tetszőleges pontján meghatározhatók a nyalábkeresztmetszet  $\alpha = \alpha(r)$  értékpárai. Az értékpárok által definiált pontok egy területet határoznak meg. Az ily módon ábrázolt diagramot emittanciadiagramnak nevezzük. Az adott ionoptikai rendszer számított akceptanciája /admittanciája/ va-

lamilyen  $\alpha_0 r_0 \pi$  területű ellipszis. Ha azonos léptékű fázis-síkban ábrázolva az ionforrás emittanciaterülete nagyobb a gyorsítócső akceptancia területénél, akkor a nyaláb a csövön nem vihető át veszteségmentesen. Ha viszont az ionforrás emittancia területe kisebb a gyorsítócső akceptancia területénél, de alakjánál fogva nem helyezhető el abban, akkor helyesen megválasztott ionoptikai elem segítségével a nyaláb az adott gyorsítócsőhöz illeszthető.

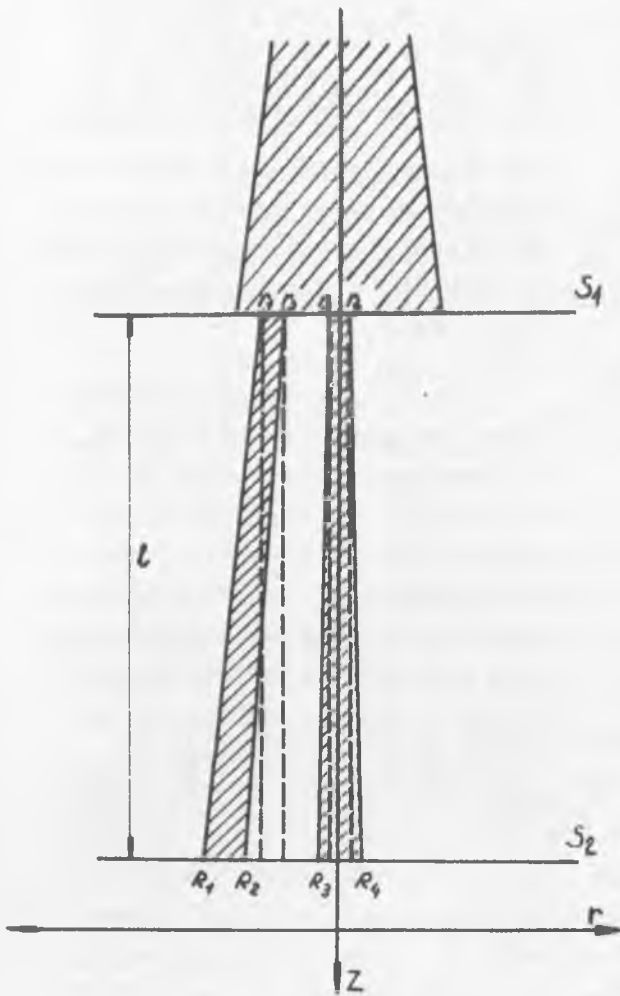
Ha a forrásból kilépő nyaláb emittanciáját adott  $Z_1$  pontban ismerjük, és a csatlakozó ionoptikai rendszer csatoló mátrixát más úton meghatározzuk, az emittancia a rendszer utáni  $Z_2$  pontban kiszámítható.

Tekintettel arra, hogy az elektrosztatikus gyorsító fejlesztése során számos ionoptikai elem kicserélődik, szükségessé vált a generátor jól bevált hosszú élettartamu /1500 órás élettartamu/ ionforrásából kilépő ionnyaláb emittanciájának meghatározása /2/.

### Mérőberendezés

Az emittanciamérés elve a 2. ábrán látható.

Ha az  $S_1$  síkban lyukakat vagy réseket helyezünk el, és az attól  $l$  távolságban lévő  $S_2$  síkban meghatározzuk a megfelelő nyílás képét, a



2. ábra

Az emittanciamérés elve.

roszkóp segítségével volt lehetséges. A furatok átmérője 0,15 mm, egymástól való távolsága 0,05 - 0,25 mm volt.

A kiszívócsucson néhány kisebb módosítást hajtottunk végre /2/-  
höz képest, mely azonban a kilépő nyaláb divergenciáját és intenzitását  
változatlanul hagyta. A módosított kiszívócsucs az  $S_1, S_2$  síkokat rögzítő tartószerelvényvel a 3. ábrán látható. Mind a blende, mind a besugárzott lemez anyaga 0,3 mm vastag, 20 mm átmérőjű alumínium. Az  $l$  távolság 47,5 mm.

A kísérletek elején kiderült, hogy a kiszívócsatornából áttöltéses folyamatok eredményeképpen az ionokkal együtt nagy intenzitású, keV nagyságrendű energiájú semleges nyaláb is lép ki az ionoknál nagyobb di-

nyílás és a kép méreteiből, valamint a síkok egymástól való távolságából az egyes koordinátaértékekhez tartozó szög meghatározható. /Az  $r_i$  ponthoz tartozó  $\alpha_i$  az ábra alapján  $\alpha_i \sim \frac{R_i - r_i}{l}$  /.

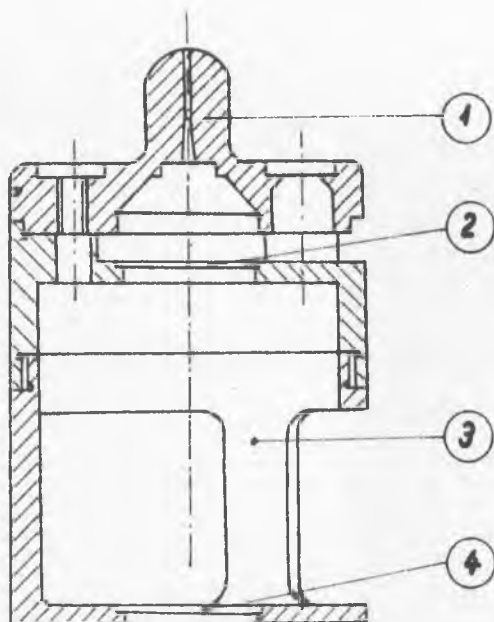
Az  $S_2$  síkban végzendő képmeghatározásra többféle módszer ismeretes /3,4/. Méréseinknél willemittal bevont alumíniumlemezt használtunk. Az ionbombázás hatására a willemitt elszíneződött, és a nyaláb keresztmetszete maradandó nyomot hagyott a lemezen / 4, 6, 7 ábrák/. A nyom erőssége természetesen az intenzitás és az expozíciós idő függvénye.

Nehézséget okozott, hogy míg korábbi szerzők nagy intenzitású, nagy keresztmetszetű nyalábot vizsgáltak / 3, 4, 5, 6 /, addig méréseinket kb., 10  $\mu$  A intenzitású 2-2,5 mm átmérőjű nyalábban kellett elvégeznünk. Ez utóbbi miatt a  $S_1$  síkban elhelyezett lyukakat sűrűn és kis átmérővel kellett furni. A mérések kiértékelése mikroszkóp segítségével volt lehetséges.



4. ábra





3. ábra

1/ kiszívócsucs, 2/ blende  
3/ tartószerelvény, 4/ lemez

Az  $S_1$  síkbeli lyukakat a lemez középpontjához képest aszimmetrikusan vettük fel. Egy méréssorozathoz két mérést végeztünk, egymáshoz képest  $180^\circ$ -kal elforgatott blendével. Így sikerült a diagram pontjait növelni.

#### Mérési eredmények

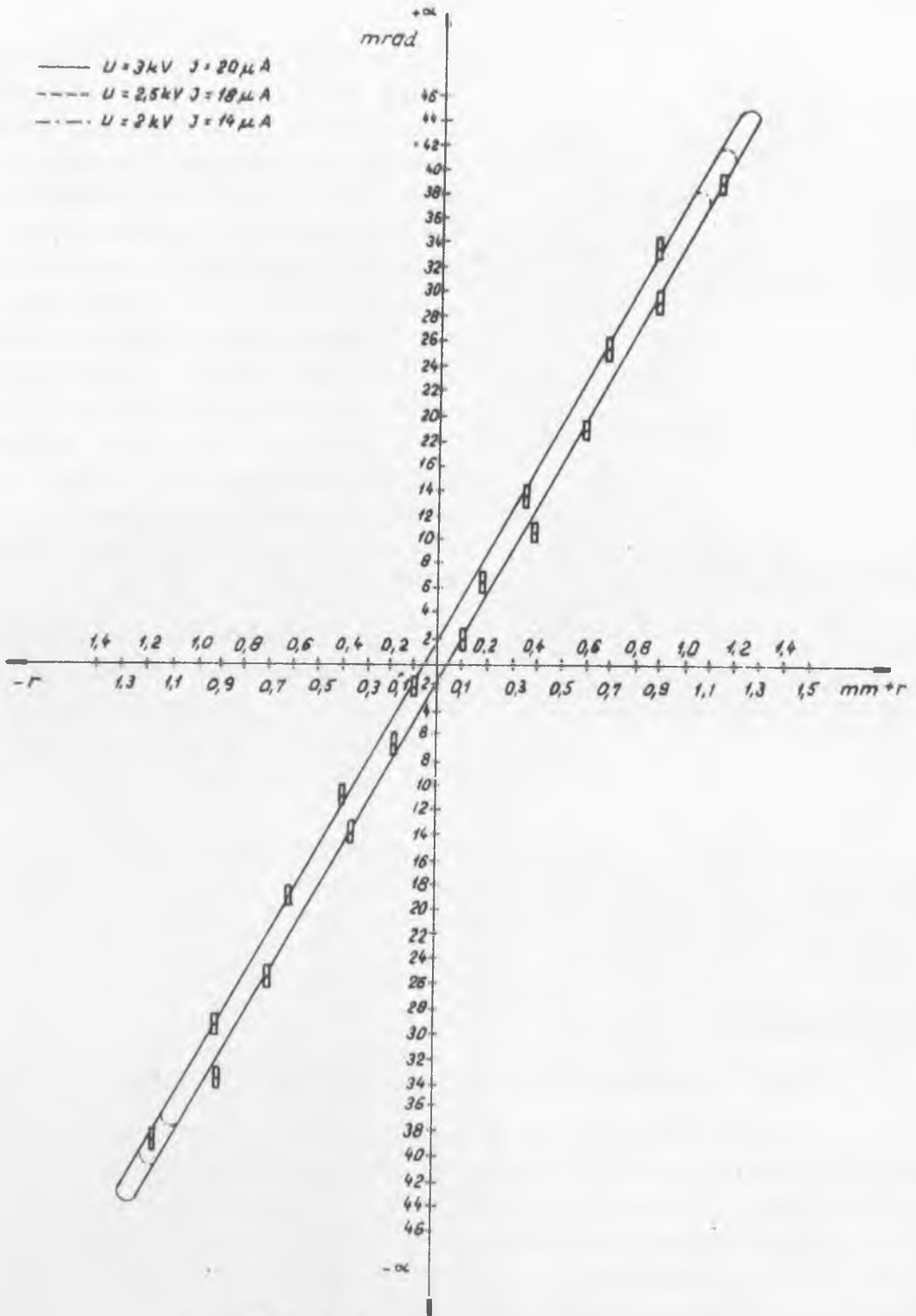
A felvett emittanciadiagramok az 5. ábrán láthatók.

A 6. ábra 2 kV-os ionnyalábbal készített felvételt mutat. Az expozíciós idő 3 óra volt. A nyaláb  $S_1$  síkbeli metszetének a  $S_2$  síkban felvett képe a 7. ábrán van ábrázolva. A felvételen jól látható az  $S_1$  síkban elhelyezett lyuksor képe, amelyet a nyaláb semleges része hozott létre. A mágneses tér - amelynek iránya a lyuksor irányával megegyező - a töltött részekből álló nyalábrészt eltéríti. Az eltérített nyalábrész képe lényegesen keskenyebb, mint a semleges nyaláb képe.

Az 5. ábra alapján számított emittancia 2 kV-on  $1,4 \cdot 10^{-5}$ ,  
2,5 kV-on  $1,8 \cdot 10^{-5}$ , 3 kV-on  $2,1 \cdot 10^{-5}$  cm rad/MeV $^{1/2}$ .

vergenciával. Hogy ez az effektus a mérést meg ne hamisítsa, a besugárzott lemezre két kis mágneset helyeztünk el úgy, hogy az  $S_1$  síkbeli lemezre furt lyuksor által meghatározott egyenes iránya megegyezzen a mágnes tér irányával. A mágnesek magassága 20 mm volt. Ilymódon az ionok a mágnes térben a lyuksor által meghatározott egyenes irányára merőleges irányban eltérültek, de az eltérített nyaláb szélessége ugyanaz maradt, mint mágnes tér nélkül. Ilymódon az ionok által okozott képet jól el lehetett választani a semlegesek képétől /4. ábra/.

A méréseknél használt ionforrás, tápegységek, vákuumrendszer, megegyezett a /2/-ben említettekkel. Az emittanciadiagramot 2, 2,5 és 3 kV kihuzó feszültség esetén vettük fel.



ábra. EMITTANCIADIAGRAM

5. ábra



6. ábra



7. ábra





A fényesség ennek megfelelően  $1,40 \cdot 10^5$ ,  $1,39 \cdot 10^5$  és  $1,36 \cdot 10^5$  mA/cm<sup>2</sup> sterad. Az egyes emittanciadiagramokhoz tartozó  $\alpha_{max} = \alpha(r_{max})$  pontokat az ionnyaláb  $S_1$  -síkbéli keresztmetszetéből határoztuk meg. Megfelelő hosszú expozíció esetén u.i. az ionnyaláb erősebb beégést okozott, mint a semleges nyaláb.

Megvizsgáltuk, hogy a gázfogyasztás növelése okoz-e valamilyen változást a forrás emittanciájában. Az optimális munkapontnak megfelelő gázfogyasztás  $2,5 \text{ cm}^3/\text{ó}$  / kétszerese nem okoz észrevehető változást az emittanciadiagramban. Természetesen a helytelen munkapontbeállítás miatt a kivont ionáram erősen csökkent, és a nyaláb fényessége ennek megfelelően változott.

#### I r o d a l o m

- [1] Judd, D.L.: Ann. R. Nucl. Sci., 8, 181 /1958/
- [2] Vályi L., Gombos P., Roósz J.: KFKI Közl., 12, 461 /1964/
- [3] McKeever, R., Yokosawa, A.: R. Sci. Instr., 33, 746 /1962/
- [4] Rose, P.H., Wittkower, A.B., Bastide, R.P., Galejs, A.: Nucl. Instr. Methods. 14, 79 /1961/
- [5] Collins, L.E. et al.: Nucl. Instr. Methods. 26, 157 /1964/
- [6] Taylor, C.S.: Proc. of the Int. Conf. on High Energy. Accelerators, Dubna, 1963. Atomizdat 1964. p. 475.

Érkezett: 1966. ápr. 5.

KFKI Közl. 14.évf. 4.szám, 1966.



## NEUTRONFORRÁSOK ABSZOLUT HOZAMÁNAK MÉRÉSE $MnSO_4$ AKTIVÁLÁSI MÓDSZERREL

Irta: András Andor, Deme Sándor és Nagy Judit

### Összefoglalás

Gyorsneutron források abszolút hozamát  $MnSO_4$  oldat aktiválódása alapján határoztuk meg. A keletkezett  $^{56}Mn$  aktivitását szcintillációs mérőberendezéssel állapítottuk meg, melyet  $4\pi/\beta$  -számlálóban bemért nagy fajlagos aktivitású  $^{56}Mn$  oldattal kalibráltunk.

A fenti módszerrel megmértük egy *Ra-Be* forrás hozamát, melyet  $3,35 \cdot 10^6$  n/sec-nek találtunk. Mérésünk standard hibája  $\pm 1,5\%$ , a mért adat  $3\%$ -kal kisebb a forrás gyárilag megadott hozamánál.

Részletesen ismertetjük a mérési módszert, a forráshozam számításának menetét és a mérés pontosságát befolyásoló tényezőket.

### Bevezetés

A neutronforrások abszolút hozamának mérése az általánosan használt neutrondetektorokkal jelentős nehézségekbe ütközik. A detektorok hatásfoka függ a forrás energiaspektrumától, a geometriai és környezeti paraméterektől. A neutronspektrum, a hatáskeresztmetszeti, a geometriai és szóródási adatok pontatlan ismerete megnehezíti a detektálás hatásfokának számítását, és szükségessé teszi olyan módszer használatát, mely az előbb felsorolt bizonytalanságokat lehetőleg kiküszöböli.

Neutronforrások abszolút hozamának mérése  $\pm 1,5$ - $2\%$ -os pontossággal valósítható meg az ún. mangánaktiválási módszerrel [1, 2, 3, 4]. E módszer lényege az, hogy a gyorsneutronforrást egy nagyméretű, a  $MnSO_4$  tömény vizes oldatával töltött edénybe helyezük, a vízben a gyorsneutronok lelassulnak, a termalizálódott neutronok többségét a mangánatomok befogják, és így  $^{56}Mn$  izotópot kapunk. A keletkezett  $^{56}Mn$  abszolút aktivitását megmérve kiszámítható a forrás abszolút hozama. Ha elhanyagoljuk a tartályból történő neutronkiszökést és a mangánatomokon kívüli egyéb atomokban

létrejövő neutronbefogást, akkor a  $^{56}\text{Mn}$  telítési aktivitása megegyezik a neutronforrás  $Q$  hozamával. A gyakorlatban a neutronok jelentős része fogódik be a folyadék mangánon kívüli összetevőiben, a forrásban és a forrástartóban is, valamint nem elhanyagolható a tartályból történő neutronkiszökés sem.

### Mérési módszer

A mérés két részre osztható. A mérés első részéhez tartozik a  $\text{MnSO}_4$  aktiválása, míg a második lépés a keletkezett  $^{56}\text{Mn}$  aktivitásának mérése. Mindenekelőtt tekintsük át, hogy az aktiválásnál a forrásból kibocsátott neutronok mely része fordítódik a  $^{56}\text{Mn}$  magok aktiválására.

A  $Q$  hozamu forrásból kilépő neutronok a következő folyamatok során nyelődhetnek el:

$$Q = (R_{Mn} + R_H + R_S + R_O + R_K + R_{ft} + R_f - R_{soksz}) Q \quad (1)$$

ahol  $R_{Mn}$  a mangánban befogódó neutronok hányada,  
 $R_H$  a hidrogénben befogódó neutronok hányada,  
 $R_S$  a kénben befogódó neutronok hányada,  
 $R_O$  az oxigénben befogódó neutronok hányada,  
 $R_K$  a tartályból kiszökő neutronok hányada,  
 $R_{ft}$  a forrástartóban befogódó neutronok hányada,  
 $R_f$  a forrásba reflektált és ott elnyelődő neutronok hányada,  
 $R_{soksz}$  a forrásban és a tartályban fellépő neutronsokszorozás valószínűsége.

Vizsgáljuk meg részletesen az egyes tagok természetét és nagyságát a felírt kifejezésben.

A mangánban befogódó neutronok időegység alatti száma szabja meg a  $^{56}\text{Mn}$  keletkezési sebességét. A mangán nagy rezonanciabefogási hatáskeresztmetszettel rendelkezik ugyan, de a vizes oldat makroszkópikus ütközési hatáskeresztmetszete sokkal nagyobb, mint az abszorpciós hatáskeresztmetszet, ezért a neutronok zöme termelizálódik, a termikus neutronok befogási hatáskeresztmetszete  $13,2 \pm 0,1$  barn [5]. A fentiek alapján az időegység alatt befogódó neutronok száma független a neutronforrás kezdeti energiaspektrumától.

A hidrogén befogási hatáskeresztmetszete  $1/v$  törvény szerint változik, emiatt a neutronbefogás főleg a termikus tartományban történik, a termikus neutronok hatáskeresztmetszete  $0,432 \pm 0,007$  barn [6]. A hidro-

gében időegység alatt befogódó neutronok száma, a mangánhoz hasonlóan, független a neutronforrás spektrumától.

A kén termikus neutron befogási hatáskeresztmetszete  $0,52 \pm 0,02$  barn [6]. A gyorsneutronok által kiváltott  $S/n, \alpha/$  és  $S/n, p/$  magreakciók nagysága a neutronok energia- és intenzitáseloszlása, valamint a reakciók energiatartózkodása alapján számítható. A számítás pontos elvégzése jelentős nehézségekbe ütközik, de mivel a kén gyorsneutron magreakcióinak hatáskeresztmetszete kicsi, a korrekció is kicsi, s annak pontatlansága a véghibát kevéssé befolyásolja.

Az oxigén termikus neutron befogási hatáskeresztmetszete nagyon kicsi  $\sigma < 0,0002$  barn [6]/, emiatt elhanyagolható. Az oxigén gyorsneutron befogását figyelembe kell venni akkor, ha a forrás által emittált neutronok energiája meghaladja a lehetséges magreakciók küszöbenergiáját. Az oxigén 99,8 %-át az  $^{16}\text{O}$  izotóp alkotja. Az egyetlen gyakorlatilag számbajövő magreakció az  $^{16}\text{O}/n, \alpha / ^{13}\text{C}$ , ennél a küszöbenergia 2,2145 MeV [7].

A forrásból emittált neutronok egy része nem fogódik be a folyadékban, hanem kiszökik. A kiszökés valószínűsége függ a kezdeti neutronenergiától és a tartály geometriai méreteitől. A  $\text{MnSO}_4$  lassítási képessége megegyezik a tiszta víz lassítási képességével [8]. Ha a tartály méreteit úgy választjuk meg, hogy a forrás és a tartály fala közötti közepes távolság sokszorosán meghaladja a neutronok közepes lelassulási úthosszát, akkor a kiszökés értéke kicsi lesz.

A neutronforrás tartója abszorbeálhatja a termikus és gyorsneutronok egy részét. A forrástartó méreteit és anyagát úgy kell megválasztani, hogy ez az abszorpció minimális legyen. Legcélszerűbb vékony polietilén forrástartót használni.

A neutronforrás is abszorbeálhatja a folyadékból visszajutó neutronok egy részét. Azokat a neutronokat, melyek a forrásból történő kijutásuk előtt abszorbeálódnak, nem vesszük figyelembe.

A nagy moderációs képességű folyadékok növelik a forrásba visszajutó termikus neutronok számát, míg a nagy abszorpció képességű folyadékok csökkentik a reflektálódó neutronok számát. A forrás elnyelőképességének számítását csak a neutronforrás belső anyageloszlásának, a forrás környezetében lévő neutronok energia- és intenzitáseloszlásának ismeretében lehet elvégezni.

A források elnyelőképességének meghatározására a különböző szerzők egymástól eltérő módszereket használnak. Mi a hasonló típusú forrásra

megadott, gondos számításokon és méréseken alapuló adatokat használtuk fel [3].

A neutronsokszorozás két módon következhet be:

a/ az  $/n,2n/$  típusu magreakciók akkor vezetnek neutronsokszorozáshoz, ha a neutronforrás energiája meghaladja a fenti reakció küszöbenergiáját. Ez radioaktív neutronforrások esetében az adott folyadékkomponensekkel nem valósul meg, csak a forrásba reflektálódott gyorsneutronok által a  ${}^9\text{Be}/n,2n/$  magreakció váltódhat ki, ennek valószínűsége azonban elhanyagolható.

b/ A radioaktív neutronforrások egy része hasadóanyagot /pl. plutóniumot/ tartalmaz. A sokszorozás függ a hasadóanyag fajtajától, mennyiségétől és a geometriai adatoktól. Meghatározása a forrás elnyelésének meghatározásához hasonlóan végezhető el.

Ha a forrás hozamát mérjük, akkor az /1/ egyenletben az  $R_{\text{Mn}}$ , az  $R_{\text{g}}$  és kisebb mértékben pedig az  $R_{\text{O}}$  és  $R_{\text{H}}$  értékét tudjuk változtatni, míg az  $R_{\text{k}}$ ,  $R_{\text{ft}}$ ,  $R_{\text{f}}$  és  $R_{\text{soksz}}$  állandóak. Az  $R_{\text{Mn}Q}$  az egyetlen, a kísérlet folyamán mért adat, mely döntően meghatározza a módszer érzékenységét és pontosságát. A pontosság, mellyel az  $R_{\text{Mn}Q}$ -n kívüli tényezőket ismerjük, kisebb mértékben befolyásolja a forráshozam mérésének pontosságát, azonban ezen adatok közvetlen mérésére esetünkben nincsen mód, és csak mint számított korrekciókat használjuk.

MnSO<sub>4</sub> oldat. A Q hozam mérésére szolgáló aktiválandó anyag iránti követelmények az alábbiak:

- a/ nagy termikus neutron abszorpciós hatáskeresztmetszet.
- b/ Nagyfokú oldhatóság vízben, szobahőmérsékleten.
- c/ Alacsony beszerzési ár, mivel a mérés elvégzéséhez nagy anyagmennyiségre van szükség.
- d/ Megfelelő felezési idő, hogy a keletkezett anyag a telítési aktivitást hamar elérje. A legkedvezőbb felezési idő 1-5 óra.
- e/ Az aktivált anyag 0,5 MeV-nél nagyobb energiájú gamma-sugárzást bocsásson ki, hogy viszonylag nagy mennyiségű folyadék aktivitását lehessen megmérni a folyadékban létrejövő lényeges önabszorpció nélkül.

A fenti követelményeket legjobban a  $MnSO_4$  elégíti ki. Egyes mangánvegyületek oldhatóbbak ugyan, de azokban a mangán anion formájában van jelen, és így a Szilárd-Chalmers reakció révén az anionban kötött mangán felaktiválódáskor a kötésből kiszakad, s mint vízben oldhatatlan  $MnO_2$ -hidrát kiülededik. Ez a folyamat jelentős látszólagos fajlagos aktivitáscsökkenést, tehát jelentős neutronforrás erősség alámérést eredményez. Ezen felül az említett vegyületek a kénen és az oxigénen kívül egyéb, nagy abszorpciós hatáskeresztmetszetű összetevőket is tartalmaznak. A víz, melyet oldószerként és moderátorként alkalmazunk, jelentős H-tartalma miatt a Mn-nal azonos nagyságrendű neutronabszorpciót eredményez. A H-ben történő neutronbefogás nehézvíz alkalmazásával, indokolt esetben, kiküszöbölhető. A nehézvíz kizárólagos alkalmazása a moderációs képesség jelentős romlásához vezet, emiatt az ilyen méréseknél a nehéz- és a könnyűvíz keverékét is lehet alkalmazni [9].

A keletkezett radioaktivitást vagy a tartályba merített gamma-sugárzás detektorral, vagy a folyadékból vett minta mérésével lehet meghatározni. Az első módszer nagyobb érzékenységet, a második - szcintillációs spektrométer és sokcsatornás analizátor használata esetén - jobb stabilitást tesz lehetővé. Mindkét mérési módnál a mérés előtt a folyadékban lévő felaktiválódott mangán homogén eloszlására van szükség, amit gondos keveréssel lehet elérni.

Neutronbefogás számítása. A kádban lévő i és j komponensek által befogott termikus neutronok hányadának  $R_i$ , ill.  $R_j$  viszonya a tartályban egyenesen arányos az illető anyagok makroszkópikus hatáskeresztmetszetével:

$$\frac{R_i}{R_j} = \frac{N_i \sigma_i}{N_j \sigma_j} \quad (2)$$

Igy

$$R_H = R_{Mn} \frac{N_H \sigma_H}{N_{Mn} \sigma_{Mn} (1+\alpha)}, \quad (2a)$$

$$R_S = R_{Mn} \frac{N_S \sigma_S}{N_{Mn} \sigma_{Mn} (1+\alpha)}, \quad (2b)$$

ahol  $N_{Mn}$ ,  $N_H$ ,  $N_S$  a mangán, a hidrogén és a kénatomok  $1 \text{ cm}^3$  oldatban lévő száma, és  $\sigma_{Mn}$ ,  $\sigma_H$ ,  $\sigma_S$  azok termikus neutron abszorpciós hatáskeresztmetszete. Az  $(1+\alpha)$  tényező a mangánatomok epitermikus aktiválódását veszi figyelembe. A korrekció nagysága az adott  $MnSO_4$  koncentrációnál 1,7% [4].

Az  $^{16}\text{O}/\text{n}$ ,  $\alpha /$ ,  $\text{S}/\text{n}$ ,  $\alpha /$  és az  $\text{S}/\text{n}, \text{p}/$  magreakciók révén létrejövő gyorsneutron befogás valószínűségét a következő kifejezés adja meg [10]:

$$R = \int_{E_k}^{E_{\text{max}}} \frac{N(E) \Sigma(E)}{\Sigma_H(E)} dE \quad (3)$$

ahol  $R$  a befogott neutronhányad,  $\Sigma(E)$  a kérdéses magreakció makroszkópikus hatáskeresztmetszete  $E$  energiánál,  $\Sigma_H(E)$  a hidrogén makroszkópikus szórási hatáskeresztmetszete  $\text{cm}^{-1}$ -ben az adott folyadékban,  $E_k$  a reakció küszöbenergiája,  $E_{\text{max}}$  a neutronforrás spektrumának maximális energiája, és  $N(E)$  a neutronok  $E$  és  $E+dE$  közötti tartományba eső hányada. A spektrum normált, úgy hogy

$$\int_0^{E_{\text{max}}} N(E) dE = 1 \quad (4)$$

A gyorsneutronoknak az oxigénnel és a kénnel fellépő magreakcióinak hatáskeresztmetszete ismert [11-14]. A fotoneutron-források energiája az oxigén és kén magreakcióinak küszöbértéke alatt van. Így a fotoneutron forrásokra  $R_0$  és  $R_S$  nullával egyenlő.

Az  $\alpha / \text{n}$  forrásoknál a korrekció értéke néhány százalékos lehet. A  $^{239}\text{Pu} - \alpha - \text{Be}$  forrásnál, a telítetthez közeli  $\text{MnSO}_4$  esetében  $R_0=0,020$  és  $R_S = 0,012$  [2].

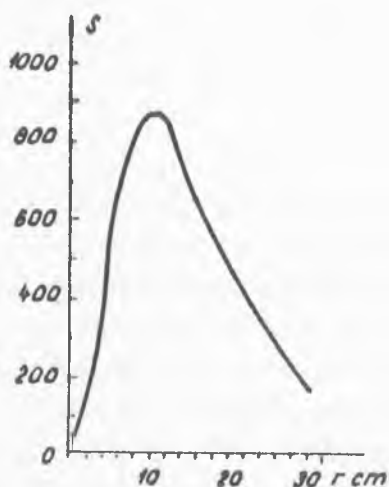
A neutronkiszökés  $R_k$  értékét kísérletileg vagy a lassulási folyamat számításával lehet meghatározni. A kísérleti meghatározás a tartály falánál történő termikus neutronfluxus mérése alapján végezhető el [15], vagy pedig a faltól a végtelenig extrapolált, időegység alatt befogott relativ neutrons szám integrálásával [1]. A termikus neutronsűrűség eloszlását a  $\text{MnSO}_4$  oldatban az 1. ábra mutatja be.

A neutronkiszökési korrekció számítását az [1]-ben leírt módszer szerint végeztük. A mérések szerint az  $r$  sugaru gömbtartályból a kiszökés valószínűsége az

$$R_k(r) = 2,08 e^{-0,0986r}$$

egyenlettel írható le.





1. ábra

Termikus neutron-sűrűség a  $\text{MnSO}_4$  oldatban, a forrástól mért távolság függvényében [1]

Méréseinket 85 cm magasságu és 75 cm átmérőjű hengeres edényben végeztük.

Erre az esetre, a fenti összefüggés alapján, grafikus integrálással kiszámítottuk a kiszökés nagyságát, és azt 2,6%-nak találtuk. A kiszökési korrekció hibája [1] alapján 0,25%.

A forrás abszorpciójának nagysága  $0,4 \pm 0,2 \%$  [3].

A forrástartó abszorpcióját, mivel a forrástartó  $2 \times 0,2$  mm falvastagságú polietilén volt, elhanyagoljuk.

Az általunk használt Ra-Be neutronforrásoknál  $R_{\text{soksz}} = 0$ , mert a forrás nem tartalmaz hasadóanyagot, és a  $\text{Be}/n,2n/$  reakció valószínűsége elhanyagolható.

#### Kísérleti rész

A kísérletekhez használt berendezés egy  $\text{MnSO}_4$  oldatot tartalmazó tartályból, egy szcintillációs spektrométerből és egy áramlásos  $4\pi/\beta$  -számlálóból áll.

A  $\text{MnSO}_4$ -et tartalmazó tartály átmérője 75 cm, mélysége 95 cm. Az oldat magasságát a kísérletek folyamán 75 és 85 cm között változtattuk. A nagyobb magasságnak kisebb kiszökés és kisebb fajlagos aktivitás felel meg, ez esetben a mérést kisebb érzékenységgel, de nagyobb pontossággal lehet elvégezni. A felhasznált  $\text{MnSO}_4$  purum tisztaságú volt, ennek ellenére az oldás után az oldatban  $\text{MnO}_2$  kiválás jelentkezett, melynek egy részét savanyítással, más részét kétszeri, ülepités utáni átfejtéssel sikerült eltávolítani. A kísérleteknél az oldat víztiszta, üledékmentes volt. A Szilárd-Chalmers reakció folytán keletkező  $\text{MnO}_2$  kiválásának megakadályozására az oldat pH-értékét  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -el 2,5-re állítottuk be.

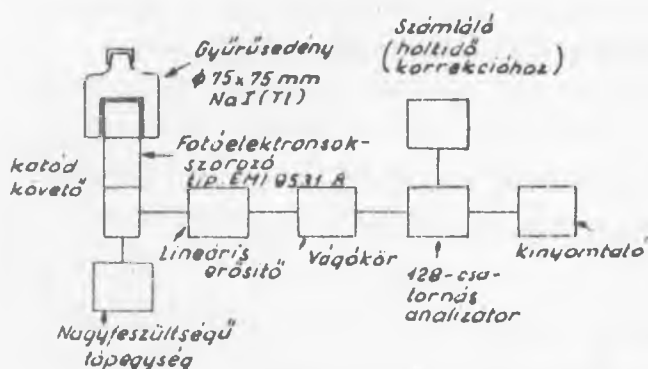
Az oldat sűrűsége  $1,3405 \text{ g/cm}^3$  volt, mely a közel telített, 28,85%-os koncentrációnak felel meg. A koncentrációt sűrűségmérés alapján állapítottuk meg [16].

Ebben az oldatban a különböző atomok aránya a következő:

$$\frac{n_H}{n_{Mn}} = \frac{2 \times 151,01 \times 71,18}{18,02 \times 28,82} = 41,33$$

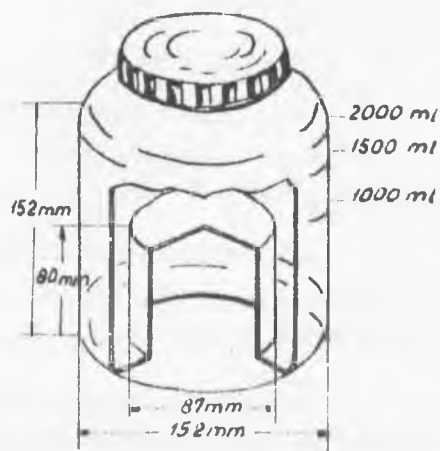
$$\frac{n_S}{n_{Mn}} = 1$$

A mérés blokkvázlatát a 2. ábra mutatja. A mérendő folyadék-  
mintát egy közel 2,5 literes, pontosan ismert térfogatú gyűrűs edény-  
ben helyeztük el /3. ábra/, mely egy 10 cm-es vastagságú vassal árnyé-  
kolt 75x75 mm-es NaI/Tl/ kristályt vett körül. A NaI/Tl/ kristály kis  
hátterű kivitelben készült /Nuclear Enterprises, tip. 12 A 12/, mely-  
hez egy pirex ablaku EMI 9531 B típusu multiplier csatlakozott. A mé-  
rések kiértékeléséhez egy alulvágó áramkörrel ellátott, KFKI gyártma-  
nyu 128 csatornás analizátort használtunk fel, melyhez a holtidőkorrek-  
ció elvégzéséhez szükséges számlálót kapcsolunk. A holtidőkorrekció



2. ábra

A szcintillációs aktivitásmérő  
berendezés blokkvázlata

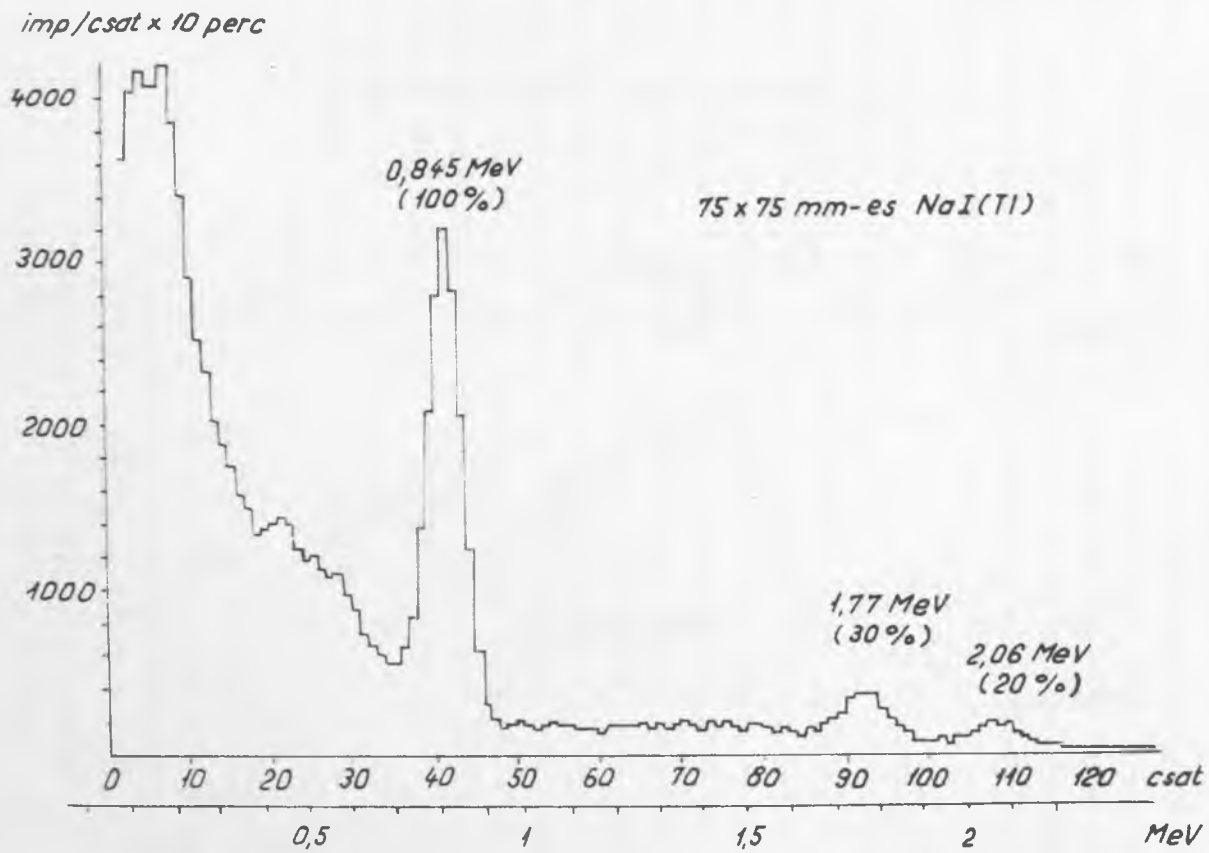


3. ábra

A  $MnSO_4$  aktivitásának mérésé-  
re szolgáló gyűrűs edény

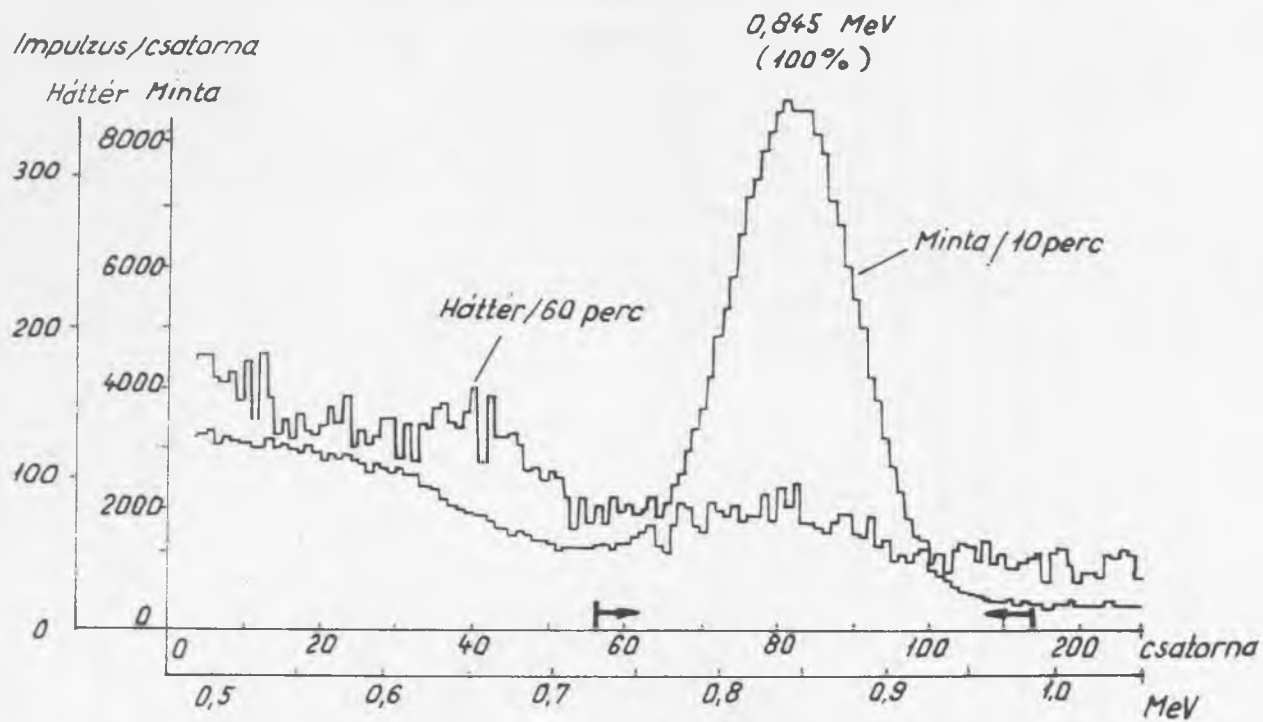
pontosabbá tétele érdekében ellenőriztük az analizátor holtidejét, s  
azt digitális rendszerű elektronikus méréssel  $214 \pm 2$   $\mu$ secnek talál-  
tuk, ami jól megegyezik a gyári specifikációval.

Az aktivált oldat gamma-spektrumát a 4. ábra mutatja. A kiér-  
tékelés pontosabbá tétele érdekében méréseinknél csak a 0,345 MeV-es  
csúcsot használtuk ki. A diszkriminációs küszöb kijelölésének hibáját  
azzal csökkentettük le, hogy a spektrum ki nem használt kis és nagy-  
energiás részét levágtuk, és a maradék spektrumot az analizátor teljes  
tartományára nyújtottuk. A nyújtott spektrumot és a berendezés hát-



4. ábra

Az aktivált  $\text{MnSO}_4$  oldat teljes  $\gamma$ -spektruma



5. ábra

Az aktivált  $\text{MnSO}_4$  oldat nyújtott háttér- és  $\gamma$ -spektruma

térpektrumát az 5. ábra mutatja. Az ábrán megjelöltük a számlálásra felhasznált energiatartományt. A tartomány kijelölésére a mért  $^{56}\text{Mn}$  saját csucsát használtuk fel. A háttérmérésnél az energiakalibrációra a  $^{54}\text{Mn}$  0,835 MeV-es csucsát alkalmaztuk, mert ez az izotóp a  $^{56}\text{Mn}$ -hoz közel azonos energiájú gamma-sugárzást bocsát ki, de felezési ideje hosszú, 291 nap.

A berendezés hatásfokát a következőképpen határoztuk meg. A  $^{56}\text{Mn}$ -ot tartalmazó törzsoldatból pontos súlyméréssel aliquotot mértünk ki aranyozott Vynsfóliára, majd a bepárlás után metán áramlásos proporcionális  $4\pi/3$  -számlálóban [17] megmértük a minták abszolút béta-aktivitását. Az ilyen módon standardizált törzsoldat súlyra pontosan megmért hanyadát hozzáadtuk a gyűrűs edényekben lévő tömény  $\text{MnSO}_4$  oldathoz, s a hitelesítést ezzel végeztük.

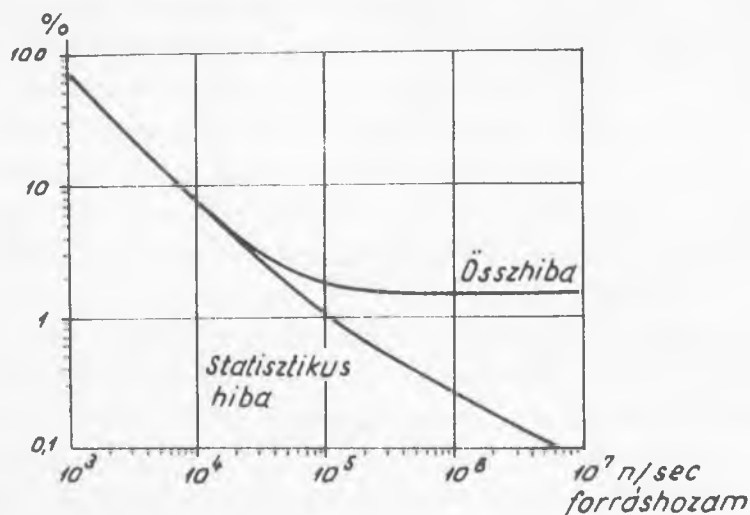
A törzsoldat úgy készült, hogy a reaktorhoz csatlakozó pneumatikus gyorsbesugárzó berendezéssel  $\text{MnSO}_4$ , majd  $\text{MnCO}_3$  10-10 mg-os mennyiségét mintegy fél percre besugároztuk [18], mely során a stabil  $^{55}\text{Mn}$ -ból  $n, \gamma$  / reakcióval  $^{56}\text{Mn}$  keletkezik. A besugárzott  $\text{MnCO}_3$ -at sósavban, a  $\text{MnSO}_4$ -et kénsavban oldottuk. A két törzsoldatot pH=2-re állítottuk be, a bemérést polietilén, illetve üvegcsöppentővel végeztük, a súlymérés analitikai mérleggel történt. Mindkét törzsoldat fajlagos aktivitását 6-6 bemérésből számítottuk. A  $4\pi/3$  -méréshez készült preparátumok egyenletes szétterítése érdekében nedvesítő anyagként inzulinoldatot, illetve polivinil alkoholt használtunk. A nedvesített Vynsfóliára kimért oldatot ezután ammónia atmoszférában, infralámpa alatt lassan szárazra pároltuk. A keletkező, egyenletesen szétterített, igen finom szemcsés  $\text{MnO}_2$  maradék felületi sűrűsége mintegy  $3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  volt. Ilyen körülmények között, figyelembe véve a  $^{56}\text{Mn}$  által emittált béta-csoportok maximális energiáit, önabszorpciós veszteséggel nem kellett számolni [19]. A preparátumok radiokémiai tisztaságának ellenőrzését a bomlágörbék analízise alapján végeztük. A hosszú felezési idejű szennyeződést 0,5%-nak találtuk, és ezt korrekcióként figyelembe vettük. A törzsoldatok fajlagos aktivitását a 6-6 mérés átlagából számítottuk. A középérték középhibája 0,3%, illetve 0,4% volt. A két standardizált törzsoldatból súlyra pontosan megmért hanyadot mértünk be az 1.sz. és a 2.sz. gyűrűsedénybe, amely a nagy tartályban lévő mangánszulfáttal megegyező koncentrációju mangánszulfáttal volt megtöltve. Ezután a már ismert  $^{56}\text{Mn}$  aktivitást tartalmazó gyűrűsedényeket a szcintillációs mérőfejre helyezve, a már előbb említett beállítás mellett megmértük. A mérésekből számolt hatásfok a  $^{56}\text{Mn}$  0,845 MeV-es fotocsucs tartományára vonatkoztatva az 1.sz. gyűrűsedénnyel 1,80%, a 2.sz. gyűrűsedénnyel 1,815%. A

meghatározás statisztikus hibája 0,3 %.

Az inaktív  $MnSO_4$  oldattal a kijelölt tartományban mért háttér 97 imp/perc volt.

A hengeres tartályban lévő  $MnSO_4$  oldat térfogatát  $^{56}Mn$ -tal izotóphigitásos módszerrel határoztuk meg. A mért térfogat  $375 \pm 1$  liter.

A neutronforrás hozam mérésének menete a következő. A  $MnSO_4$ -et telítési értékig, kb. 30-40 óra hosszat aktiváljuk. Aktiválás után a folyadékszint magasságának mérésével megállapítjuk az aktivált folyadék mennyiségének esetleges változását. A folyadékot jól összekeverjük, majd az oldattal megtöltjük a két gyűrűs edényünket. Az aktiválás végétől számított 15 perc múlva kezdjük el a mérést a szcintillációs berendezéssel, majd 10 perces mérési és 10 perces kiolvasási, illetve beállítási idővel egy-egy gyűrűs edényt 3 alkalommal lemérünk. Az ilyen időbeosztású méréssel különböző hozamu neutronforrásokkal elérhető egyszeres statisztikus és összhibát a 6. ábra mutatja.



6. ábra

A mérés statisztikus és összhibája a neutronforrás hozamának függvényében

A leírt mérési eljárással egy 233 mg-os RaBe forrás abszolút hozamát mértük meg. A forrás szovjet eredetű, hozama a gyári adatok szerint  $3,38 \times 10^6$  neutron/sec volt 1959 augusztusában. A gyári adatlap nem közzölte a mérés pontosságát. Az eredeti hozam a forrás Po-tartalmának növekedése miatt a gyári adatok alapján 1965 októberében  $3,45 \times 10^6$  neutron/sec hozamú. Mérésünk alapján a forrás hozama  $3,35 \times 10^6$  neutron/sec. Mérésünk

standard hibája  $\pm 1,5\%$ , mely a következő összetevőkből áll:

a/ a $4\pi$ számlálás hibája	1%
b/ a Mn-56 aktivitás mérés statisztikus hibája	0,2 %
c/ mangánkoncentráció mérés hibája	0,1 %
d/ térfogatarány mérés hibája	0,3 %
e/ termikus neutron hatáskeresztmetszet hibája	
a kénnél	0,1 %
a hidrogénnél	0,3 %
a mangánnál	0,4 %
f/ gyorsneutron magreakciók hibája	
oxigénnél	0,4 %
kénnél	0,3 %
g/ a kifolyási korrekció hibája	0,3 %
h/ a forráselnyelés hibája	0,2 %
i/ a mangán rezonanciaabszorpciójának hibája	0,2 %

A fent felsorolt hibák már a korrekció értékével súlyozott értékeket adják meg. A forrás hozamának véghibája az egyszeres statisztikus hiba és a többi hibák eredőjeként létrejövő valószínű hiba. E hibák egy része a különböző nemzetközi és egyéb összemérések szórásképében nem jelentkezik, mert az összeméréseknél ugyanazokat a magfizikai adatokat használják fel a mérésben résztvevők.

Ugyanazon forrás hozamának mérését 3 különböző napon végeztük el, és a mért hozam a számlálás statisztikus hibáján belül azonos eredményt adott.

#### Köszönetnyilvánítás

A szerzők köszönetüket fejezik ki Lancsarics György és Zalán Béla technikusoknak a mérés elvégzésében nyújtott segítségükért.

#### I r o d a l o m

- [1] Koltay E: M.Fiz.F., 9, 89 /1961/
- [2] Gurfinkel, Y. and Amiel, S.: 1A-800 /1964/
- [3] Geiger, K.W. and Whyte, G.N.; Can. J. Phys, 37, 256 /1959/
- [4] De Juren, J. and Chin, J.: J. Research Natl. Bureau Standards, 55/6, 311 /1955/

- [5] Meadows, J.W. and Whalen, J.F.: Nuclear Sci. and Engng, 9,  
132 /1961/
- [6] Hughes, D.J. and Schwartz, R.B.: BNL - 325, 2-nd ed./1958/
- [7] Everling, F., Koenig, L.A., Mattauch, J.H.E. and Wapstra, A.:  
1960 Nuclear Data Tables, Part 1, 1961.
- [8] Hanna, G.C. and Runwales, O.J.C. Can. J.Phys., 34, 959 /1956/
- [9] Caswell, R.S., Noyce, R.H., Garfinkel, S.B. and Mosburg, E.R.:  
Neutron Dosimetry, vol. II. p. 547, IAEA,  
Vienna, 1963.
- [10] McTaggart, M.H. : Reactor Sci. and Techn, 14, 212 /1961/
- [11] Goldstein, H.: NDA-086-2 /1958/
- [12] Hürliman, T. and Huber, P.: Helv. Phys. Acta, 28,33 /1955/
- [13] Seitz, J. and Huber, P.: Helv. Phys. Acta, 28, 227 /1955/
- [14] Howerton, R.J.: UCRL-5226, Part I, /1958/
- [15] Macklin, R.L., de Saussure, G., Kington, J. D. and Lyon, W.S.:  
Nucl. Sci Engng, 8, 210 /1960/
- [16] International Critical Tables, 3, McGraw-Hill Book Co, N.Y.p.68 1928
- [17] Dézsi I. és Fehér I.: M.Fiz.F., 9, 285 /1963/
- [18] Csőke A., Péter I. és Kertész K.: KFKI Közl., 12, 5 /1964/
- [19] Geiger, K.W.: Metrology of Radionuclides, p. 393, IAEA Vienna, 1960

Érkezett: 1966. febr. 8.

KFKI Közl. 14.évf. 4.szám, 1966.