

Vol. 14. No. 6. 1966

KFKI

KÖZLEMÉNYEK

ОБОБЩЕНИЯ 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. dec. 5.

Rotaszám: 2836

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/

T A R T A L O M

1. Grüner György, Tompa Kálmán és Tóth Ferenc: Szuszceptibilitás-mérés MMR módszerrel	345
2. Kluge Gyula, Lajtai Albert és Nagy László: U-235 hasadásánál keletkezett neutronok szög- és energiaeioszlásának mérése	359
3. Kósa Somogyi István, Tompa Kálmán és Dézsi István: A szilárd dimetilanilin fiziko-kémiai tulajdonságainak vizsgálata I.	369
4. Varga László: Gauss-függvények keverékének komponensekre bontásáról	383
5. Makra Zsigmond: A ZR-2 és a VVR-SZ reaktorok dozimetriai vizsgálata	391
6. Vályi László: Titánkatódos mágneses-elektromos kisülékes vákuumszivattyu vizsgálata	401
7. Tóth Ferenc és Tompa Kálmán: Analóg integrátor	409
8. Pósch Margit, Sebestyén Ákos és Telbisz Ferenc: Fényképezőgépek helyzetének meghatározása buborékkamrában legkisebb négyzetek módszerével	415

Р е з ю м е

1. Измерение восприимчивости методом ЯМР

Д. Грюнер, К. Томпа и Ф. Тот

Описываются принцип измерения восприимчивости методом ядерного магнитного резонанса и держатель образцов, необходимый для измерений. В качестве измерительного образца пользовались "измерительным крестом", изготовленным из резины, т.е. из порошка CuCl , расположенного в полистироле. Была измерена восприимчивость MnO в области перехода антиферромагнитного в парамагнитный, в диапазоне температур $-190 \dots +120^\circ\text{C}$. Результаты были сравнены с литературными данными, полученными магнитными весами.

2. Измерение угловых и энергетических распределений нейтронов, возникающих при делении U^{235} .

Д. Клуге, А. Лайтаи и Л. Надь

Измеряли энергетические распределения нейтронов, возникающих при делении U^{235} тепловыми нейтронами под различными углами к направлению разлета осколков. Наши экспериментальные данные, трансформированные в лабораторной системе, были сравнены со спектром изотропного испарения в системе осколков деления.

3. Люминесценция диметиланилина, содержащего акцептор FeCl_3 .. облученного при низких температурах

И. Коша-Шомоди, К. Томпа и И. Дежи

Нагревание подвергнутого при температуре 77°K гамма облучению $\text{N,N}'$ -диметиланилина /ДМА/, содержащего хлорное железо, сопровождается испусканием света. Максимумы интенсивности испускаемого света наблюдаются при 77° , 100° , 150° и 220°K . При этих температурах в облученном растворе происходят структурные изменения. В чистом ДМА измерения ЯМР указывают на вращение CH_3 групп, которое начинается ниже 77°K , других структурных превращений при помощи метода ЯМР обнаружить не удалось. Радиационно-химический выход люминесценции составлял $10^{-6} - 10^{-5}$ фотонов/100 эв. Выход фотонов экспоненциально уменьшается с увеличением

дозы облучения. Спектр испущенного света находится в диапазоне 360-600 мкм с максимумом при 490 мкм .

Образовавшиеся в процессе облучения заряженные частицы попадают в ловушки, глубина которых изменяется в пределах 0,1 - 0,7 эв. Испускание света является результатом рекомбинационного процесса заряженных частиц, вызванного нагреванием, а частично может быть вызван эксцитами. В радиационно-химическом процессе возбуждаются главным образом молекулы ДМА. Возбуждение после миграции локализуется на молекулах $FeCl_3$ и в конечном счете излучается с $FeCl_2^*$

4. О разложении суперпозиции функций Гаусса на компоненты
Л. Варга

Описывается простой цифровой способ, при котором используется метод уменьшения рассеяния для разложения суперпозиции функций Гаусса на компоненты. Ведутся работы по выбору параметров, участвующих в приближении.

5. Дозиметрические исследования реакторов ЗР - 2 и ВВР-С.
Ж. Макра

В предыдущей работе [1] было описано два детектора, построенных по принципу нейтронного замедления, т.е. измеритель средней энергии нейтронов и всевольный счетчик. В данной статье дается описание измерений, полученных этими детекторами.

6. Исследования титано-катодного магнитно-электроразрядного вакуумного насоса
Л. Вали

В статье описывается исследование свойства и параметров работы холодно-катодного магнитно-электроразрядного вакуумного насоса.

7. Электронное моделирующее устройство для интегрирования
Ф. Тот и К. Томпа

Используя решающий усилитель генератора ЕКМУ NV-213, дающего линейную программу, был нами построен интегратор для ядерно-магнитного резонансного спектрометра в Лаборатории физики твердых тел. С применением интегратора существенно можно улучшить отношение сигнал/шум на спектре. Перечислены некоторые дальнейшие возможности применения интегратора.

8. Определение положения фотоаппаратов в воздушной камере по методу наименьших квадратов

М. Пош, А. Шебештьен и Ф. Телбис

Для определения положения фотоаппаратов разрабатывался итеративный метод. Метод исследовался при водородной камере CERN 30 см.

S u m m a r i e s

1. Magnetic Susceptibility Measurement by NMR method

G.Grüner, K.Tompa, F.Tóth

The principle of susceptibility measurement by nuclear magnetic resonance method is discussed and the sample holder needed for the measurement is described. As reference sample, rubber or CuCl powder embedded in polystyrene is used. The magnetic susceptibility of MnO was measured around the antiferromagnetic to paramagnetic transformation temperature from -190° to $+120^{\circ}$ C. The measured values are compared with those reported in the literature as obtained by magnetic balance methods.

2. Angular and Energy Distribution of Neutrons from U-235 Fission

Gy.Kluge, A.Lajtai, L.Nagy

Measurements of the energy distribution of neutrons produced by the thermal neutron induced fission of U-235, performed at various angles relative to the direction of outflying fission fragments are reported. The results of the measurements are compared with the isotropic evaporation spectrum in the fission fragment system transformed to the laboratory system.

3. Physico-chemical Investigation of Solid Dimethyl-Aniline

I.Kosa-Somogyi, K.Tompa, I.Dézsi

In measurements of the light emission on the warming up of N,N'-dimethyl-aniline /DMA/ containing ferric chloride and irradiated with 60 Co γ -rays at 77° K, intensity maxima have been observed at 77° , 100° , 150° , and 220° K, indicating structural transformat-

ions in the irradiated solution around these temperatures. NMR studies on pure DMA show rotation of the CH_3 group starting at about 77°K . No other structural changes could be inferred from the NMR spectra of the pure material. The radiation chemical light yield varies from 10^{-6} to 10^{-5} photons/100 eV and is seen to decrease exponentially with time. The spectrum lies in the wavelength range from 360 to 600 $\text{m}\mu$ with a maximum at 490 $\text{m}\mu$.

Charged particles formed during irradiation are captured by traps with depths varying from 0,1-0,7 eV. The light emission is due partly to the recombination of charged particles, partly to excitations. In the radiation chemical process it is mainly the DMA molecules which are subject to excitation. The excitation is assumed to be then transferred from molecule to molecule and eventually to FeCl_3 when it causes the FeCl_2^* to emit.

4. Decomposition of Superimposed Gaussian Distribution Functions

L.Varga

A simple method is described for decomposing superimposed Gaussian distribution functions by reducing the variance. The choice of parameters involved in the approximation is discussed.

5. Dosimetric Investigation of the ZR-2 and WWR-S Type Reactors

S.Makra

Measurements are reported which have been performed with the use of two neutron detectors based on the principle of neutron moderation, an average neutron energy meter and a long counter. These measuring devices have been already described in an earlier paper [1].

6. Investigations of Ion Getter Pump for Magnetic-Electric Discharge with Titanium Cathode

L.Vályi

The characteristics of the pump and the parameters of interest are discussed.

7. Analog Integrator

F.Tóth, K.Tompa

The analog integrator developed for use with the "wide line" nuclear magnetic resonance spectrometer of the Solid State Physics Laboratory by making use of the EKMÚ NV-213 type linear programmer is described. The application of the integrator permits a substantial improvement in the signal to noise ratio of the spectrometer. Some other possible uses of the integrator are suggested.

8. Least Square Determination of Camera Positions in Bubble Chambers.

M.Fösch, Á.Sebestyén, F.Telbisz

An iteration method for determining the positions of cameras in bubble chambers is described. The procedure was tested in a CERN-type 30 cm hydrogen chamber.

SZUSZCEPTIBILITÁS-MÉRÉS MMR MÓDSZERREL

Írta: Grüner György^{*}, Tompa Kálmán és Tóth Ferenc

Összefoglalás

Ismertetjük a mag mágneses rezonancia módszerrel történő szuszceptibilitás mérés alapelvét és a mérésekhez szükséges anyagminta tartót. Mérőmintának gumiból, illetve polistirolba ágyazott CuCl porból készült "mérőkeresztet" alkalmaztunk. MnO szuszceptibilitását mértük az antiferromágneses-paramágneses átalakulás környékén, $-190 \dots +120 \text{ C}^\circ$ hőmérséklettartományban. Eredményeinket összehasonlítottuk a mágneses mérleggel mért, irodalmi eredményekkel.

Bevezetés

Gyengén mágneses anyagok szuszceptibilitásának mérésére általában mágneses mérleget használnak, a szuszceptibilitás meghatározása inhomogén mágneses térben, az anyagmintára ható erő mérése alapján történik. Az ugyanezen területen alkalmazható mag mágneses rezonancia /a továbbiakban MMR/ módszerrel történő mérés elvileg különbözik ettől, ugyanis a szuszceptibilitás mérést a mérőminta atommagjai helyén lévő, a mérendő minta lemágnesező hatása következtében, az általunk alkalmazott külső tértől eltérő, belső mágneses tér mérésére vezet vissza. Ez a belső tér az alkalmazott külső téren kívül függ a vizsgálandó minta szuszceptibilitásától és a lemágnesező faktoroktól.

Az MMR módszerrel történő szuszceptibilitás mérésre Fehér és Knight [1] hívta fel a figyelmet, és munkájukban a lehetőség Mn_2O_3 mintán történő demonstrálásán kívül a szuszceptibilitás mérés pontosságát elemzik. Fehér és Knight munkája óta mindössze két rövid közlemény [2] jelent meg az irodalomban, annak ellenére, hogy a szerzők és a mi véleményünk szerint is az MMR berendezéssel rendelkező laboratóriumok eredményesen használhatják a szuszceptibilitás mérésnek ezt a módszerét. Az elérhető mérési pontosság az MMR spektrométer felbontóképességétől függ, és az alkalmazott mágnes térerősségével lineárisan nő. Különösen

^{*}/Diplomamunkás 1965-1966 tanévben.

kényelmesen használható a módszer abban az esetben, amikor elegendő a szuszceptibilitás relatív értékét meghatározni, pl. szuszceptibilitás-hőmérséklet görbék felvételénél.

A cikkben a mérési elvet, a szisztematikus mérési hibákat, az anyagmintát és anyagminta tartót, valamint MnO poron kapott mérési eredményeket ismertetjük.

Mérési elv, szisztematikus hibák

Szuszeptibilitás MMR módszerrel történő mérésének az az alapja, hogy a külső mágneses térbe helyezett anyagmintában létrehozott üregben lévő mágneses tér függ a minta szuszceptibilitásától és ez a mágneses tér MMR módszerrel, az üregbe helyezett mérőminta segítségével, az $\omega_0 = \gamma_D H$ rezonanciafeltétel alapján meghatározható / ω_0 az oszcillátor frekvenciája, γ_D a mérőminta giromágneses faktora, és H a mérendő mágneses térerősség/.

A H_0 külső mágneses tér hatására az anyagminta belsejében létrejövő mágneses térerősség az anyagminta alakjától és szuszceptibilitásától függ

$$H_i = H_0 - N_s M = H_0 (1 - N_s \chi_s \rho_s) , \quad / 1 /$$

ahol N_s az anyagminta alakjától függő mágnesező faktor, χ_s az anyagminta gram-szuszeptibilitása, ρ_s a sűrűsége. (1) összefüggés alapján a szuszceptibilitás meghatározása legkényelmesebben úgy történhet meg, hogy a mérendő anyagmintában két különböző lemágnesező faktossal rendelkező üreget hozunk létre. A mérőmintával kitöltött üregekben lévő mágneses térerősség,

$$\begin{aligned} H_1 &= H_i [1 + N_1 (\chi_s \rho_s - \chi_D \rho_D)] = H_0 (1 - N_s \chi_s \rho_s) [1 + N_1 (\chi_s \rho_s - \chi_D \rho_D)] \\ H_2 &= H_i [1 + N_2 (\chi_s \rho_s - \chi_D \rho_D)] = H_0 (1 - N_s \chi_s \rho_s) [1 + N_2 (\chi_s \rho_s - \chi_D \rho_D)] \end{aligned} \quad / 2 /$$

ahol N_1 és N_2 az egyik, ill. másik üreg lemágnesező faktora, χ_D , ill. ρ_D a mérőminta gram-szuszeptibilitása, ill. sűrűsége. /A Lorentz-féle belső tér járulékát elhagytuk, mert mint belátható, a szuszceptibilitás kifejezésében egy 10^{-6} nagyságrendű korrekcióhoz vezet./ Méréseinket állandó frekvencián, a mágneses teret változtatva végeztük, ellentétben [1] -gyel, ahol a külső mágneses tér volt állandó, és a frekvencia változott. Így a szuszceptibilitásra adódó kifejezés kissé módosul az [1] -ben szereplő kifejezéshez képest.

Állandó frekvencián, a külső mágneses teret változtatva, az $\omega_0 = \gamma_D H$ rezonancia feltétel különböző nagyságu külső mágneses térnél teljesül a két üregben lévő atommagokra. A $H_1 = H_2 = \omega_0 / \gamma_D$ feltevésekből, /2/ alapján a szuszceptibilitásra a

$$\chi_S \rho_S - \chi_D \rho_D = \frac{H_{01} - H_{02}}{(H_{02} N_2 - H_{01} N_1)} = \frac{\Delta H}{H_{02} \left[(N_2 - N_1) - N_1 \frac{\Delta H}{H_{02}} \right]} \quad 13/$$

kifejezés adódik, ahol H_{01} és H_{02} a külső mágneses tér értéke akkor, amikor az N_1 , ill. N_2 lemágnesező faktorral rendelkező üregben lévő atommagokra teljesül a rezonancia feltétel, és $\Delta H = H_{01} - H_{02}$. Kis szuszceptibilitású mérendő anyagminta esetén a nevezőben lévő második tag elhanyagolhatóan kicsi és $H_{02} \sim H_0 = \omega_0 / \gamma_D$, így

$$\chi_S \rho_S - \chi_D \rho_D \approx \frac{\Delta H}{H_0 (N_2 - N_1)} = \frac{\Delta H}{\omega_0 / \gamma_D (N_2 - N_1)}, \quad 14/$$

és $\Delta H, \omega_0, \gamma_D$, valamint $N_2 - N_1$, ismeretében a szuszceptibilitás meghatározható.

Relatív szuszceptibilitás mérés - pl. hőmérsékletfüggés vizsgálata - esetén a mérés folyamán ω_0, γ_D és $N_2 - N_1$ változatlan, így a szuszceptibilitás változása a két rezonancia görbe tetszőleges egységekben /pl. hosszegység/ mért távolságának megváltozásával arányos.

A szuszceptibilitás abszolút értékének meghatározásához az oerstedi egységekben mért ΔH jeltávolság és ω_0 / γ_D ismerete mellett szükségünk van a lemágnesező faktorok különbségének ismeretére is, amely általában csak közelítőleg ismert. Ismert szuszceptibilitású anyagminta felhasználásával azonban $N_2 - N_1$ meghatározható, tehát a berendezés szuszceptibilitás méréshez kalibrálható.

Mivel méréseinket kis szuszceptibilitású anyagon végeztük, a /3/ nevezőjében szereplő korrekció 10^{-3} nagyságrendű, és ugyanaz mondható el a /4/-ben feltételezett $H_{02} \sim \omega_0 / \gamma_D$ közelítésre is. Mivel a mérés statisztikus hibája ezeket a hibákat felülmúlja, így ezek a szisztematikus hibák első közelítésben elhanyagolhatók. Pontos szuszceptibilitás mérés esetén ezek a korrekciók a lemágnesező faktorok ismeretében rendre meghatározhatók. A mérendő anyagmintában létrehozott üregben lévő mágneses tér - ha az üreg alakja nem ellipszoid - általában inhomogén. A mágneses tér inhomogenitása következtében a rezonancia görbe el-

torzul, így az általunk mért deriváltjának középpontja is eltolódik. Ez az eltolódás relatív mérésnél egyáltalán nem okoz problémát, abszolút mérésnél viszont a hiba kalibrálásnál automatikusan kiesik. A 3. ábrán lévő rezonancia görbéken a torzulás jól látszik, mindkét rezonancia görbe aszimmetrikus. A mérőkeresztet a külső mágneses térre merőleges tengely körül forgatva, az aszimmetria csökken, és a $\alpha = 45^\circ$ esetén, amikor a két lemágnesező faktor azonos, a két rezonancia görbe egy szimmetrikus rezonancia görbévé olvad össze.

A módszer érzékenységét a berendezés felbontóképessége határozza meg. Ha a felbontóképességet \mathcal{V} -val jelöljük, úgy a szuszceptibilitás mérés pontossága egy görbe-pár felvételekor

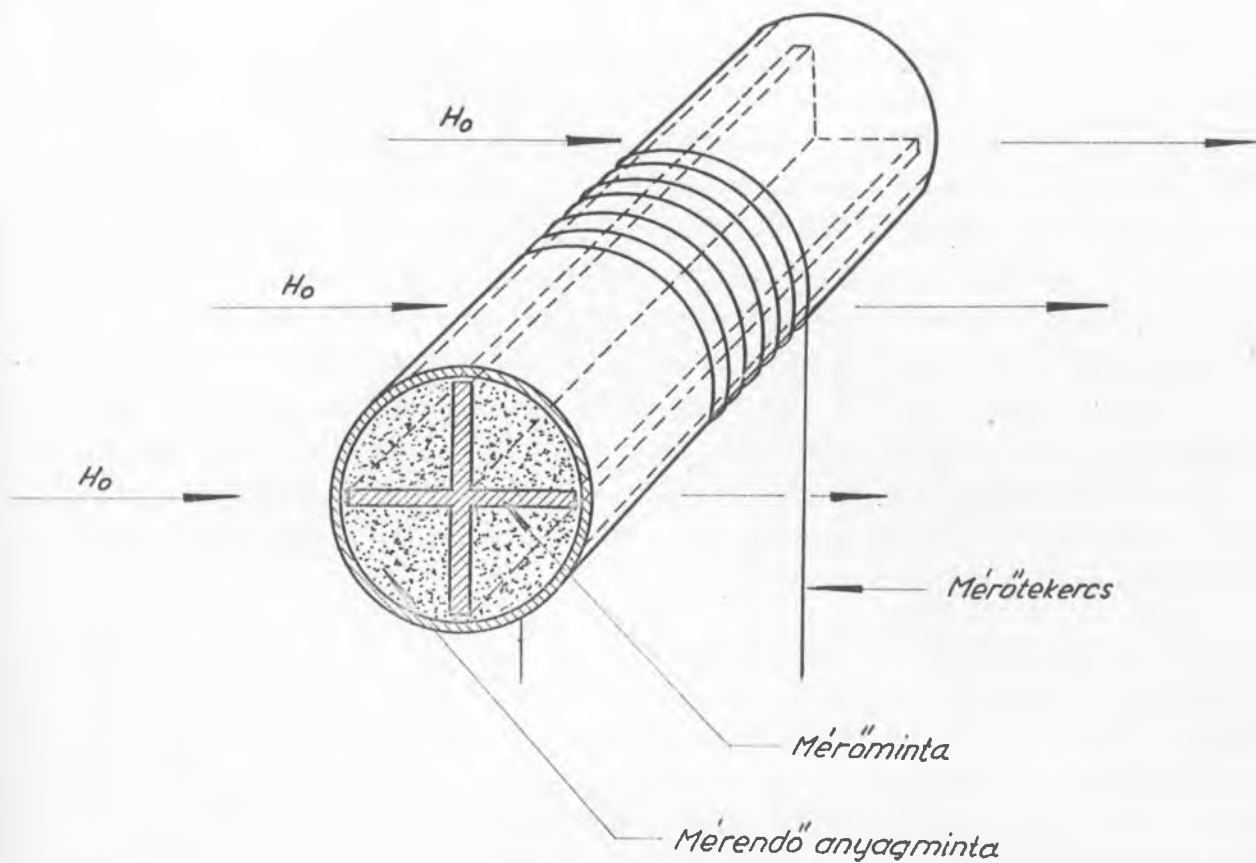
$$\Delta(x_s \rho_s) = \frac{1}{N_2 - N_1} \mathcal{V}.$$

Több görbe-párt felvéve, és azokat statisztikusan kiértékelve, a mérés hibája csökkenthető.

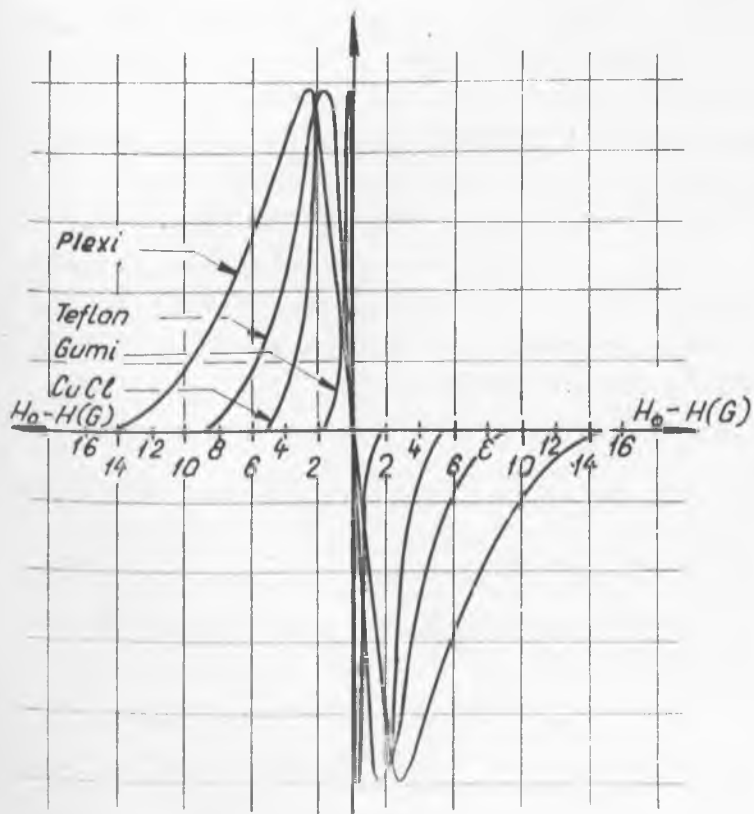
Anyagmintatartó, mérőminta, anyagminta

Az [1] által alkalmazott elrendezésen két módosítást hajtottunk végre: az üvegapilláris miatt fellépő hibaforrás /az üveg kicsi, de véges szuszceptibilitása miatt még egy lemágnesező faktort, valamint az üveg szuszceptibilitását is figyelembe kellene venni/ elkerülésére a mérőminta szilárd, és a két egymásra merőleges henger helyett a mérendő anyagmintába két egymásra merőleges lapot, /"mérőkeresztet"/ helyeztünk. A lemágnesező faktorok különbsége kb. 4π , így ugyanolyan kísérleti feltételek mellett a két rezonancia görbe távolsága megkétszereződik a két egymásra merőleges hengert tartalmazó elrendezéssel szemben. A mérőkereszt felfüggesztése két végénél történik, és azt a mérendő anyagminta teljesen elfedi; a mérőtekercs csak a kereszt középső részét fogja át. Az anyagmintatartó elvi elrendezése az 1. ábrán látható.

A mérőminta kiválasztásának fő szempontja a mérőmintában lévő atommagok rezonanciajelének jó detektálhatósága, és a keskeny rezonanciajel ($H = 5000$ Oe, $x_s = 50 \cdot 10^{-6}$ emu/g, $\rho = 39/\text{cm}^3$ és $N_2 - N_1 = 4\pi$ esetén a két rezonanciajel távolsága $\Delta H \sim 10$ Oe, ez nagyságrendben egyezik a szilárdtestek rezonanciajelének szélességével/. Paramágneses anyagok viszonylag nagy szuszceptibilitás miatt nem jöhetnek számításba. Több anyagot vizsgáltunk meg szobahőmérsékleten, ill. a $-190 \dots +200$ C^o hőmérséklettartományban. Ismert, hogy a polimerek nagy részénél magasabb



1. ábra
Anyagmintatartó elvi elrendezése



2. ábra

MMR abszorpciós jel mágneses tér szerinti deriváltja plexiben /¹H mag/, teflonban /¹⁹F mag/, gumiban /¹H mag/ és CuCl-ban /⁶³Cu mag/

hőmérsékleteken a rezonanciagörbe "mozgási keskenyedése" figyelhető meg, így rezonanciagörbékünk általában keskeny, ezért választottuk ki három polimért, a plexit, teflont és gumit. Negyedik anyagmintának a CuCl-t választottuk, amelynek szintén keskeny a rezonanciajele. A rezonáns magok a plexiben és gumiban az ^1H magok, teflonban az ^{19}F magok, CuCl-ban pedig a ^{63}Cu és ^{65}Cu magok. A rezonanciagörbék mágneses térerősség szerinti deriváltja - amelynek szélessége megfelelően kicsi modulációs amplitudó esetén megegyezik az abszorpciós görbe teljes jelszélességével - a 2. ábrán látható. /A ^{63}Cu és ^{65}Cu izotópon a rezonancia görbéknek szélessége nem lényegesen különbözik, így a méréseket a könnyebben detektálható ^{63}Cu magokon végeztük./ A kapott eredmények közelítőleg egyeznek az irodalomban található értékekkel /eredményeinket a véges H_m miatti kiszélesedésre nem korrigáltuk/.

A keskenyebb rezonanciagörbével rendelkező anyagmintákon /teflon, gumi, CuCl/ a rezonanciagörbék jelszélességének hőmérsékletfüggését is vizsgáltuk a $-190 \dots +100 \text{ C}^\circ$ hőmérséklettartományban. Míg a CuCl rezonanciagörbéje nem változott, addig a gumi és teflon jelszélességének változása a mozgási keskenyedésre jellemző hőmérsékletfüggést mutatott, mindkét esetben jó egyezésben az irodalomból ismert adatokkal. Eredményeink alapján a gumi mérőminta $-30 \dots +120 \text{ C}^\circ$, míg a teflon $-40 \dots +200 \text{ C}^\circ$ tartományban használható. CuCl mérőminta alkalmazása esetén a mérési hőmérséklettartomány a mérőfej $-190 \dots +200 \text{ C}^\circ$ -os hőmérséklettartományával azonos.

A kapott eredmények alapján méréseinkhez két mérőkeresztet készítettünk. Az egyik gumiból készült, míg a másik mérőkereszt alapanyaga oldott CuCl por volt. A mérőkeresztet az első esetben köszörüléssel, a második esetben kivágással és ragasztással készítettük.

Méréseinket három különböző MnO mintán végeztük. Az A-jelű minta szemcsemérete $0,5 \mu$ -tól néhány száz μ -ig változott, a B-jelű minta szemcsemérete 45μ alatt, a C-jelű mintáé pedig 45μ fölött volt, az utóbbi mm-es átmérőjű rögöket is tartalmazott.

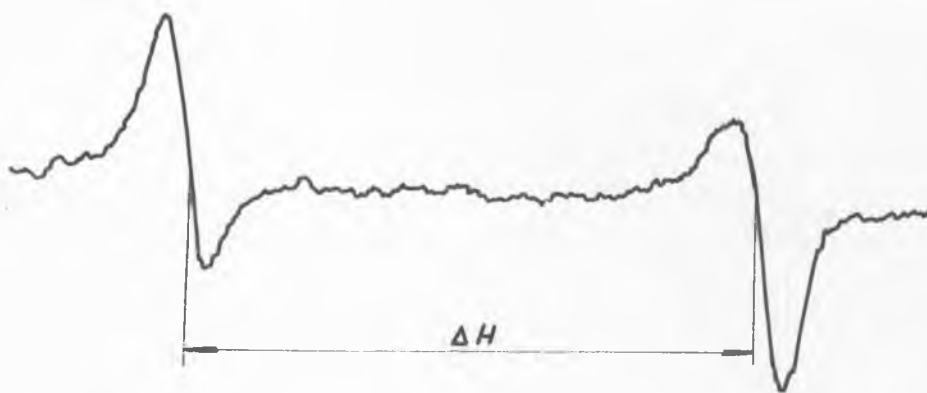
Az anyagmintákat pro-anal MnCO_3 ből állítottuk elő, 800 C° -on egy órán át H_2 áramban redukálva. A minta fő szennyezései, nehéz-fém /Pb/ max. $0,005 \%$, Fe max. $0,01 \%$, Ni max. $0,05 \%$ és Zn max. $0,04 \%$. Az anyagminták sűrűségét súly és térfogatmérés alapján határoztuk meg.

Eredmények

Méréseink célja a szuszceptibilitás hőmérsékletfüggésének meghatározása, valamint az abszolút mérés feltételeinek tisztázása.

a/ Jelészétválás, jeltávolság orientációfüggése

A 3. ábrán látható a szobahőmérsékleten, gumi mérőkeresztben lévő H magokon detektált, a két különböző lemágnesező faktornak megfelelő két rezonanciagörbe mágneses tér szerinti deriváltja. A két rezonancia-



3. ábra

1H rezonancia jel szétválása gumi mérőkeresztben a két-féle lemágnesező tér következtében

görbe teljesen szétválik, és a ΔH jeltávolság jól definiálható. /A rezonanciagörbék aszimmetriájának okát a 2. fejezetben tárgyaltuk./ Megvizsgáltuk a jeltávolságnak a mérőkereszt egyik lapja és a külső mágneses tér által bezárt szögtől való függését. Az eredmények összhangban vannak a várható $\cos^2\alpha - \sin^2\alpha$ orientációfüggéssel.

b/ MnO szuszceptibilitásának hőmérsékletfüggése

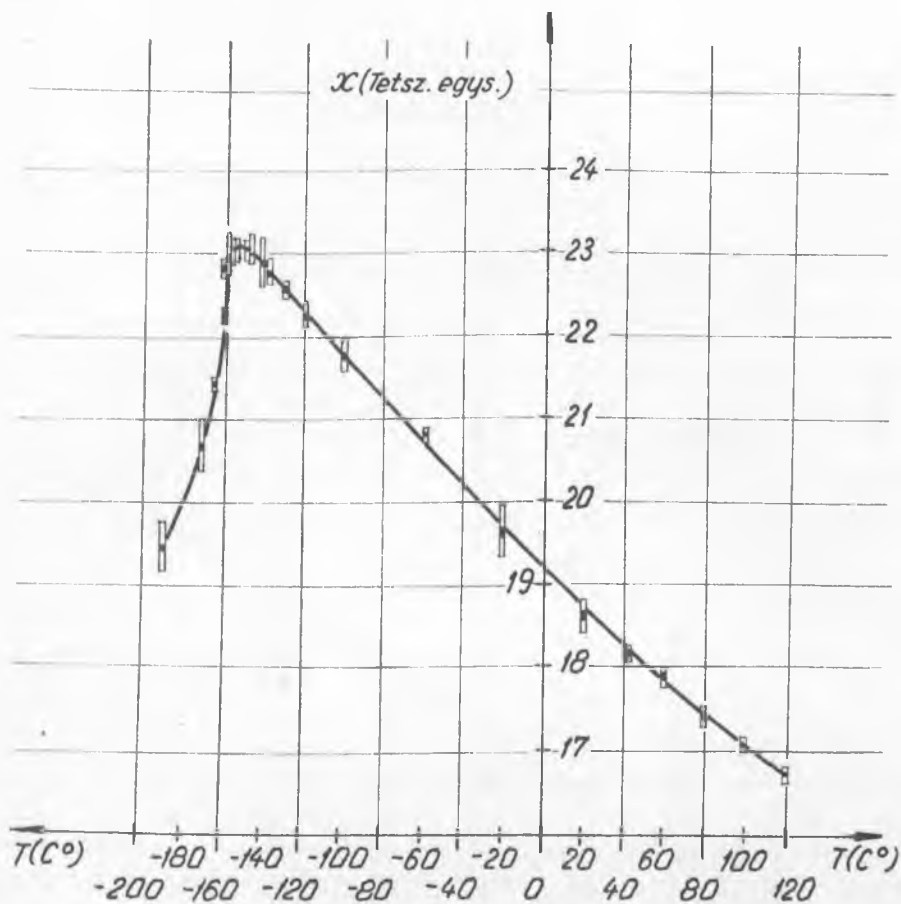
MnO szuszceptibilitásának hőmérsékletfüggését a $-190 \dots +120 \text{ C}^\circ$ hőmérséklettartományban mértük. Az adott hőmérsékleti határok között egy paramágneses-antiferromágneses fázisátalakulás játszódik le, a T_N Néel hőmérséklet felett az anyag paramágneses, alatta antiferromágneses. Az irodalomban több MnO-n végzett szuszceptibilitásmérés található [3]-[9], amelyek mind mágneses mérleggel történtek. Egyes szerzők a Néel hőmérsékletre és a paramágneses tartomány szuszceptibilitásának hőmérsékletfüggéséből meghatározott, a 0 antiferromágneses Curie hőmérsékletre kapott eredményeit az 1. táblázatban foglaltuk össze. A táblázatban szereplő szerzők szerint a paramágneses tartományban a reciprok szuszceptibilitás hőmérsékletfüggése lineáris, és az antiferromágneses Curie-hőmérsékletet extrapolációval határozták meg. A T_N hőmérséklet közelében fellépő anomáliát [7] mérte, és mérési eredményei egyezésben vannak a különböző el-

1. táblázat

Szerző	$H_0/oe/$	θ	T_N	Hőmérséklettartomány
3	5000	610°	117°	$T_N \dots 300 K^\circ$
4	8500 - 13500	590°	118°	$T_N \dots 500 K^\circ$
5	4100 8200	675° 655°	116°	$T_N \dots 300 K^\circ$
6	-	461°	-	$T_N \ll T$
7	-	540°	117°	$T_N < T < 2T_N$
Eredményeink	4000 - 8800	$560^\circ \pm 20^\circ$	$118^\circ \pm 20^\circ$	$T_N \dots 3,5 T_N$

méleti eredményekkel [10]-[12]. Nem tüntettük fel a táblázatban [8] és [9] mérési eredményeit, mert a reciproknak szuszceptibilitás általuk mért hőmérsékletfüggése nem lineáris, így θ meghatározására nincs lehetőség. [5] mérési eredményeivel kapcsolatban meg kell jegyeznünk, hogy a mérések egykristályon történtek, ellentétben az összes többi pormintán történt méréssel, és a feltüntetett θ -t a mért adatok alapján mi számoltuk.

Az általunk mért szuszceptibilitás-hőmérséklet görbe a 4. ábrán látható a statisztikus hibával együtt /egy-egy méréssorozat 4 rezonancia-görbe-pár felvételéből állt./ A méréseket a B-jelű anyagmintán végeztük. A szobahőmérséklet feletti adatok gumi mérőkereszteken végzett mérések eredményei 4000 oe külső mágneses térben, míg szobahőmérséklet alatt a mérések CuCl mérőkereszten történtek, az alkalmazott külső mágneses tér 8800 oe. A reciproknak szuszceptibilitás-hőmérséklet görbe $-70 \dots +120^\circ C$ hőmérséklettartományban a hibahatáron belül egyenes / 5. ábra/, és az extrapolációval kapott antiferromágneses Curie-hőmérsékletet az 1. táblázatban tüntettük fel a T_N Néel hőmérséklettel együtt. $-70^\circ C$ alatt görbe menete nem lineáris, az eltérés ugyanolyan jellegű, mint [7] mé-

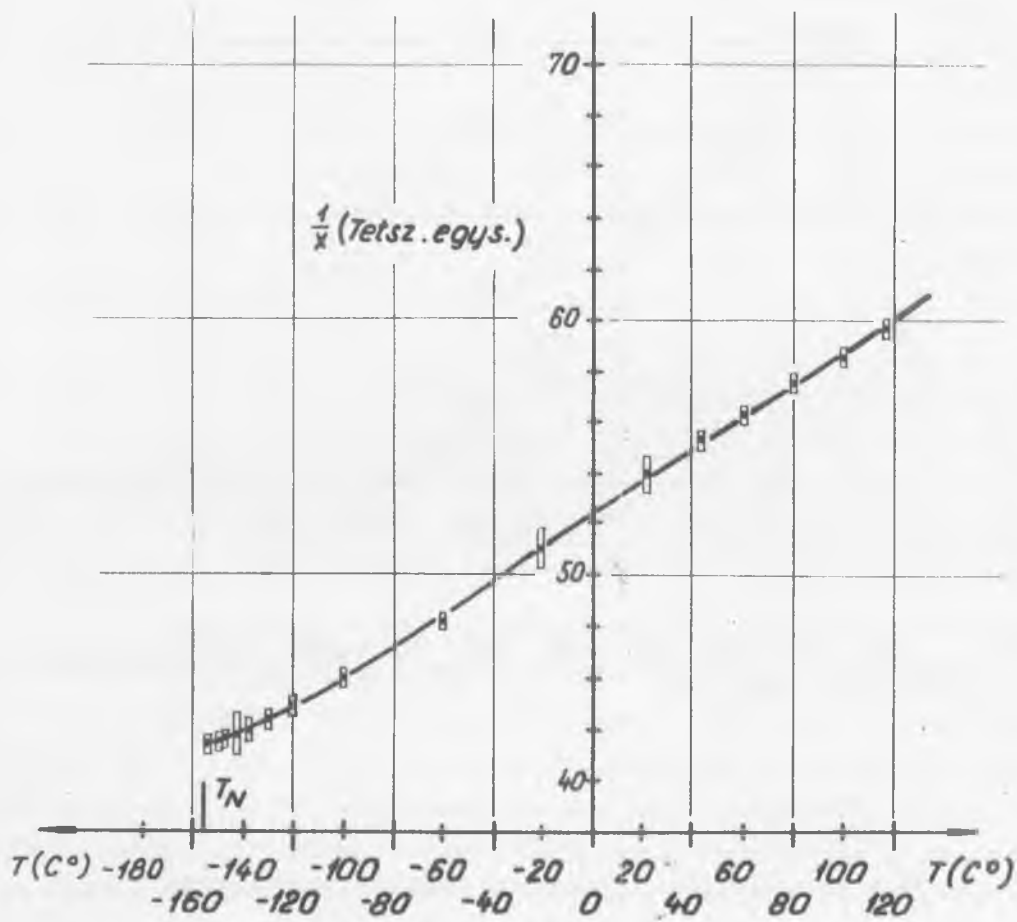


4. ábra

MnO szuszceptibilitásának hőmérsékletfüggése

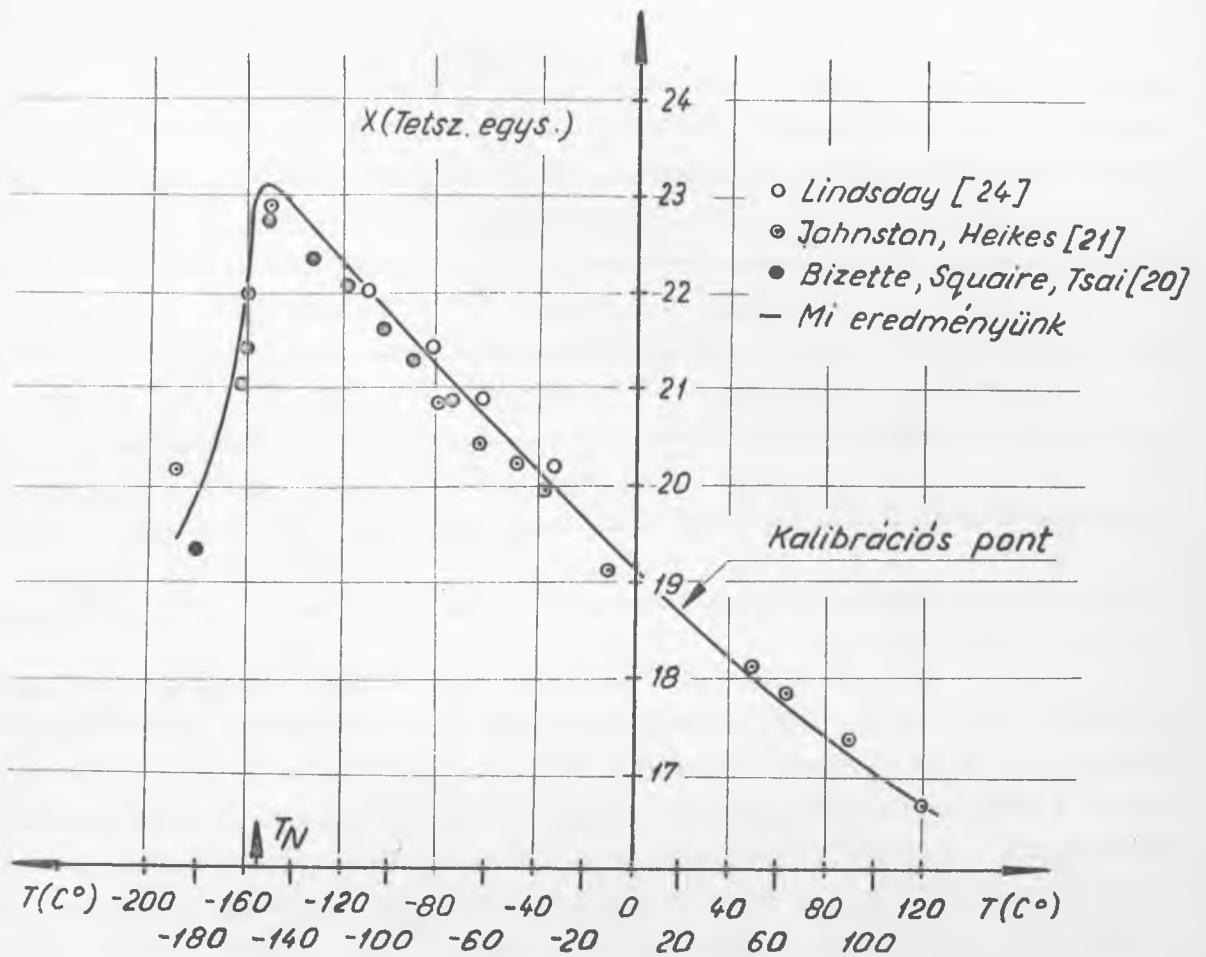
rési eredményei, és összhangban van az elméleti eredményekkel [10]-[12] .

Mivel a szuszceptibilitás nagyságára vonatkozó adataink nincsenek, mérési eredményeinket a szobahőmérsékleten mért szuszceptibilitás értékekre kalibrálva, a 6. ábrán hasonlítottuk össze az irodalmi értékekkel. Eredményeink a paramágneses tartományban legjobban [3] és [4] mérési eredményeivel egyeznek meg, de meg kell jegyeznünk, hogy az általunk mért eredmények általában az irodalmi értékek felett fekszenek. Az antiferromágneses tartományba eső mérési eredményeink $H = 8800$ oe/, [3] $H = 7000$ Oe/ és [4] $/13500$ oe/ mérési eredményei között fekszenek. Ez egyezésben van [13] számításaival, amelyek szerint az antiferromágneses tartományban a porminták szuszceptibilitása térfüggést mutat.



5. ábra

MnO reciprok-szuszeptibilitása a hőmérséklet függvényében



6. ábra

MnO szuszceptibilitásának MMR módszerrel és mágneses mérleggel /irodalmi adatok/ mért értékei különböző hőmérsékleteken

c/ Abszolút mérés. A lemágnesező faktorok különbségének meghatározása

A mérendő anyagminta szuszceptibilitásának abszolút mérésénél fellépő hibalehetőségek vizsgálatára három különböző szemcseméretű anyagmintán végeztünk méréseket. Így egyrészt figyelembe vettük a mérés folyamán fellépő összes hibalehetőséget, /a mérőkereszt deformálódásából, a külső mágneses térhez képest történő elfordulásából eredő hibát/, másrészt a mérési eljárás különböző szemcseméretű anyagmintára való alkalmazhatóságát. A méréseket szobahőmérsékleten gumi mérőkeresztrel végeztük.

A kapott eredményeket a 2. táblázatban foglaltuk össze.

2. táblázat

Anyagminta	$\rho_s / g/cm^3 /$	$x_s \rho_s - x_D \rho_D$	$\Delta H/H$	$N_1 - N_2$
A	1,7983	$1,244 \cdot 10^{-4}$	$1,3423 \cdot 10^{-3}$	10,790
B	1,6498	$1,1408 \cdot 10^{-4}$	$1,2269 \cdot 10^{-3}$	10,755
C	1,2454	$0,8597 \cdot 10^{-4}$	$0,8757 \cdot 10^{-3}$	10,185
C	1,3740	$0,9487 \cdot 10^{-4}$	$0,9549 \cdot 10^{-3}$	10,065

Az A és B jelű anyagmintán egy-egy, a C jelű anyagmintán 2 mérés sorozatot végeztünk. Egy mérés sorozat 16 pár rezonancia görbe felvételéből állt, és a frekvencia mérést 6-szor végeztük el a maximális, és 6-szor a minimális frekvencián, hogy a statisztikus hibát minél jobban csökkentsük. A lemágnesező faktorok különbségének meghatározásához szükséges szuszceptibilitás értékeket [3] méréséhez kalibráltuk $\chi = 69,5 \cdot 10^{-6}$ emu/g, míg a mérőminta szuszceptibilitása $x_D \rho_D = 0,58 \cdot 10^{-6}$ emu/g, /mágneses mérlegen végzett mérés/. A lemágnesező faktorok különbségére kapott értékek természetesen ezen adatok hibáját is magukba foglalják.

A 2. táblázatból a következőket állapíthatjuk meg: az A és B jelű anyagminták esetén a mérési eredmények 0,4 %-os pontossággal egyeznek egymással. A sok hibaforrás miatt hibát számolni lehetetlen, de feltehetjük, hogy a mérés hibája nagyságrendben a két mérési adat különbségével egyezik meg. A C jelű anyagminta esetén a lemágnesező faktorok különbsége kb. 7 %-kal kisebbnek adódott, sőt az egyes mérések, amelyek az anyagmintatartó különböző megtöltése után történtek, szintén nem vezetnek ugyanolyan $N_2 - N_1$ értékre. Az észlelt eltérést az okozza, hogy a nagy szemcseméret miatt a vizsgálandó anyagmintában létrejövő üreg nem felel meg pontosan a mérőkereszt alakjának. Ez a lemágnesező faktorok különbségének csökkenésével jár, mivel ideális esetben a lemágnesező faktorok különbsége a maximálisan elérhető 4π érték.

Köszönetnyilvánítás

Köszönetünket fejezzük ki Konczos Géza tudományos munkatársnak és csoportjának az anyagminták elkészítéséért, Bánki Péter technikusnak a mérésekben nyújtott segítségéért és Antonighel Tibor műszerésznek a mérőkeresztek és mintatartók elkészítéséért.

I r o d a l o m

- [1] Fehér, G., Knight, W.D.: The Review of Scientific Instruments
26, 293 /1955/
- [2] Klein, M.P., Holder, B.E.: Phys. Rev. 98, 265 /1955/A
Reilly, C.A., Mc Conell, H.M., Meisenheimer, R.G.:
Phys. Rev. 98, 264 A /1955/
- [3] Bizette, H., Squire, B., Tsai B.: Compt. Rend. 207, 449 /1938/
- [4] Johnston, W.D., Heikes, R.R.: J. Am. Chem. Soc. 78, 3255 /1956/
- [5] Guire Mc., Happel, R.J.: J. Phys. Radium 49, 424 /1959/
- [6] Banevitz, I.I., Heidelberg, R.F., Luxem, A.H.: J. Phys. Chem.
65, 615 /1961/
- [7] Lindsday: publikálatlan.
- [8] Poulis, J.A., Massen, C.H., P. van der Lelden: J. Phys. Soc. Japan
17, Suppl. B. 212 /1962/
- [9] Birckel, A.: Cahiers Phys. 25, 45 /1944/
- [10] Li, Y.Y.: Phys. Rev. 84, 721 /1951/
- [11] Lines, M.E.: Phys. Rev. 139A, 1304 /1965/
- [12] Nagamiya, T., Yosida, K., Kubo, R.: Adv. in Phys. 4, 2 /1965/

Érkezett: 1966 jul. 11.

KFKI Közl. 14.évf. 6.szám, 1966

U-235 HASADÁSÁNÁL KELETKEZETT NEUTRONOK SZÖG- ÉS ENERGIA- ELOSZLÁSÁNAK MÉRÉSE

Irta: Kluge Gyula, Lajtai Albert és Nagy László

Összefoglalás

Megmértük az U-235 termikus neutronokkal történő hasadásánál keletkezett neutronok energiaeloszlását a hasadási termékek szétrepülésének irányához képest különböző szögekben. Méréseinket laboratóriumi rendszerbe áttranszformált, a hasadási termék rendszerében izotróp párolgási spektrummal hasonlítottuk össze.

Bevezetés

A maghasadásnál keletkezett prompt neutronok energia- és szögeloszlásának vizsgálata fontos információkat nyújthat keletkezésük mechanizmusára vonatkozólag. Ezért az elmúlt években többen mérték a neutronok szög- és energiaeloszlását különböző hasadó anyagokon [1-8]. Az újabb mérésekben már az egyes hasadási termékekből kilépő neutronok eloszlását vizsgálták, felhasználva a hasadási termékek repültetésének, illetőleg félvezető detektorral történő regisztrálásának módszerét az adott hasadási termék energiájának ill. tömegének meghatározására. A mérések alapján következtetéseket igyekeztek levonni a hasadási termékek hőmérsékletére, a neutronok kibocsátásának anizotrópiájára a laboratóriumi, illetőleg a tömegközépponti rendszerben stb. Az eredmények azt az elképzelést támasztották alá, hogy a neutronok tulnyomó része a már szétrepülő hasadási termékekből párolog ki. Egyes mérések [3,5,6,17] alapján feltehető, hogy a neutronok 10-15 %-a a hasadó magból, még a hasadási termékek felgyorsulása előtt bocsátódik ki, vagy a már felgyorsult hasadási termékekből a neutronkibocsátás nem izotróp módon történik.

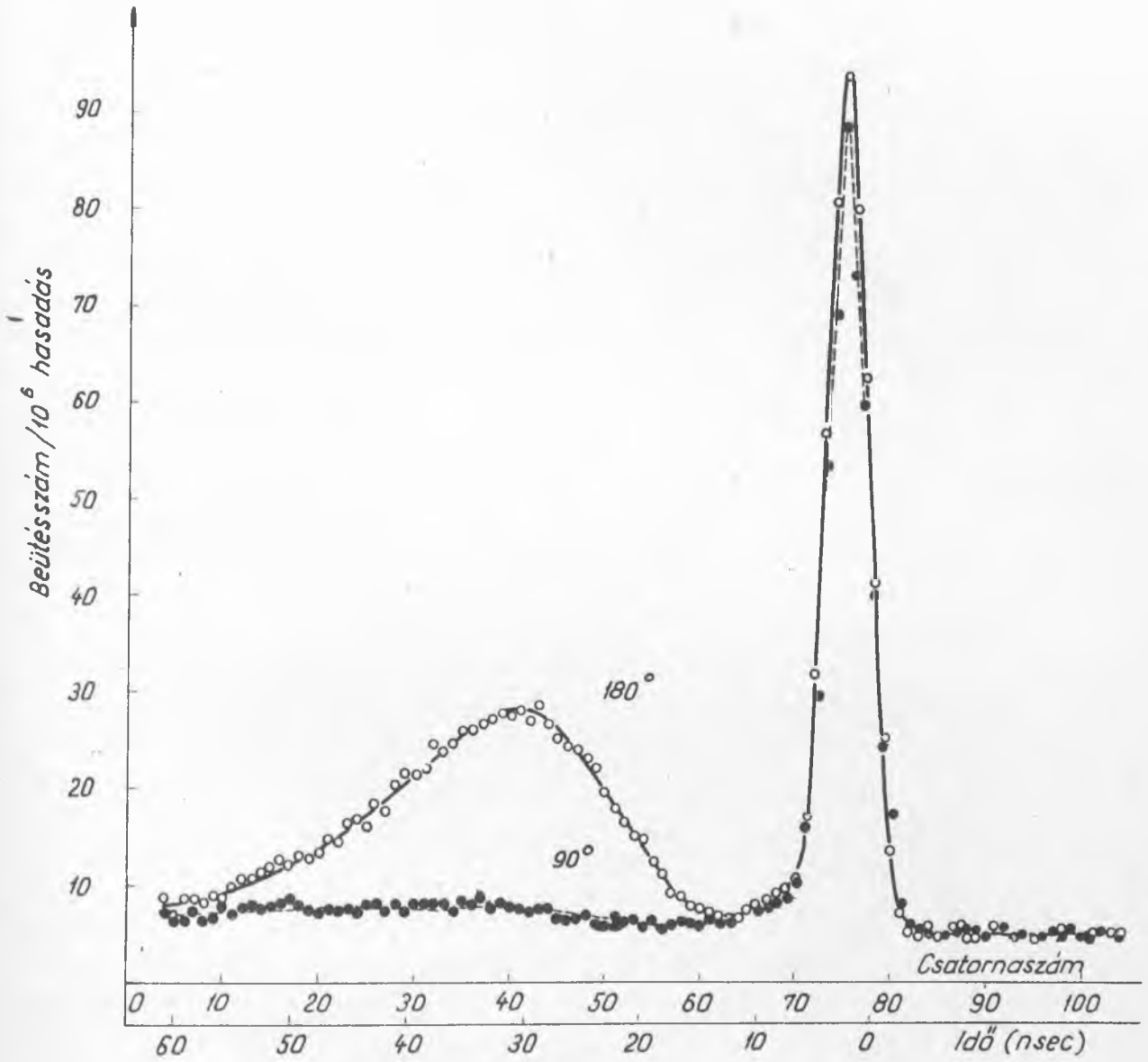
Egy korábbi közleményünkben [9] beszámoltunk a maghasadásnál keletkező gamma-sugarak szögeloszlására vonatkozó vizsgálatokról. Az itt használt mérőberendezésünk olyan volt, hogy egyidejűleg mérhettük a hasadási neutronok energia- és szögeloszlását is. Ebben a cikkben ez utóbbiról számolunk be.

Kísérleti berendezés és mérési eredmények

Előző közleményünk tartalmazza a mérőberendezés részletes leírását, ezért itt ezt csak vázlatosan ismertetjük. A neutronok energiáját egy adott távolságra vonatkozó repülési idő mérésével állapítottuk meg idő-amplitudó konverter és sokcsatornás analizátor segítségével. A 100 nsec-os mérési intervallumu konverter egyik bemenetére a hasadási termékek jelei, a másikkra a gamma-, illetve hasadásineutron-jelek jutottak. Hasadási detektorként 15 mikron vastagságú szcintillációs plasztik fóliát, neutrontetektorként 5 x 5 cm-es plasztik foszfort alkalmaztunk. A detektorok távolsága 5, illetve 50 cm volt az U-235-ben 96 %-ra dúsított targettől. Egy forgatható kollimátorrendszer segítségével kívánt irányokban repülő hasadási termékeket választottunk ki a rögzítetten elhelyezett neutrontetektorhoz képest. Öt szöghelyzetben mértünk, nevezetesen a detektált hasadási termékek és neutronok repülési iránya közötti szög 90° , $112,5^\circ$, 135° , $157,5^\circ$ és 180° volt. A különböző szögeknél egymás után 10^6 hasadási beütésszámgig mértünk, és a sorozatokat sokszor megismételtük. Az 1. ábrán a 90° -nál és 180° -nál kapott eloszlásgörbék láthatók. A vízszintes tengelyen az analizátor csatornaszámai, illetőleg a konverter hitelesítése alapján a repülési idő skálája van feltüntetve. Ennek a nullpontját a gamma-csucs helye határozza meg, figyelembe véve a gamma-sugarak repülési idejét. A csucstól balra eső rész a neutronok időeloszlását mutatja, jobbra, a nagyobb csatornaszámokba eső beütések a háttérrel szolgáltatók.

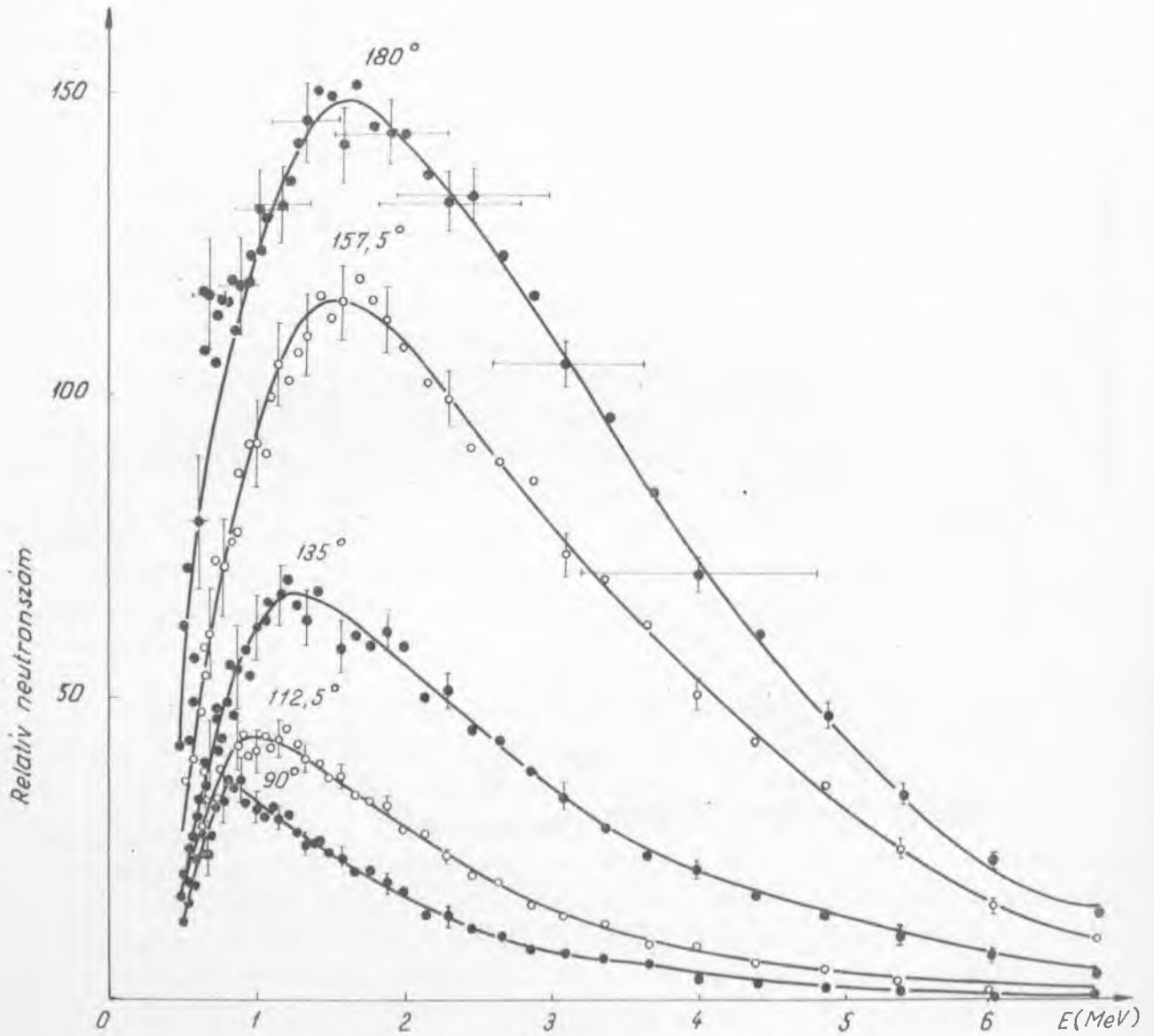
Ahhoz, hogy a mérési eredményeinket kiértékelhessük, ismerni kell a neutrontetektorunk hatásfokát különböző neutronenergia-értékeknél. Az irodalomban jól ismert és sokszor ellenőrzött a hasadási neutronok ún. Watt-spektruma [10]. Erre alapoztuk neutrontetektorunk hatásfokának meghatározását. Berendezésünkkel megmértük a neutronok energiaeoszlását úgy, hogy az uránréteget közvetlenül ráhelyeztük a hasadási termék detektorra, vagyis így a minden irányba repülő hasadási termékekből kibocsátott neutronok energiaspektrumát regisztráltuk. Ez éppen detektorunk hatásfokának megfelelően mutatott eltérést a Watt-spektrumtól, és az ezzel való összehasonlítás közvetlenül szolgáltatja a hatásfokokat a különböző neutronenergiáknál. A hatásfokok figyelembevételével a különböző szögeknél nyert energiaeoszlás-görbéket a 2. ábra mutatja. A neutrons számok hibáiként a szögeloszlás-mérések és a hatásfok-mérések statisztikus hibáiból eredő hibát tüntettük fel. Az energiamérés hibáját a

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{\Delta t}{t} = \sqrt{\left(\frac{\Delta \tau}{\tau}\right)^2 + \left(\frac{\Delta l}{l}\right)^2}$$



1. ábra

A hasadási neutronok repülési idejének eloszlása.



2. ábra

A hatásfok figyelembevételével kapott neutronenergia-eloszlások.

képlet alapján számoltuk, ahol Δt a repülési idő hibája l repülési út mellett. Δt -ként a gamma-csucs félmagasságban vett teljes szélességét vettük; értéke 4,5 nsec, amelynek jelentős részét a hasadási termékek repülési idejének szórása teszi ki. A hiba második tagja veszi figyelembe, hogy a neutronok a szcintillátorban különböző helyen detektálódhatnak és így a repülési utban szórás lép fel. Esetünkben $\frac{\Delta l}{l} = 0,1$. Az ábrából jól látható, hogy a laboratóriumi rendszerben a neutronok a hasadási termékek irányában bocsátódnak ki a legnagyobb valószínűséggel és a legnagyobb átlagenergiával. A különböző szögekben mért neutrons számok aránya a 90° -ban kibocsátott neutrons számhoz viszonyítva 7,6 : 5,7 : 2,9 : 1,5 : 1 a különböző szögeknek megfelelően, jó egyezésben Blinov és munkatársai [4] hasonló mérésével. A neutroneloszlás görbékből leolvasható legvalószínűbb neutronenergia-értékek: 1,6, 1,5, 1,2, 0,95 és 0,8 MeV.

Számolt neutronspektrum

A továbbiakban megvizsgáljuk, hogy milyen neutronspektrumok adódnak, ha a neutronkibocsátás párologással történik. Feltételezzük, hogy a hasadási termék rendszerében a kilépő neutronok energiaeloszlását a

$$\varphi(E, T) dE \sim \frac{E}{T^2} e^{-\frac{E}{T}} dE$$

alakú izotróp párologási spektrum [11,12] írja le, ahol E a neutron energiája, T a fragment-hőmérséklet. Ebből a laboratóriumi rendszerben a hasadási termékek repülési irányához képest θ szögben mért E energiájú neutronok eloszlássűrűsége

$$\varphi(E, \theta, w, T) \sim \frac{[E(E+w-2\sqrt{Ew}\cos\theta)]^{\frac{1}{2}}}{T^2} \exp\left(-\frac{E+w-2\sqrt{Ew}\cos\theta}{T}\right)$$

ahol $w = \frac{E_{kin}}{A}$, a fragment kinetikus energiájából az egy nukleonra eső rész. A hasadási termékek különböző kinetikus energiával és különböző hőmérséklettel rendelkeznek, ezért az utóbbiakra vonatkozóan átlagolunk:

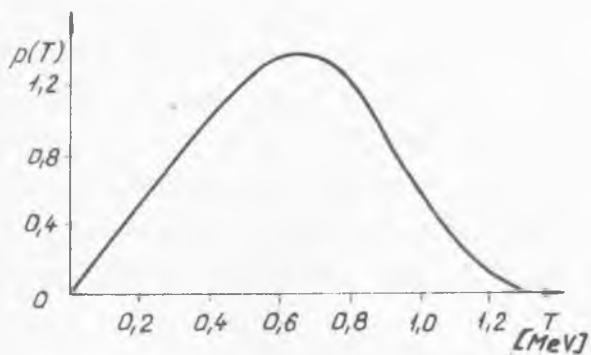
$$\phi(E, \theta) = \sum_k \varphi(E, \theta, w_k, T_k) p(w_k, T_k)$$

ahol $p(w_k, T_k)$ egy adott w_k kinetikus energia és T_k hőmérséklet előfordulásának a valószínűsége. Adott kinetikus energiájú hasadási termék hőmérséklete különböző lehet és fordítva. Ezért

$$p(w_k, T_k) \approx p(w_k) \cdot p(T_k)$$

$p(T_k)$ -ra vonatkozólag Terrell végzett számításokat [13,14]. A hasadási termékek gerjesztési energiája a $\bar{E}^* = (\bar{\nu} + 1) E_0$ átlagérték körüli Gauss-eloszlással írható le, ahol $\bar{\nu}$ a kibocsátott neutronok átlagos száma, E_0 pedig a neutronok átlagos kötési és kinetikus energiájának össze-

ge, ami a mag "lehülésének" mértéke egy-egy neutron kibocsátásakor. Az $E^* = aT^2$ összefüggés és a fenti megfontolások alapján Terrell meghatározta a fragmenthőmérséklet-eloszlást, amelyet U-235 termikus neutronokkal történő hasadásának esetére a 3. ábra mutat. Ennek felhasználásával

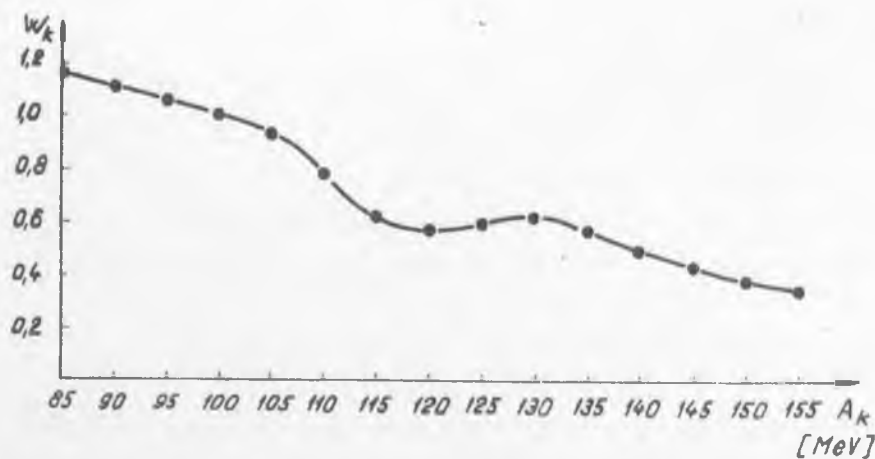


3. ábra

A hasadási termékek hőmérséklet-eloszlása [13]

végeztük el a hőmérsékletre való átlagolást. Többen, így Milton és Fraser [15] megmérték a különböző tömegű hasadási termékek kinetikus energiáját. Ennek ismeretében meghatároztuk a különböző tömegszámú fragmentekhez A_k tartozó átlagos w_k értékeket /4.ábra/, és ezeket használtuk a hőmérsékletre már átlagolt $\bar{\varphi}(E, \theta, w_k(A_k))$ eloszlásfüggvényekben. Így a p/w_k -val való átlagolás a jól ismert p/A_k fragmenttömeg-eloszlással végezhető el

$$\phi(E, \theta) \approx \sum_k \bar{\varphi}(E, \theta, w_k(A_k)) p(A_k)$$

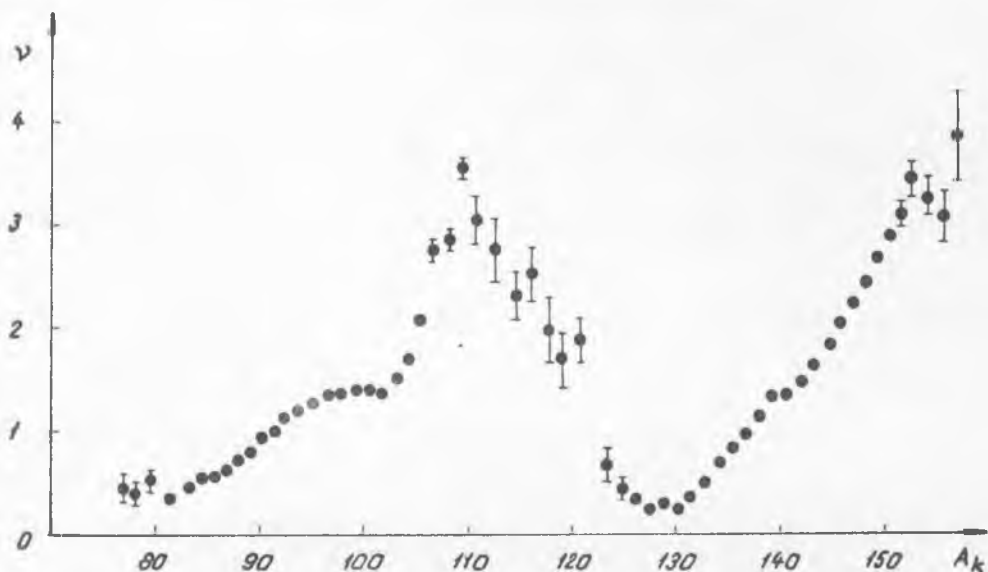


4. ábra

Az egy nukleonra jutó kinetikus energia függése a hasadási termékek tömegszámától [15].

Mivel az egyes hasadási termékek különböző számú neutronot bocsátanak ki [14,16], ezt is figyelembe kell venni. A $\nu(A_k)$ eloszlást az 5. ábra mutatja. Mindezek figyelembevételével a neutroneloszlás

$$\phi_1(E, \theta) \approx \sum_k \bar{\varphi}(E, \theta, w_k(A_k)) \rho(A_k) \nu(A_k)$$



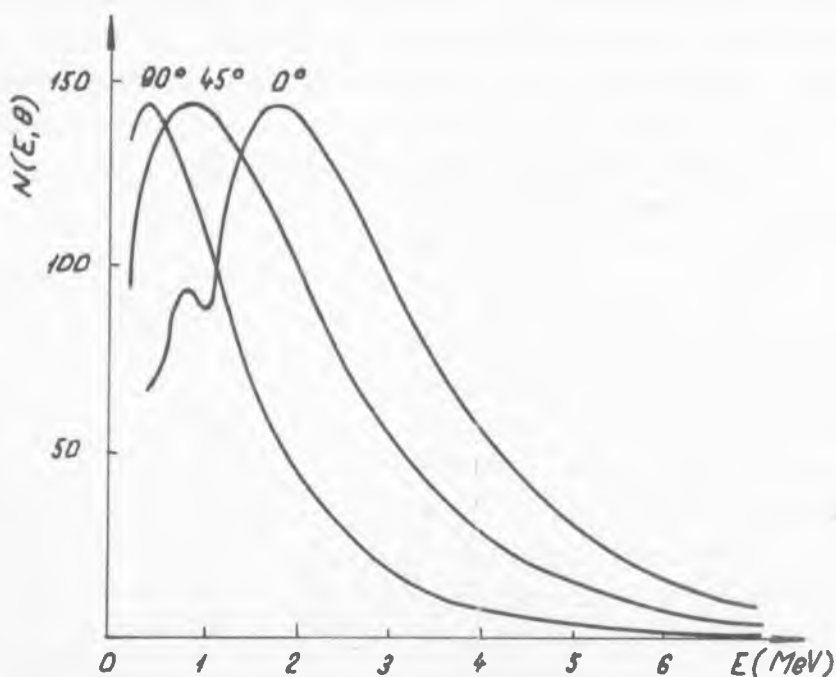
5. ábra

A hasadási termékekből kibocsátott neutronok számának függése a tömegszámtól [16].

Továbbiakban a mérőberendezés szögfelbontásának $\pm 10^\circ$ megfelelő tartományokban három-három szögre számolt eloszlások összegét képeztük ϕ_2 . Végül, mivel a neutrondetektor egyaránt regisztrálta az ellentétes irányba repülő mindkét hasadási termékből kijövő neutronokat, ezért a számolt neutronspektrum

$$N(E, \theta) = \phi_2(E, \theta) + \phi_2(E, \pi - \theta)$$

A számítógéppel elvégzett számítás végeredményét $\theta = 0^\circ / 180^\circ$, $45^\circ / 135^\circ$ és 90° -ra a 6. ábra mutatja. A normális faktorokat úgy választottuk, hogy az eloszlások csúcserkéi azonosak legyenek. A kapott görbét összehasonlítva Blinov és munkatársai [8] számolt eredményeivel, megállapítható, hogy 45° -nál a megegyezés jó, míg 0° -nál a mi spektrumunk csúcsa az említett szerzőjéhez viszonyítva a nagyobb, 90° -nál pedig a kisebb energiák felé tolódik el. Ezenkívül a 0° -os görbén 0,8 MeV körül egy kis csúcs jelentkezik. Az eltérések oka, hogy a [8] munkában a tömegközépponti rendszerben Maxwell-spektrumot tételeztek fel, továbbá egyszerűbb



6. ábra

A számolt neutroneloszlások a laboratóriumi rendszerben

átlagolásokat alkalmaztak. Mérési és számolt eredményeink összehasonlításánál érdemben az 1 MeV feletti energiatartományra kell szorítkoznunk, minthogy a neutrondetektorunk hatásfoka ezen érték alatt csökken, a hatásfokmérés hibája pedig megnő. 180° -nál, ahol a hatásfok-bizonytalanság legkevésbé érezteti hatását, a görbék a hibahatáron belül megegyeznek. Kisebb szögeknél a mért és számolt eloszlásgörbék menete hasonló, de a hatásfokcsökkenés miatt csúcshelyzetük már eltér.

Köszönetünket fejezzük ki Fekete Györgynek, Udvarhelyi Pálnak, Vasáros Lászlónénak és a Számítástechnikai Osztálynak a kísérleti, illetőleg számítási munkákban nyújtott segítségükért.

I r o d a l o m

- [1] Васильев Ю.А., Замятин Ю.С., Сиротинин Е.И., Фомушкин Э.Ф.: Атомная Энергия 9, 449, /1960/
- [2] Нефедов В.Н.: ЖЭТФ 38, 1657, /1960/

- [3] Bowman, H.R., Milton, J.C.D., Thompson, S.G., Swiatecki, W.J.:
Phys.Rev. 126, 2120 /1962/; Phys.Rev. 129, 2133 /1963/
- [4] Блинов М.В., Казаринов Н.М., Протопопов А.Н.: ЖЭТФ 42, 1017, /1962/
- [5] Kapoor, S.S., Ramanna, R., Rama Rao, P.N.: Phys.Rev. 131, 283 /1963/
- [6] Skarsvåg, K., Bergheim, K.: Nucl.Phys. 45, 72 /1963/
- [7] Sargent, C.P., Bertozzi, W., Demos, P.T., Matthews, J.L.,
Turchinets, W.: Phys. Rev. 137B, 89 /1965/
- [8] Блинов М.В., Казаринов Н.М., Протопопов А.Н.: Атомная Энергия 18, 108,
/1965/
- [9] Graff Gy., Lajtai A., Nagy L.: KFKI Közl. 13, 177 /1965/
- [10] Watt, B.E.: Phys.Rev. 87, 1037 /1952/
- [11] Blatt, I.M., Weisskopf, V.F.: Theoretical Nuclear Physics 365,
/Wiley, New York, 1952/
- [12] Сиротинин Е.И.: Атомная Энергия 13, 530, /1962/
- [13] Terrell, J.: Phys. Rev. 113, 527 /1959/
- [14] Terrell, J.: Proceedings of Symp. on Phys. and Chem. of Fission,
Salzburg, 1965.
- [15] Milton, J.C.D., Fraser, J.S.: Can. J. Phys. 40, 1626 /1962/
- [16] Апалин В.Ф., Грицюк Ю.Н., Кутиков И.Е., Лебедев В.И.,
Микаэлян Л.А.: И.А.Э - 819, Москва /1965/
- [17] Milton, J.C.D., Fraser, J.S.: Proceedings of Symp. on Phys. and
Chem. of Fission, Salzburg, 1965.

Erkezett: 1966. október 6.

KFKI Közl. 14.évf. 6.szám, 1966

A SZILÁRD DIMETILANILIN FIZIKO-KÉMIAI TULAJDONSÁGAINAK VIZSGÁLATA I.

A FeCl_3 gyökcsapdát tartalmazó alacsony hőmérsékleten besugárzott dimetilanilin lumineszcenciája

Irtta: Kósa Somogyi István, Tompa Kálmán és Dézsi István

Összefoglalás

A 77°K hőfokon gamma sugárzással besugárzott vas /III/ kloridot tartalmazó N,N'-dimetilanilin /DMA/ felmelegítését fényemisszió kíséri. A kibocsátott fény intenzitás maximumai 77° , 100° , 150° és 220°K -nél vannak. Ezeken a hőmérsékleteken a besugárzott oldatban szerkezeti változások történnek. A tiszta DMA-ban NMR mérések a CH_2 csoport forgására mutatnak, ami 77°K körül indul meg. Egyéb szerkezeti változások NMR mérésekkel a tiszta anyagban nem mutathatók ki. A fény sugárkémiai hozama 10^{-6} - 10^{-5} foton/100 eV, értéke az időben exponenciálisan csökken. A spektrum 360-600 m μ hullámhossztartományban helyezkedik el, maximuma 490 m μ -nál található.

A besugárzás folyamán keletkezett töltött részecskék 0,1 - 0,7 eV mélységű csapdába fogódnak be. A fényemissziót részben a töltött részecskék rekombinációja eredményezi, részben az excitonok okozzák. A sugárkémiai folyamatban főként a DMA molekulák gerjesztődnek. A gerjesztés vándorlás után a FeCl_3 molekulákon lokalizálódik s végül a FeCl_2 emittál.

A FeCl_3 gyökcsapdát 2 mM-nál nagyobb koncentrációban tartalmazó dimetilanilin /a továbbiakban DMA/ 77 - 196°K hőmérséklettartományban történő besugárzásakor a vas /III/ klorid szokatlanul magas kezdeti sugárkémiai hozammal $G(-\text{FeCl}_3)_0 = 10$ -25 redukálódik [1]. A DMA-ban, valamint más oldószerekben különböző hőmérsékleten kristályos fázisban végzett spektrofotometriás mérések eredményeinek analizise alapján [2] úgy látszik, hogy ezek a kezdeti hozamok az oldószertől az oldott anyaghoz irányuló energiaátadással értelmezhetők. Az energiát a kristályos anyagban mozgó excitonok szállítják.

A DMA lehítve polikristályos szerkezetet vesz fel, s így a FeCl_3 redukciójának, a sugárzás hatására keletkezett képződmények reakciói hőmérsékletfüggésének és a besugárzás után kialakult energetikai viszonyok

meghatározására az általunk korábban használt [1] abszorpciós spektrofotometriás technika nem alkalmas.

A fenti folyadékfázisban végzett spektrofotometriai méréseken alapuló vizsgálatok kiegészítésére célszerűnek látszott a szilárd fázisban lejátszódó folyamatokról lehetőleg közvetlen adatokat nyerni.

Az alacsony hőmérsékleten besugárzott DMA mintákban a kémiai átalakulások sebességét a rácsszerkezet változásai jelentékenyen befolyásolhatják. Elsősorban a hőmérséklettől függő strukturális átalakulások és molekuláris mozgások, a minta hűtése és besugárzása során keletkező rácshibahelyek hatása lehet jelentős, amelyek az alapállapothoz viszonyítva energiafelesleggel rendelkező részecskék, elektronok, ionok, gyökök és gerjesztett képződmények kémiai változást eredményező reakcióinak irányát és sebességét megváltoztathatják. A sebesség változását végsősoron a reagáló részecskék egymáshoz való elmozdulásának sebessége és a kémiai átalakulást eredményező találkozások gyakorisága szabja meg, és így arányos lesz a rácshibahelyek, elektron és gyökcsapdák milyenségével és koncentrációjával.

A korábbi lumineszcenciás méréseink [3] folytatásaként jelen munkánk fő célkitűzése az volt, hogy a hőmérsékletnek a szerkezetre és ezáltal a különböző folyamatok jellegére kifejtett hatását, a besugárzás során kialakult molekuláris energetikai viszonyokat tanulmányozzuk. Különösen érdekeseknek látszottak azok a mérések, amelyek az energiaátadás lehetséges mechanizmusáról adhattak felvilágosítást.

A felsorolt folyamatok vizsgálata az NMR, ESR, Mössbauer spektroszkópia és lumineszcencia mérésekkel megvalósítható. Ezen vizsgálataink eredményeit önálló munkák formájában közöljük. Jelen közlemény a lumineszcenciás és ESR mérések eredményeit tartalmazza.

Kísérleti rész

Az anyagok előállítását és tisztítását, a berendezéseket, mérőműszereket és a mérést korábbi közleményünkben [3] már ismertettük, ezért itt csak az azóta bevezetett újabb eljárásokat közöljük.

Igy pl. a lumineszcencia mérések egy részét aluminiumból készített mintatartó edénnyel végeztük. Ez egy 5x20x180 mm méretű Al rud volt, egyik felületén a minta befogadására 0,5x15x30 mm-es bemélyedéssel. Az ilyen mintákat manipulációs kamrában nitrogén védőatmoszférában készítet-
el, majd cseppfolyós nitrogén alatt szállítottuk és sugároztuk be. Az

evakuált és a védőgázban készült minták fluoreszcenciás folyamatai között eltérés nem mutatkozott.

A termolumineszcencia görbék felvételét vagy szakaszosan /legtöbbször 10, a maximumok közelében 5 fokos intervallumokban/ vagy folyamatosan különböző felfűtési sebességekkel vettük fel. A minták hőmérsékletét ezen mérések alatt $\pm 1,5^{\circ}$ pontossággal szabályoztuk.

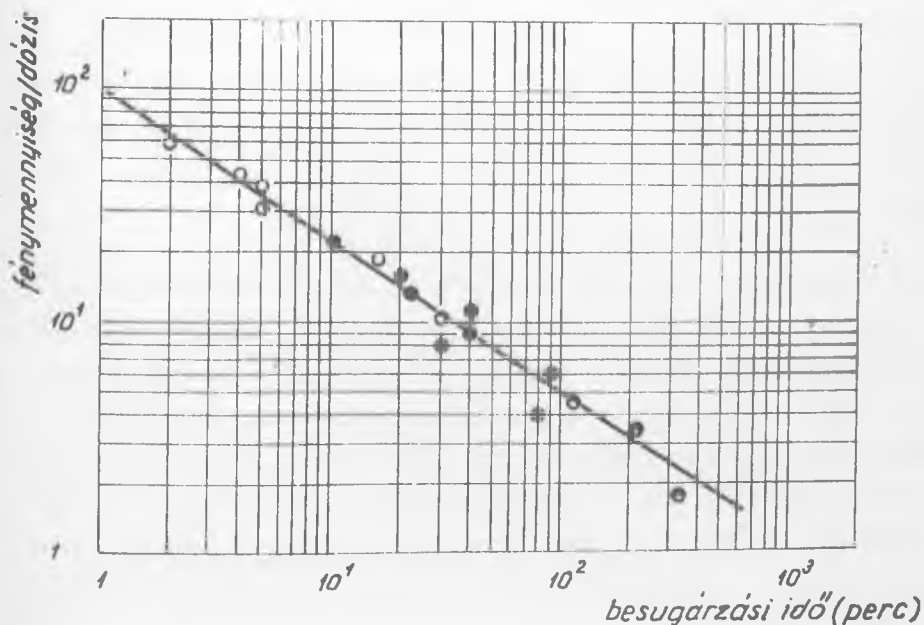
Az ESR méréseket JES-3BX spektrométerrel végeztük Te_{102} módusu 3 cm-es üreggel.

Az eredmények

Az emittált fény mennyisége változása az elnyelt dózissal és a kezdeti $FeCl_3$ koncentrációval

A kisugárzott fény mennyiséggel arányos fényintenzitás-idő görbék határolta területeket az elnyelt dózis függvényében vizsgálva megállapítható, hogy a leadott fény mennyisége kezdetben lineárisan emelkedik az elnyelt dózissal. A besugárzás idejét növelve a lineáris összefüggés megszűnik; bizonyos dózis elnyelése után a görbék határérték felé közelednek.

Az emittált fény mennyisége dóziszfüggése szemléletesebb formába hozható, ha az egységnyi elnyelt dózis fényemisszióra fordítódó hányadának logaritmusát ábrázoljuk az elnyelt dózis logaritmusának függvényében /1. ábra/. A különböző mérések az ábrán láthatóval azonos hajlásszögű egyenest adtak, a kibocsátott teljes fény mennyisége tekintetében azonban különböztek egymástól. Az 1. ábrán ezeket az egyeneseket fedésbe hoztuk



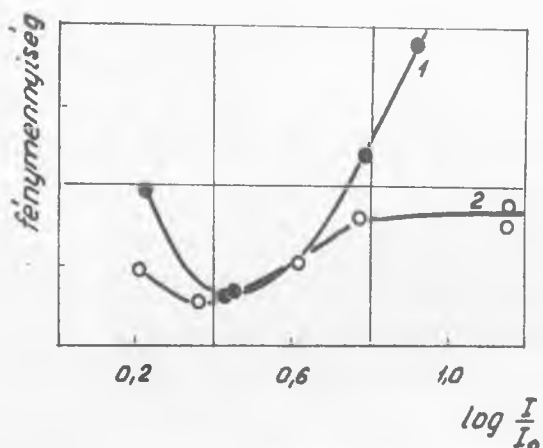
1. ábra

Az emittált fény mennyisége változása a besugárzási idő függvényében

azáltal, hogy a 10 perces besugárzáshoz tartozó fény mennyiség értéket minden mérésnél azonosnak tekintettük, vagyis erre az értékre normalizáltunk. A kis dózisosknál a sugárforrásunk konstrukciójából [4] adódó bizonytalanságok miatt az 1. ábra kezdeti szakasza jellegének meghatározására további mérések szükségesek.

Az azonos dózist elnyelt minták által emittált fény mennyiség változása a FeCl_3 kezdeti koncentrációjának függvényében a 2. ábrán látható.

Az 5 és 10 percig besugárzott minták minimuma azonos koncentrációtartományban $2,2 - 2,8 \cdot 10^{-4}$ M-nál van.



2. ábra

Az emittált fény mennyiség változása a FeCl_3 kezdeti koncentrációjának függvényében

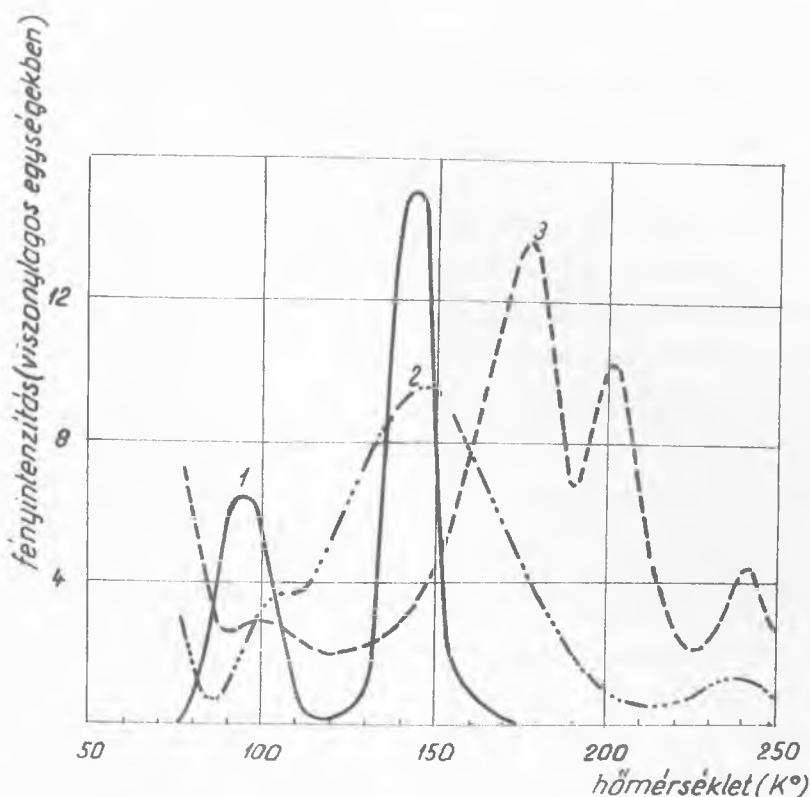
- 1 $D = 15,6 \cdot 10^{20} \text{ eVl}^{-1}$
- 2 $D = 7,8 \cdot 10^{20} \text{ eVl}^{-1}$

felfűtéssel az egymáshoz közeli csúcok nem választhatók el egymástól, mivel az aktiválási energia elegendő ahhoz, hogy bizonyos kis sebességgel a magasabb hőmérsékletre tartozó folyamatok is lejátszódjanak. A szakaszos felfűtéssel felvett görbén az aktiválási energiák átfedése miatt az intenzitás csúcok száma tehát várhatóan kevesebb lesz, mint a folyamatos felfűtéssel nyert görbékén.

A folyamatos felfűtésnél viszont az anyag rossz hővezetőképessége és vastagsága miatt a minták külső és belső rétegei között számottevő hőmérséklet különbség alakulhat ki, amely a nagyobb intenzitáscsúcok felhasadását okozhatja /3. ábra, 3 görbe/. Ezt a hibát kb. 1 mm vastagságú vékony minták alkalmazásával küszöböltük ki. Az ilyen mintákkal nyert felvételeinket tekintjük helyeseknek. Az előbbieket illusztrálására a 3. ábrán a különböző módszerekkel és rétegvastagságú mintákkal nyert termolumineszcenciás görbék láthatók.

A hőmérséklet hatása a lejátszódó folyamatokra

1/ A fényintenzitás - hőmérséklet görbéket mind szakaszos, mind folyamatos felfűtési módszerrel felvettük. Az első esetben a mintát mindaddig egy adott hőmérsékleten tartottuk, ameddig fényemisszió történt. Utána a mintát cseppfolyós nitrogénbe helyeztük, a hőmérsékletet felemeltük és a mérést folytattuk. A két módszerrel egymástól némileg eltérő eredményeket kaptunk. Szakaszos



3. ábra

A fényintenzitás változása a minta hőmérsékletének függvényében

- 1 szakaszos felfűtés
- 2 1 mm vastagságú minta $2^{\circ}/\text{min}$ fűtési sebesség
- 3 5 mm vastagságú minta $5,4^{\circ}/\text{min}$ fűtési sebesség

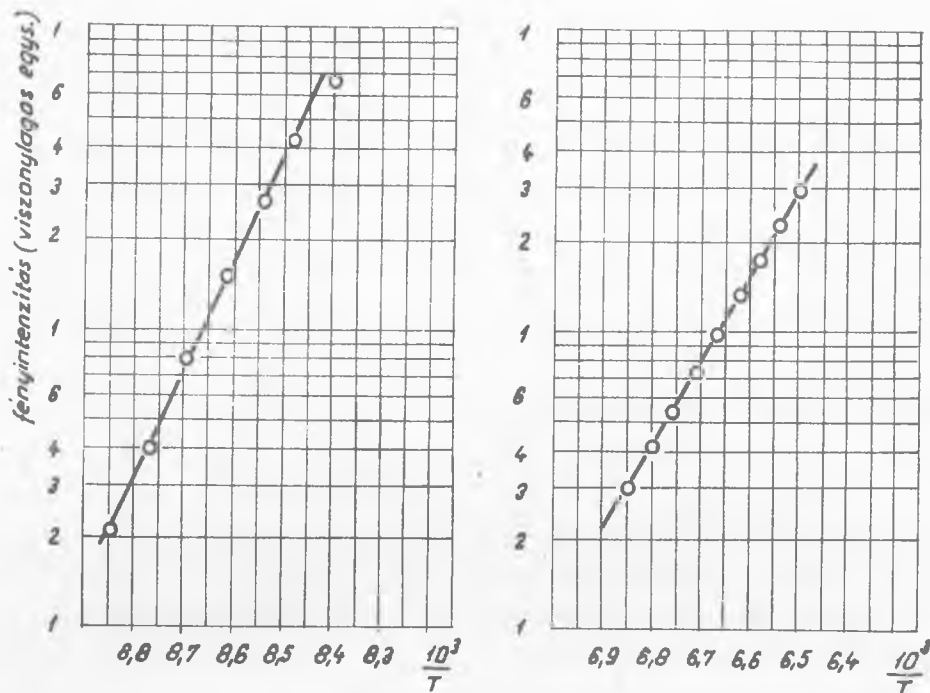
Részen ezen tényezőkkel magyarázható az is, hogy nagyobb fűtési sebességeknél az intenzitásmaximumok a magasabb hőmérsékletek felé tolódnak el.

A besugárzott DMA szakaszos módszerrel felvett termolumineszcenciás görbéjén két maximum van: az első 93°K , a második pedig 138°K hőmérséklet értéknél /3. ábra/. A görbe alatti területekből számolva a magasabb hőmérsékleten lejátszódó folyamat közben kb. háromszor több fény szabadul fel, mint az első csúcsnál.

Folyamatos felfűtéskor a radiotermolumineszcenciás görbéken négy csucs van, amelyek maximuma 77° , 100° , 150° és 240°K -nél található.

2/ A fényintenzitás kezdeti emelkedése /initial rise curves/ a hőmérséklet függvényében exponenciális görbével írható le. A 115° és 150°K hőmérsékleti maximummal rendelkező csúcsok felfűtésekor mért fényintenzitás értékeket a hőmérséklet reciproka értékének függvényében ábrázoló

görbék /4. ábra/ hajlásszögéből a folyamatok aktiválási energiája kiszámítható.



4. ábra

A fényintenzitás kezdeti emelkedése a hőmérséklet függvényében

- 1 110°K-nél
- 2 140°K-nél

3/ A besugárzás folyamán keletkező gyökök eltűnésének folyamatát a hőmérséklet függvényében ESR méréssel vizsgáltuk. A besugárzott DMA-ban a gyökhozam értéke rendkívül kicsi, így az ESR méréseknél használt minták durván 3 nagyságrenddel nagyobb dózist kaptak, mint a termolumineszcenciás méréseknél használtak. Az így nyert és elég gyenge jelet adó gyökök koncentrációja a 120-200°K közötti hőmérséklettartományban, tehát ahol a termolumineszcenciás folyamatok zöme lejátszódik, nem változott. A kapott ESR jel az 5. ábrán látható.

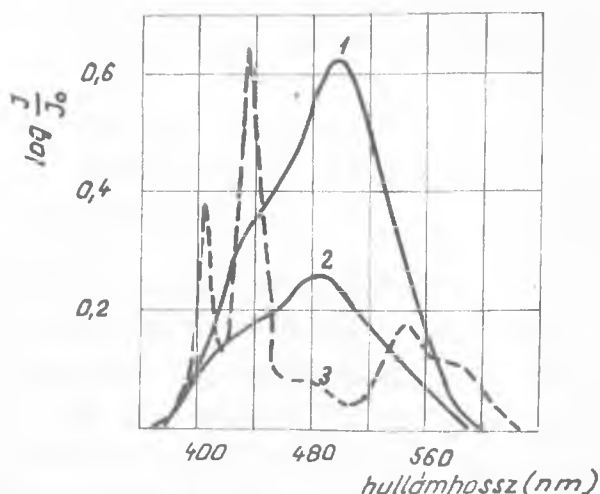


5. ábra

A besugárzott DMA-ban keletkező gyökök ESR spektruma

Az emittált fény spektrális összetétele

A 77°K-on ^{60}Co γ -sugárzással besugárzott DMA-FeCl₃ rendszer felmelegítésekor kisugárzott fény spektrális eloszlása a 6. ábrán látható. A termolumineszcenciás görbék két maximumához tartozó fényt együtt vittük fel a monokromátorra,



- 1 } DMA lumineszcencia spektruma
- 2 } Hg lámpa spektruma
- 3 } Hg lámpa spektruma

6. ábra

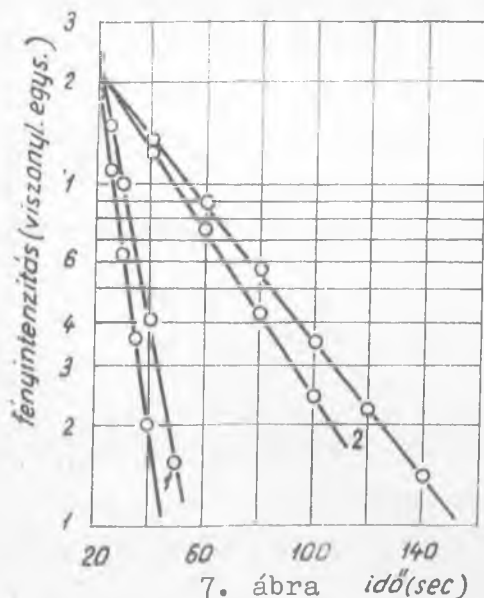
A FeCl_3 -mat tartalmazó 77°K -nél besugárzott DMA lumineszcencia spektruma

igy az ábra görbéje az összesített spektrumot adja. Készülékünk felbontóképességének szemléltetésére a higanygőzlámpa e hullámhossztartományba eső szinképerőli készült görbénket is bemutatjuk. A $\text{DMA} + \text{FeCl}_3$ rendszer lumineszcencia szinképe folytonos. A spektrumok magasabb energiákhoz tartozó leszálló oldalán található váll arra enged következtetni, hogy a spektrum két összetevőből áll.

Elég durva, tájékozódó méréseink szerint a 150°K -nél alacsonyabb hőmérsékleteken kisugárzott fény intenzitásmaximumának hullámhossza eltér az e hőmérséklet felett mért spektrumokéitól; a nagyobb hullámhosszak felé tolódik el.

Az emittált fény intenzitásának változása az időben

A ^{60}Co γ -forrásban besugárzott és termikusan gerjesztett minták fényemissziójának intenzitása a maximum elérése után egy adott hőmérsékleten exponenciálisan csökken /7. ábra/. A termolumineszcenciás görbén

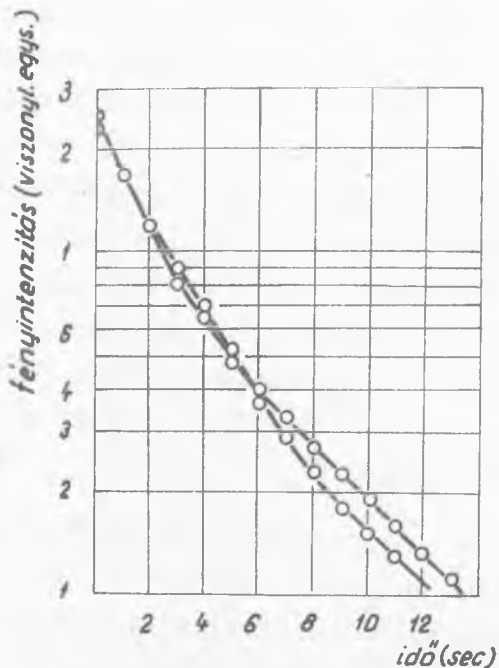


7. ábra

A fényintenzitás csökkenése az időben. 77°K -on ^{60}Co γ -besugárzott minta.
A hőmérséklet 1 100°K
2 150°K

látható intenzitásmaximumok felezési ideje különbözik egymástól. Az alacsonyabb hőmérsékletű 150°K alatti fényemisszió felezési ideje 8 sec körül van, a másik csúcspedig méréseink szerint 24-38 sec között változik. Ezeket a méréseket 5 mm vastag mintákkal végeztük. Ez a körülmény a felezési értékek pontosságát befolyásolhatta.

Az UV besugárzással gerjesztett minták fényemissziójának lecsengési görbéi is exponenciális lefutásuak, azonban felezési idejük jóval kisebb, mint termikus gerjesztés esetén /8. ábra/. A



8. ábra

A fényintenzitás csökkenése az időben 77°K-on UV besugárzás után /két különböző mintával végzett mérések eredményei/

Az emittált fény kvantumhozama

Az elnyelt sugárzási energia fényemisszióra jutó részének meghatározására a mérőberendezést standard fényforrással bekalibráltuk, és a minták által leadott teljes fény mennyiségét a minta egységnyi térfogatára vonatkoztattuk. A mérőberendezés összetettségét tükröző korrekciós tényezők miatt a számítások csak nagyságrendileg tekinthetők helyesnek. Számításaink szerint az emittált fotonok sugárkémiai hozama $10^{-6} - 10^{-5}$ foton/100 eV, amely a szilárd fázisu átlagos gyökhozam $G/R/ \approx 0,1$ értékénél nagyságrendekkel kisebb.

Egyéb megfigyelések

Az előzőekben felsorolt mérési adatokat célszerű a következőkkel kiegészíteni:

1/ A $FeCl_3$ gyökcsapdát nem tartalmazó alacsony hőmérsékleten besugárzott DMA felmelegítésekor nem fluoreszkál.

görbék három különböző szakaszra bontathatók, amelyek felezési ideje megfelelőképpen $t_{1/2}^1 = 1,8$ sec, $t_{1/2}^2 = 2,6$ sec és $t_{1/2}^3 = 3,7$ sec.

Gerjesztés különböző frekvenciájú sugárzással

A 77°K hőmérsékleten besugárzott mintákat cseppfolyós nitrogénbe helyezve a fluoreszcencia $\lambda = 3,7\mu$ hullámhosszúságú IR sugárzás hatására kezd láthatóvá válni, és ez a fénykibocsátás a sugárzás hullámhosszát folyamatosan csökkentve mind erősebben jelentkezik. 3 eV-nak megfelelő energiájú sugárzás hatására indul meg az igen intenzív zöld színű fluoreszcencia fény kibocsátása, s ettől kezdve a fotogerjesztés és a γ -sugárzás folyamán elnyelt energia egy részének fény alakjában való kisugárzása egyidejűleg történik.

2/ Az evakuált kvarc edény falára szublimált és alacsony hőmérsékleten besugárzott FeCl_3 sem felmelegítésre, sem Hg lámpa fényével gerjesztve nem fluoreszkál.

Az eredmények tárgyalása

A fluoreszcencia létrejöttéhez a DMA és a FeCl_3 együttes jelenléte szükséges, mivel a két komponens külön-külön a besugárzás után nem fluoreszkál. E két anyag kölcsönhatása a Mössbauer-effektus mérések tanúsága szerint olyan komplexet eredményez, amelyben a dimetilanilin molekulák meghatározott módon veszik körül a Fe atomot. Az így létrejött komplex első elnyelési sávja 3 eV-nál kezdődik, a maximális elnyelésnek megfelelő energia pedig 3,5 eV.

Az alacsony hőmérsékleten végzett γ -besugárzás hatására a rendszerben energia tárolódik. A tárolt energia főként olyan részecskékhez van kötve, amelyek a besugárzás hőmérsékletén csapdáknak foglalnak helyet. A csapda mélységének megfelelő aktiválási energia közlése után a részecskék felszabadulnak, majd reakcióba lépnek, miközben feles energiájukat, vagy annak egy részét fénykissugárzás formájában leadják. Esetünkben az energiafelesleggel rendelkező részecskék a FeCl_3 molekulákkal reagálva emittálnak fényt, mivel a tiszta DMA-ban fénykibocsátás nem észlelhető.

A csapdák mélységének jellemzésére több módszer alkalmazható. A fluoreszcencia termikus gerjesztésekor kapott fényintenzitás-hőmérséklet görbékre az Urbach formulát $\epsilon_i = \frac{T_i^x}{500}$ alkalmazva [5] a következőt kapjuk:

$$\epsilon_1 = 0,16 \quad \epsilon_2 = 0,20 \quad \epsilon_3 = 0,30 \quad \epsilon_4 = 0,44$$

ahol ϵ_i az i -edik intenzitásmaximumnak megfelelő csapda mélysége eV-ban kifejezve.

T_i^x az i -edik intenzitás maximumnak megfelelő hőmérséklet.

A csapdák mélysége a fényintenzitás kezdeti növekedését a hőmérséklet függvényében ábrázoló görbék hajlásszögéből is meghatározható. Méréseink szerint /4. ábra/ az aktiválási energia értéke 0,5 - 0,7 eV között ingadozik, és az első fluoreszcenciás maximumra vonatkozó értékek határozottan kisebbek, mint a másodikéi.

Az $\epsilon = h\nu$ képlet használatával IR és UV besugárzásaink alapján arra az eredményre jutunk, hogy a fluoreszcencia gerjesztése $\epsilon \approx 0,3$

eV-nál indul meg, és ettől kezdve 3,6 eV-ig a közbeeső energiájú sugárzásokkal gerjeszthető. 3,6 eV felett a fluoreszcencia gerjesztése előzetes ^{60}Co γ -besugárzás nélkül is megindul. A ~ 3 eV gerjesztési energiának megfelelő hőmérséklet érték az Urbach formula szerint a DMA forráspontja felett van, így tehát fel kell tételeznünk azt, hogy a csapda mélységénél nagyobb energiájú fotonokkal történő gerjesztésnél az energia egy része a rendszer felmelegítésére fordítódik, vagy, hogy a termikus gerjesztés koncepciói befagyasztott organikus anyagokra nem alkalmazhatók.

Az energiát tároló és később leadó részecskék a sugárzás hatására létrejött szabad elektronok, ionok és szabad gyökök lehetnek. Az energia felszabadulás az elektronok és negatív ionok esetében a pozitív lyukkal való rekombinációkor történhet. A szabad gyökök mind a pozitív, mind a negatív töltésű részecskékkel szemben affinitást mutatnak [6], s is egyrészt csapdaként szerepelhetnek, másrészt egymás közötti és a töltésekkel való rekombinációjuk fénykibocsátással járhat.

Az elektronok létrejötte a fénykibocsátás hozamát biztosító koncentrációban esetünkben, amikor a sugárzás által közvetlenül gerjeszthető FeCl_3 molekulák száma az emittált fénykvantumok számának durván tízszerese^{*}, két mechanizmus szerint is elképzelhető. Az egyik szerint az elektronok a DMA molekulákról szakadnak le, majd migrációval a FeCl_3 és DMA alkotta komplexek közelébe kerülnek, de elképzelhető az is, hogy az elektronok a FeCl_3 -ról szakadnak le és a molekula közelében lévő csapdába helyezkednek el. Mivel a fotolumineszcencia felezési ideje lényegesen kisebb, mint a gamma besugárzott minták termikus gerjesztésénél megfigyelt fényemisszióé, valószínűnek látszik az a feltevés, hogy a gamma besugárzás hatására az elektronok főként a DMA molekulákból szakadnak le, és a FeCl_3 lumineszcencia centrumoktól elég nagy távolságokra helyezkednek el.

Az NMR mérések szerint /L. II. közl./ a vizsgált hőmérséklet-tartományban /77-270°K/ szerkezeti átalakulások nem történnek, tehát a 77°K-nél meglévő szerkezet és molekuláris mozgások maradnak meg a magasabb hőmérsékleteken is. A mérésekből úgy tűnik, hogy a CH_3 csoport forgása éppen a 77°K körüli, de annál alacsonyabb hőmérsékleten indul meg. Így tehát a termolumineszcenciás görbék 77°K-nál megfigyelt csúcának létrehozásában feltehetőleg olyan részecskék vesznek részt, amelyek korábban a CH_3 csoporthoz voltak kötve. Megfigyeléseink szerint a görbén

*/ A FeCl_3 elektronhányada a 10^{-4} M FeCl_3 tartalmu oldatban $\gamma = 2 \cdot 10^{-4}$.

látható első csucs csak akkor mutatható ki, ha a lumineszcencia mérést közvetlen a gamma besugárzás után végezzük. Ebből arra következtetünk, hogy az első lumineszcenciás csucst a molekulák köztes tereiben szabadon mozgó, korábban a CH_3 csoportokon befogott elektronoknak pozitív lyukakkal való rekombinációja okozza. Ez a folyamat a besugárzás hőmérsékletén $/77^\circ\text{K}/$ észrevehető sebességgel játszódik le. A fénykibocsátási folyamat lecsengését az elektronok vándorlásának sebessége határozza meg. Mindenesetre ez a folyamat 116°K alatt befejeződik, úgyhogy véleményünk szerint a 116°K hőmérsékletű mintában szabad elektronok már nem lehetnek. Ezek a szabad elektronok nemcsak a molekula ionizációja révén jöhetnek létre, hanem a besugárzás hatására keletkezett excitonok rácshiba helyeken történő disszociációja eredményeként is.

ionok és pozitív lyukak, valamint a szabad gyökök rekombinációival kapcsolatosak. Mivel fénykibocsátás csak a FeCl_3 jelenlétében történik, fel kell tételeznünk, hogy a pozitív lyukak a DMA kristályrácsán irányítottan vándorolva végülis a FeCl_3 molekulákon lokalizálódnak, s így a reakció egyik partnere mindig a FeCl_3 -ből keletkező elektronaffinitással rendelkező képződmény.

A gyökkoncentráció változatlanságát dokumentáló ESR méréseinkből feltehetően az következik, hogy a kis dózisos elnyelésekor keletkező gyökök nem azonosak az általunk kimutatott gyökökkel, és így reakcióik is egészen másképpen játszódhatnak le. A lumineszcenciás folyamatban résztvevő gyökök koncentrációja mindenesetre a kimutathatósági határ alatt van. Feltetelezésünk szerint a legmagasabb hőmérsékletnél észlelhető fényintenzitás maximumot a szabad gyökök rekombinációja okozza.

Méréseinkből a sugárkémiai folyamat kezdeti szakaszáról levonható következtetések a mért magas $G/-\text{FeCl}_3/$ értékek helyességét megerősíteni látszanak. A Mössbauer-effektus mérések szerint a $[\text{FeCl}_3] > 10^{-2}$ M koncentrációju és a cseppfolyós nitrogén hőmérsékletére hűtött DMA oldatokban jól kimutatható koncentrációban Fe^{2+} ionok is vannak. Ezek az ionok valószínűleg a DMA-val való kölcsönhatás során keletkeznek a kezdeti FeCl_3 tartalomnak megfelelő egyensúlyi koncentrációban. Kisebb FeCl_3 tartalomnál az oldat lehütésekor Fe^{2+} nem képződik kimutatható mennyiségben, könnyen lehetséges azonban, hogy ezt az átalakulási folyamatot a sugárzás meggyorsítja. Az egyensúlyi koncentráció elérése után a sugárzás ezen katalitikus hatása megszűnik, és a FeCl_3 további redukciója már sokkal kisebb hozammal és más reakciómechanizmus szerint történik. Egy ilyen mechanizmus feltételezésével a folyamat kezdeti szakaszán a sugárzás szolgáltatott aktíválási energia értéke elvileg tetszőlegesen kicsi lehet, és így az

excitonos mechanizmusnál [2] energetikai okokból fellépő, a $G/FeCl_3$ lehetséges maximális értékét korlátozó körülmények figyelmen kívül hagyhatók.

A DMA- $FeCl_3$ rendszer sugárkémiai folyamata kezdeti szakaszán mért nagyobb hozamok lehetőségét erősíti az a tény is, hogy az egységnyi elnyelt dózis fényemisszióra fordítódó része legnagyobb a besugárzás kezdetén. Mivel a fénykibocsátás mindenképpen a $FeCl_3$ molekula bevonásával történik, ez egyúttal a $FeCl_3$ nagyobb hozamu redukcióját is jelentheti. Az egységnyi elnyelt dózis fényemisszióra fordítódó hányadának változása, amint az az 1. ábrából látható

$$Q = aD^{-b}$$

kifejezéssel írható le, ahol Q az egységnyi dózis hatására emittált fény mennyiség, D az elnyelt dózis, a és b pedig állandók. Az egyenletben szereplő konstansok meghatározásához a fényemisszió kvantumhozamának pontos ismerete szükséges.

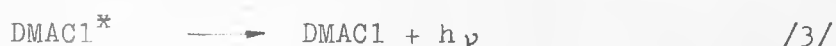
Az azonos elnyelt dóziséből fényemisszióra jutó hányad változása a kezdeti $FeCl_3$ koncentráció függvényében /2. ábra/ arra mutat, hogy egy bizonyos koncentráció felett a vasklorid tartalom növelésével ez a hányad is nő. A görbén látható határozott minimum értelmezésére további mérések szükségesek.

Egy adott mintát egymásután többször besugározva kimutatható, hogy az egységnyi dózusra emittált fény mennyiség csökkenése nincs kapcsolatban a $FeCl_3$ koncentrációjának változásával. A jelenség a gerjesztett részecskék befogására alkalmas csapdák fokozatos telítődésével vagy olyan csapdák feldusulásával magyarázható, amelyekből az alapállapotba való átmenetek fényemisszió nélkül történnek. Bármely folyamat játszódjék is le, az egyensúlyi állapot viszonylag kis dózisos hatására $/D < 0,1 \text{ Mrad}/$ beáll.

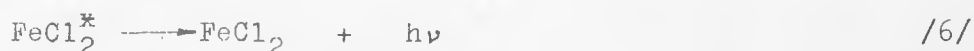
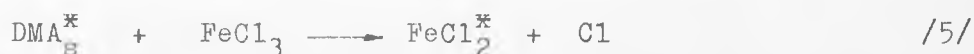
A $G/\text{foton}/$ hozamot a gyökhozammal és $G/FeCl_3$ értékével összehasonlítva látható, hogy fényemisszióra a sugárzási energiának csak jelentéktelen hányada fordítódik. A védőhatás és a besugárzott anyagok sugárstabilitásának megnövelése szempontjából ezekből a mérésekből világosan kitűnik, hogy a gerjesztést fényemisszió útján leadó adalékoknál * effektívebbnek látszanak az olyan molekulák, amelyek a feles energiát nem foton kibocsátással, hanem sugárzás nélküli folyamatban vibrációs és rotációs energia formájában tárolják és adják le a közegnek.

Bár a kvantumhozam alapján a lumineszcenciás folyamatot kísérő esetleges kémiai átalakulások aligha befolyásolhatják a kezdeti sugárkémiaili hozamok értékét, mégis hasznosnak találtuk az elképzelhető kémiai folyamatok felvázolását.

A besugárzás hőmérsékletén szabadon mozgó vagy a magasabb hőmérsékleten a csapdákból termikus gerjesztéssel kiemelt elektronokkal a következő reakciókat tartjuk lehetségeseknek:



A másik lehetséges mechanizmus szerint a sugárzás hatására gerjesztett állapotba kerülő DMA^* adja át energiáját a FeCl_3 -nak, amely a feles energia egy részét emittálja.



A negatív ionok pozitív lyukakkal történő rekombinációjára csak a molekuláris bizonyos fellazulása után kerülhet sor. Az első ilyen mozgás a CH_3 csoportok forgása lehet. Az ionok reakcióit az /1/-/3/ folyamatok írják le, ha az elektront a megfelelő negatív ionnal helyettesítjük. Az elektron-akceptor lehet szabad gyök is, ekkor a reakció a következőképpen alakul:



I r o d a l o m

- [1] Dainton, F.S., Kosa-Somogyi, I. and Salmon, G.A.: Trans. Faraday Soc. 61, 871 /1965/
[2] Collinson, E., Conlay, J.J. and Dainton, F.S.: Disc. Faraday Soc. 36, 153 /1963/

- [3] Kósa Somogyi I. és Vizesy M.: KFKI Közl. 12, 287 /1964/
- [4] Vályi Nagy, J.: Large Radiation Sources in Industry, IAEA, Vienna 1960, page 121.
- [5] Д. Кюри, Люминесценция кристаллов, Изд. Иностран. лит. Москва 1961, стр. 145
- [6] В.Л. Тальрозе, Известия АН СССР. Отд. Хим. Наук 369 (1959)

Érkezett: 1966. aug. 1.

KFKI Közl. 14.évf. 6.szám, 1966

GAUSS-FÜGGVÉNYEK KEVERÉKÉNEK KOMPONENSEKRE BONTÁSÁRÓL

Írta: Varga László

Összefoglalás

Egyszerű numerikus eljárást ismertetünk, amely a szórás-csökkentés módszerét alkalmazza Gauss-függvények keverékének komponensre bontásánál. Foglalkozunk a közelítésnél fellépő paraméterek megválasztásával.

Bevezetés

Gyakran felmerülő probléma eloszlásfüggvények keverékének komponensekre bontása. Ennek a problémának egy speciális esete az, amelynél a keverékfüggvény

$$f(x) = \sum_{k=1}^n p_k \frac{e^{-\frac{(x-\alpha_k)^2}{2\beta_k^2}}}{\sqrt{2\pi}\beta_k} ; (0 < \beta_1 \leq \dots \leq \beta_n ; p_k > 0, k=1, 2, \dots, n ; \sum p_k = 1) \quad //$$

alaku, azaz Gauss-függvények keverékéről van szó. A komponensekre bontás az $n, p_k, \alpha_k, \beta_k$ ($k=1, \dots, n$) paraméterértékeknek az $f(x)$ függvényre végzett mérések alapján történő meghatározását jelenti. Az n ismeretében általában a súlyozott legkisebb négyzetek módszerét alkalmazhatjuk a paraméterértékek becslésére. Ez numerikus szempontból többváltozós függvény szélsőértékének a meghatározását jelenti, amelyre igen hatásos gépi eljárásokkal rendelkezünk /például [1] /. A feladat akkor válik problematikusá, ha nem ismerjük a komponensek számát.

Ilyenkor különböző n értékekkel próbálkozunk, és hipotézisvizsgálat alapján választjuk ki a megfelelő n -et. A döntésnél nagy hasznát vesszük a görbe grafikonjának is, amelyről a maximumok számát és helyét leolvashatjuk. A maximumok száma azonban nem azonos a komponensek számával abban az esetben, ha az egymáshoz közeli csúcok "összeolvadtak", egy csucsnak látszanak. Ilyen esetben hasznosnak bizonyulhat az

un. szóráscsökkentés elvének alkalmazása. Ez azt jelenti, hogy nem magát az $f(x)$ függvényt ábrázoljuk, hanem előbb azt egy transzformációnak vetjük alá, amelynek célja az

$$f(x; \lambda) = \sum_{k=1}^n P_k \frac{e^{-\frac{(x-\alpha_k)^2}{2(\beta_k^2-\lambda)}}}{\sqrt{2\pi(\beta_k^2-\lambda)}}; \quad (0 < \lambda < \beta_1^2) \quad /2/$$

függvény előállítására, és az $f(x; \lambda)$ -t ábrázoljuk. A /2/ függvény ugyanis λ -val csökkentett szórású, "tűszerűbb" komponenseket tartalmaz, tehát ezek a keverékből jobban kiemelkednek, jobban elkülönülnek.

A szóráscsökkentés módszerének komponensekre bontásnál való alkalmazásával részletesen foglalkozik Medgyessy Pál [2] könyvében és több tanulmányában. A legutóbbi tanulmányában [3] igen egyszerű numerikus módszert dolgoz ki az $f(x)$ -et $f(x; \lambda)$ -ba átvivő transzformáció közelítésére. Tanulmányunkban mi egy [3] -hoz hasonló módszert ismertetünk, és a közelítésnél fellépő paraméterek hatását vizsgáljuk.

A feladat egy kézenfekvő megoldása

Könnyen meggyőződhetünk arról, hogy

$$f(x) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-\frac{(x-y)^2}{2\lambda}}}{\sqrt{2\pi\lambda}} f(y; \lambda) dy; \quad (0 < \lambda < \beta_1^2). \quad /3/$$

A feladat tehát a /3/ integráltranszformáció inverzének közelítése. Ezt az inverztranszformációt - miként az [3] -ban is történik - a következő alakú transzformációval kívánjuk megközelíteni:

$$f(x; \lambda) = \sum_{k=-m}^m C_k f(x + kh), \quad /4/$$

ahol h a rácspontok távolsága. Kérdés, hogy milyen szempontok alapján történjék a C_k együtthatók meghatározása? Medgyessy Pál ezeket az együtthatókat úgy határozza meg, hogy a közelítés tetszőleges $2m$ -ed foku polinom esetében pontos legyen. Mi ettől eltérőleg a következő megfontolást választottuk:

Az inverztranszformációt Gauss-függvények összegére kívánjuk alkalmazni. A közelítésnek tehát a Gauss-függvények szempontjából kell

"jónak" lennie. Kézenfekvő ezért /3/ inverztranszformáltj t egy összetartozó Gauss-függvény párral megadni: azt mondjuk, azt a transzformációt akarjuk közelíteni, amely egy alkalmasan megválasztott β szórású komponens előírt β/t szórású ($t > 1$) komponensbe visz át. Mivel a transzformáció α -tól független, legyen $\alpha = 0$. A közelítést akkor nevezzük jónak, ha az

$$\int_{-\infty}^{\infty} \left(t g(tx) - \sum_{k=-m}^m C_k g(x+k \cdot h) \right)^2 dx \quad /5/$$

eltérés minimális, ahol

$$g(x) = \frac{1}{\beta} e^{-\frac{x^2}{2\beta^2}}$$

Ez a feltétel a C_k értékek meghatározására a következő egyenletrendszert adja:

$$\sum_{k=-m}^m C_k e^{-\frac{(j+k)^2 \bar{h}^2}{4}} = \frac{1}{\sigma} e^{-\frac{j^2 \bar{h}^2}{4\sigma^2}}; \quad j=0, 1, \dots, m; \quad /6/$$

ahol $C_k = C_{-k}$, $\sigma^2 = (1+t^2)/2t^2$, $\bar{h} = h/\beta$

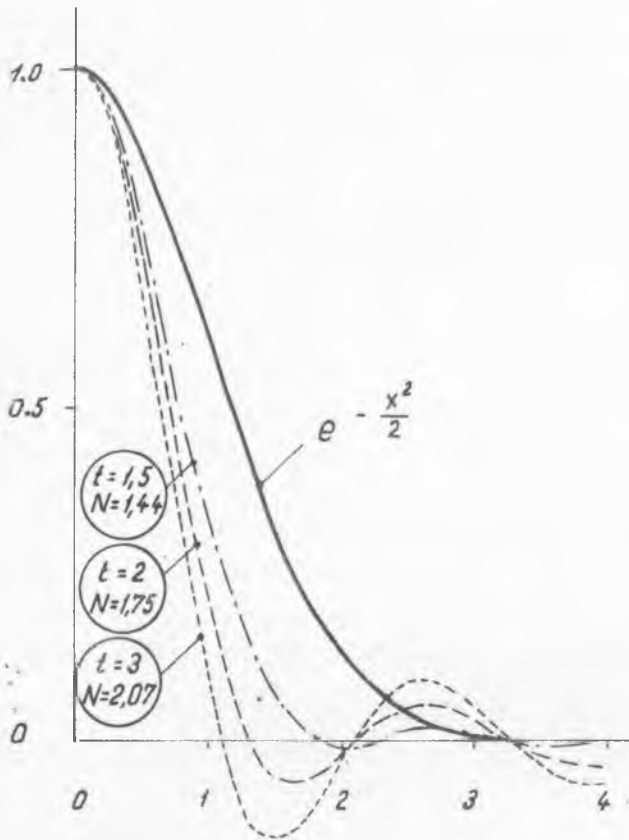
A módszer alkalmazása esetén első feladat az m, \bar{h} és t paraméterértékek meghatározása, majd ezután a C_k értékeket a /6/ egyenletrendszerből számítjuk. Kérdés azonban, milyen paraméterértékeket célszerű választani? A következőkben a /4/ transzformációnak a fenti három paramétertől való függését vizsgáljuk.

Megjegyzés

A /6/-os egyenletrendszer azt mutatja, hogy a közelítő transzformáció a $\beta\sqrt{2}$ szórású komponens csúcs körüli $2m+1$ pontját a $\beta\sqrt{2}/\sigma$ szórású komponens megfelelő pontjaiba viszi át. Ezekben az esetekben tehát a transzformáció a pontos értékeket szolgáltatja.

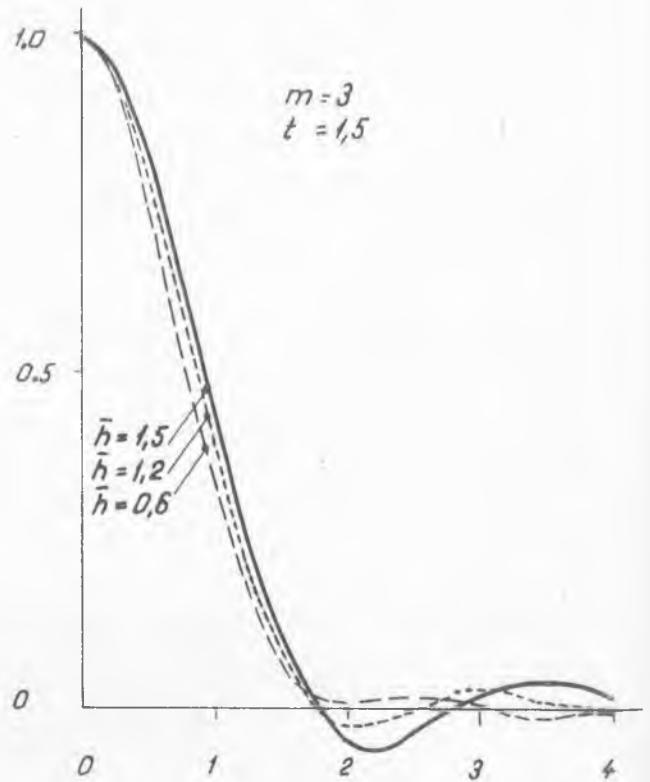
A paraméterek megválasztása

A t értékének növelésével a komponensek "tűszerűbbé" válását akarjuk elérni. Az 1. ábrán $m = 3$, $\bar{h} = 1$ mellett különböző t értékek-



1. ábra

$m = 3, \bar{h} = 1$, a t hatása; a görbék mellett az N normálási tényezőt is feltüntettük



2. ábra

$m = 3, t = 1.5$, a \bar{h} hatása

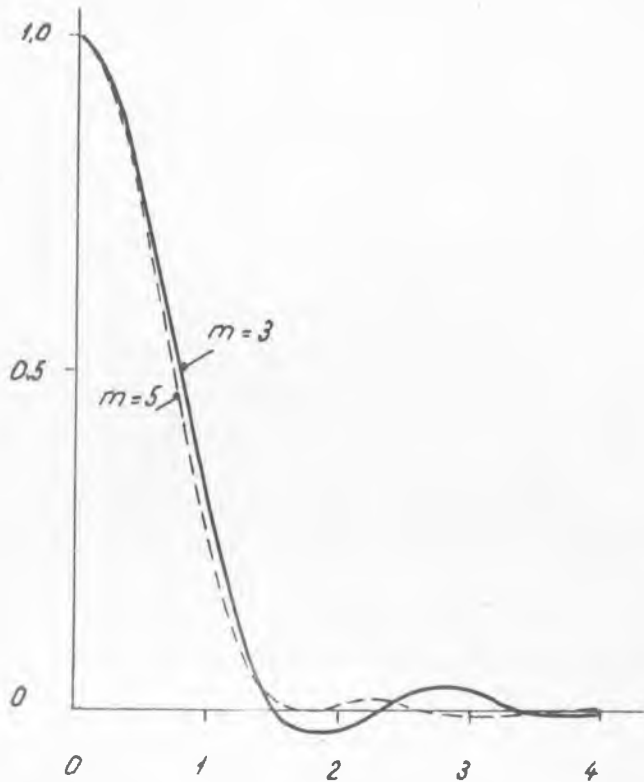
nél ábrázoltuk a kapott normált görbékét. Azt látjuk, hogy $t > 2$ esetén már jelentős mellécsúcs lép fel, amely a kiértékelést zavarja.

A 2. ábrán a \bar{h} hatását láthatjuk $m = 3$ és $t = 1.5$ mellett. A komponens \bar{h} csökkenésekor csúcsosabbá válik, a C_k értékek azonban növekszenek /ld. táblázat/. Mivel az $f(x)$ függvényt általában csak néhány jegyre ismerjük, a transzformáció alkalmazásakor elvesznek az értékes jegyeink. A \bar{h} csökkentésének tehát az $f(x)$ pontatlansága szab határt.

A 3. ábrán az m növelésének hatását láthatjuk.

Az m növelésekor csak kis mértékű javulást kaptunk, ez azonban együttjárt a C_k érték növekedésével.

Az ismertetett eljárást a $0.5 \leq \bar{h} \leq 1.5$, $t > 1.5$ és $m = 3, 5$ tartományban vizsgáltuk meg numerikusan. Vizsgálataink a szemléltető ábrák során levont következtetéseket megerősítették. A módszertől jelentős "fel-



3. ábra

$\bar{h} = 1, t = 1.7$, az m hatása

bontást" nem várhatunk, egymáshoz nem nagyon közeli csúcsok esetében azonban hasznosnak bizonyulhat. Ilyen esetet kívánunk a következő példán bemutatni.

Példa

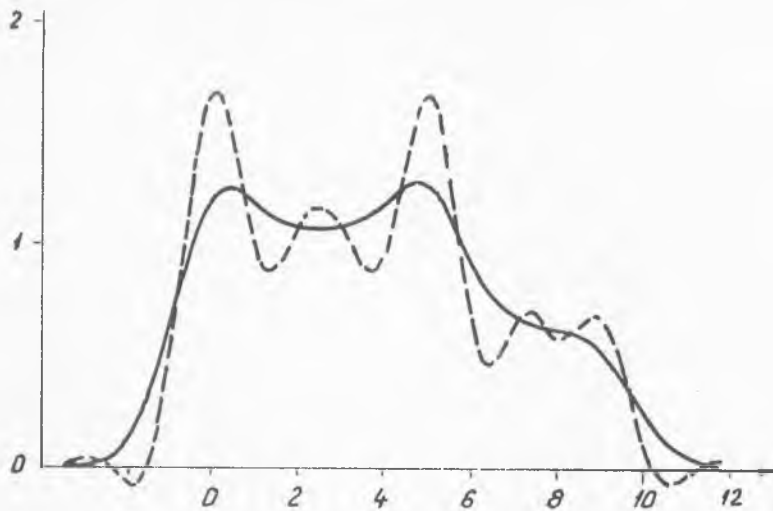
Legyen

$$f(x) = e^{-\frac{x^2}{2}} + e^{-\frac{(x-2.5)^2}{4}} + e^{-\frac{(x-5)^2}{2}} + 0.5e^{-\frac{(x-7.25)^2}{2}} + 0.5e^{-\frac{(x-9.25)^2}{2}}$$

A 4. ábrán folytonos vonallal ábrázoltuk a függvényt.

A transzformáció paraméterei: $\bar{h} = 1, m = 3, t = 1.7$. Az eredményül kapott görbét szaggatott vonallal ábrázoltuk. Az ábra helyesen mutatja a csúcsok számát, és alkalmas azok hozzávetőleges helyének megállapítására.

Végül táblázatban közöljük néhány paraméterérték mellett a /6/ egyenletből kapott C_k együtthatókat.



4. ábra
Öt komponensből álló keverék felbontása

1. táblázat

A C_k értékek táblázata

\bar{h} \ k	0	1	2	3	4	5	
$m=3$ $t=1.5$	0.6	14.4144	-9.7545	3.7286	-0.6863		
	0.8	5.3110	-3.0707	1.1514	-0.2430		
	1.0	3.0234	-1.4180	0.5302	-0.1328		
	1.2	2.1684	-0.8090	0.3043	-0.0899		
$m=3$ $t=1.7$	0.8	10.6960	-7.2447	3.0837	-0.7098		
	1.0	4.9618	-2.9191	1.2543	-0.3400		
	1.2	3.0738	-1.5045	0.6462	-0.2030		
	1.5	3.0376	-0.7330	0.3037	-0.1082		
$m=5$ $t=1.7$	0.8	11.6654	-8.6213	4.9698	-2.3668	0.8663	-0.1864
	1.0	4.5882	-2.7727	1.4913	-0.7564	0.3298	-0.0934
	1.2	2.7398	-1.2839	0.6388	-0.3343	0.1631	-0.0559
	1.5	1.8457	-0.5966	0.2597	-0.1300	0.0642	-0.0245

I r o d a l o m

- [1] Sokolov, S.N., Silin, I.N.: Preprint, D-810, Dubna, 1961.
- [2] Medgyessy, P.: Decomposition of superpositions of distribution functions. Akadémiai Kiadó, Budapest 1961.
- [3] Medgyessy Pál: Egy konvolúciós típusú integrálegyenlet numerikus megoldása és ennek felhasználása Gauss-függvény szuperpozíciók felbontására.
MTA III. Osztály Közl. 16, /1966/ 47-64

Érkezett: 1966 okt. 4.

KFKI Közl. 14.évf. 6.szám, 1966.

A ZR-2 ÉS A VVR-SZ REAKTOROK DOZIMETRIAI VIZSGÁLATA

Irta: Makra Zsigmond

Összefoglalás

Egy előző közleményünkben [1] ismertettünk két neutron-lassításon alapuló detektort, ugymint egy neutron átlagenergia mérőt és egy egyenletes érzékenységi neutronfluxusmérőt. Ebben a cikkünkben ezekkel a detektorokkal történt mérésekről számolunk be.

A VVR-Sz, illetve a ZR-2 reaktorokból kilépő neutronfluxus következő jellemzőit határoztuk meg:

- 1/ A ZR-2-ből kilépő neutronok átlagos energiájának függése a reflektor-vizréteg vastagságától.
- 2/ A VVR-Sz 3. számú vízszintes csatornájából kilépő nyaláb neutronjainak átlagos energiája.
- 3/ A VVR-Sz reaktor biológiai védelmének vizsgálata.

Az 1/ és 2/ mérés az átlagenergia mérővel történt, a 3/-nál ezenkívül a fluxusmérőt, valamint /RUP-1 típusu/ gyors és termikus neutron szcintillációs számlálót is használtunk. Ennél a mérésnél nemcsak a reaktor védelmérő, hanem a RUP-1 alkalmazhatóságáról is nyertünk adatokat.

1/ Az átlagos neutronenergia függése a reflektor-vizréteg vastagságtól a ZR-2 rendszerénél

A ZR-2 kritikus rendszerénél a reflektor-vizréteg változtatható. Kellően nagy fűtőelem töltettel a rendszer kritikussá tehető a fűtőelemek tetejénél alacsonyabban álló vízszinttel. A maximális vízmagasságot a tartály mérete szabja meg, kb. 40 cm-ben.

A rendszerből kilépő neutronfluxus és a neutronok energia eloszlása erősen függ a vizvastagságtól. Ezek az adatok a reaktor sugárvédelme szempontjából igen lényegesek. Jelen munkában az $E > 10$ keV kifolyási spektrum átlagenergiáját határoztuk meg a vízréteg vastagság függvényében.

Kísérleti rész

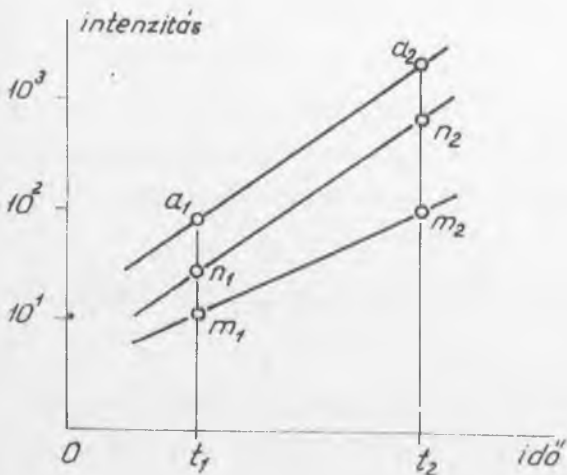
Az átlagenergia-mérő detektort a ZR-2 fölött 80 cm-re helyeztük el. A mért impulzusszámokat a ZR-2 rendszerben elhelyezett hasadási kamrához normáltuk. Nagyobb számlálási sebességeknél számottevő volt a holtidő veszteség. A detektor holtidejét is a kísérleti összeállításunk segítségével határoztuk meg, a következő módon.

A reaktort szuperkritikussá tettük. Ekkor a rendszer teljesítménye - és ezzel a detektorokat érő neutronfluxus is - az időben $e^{\lambda t}$ exponenciális függvény szerint nő. / $1/\lambda = 1.5$ percet célszerű beállítani./ A reaktor teljesítményét úgy választjuk meg, hogy az ellenőrző detektor számlálási sebességénél a holtidő veszteség még elhanyagolható legyen, a bemérendő detektornál pedig számottevő, de nem olyan nagy, hogy az

$$n = \frac{1}{1 - m\tau} = 1 + m\tau + \dots \quad /1/$$

korrekciós függvénynél elsőrendűnél magasabb tagokat figyelembe kelljen venni. Ekkor a τ holtidő az

$$e^{\lambda(t_2 - t_1)} = \frac{a_2}{a_1} = \frac{m_2}{m_1} \frac{1 - m_1\tau}{1 - m_2\tau} = \frac{n_2}{n_1} \quad /2/$$



1. ábra

A detektor holtidejének meghatározása exponenciális teljesítmény-növekedés mérésével

összefüggés alapján meghatározható /1. ábra/ [2]. Itt a az ellenőrző detektor számlálási sebességét jelenti, m és n a mérendő detektor "nyers" és korrigált számlálási sebességét. Az 1 és 2 index a t_1 illetve t_2 időpontokra utal. Az ellenőrző hasadási kamra holtideje $5 \mu s$ volt, az átlagenergia mérő detektoráé pedig $\tau = 160 \mu s$ -nek adódott a mérés alapján.

Megjegyzendő, hogy a holtidő - a számlálócsövön kívül - a tápfeszültségtől és a detektorhoz csat-

lakozó RC-kör jellemzőitől is függ. Mérésünknel 950 V tápfeszültséget és $R = 1,1 \text{ GOhm}$ munkaellenállást, 50 pF csatolókondenzátort, valamint az erősítőnél 5 μs differenciáló és 5 μs integráló időállandót használtunk.

Számítás

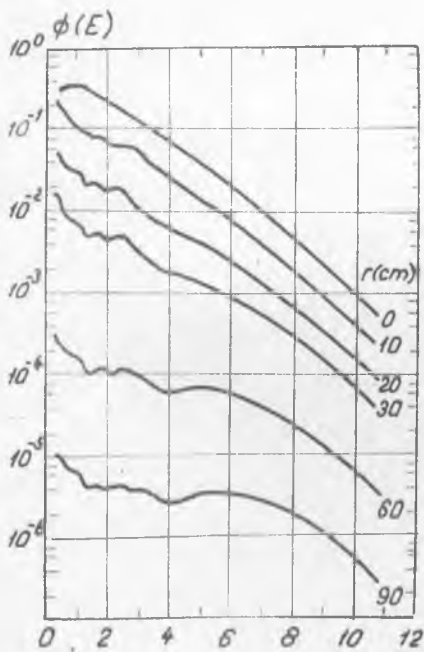
Az átlagenergia vizvastagság függését számítással a következő módon határoztuk meg. Először elvégeztük a számítást pontforrás-vizgömb geometriára, majd integrálással áttértünk a tényleges aktiv zónára. Egyszerűség kedvéért a problémát egydimenziósnak tekintettük.

Az r sugaru vizgömbbel körülvelt pontszerű hasadási forrás számított spektruma pl. [3] -ban található, lásd a 2. ábrán. A spektrum az

$r = 0$ esettől eltekintve - amikor a közismert $\phi/E = \exp\{-E\} \text{sh } \sqrt{2}E$ formulával közelíthető - nem adható meg analitikusan. Ezért a különböző $r > 0$ értékekre az

$$\tilde{E}(r) = \frac{\int_{E_1}^{E_2} E \phi(E, r) dE}{\int_{E_1}^{E_2} \phi(E, r) dE} \quad /3/$$

átlagenergiát grafikus úton határoztuk meg /1. 3. ábra/. Integrációs határként $E_1 \approx 0,1 \text{ MeV}$ és $E_2 = 11,0 \text{ MeV}$ értékeket vettünk.



2. ábra

Az r sugaru vizgömbbel körülvelt hasadási pontforrás spektruma [3] .

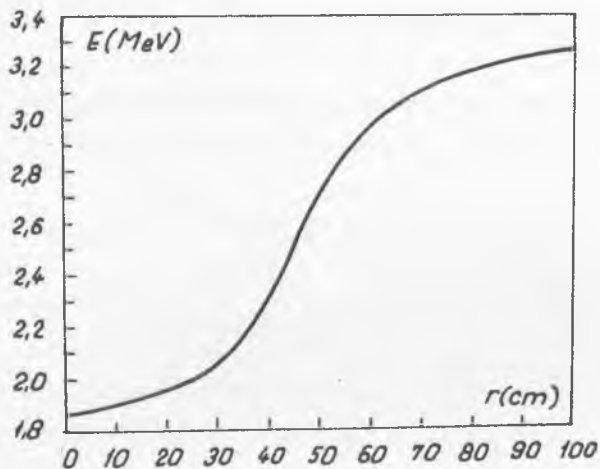
ból eredő és a vízfelszínen kilépő neutronok energiaeloszlása azonos /1. 4. ábra/. /Ez a megszorítás teszi a számítást közelítő jellegűvé./

Az egyes dV_i rétegek forrásereősége általában különböző, ami a következő módon vehető figyelembe: a forrásereőség valamely pontban arányos az ott lévő termikus neutron fluxussal. A termikus fluxus elosz-

lását Szabó F., Gyimesi Z. és munkatársaik meghatározták [4], 5. ábra. Az eloszlás a

$$S(x) = \sin\pi \frac{x-h+9}{68} \dots \dots \dots / 4 /$$

függvénnyel közelíthető. x és h cm-ben mérendő, jelentésük a 4. ábráról olvasható le.

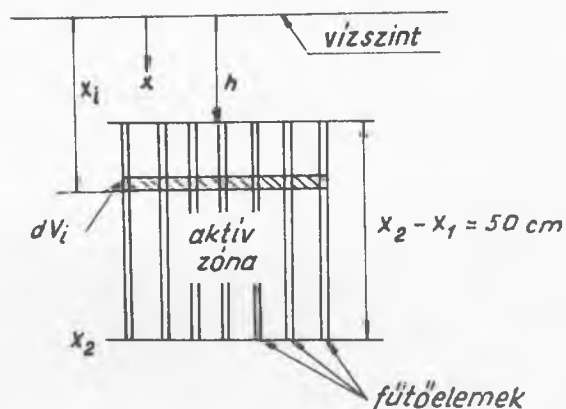


3. ábra

A 2. ábra spektrumából számított

$$\bar{E}(r) = \frac{\int_{0,1 \text{ MeV}}^{11,0 \text{ MeV}} E \phi(E, r) dE}{\int_{0,1 \text{ MeV}}^{11,0 \text{ MeV}} \phi(E, r) dE}$$

átlagenergia.

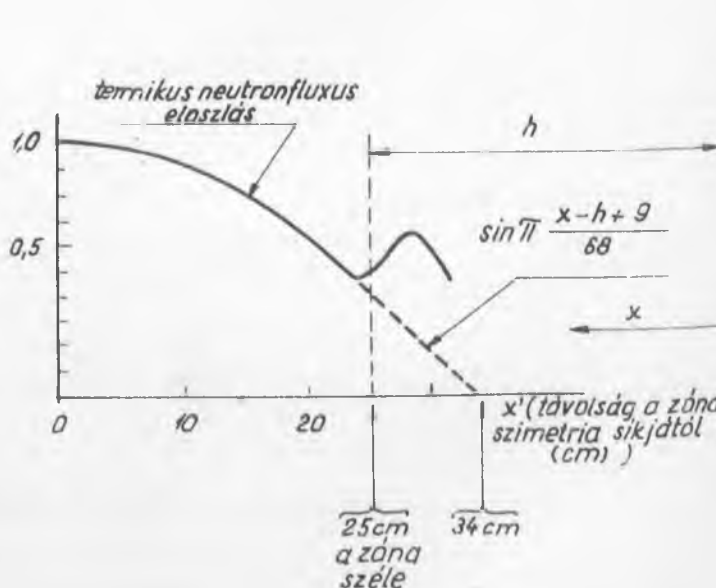


4. ábra

A ZR-2 vázlatja

5. ábra.

A termikus neutronfluxus, ill. a hasadási neutronforrás erősség eloszlása a ZR-2 rendszerben



A dV_i rétegben keletkező neutronoknak a reflektor felületén kilépő fluxushoz való járulékát úgy kapjuk meg, hogy az S/x forrásereőséget megszorozzuk az x vastag vízréteg $k(x)$ gyengítési tényezőjével. A $k(x)$ kifejezést a következő módon határoztuk meg:

$$k(x) = \frac{\int_{E_1}^{E_2} \phi(E, x) dE}{\int_{E_1}^{E_2} \phi(E, 0) dE} \quad (5)$$

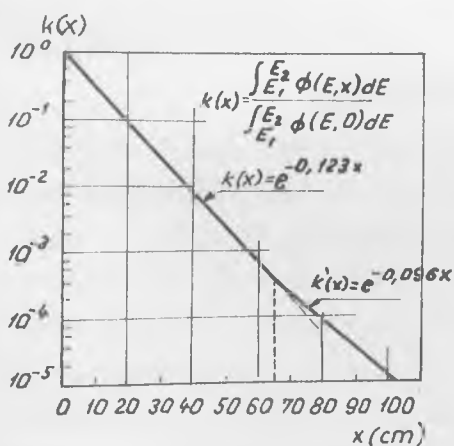
A numerikus számítás eredménye:

$$k(x) = \exp\{-0,123\}x \quad \text{ha} \quad 0 \leq x < 70 \quad (6)$$

illetve

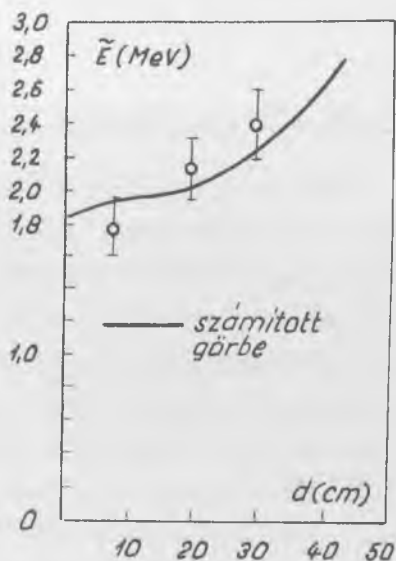
$$k'(x) = \exp\{-0,096\}x \quad \text{ha} \quad 70 < x < 100 \quad (6a)$$

$k(x)$ illetve $k'(x)$ értékeit a 6. ábrán tüntettük fel.



6. ábra

A gyors neutron-fluxus csillapodása vízben



7. ábra

Az átlagos neutron-energia, mint a vízvastagság függvénye

Ezek alapján meghatároztuk a h vastag vízréteggel borított aktív zónából kilépő neutronfluxus \tilde{E}_h átlagenergiáját:

$$\tilde{E}_h = \frac{\int_{x_1}^{x_2} E(x) k(x) s(x) dx}{\int_{x_1}^{x_2} k(x) s(x) dx} \quad (7)$$

A 7. ábrán a $h = 0-100$ cm intervallumra számított görbét és a 7, 19 és 29 cm vizvastagságnál mért pontokat ábrázoltuk.

Mint az ábrából kitűnik, a mérési pontok és az elméleti görbe egyezése jónak mondható. Az átlagenergia számottevően függ a vizréteg vastagságától, így ezt a hatást védelmi kérdéseknél figyelembe kell venni.

2/ A VVR-Sz 3. vízszintes csatornájából kilépő nyaláb neutronjainak átlagenergiája

A VVR-Sz reaktor 3. számú vízszintes csatornájánál működő biológiai besugárzó berendezés dozimetriájának keretében meghatároztuk a neutronnyaláb átlagenergiáját.

A mérés 200 W reaktor-teljesítménynél történt. A kapott átlagenergia $\bar{E} = 2,7 \pm 0,2$ MeV. Eredményünk jól egyezik a rossendorfi VVR-Sz reaktornál magfizikai emulzióval végzett mérés megfelelő adatával, a 3,0 MeV átlagenergiával [5].

3/ A VVR-Sz reaktor biológiai védelmének vizsgálata

Erősen árnyékolt hasadási forrásoknál az árnyékoláson átjutó neutronok tulnyomó része sok ütközést szenved, ezért nagyenergiájú neutron viszonylag kevés van a védelemből kilépő neutronok között. A lassu neutronok száma is kevés, ugyanis ezekre sok anyagnak nagy az abszorpciós hatáskeresztmetszete, így könnyűszerrel kiszűrhetők. Ezek az effektusok azzal a következménnyel járnak, hogy a neutron-dózisintenzitás jelentős része az intermedier neutronoktól származik, vagyis olyan neutronoktól, amiket a sugárvédelmi ellenőrzésre általánosan használt "termikus" és "gyors" neutrontektorok csak igen kis hatásfokkal, vagy egyáltalán nem detektálnak. E miatt reaktorok védelmi méréseire célszerű a teljes szóbajövő neutron energia tartományban érzékeny "termikus neutron detektor + lassító közeg" összeállítást használni.

Vizsgálatunk célja kettős volt: egyrészt meg akartuk határozni a neutron dózisintenzitást a védelem különböző pontjain. Másrészt meg akartuk vizsgálni a sugárvédelmi ellenőrzésre használt szcintillációs detektorokat, hogy eldönthessük, jelzésükből mennyiben lehet következtetni a tényleges dózisviszonyokra.

Vizsgálatunknál a "RUP-1" szovjet gyártmányú hordozható műszert használtuk, lassu és gyors neutron szcintillációs detektorral, továbbá

az átlagenergia-mérőt és - az előző közleményben szintén ismertetett - egyenletes érzékenységu fluxusmérőt.

A mérések kiértékelése

A detektorokat a reaktor 3. és 4. számú vízszintes csatornája közötti felezővonalon helyeztük el, a biológiai védelemtől 50 cm és a padlótól 120 cm távolságra. 2,5 MW reaktor-teljesítménynél, csukott kísérleti csatornáknál a következő értékeket mértük:

E > 10 keV fluxus	$3,6 \pm 0,6$ n/cm ² sec
az E > 10 keV fluxus átlagenergiája	$1,6 \pm 0,4$ MeV
termikus fluxus	$4,5 \pm 1,0$ n/cm ² sec

Az átlagenergiát az előzőekben már ismertetett módon kaptuk. Az E > 10 keV fluxust az átlagenergia-mérő és a fluxusmérő adataiból határoztuk meg. A termikus fluxust a csupasz és a kadmiummal borított lassu neutron detektor számlálási sebességének a különbségéből nyertük.

Az 1. táblázatban ezeken az adatokon kívül a gyors neutron detektorral mért adatokat, valamint a mérési eredményekből számított dózisintenzitásokat foglaltuk össze.

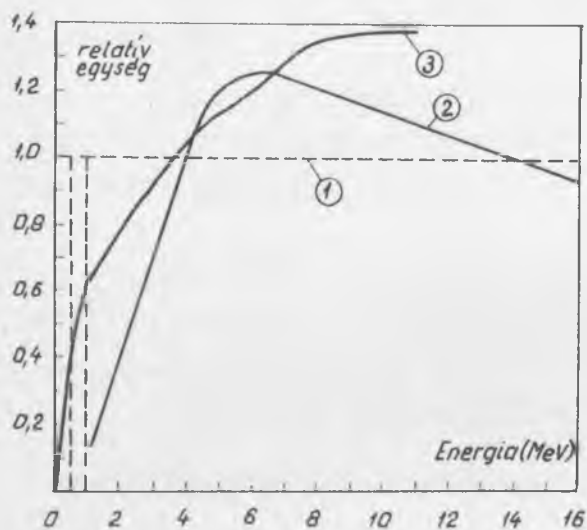
1. táblázat

Energia-tartomány	Fluxus /n/cm ² sec/	Átlagenergia /MeV/	Dózisintenzitás /mrad/h/	Minőségi tényező	REM-dózisintenzitás /mrem/h/
E>10 keV	$3,0 \pm 0,6$	$1,6 \pm 0,4$	0,05	9	0,47
gyors ₁	$0,15 \pm 0,02$	1 - 5	0,0025 - 0,0035	10-7	0,025
gyors ₂	$0,75 \pm 0,1$	1,6	0,012 - 0,017	10-7	~0,12
termikus	$4,5 \pm 1,0$	$\sim 2,5 \cdot 10^{-8}$	0,007	3	0,02

gyors₁: a szcintillációs detektor jelzéséből kapott érték.

gyors₂: a szcintillációs detektorral mért érték, korrigálva.

A gyors neutron szcintillátor adatai a következőképpen értelmezhetők. A műszer skáláján "n/cm²sec" jelzés szerepel, ami azt a téves következtetést sugallja, hogy a detektor egy bizonyos energiaküszöb fölötti fluxusra egyenletes érzékenységgel /8. ábra, 1. görbe/. Ha a detektor érzékenységének energiafüggését ismerjük is /8. ábra, 2. görbe/, de a neutronok energia-eloszlását nem, akkor korrekciót nem alkalmazhatunk. Az így



8. ábra

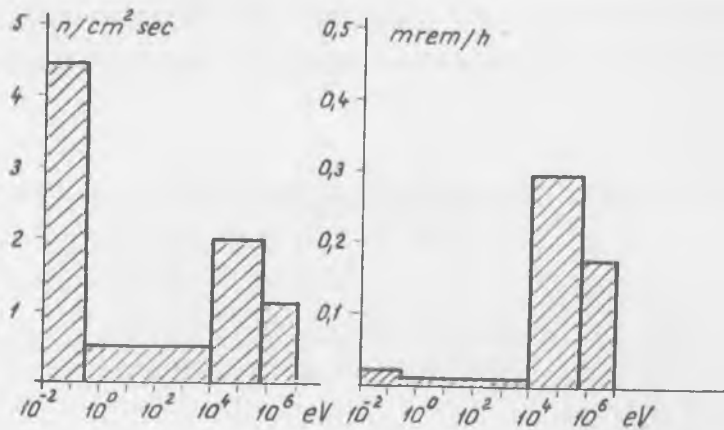
A RUP-1 szcintillációs detektor érzékenységének energiafüggése (2), az egyenletes fluxus-érzékenységnek megfelelő görbe (1), és az első ütközési neutron dózis (3)

csak kb. 10 keV fölött, azért $0,5 \text{ eV} < E < 10^4 \text{ eV}$ energiájú neutron igen kevés van a spektrumban. /Erre utal a termikus neutron detektorral mért $R_{Cd} = 3$ kadmium-viszony is./ Figyelembe véve, hogy az $E < 10 \text{ keV}$ neutronok egységfluxusra vonatkoztatott dózisintenzitása lényegesen kisebb, mint a gyors neutronoké, ezért ezen neutronokra eső dózisintenzitás hányad még sokkal kisebb, mint a megfelelő fluxushányad. A termikus neutronok dózisintenzitása is kicsi, a teljes dózisintenzitásnak mindössze 4%-a.

Mivel a szcintillációs számlálóval meghatározott korrigált érték is alábecslés a túl magas diszkriminációs küszöb miatt, a gyors-neutronok $E > 0,5 \text{ MeV}$ dózisintenzitása a táblázatban megadottnál $\sim 50 \%$ -kal nagyobb. Ezen számított legvalószínűbb fluxus- és dózisértékeket tünteti fel hisztogramunk /9. ábra/.

nyert "fluxus" és az ebből számított dózisintenzitás szerepel az 1. táblázat 2. sorában. A 3. sorban az átlagenergia ismeretében számított gyors fluxus és az ebből nyert dózisintenzitás szerepel. Ez már a valósághoz közelebb álló adat, azonban a detektor magas diszkriminációs küszöbe miatt $E_k \approx 1 \text{ MeV}$ ez is alábecsüli a dózisintenzitás gyors neutronoktól eredő hányadát. /Az intermedier neutronokat természetesen egyáltalán nem méri./

A kadmiummal borított fluxusmérővel és az átlagenergia-mérővel mért fluxusok a mérés hibáján belül $\pm 20 \%$ megegyeznek. Mivel az előző berendezés 0,5 eV energia fölött mér, míg az utóbbi



9. ábra

A VVR-Sz reaktor biológiai védelmének oldalán kilépő neutronok fluxusának és dózisintenzitásának energiacsoportok szerinti megoszlása.

A reaktor tetején, a középső öntöttvas fedél és a korlát közötti részen történt mérések azt mutatják, hogy az átlagenergia nem tér el lényegesen a védelem oldalán mérttől, a dózisintenzitás viszont kb. 2-4-szer nagyobb. A tetőn mért értékek, mivel a védelem inhomogén, erősen függenek a helytől. Ezeket az adatokat csak tájékoztatóknak tekintjük.

Eredményeinket a következőkben foglalhatjuk össze:

- 1/ A reaktor védelme kielégítő lesz akkor is, ha a dózisintenzitások a tervezett 5 MW teljesítménynek megfelelően megkétszereződnek. /A gamma dózisintenzitásra vonatkozó méréseket Németh A. és Tóth M. ismertette [6] ./
- 2/ A vastag védelem erősen módosítja a neutron-spektrumot. Ilyen helyeken döntő szerepe van az intermedier neutronoknak. A miénkhez hasonló eredményeket kaptak lengyel szerzők is a VVR-Sz reaktornál [7]

Olyan gyors neutronforrásoknál, ahol a védelem vékonyabb és a spektrum csak kevésbé módosul, a gyors neutron detektorok elegendőek sugárvédelmi ellenőrzéshez. Például egy olyan helyen, ahol az egyik vízszintes csatorna előtt csak 120 cm bőros parafin védelem volt, $E = 2,7$ MeV átlagenergiát mértünk. Itt a RJP-1 műszer csak 15 %-kal mért kevesebb gyors neutron dózisintenzitást, mint egy Hurst-féle testekvivalens kivitelű dózismérő. /Deme S. mérése, lásd [8] ./

Köszönettel tartozom Szabó Ferencnek, Turi Lászlónak, Szatmáry Zoltánnak és Vigassy Józsefnek segítségükért és értékes tanácsaikért, valamint Takács Józsefnek a mérésekben nyújtott segítségéért.

I r o d a l o m

- [1] Makra Zs.: Neutron dózisintenzitás meghatározás fluxus és átlagenergia méréssel. KFKI Közl. 14, 49 /1966/
- [2] Turi L.: Szóbeli közlés
- [3] Price, B.T., Horton, C.C., Spinney, K.T.: Radiation Shielding Pergamon Press, 1957, 190 old.
- [4] Szabó F., Gyimesi Z., Barta T., Turi L., Vigassy J.: Second Internat. Reactor Conf. Bucharest, 1961.
- [5] Ruickoldt, G.: Kernenergie, 5, 831 /1962/
- [6] А. Намет и М. Тот: Проблемы радиационной защиты при реконструкции реактора ВВР-С. IУ-е совещ. по физике и техн. исслед. реакторов, Будапешт 1965 ноябрь

- [7] Б. Филипяк и др.: Некоторые проблемы дозиметрической защиты, связанные с эксплуатацией реактора ВВР-С "ЭВА" Вышеуказан. конф.

- [8] Ш. Деме: Дозиметр быстрых нейтронов Херста для измерения реакторов Вышеуказан. конф.

Érkezett: 1966. jun. 20.

KFKI Közl. 14.évf. 6.szám, 1966

TITÁNKATÓDOS MÁGNESES-ELEKTROMOS KISÜLÉSES VÁKUUMSZIVATTYU VIZSGÁLATA

Irta: Vályi László

•

Összefoglalás

A dolgozatban ismertetjük egy hidegkatódos mágneses-elektromos kisüléSES vákuumszivattyu tulajdonságainak vizsgálatát és működési paramétereit.

Bevezetés

Az utóbbi években nagyvákuumok előállítása területén igen jelentős haladást jelentett a hidegkatódos mágneses-elektromos kisüléSES, vagy más néven ion-szorpciós vákuumszivattyu alkalmazása. A nagyvákuumok előállítása az ilyen elven működő berendezésekkel sokkal előnyösebb, mint az eddig alkalmazott hagyományos olaj- és higanydiffúziós vákuumrendszerekkel. Különösen hasznos az ilyen vákuumrendszerek alkalmazása a nagy tisztaságot követelő folyamatok vizsgálatánál, ahol az olaj és higanygőzök bepárolgása zavarokat és hibákat okozhat a mérésekben. Igen nagy jelentősége van ennek a részecskegyorsítóknál, ahol a magreakciókkal és a magspektroszkópiával kapcsolatos vizsgálatokat komoly mértékben zavarja a targetek szennyeződése, különösen az abszolút hatáskeresztmetszet, szögeloszlás és energianívók mérésénél. Hasonlóképp az atomok, ionok és elektronok rugalmas és rugalmatlan ütközési folyamatainak vizsgálatánál, nagy tisztaságu anyagminták készítésénél, fémrétegek párologtatásánál, félvezető detektorok készítésénél és tömegspektroszkópiái vizsgálatoknál, ahol nagy segítséget nyújthat a háttér okozta effektusok és szennyeződések csökkentésében.

Geissler-féle kisülési csőben a gáznyomás csökkenését első ízben Plücker figyelte meg 1858-ban. Majd ezt követő időben a különböző gázkisülésekben fellépő vákuum javulást többen vizsgálták [1], azonban vákuum előállítására először F.N. Penning alkalmazta 1937-ben [2], az

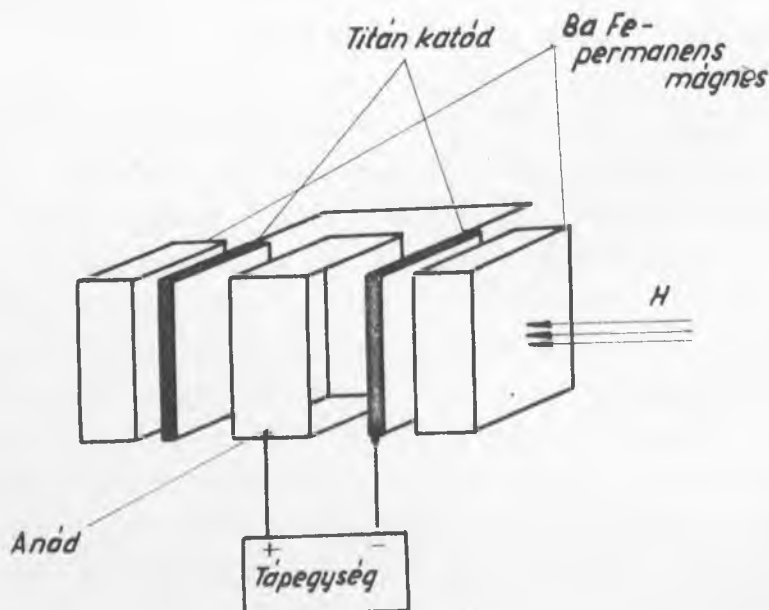
által készített ionizációs vákuummérő működési elve alapján. Ezt követően titánkatód felhasználásával készítették Penning-kisüléssel szivattyút, amelynek végvákuuma elérte az 5×10^{-7} Hgmm-t [3]

E típus további javításával megnövelték a szivósebességet, és a fémtömitéses vákuumrendszerek kifutása esetén 10^{-10} - 10^{-11} Hgmm-es végvákuumot is elértek [4, 5, 6, 7, 8, 9]

Hazánkban néhány évvel ezelőtt kezdték el a titánkatódos mágneses-elektromos kisüléssel szivattyú kidolgozását. A TÁKI által kidolgozott 5-8 liter/sec levegőre vonatkoztatott szivósebességű típussal kb. 3 éve végeztünk szivósebesség-vizsgálatokat különböző gázok esetén. Ezt a típust azóta is folyamatosan használjuk. Jelen dolgozatban a TÁKI-val közösen készített kb. 500 lit/s szivósebességű típussal végzett vizsgálatokkal foglalkozunk.

A Penning-típusú kisülésben lejátszódó szivási folyamat

Mint ahogy az az 1. ábrán is látható, az elemi cella elektródjainak elrendezése hasonló, mint a Penning-típusú ionizációs vákuummérőnél



1. ábra

vagy ionforrásnál. Mint ismeretes, ha a katód síkjára merőleges mágneses térbe helyezett anód és katód között elegendő nagy egyenfeszültséget hozunk létre, akkor gázkisülés lép fel, amelyben a pozitív töltésű atommolekula-ionok az elektródok közötti feszültségtől függően felgyorsulnak és bombázzák a katódot. Az ionbombázás hatására katódporlódás lép fel. A porlódo fémrészek vékony réteget képeznek az anódon. A folyamatos porlódás következtében állandóan megújuló tiszta fémréteg, a jelenlévo gázokat fizikai vagy kémiai folyamatokban elnyeli, leköti.

Különbözö gázok esetén a szivás folyamata nagy mértékben különbözik. Legintenzivebb a szivás hidrogéngáz esetén, mivel ekkor a szivási sebessége a rendszernek 2,5-3-szor nagyobb, mint levegö sziváskor. Ez esetben az ionbombázás hatására létrejött tiszta titánfelületbe ütközö hidrogénatomok és ionok bediffundálnak a fémbe, és szilárd oldatot képeznek [10].

Kémiaailag aktív gázok szivási folyamata főképpen kémiai szorbcio útján történik. Itt egyrészt a katódot bombázó gázionok kapcsolódnak kémiaailag a katód anyagához, másrészt a katódporlódás által az anódon keletkező titánréteggel lépnek kémiai kölcsönhatásba a gáz molekulái [10].

Semleges gázok esetén, mint ahogy az az 1. táblázatból is látható,

1. táblázat

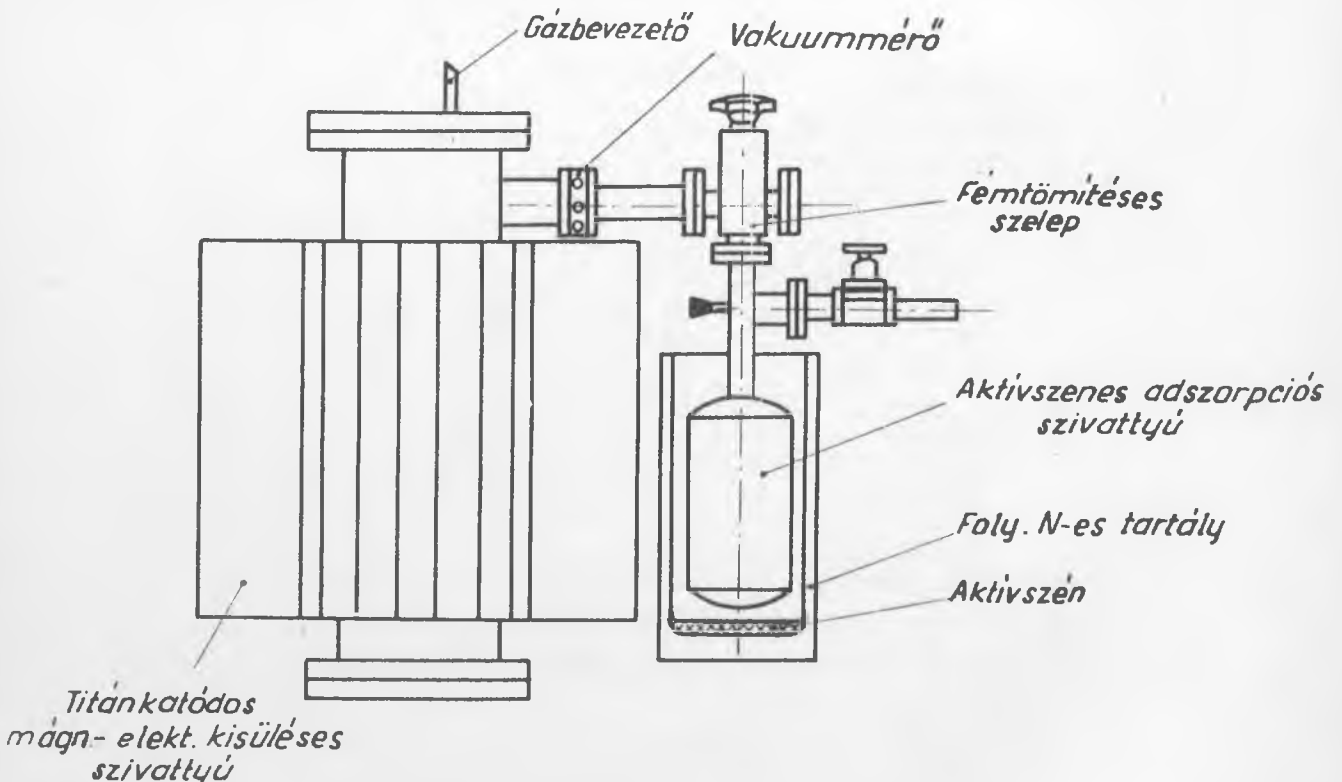
G á z	Szivássebesség %
Argon	4
Hélium	11-20
Oxigén	55
CO ₂	82
CO	86
Nitrogén	98
Levegö	100
Vizpára	130
Ammóniák	170
Metán	270
Deutérium	210
Hidrogén	250-300

$1.10^{-5} - 5.10^{-8}$ Hgmm nyomás tartományban
 $U_k = 3,5$ kV
 $H = 1,5$ kgauss

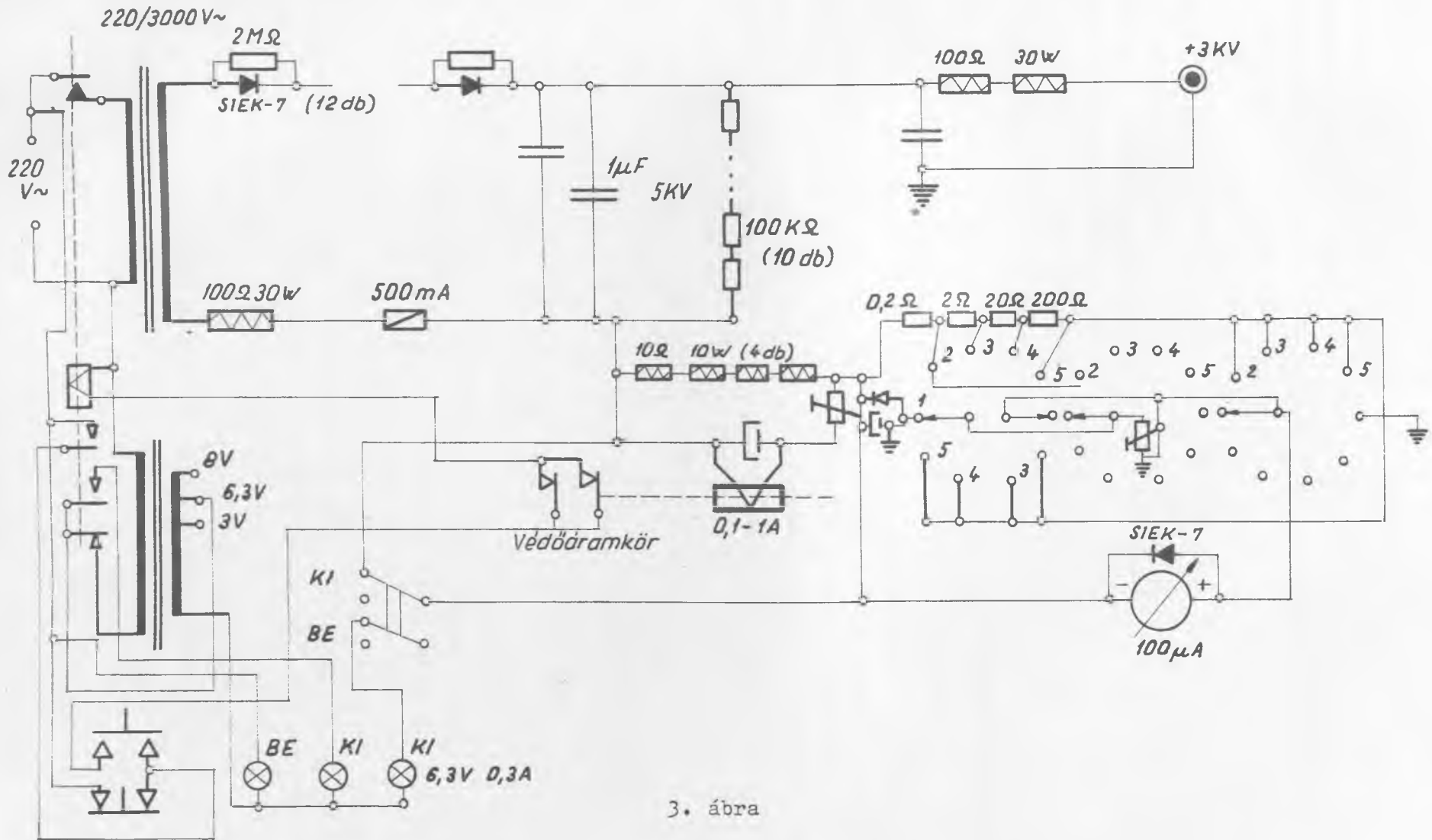
[11] a szivás sebessége kisebb. Ez abból ered, hogy a semleges gázok kémiai leköttése nem lép fel. A gáz leköttése ebben az esetben úgy megy végbe, hogy egyrészt a bombázó gázionok a fémbe behatolnak és ott maradnak, másrészt a titánfém felületen abszorbeálódott semleges gázokat a lerakódó katódfém porlódás betemeti [10].

Kísérleti berendezés

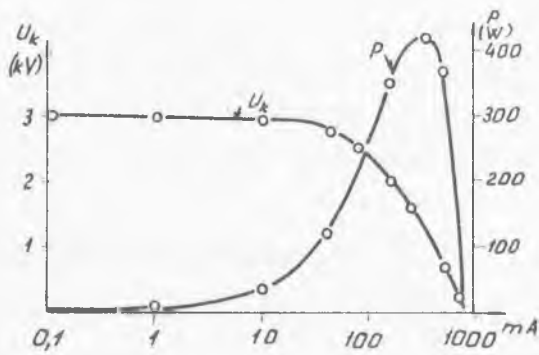
A vizsgálatokat a 2. ábrán látható berendezéssel végeztük. A titánkatódos mágneses-elektromos kisüléssel szivattyú 12 db 86x360 mm-es méretű elektródrendszerből áll, amely a védőgázos hegesztéssel COR-5 lemezből készült szivattyuházban helyezkedik el. A nagyfeszültség bevezetése 2 db kerámia-fém forrasztású alumíniumoxid szigetelésű átvezetővel történik. Az egész rendszer minden csatlakozásnál fémtömítéssel rendelkezik. Az 1200 gauss-os mágneses teret anizotróp báriumferrit permanens mágnessel állítottuk elő. A vákuummérést Alpert-típusú ionizációs vákuummérővel végeztük. Az elővákuum-szivás kb., másfél literes ürtartalmu aktív szén töltésű adszorpciós szivattyúval történt. Az elővákuum-szivás befejezése



2. ábra



3. ábra

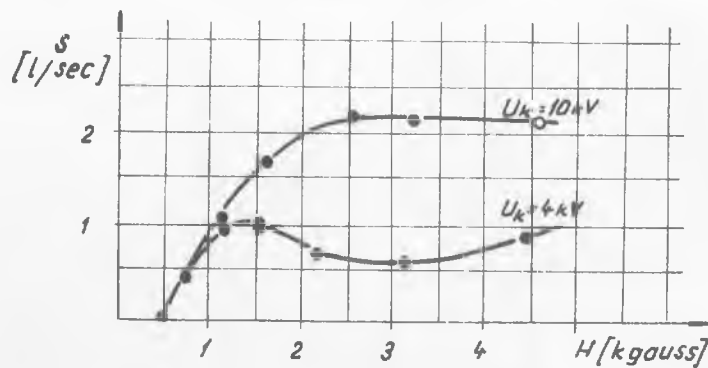


4. ábra

után az adszorpciós szivattyút a titánszivattyútól fémtömítéses szeleppel választottuk el. A gázadagolást a szivósebességmérésnél kalibrált palládiumszeleppel végeztük. A berendezés tápegysége /kapcsolási rajza 3. ábrán/ olyan karakterisztikával rendelkezik/4. ábra/, hogy a rövid idejű átütés miatt fellépő zárlat esetén is bírja a terhelést, mivel az elég nagy belső ellenálláson esik az egész feszültség.

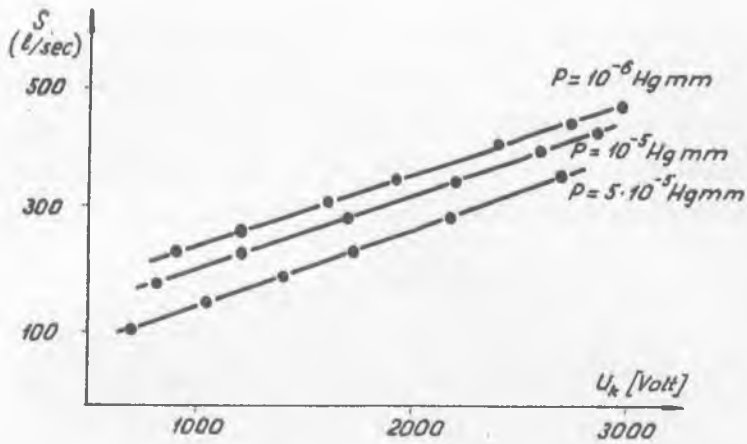
Mérési eredmények

A titánkatódos mágneses elektromos szivattyú szivósebességét vizsgáltuk 1200 gauss-os konstans mágneses tér, változó és üzemi feszültség mellett, hidrogén-gáz beömlése esetén. A mágneses tér értékének megválasztásánál figyelembe vettük a [11] dolgozat eredményeit, ahol vizsgálták a mágneses tér függvényében adott feszültségek esetén a szivósebességet, és az 5. ábrán lévő eredményre jutottak. Az ábrából látható, hogy 3-4 kV

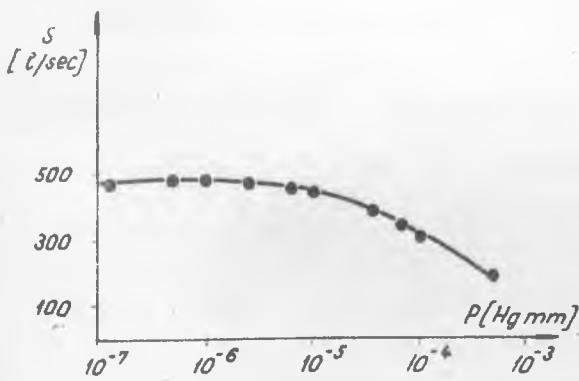


5. ábra

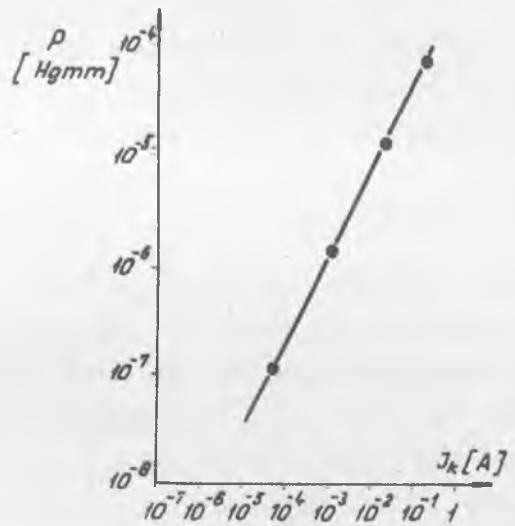
maximális feszültség esetén az 1200 gauss-os térnél a szivósebesség a maximum közelében van. A szivósebesség feszültségtől függő változása a 6. ábrán látható, az általában használt üzemi feszültség esetén a szivósebesség nyomástól való függése pedig a 7. ábrán. A mágneses-elektromos kisülésben folyó áram, mint ismeretes, függ a kisülésben uralkodó nyomástól. Az általunk használt szivattyú áram-gáznyomás karakterisztikáját a 8. ábrán láthatjuk.



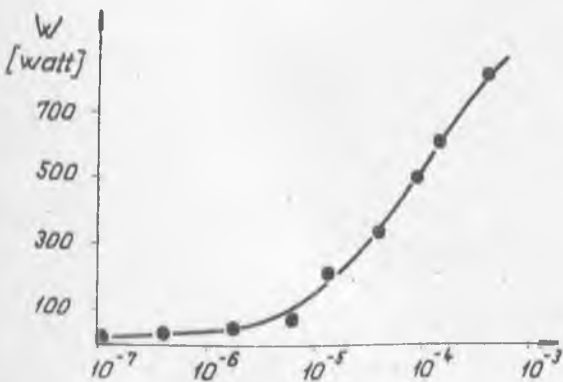
6. ábra



7. ábra



8. ábra



9. ábra

A vizsgálatok azt mutatták, hogy konstans mágneses tér esetén a kisülésnél alkalmazott feszültség növelésével arányosan nő a szivósebesség is. A konstans mágneses térerősség és normális üzemi feszültség esetén a szivósebesség a 10^{-7} - 10^{-5} Hgmm nyomástartományban közel azonos, és csak a 10^{-5} Hgmm nyomásnál nagyobb értéknél kezd letörni.

A berendezés energiaszükséglete függ a rendszerben uralko-

dó nyomástól, /9. ábra/ ezen értékek jóval kisebbek a hagyományos olaj- és higanydiffúziós rendszereknél felhasznált energiameennyiségeknél. Folyékony nitrogén fogyasztása a berendezésnek csak az indításkor van, így e tekintetben is gazdaságosabb, mint az olaj- és higanydiffúziós vákuumberendezések, ahol az üzemidő alatt állandóan szükséges a folyékony nitrogénes kifagyasztás.

I r o d a l o m

- [1] Plücker: J. Pogg. Annal. 103, 91 /1958/
Willows, R.S.: Phil. Mag. 1, 503 /1901/
Holland, L.: J. Scient Instrum. No 3. 105 /1959/
- [2] Penning, F.M.: Physika 4, 71 /1937/
- [3] Gurewitsch, A.M., Westendorp, W.F.: Rev. Sci. Instr. 25, No 4,
389 /1954/
- [4] Э.М. Рейхрудель, Г.В. Смирницкая; Радиотехника и электроника I. № 2.
253 (1956)
Изв. Вузов Радиофизика I. № 2. 2 (1958)
- [5] Hall, L.D.: Rev. Sci. Instr. 29, No 5 367 /1958/
- [6] Hall, L.D.: 5 th National Symposium on Vacuum Technolog.
Transactions Pergamon Press 158. /1958/
- [7] Jepsen, R.L.: Vide 14, No 80, 80 /1959/
- [8] Robinson, N.W.: Brit. Commun and Electronics 7 No 11 820 /1960/
- [9] Catalog Vacuum products Varian /U.S.A./ 1959
- [10] Rutherford, S.L., Mercer, S.L., Jepsen, R.L.: 7 th National
Symposium on Vacuum Technology Transactions
Pergamon Press 380 /1960/
- [11] Malter, L., Mandoli, H.: Vacuum 5, 1961 /1955/

Érkezett: 1966. okt. 3.

KFKI Közl. 14.évf. 6.szám, 1966.

ANALÓG INTEGRÁTOR

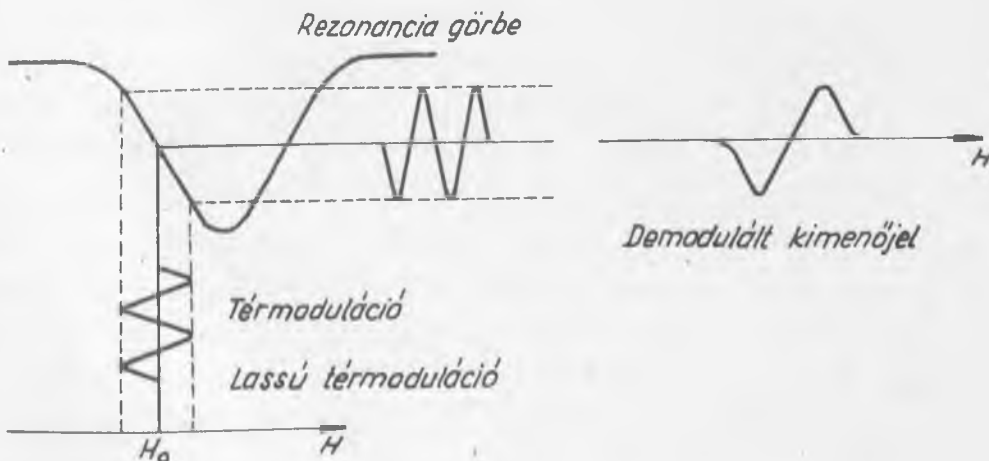
Irta: Tóth Ferenc és Tompa Kálmán

Összefoglalás

EKMŰ NV 213-típusú lineáris programvezérlőt felhasználva, analóg integrátort építettünk a Szilárdtestfizikai Laboratórium "széles-jelű" mag mágneses rezonancia spektrométeréhez. Az integrátor alkalmazásával a spektrométer jel/zaj viszonya lényegesen javítható. Felsoroljuk az integrátor néhány további alkalmazási lehetőségét.

Bevezetés

Mag mágneses rezonancia /MMR/, elektron spin rezonancia /ESR/ méréseknél a rezonancia abszorpció következtében fellépő rádiófrekvenciás tér-amplitudó változás általában $10^{-2} \dots 10^{-4}$ % nagyságrendű. Ez a jel-feszültség általában sokkal kisebb mint a nagyfrekvenciás rezonáns kör saját zaja, emiatt a jel-detektálás speciális technikát igényel /lásd pl. [1] /. Az általában alkalmazott, fázisérzékeny detektálás esetén a mágneses tér hangfrekvenciás modulálása mellett a mágneses térerősséget háromszögjel generátorral lineárisan változtatjuk a rezonancia jel körüli, a rezonancia jel szélességének többszörösét kitevő tartományban /1. ábra/.



1. ábra

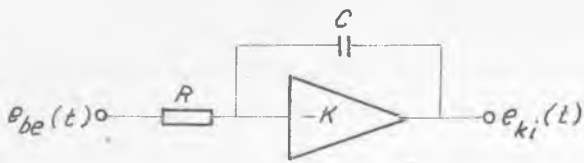
Kis jel/zaj viszonyu MMR jelek detektálásának elvi vázolata

Ekkor a berendezés kimenetén kapott jel jó közelítéssel a rezonancia jel mágneses térerősség szerinti deriváltjával arányos. Az elérhető jel/zaj viszony fordítva arányos a berendezés effektív sávszélességével, amit fázisérzékeny egyenirányítás esetén a fázisérzékeny detektor RC kimenő körének időállandója határoz meg. Az időállandó növelésével csökken a sávszélesség, de növelni kell a jelfelvételi időt is, és ezért az időállandó növelésének a berendezés stabilitása szab határt. Integrátor alkalmazásával az "effektív sávszélesség" tovább csökkenthető, javul a jel/zaj viszony, és az integrátor kimenetén maga a rezonancia jel jelenik meg.

Az integrátor

Elektronikus integráló áramkört használva $e_{be}(t)$ bemenőjelnél a kimenő feszültség a következő lesz, ha a 2. ábrán látható műveleti erősítő erősítése nagy:

$$e_{ki}(t) = - \frac{1}{RC} \int_0^t e_{be}(t) dt$$

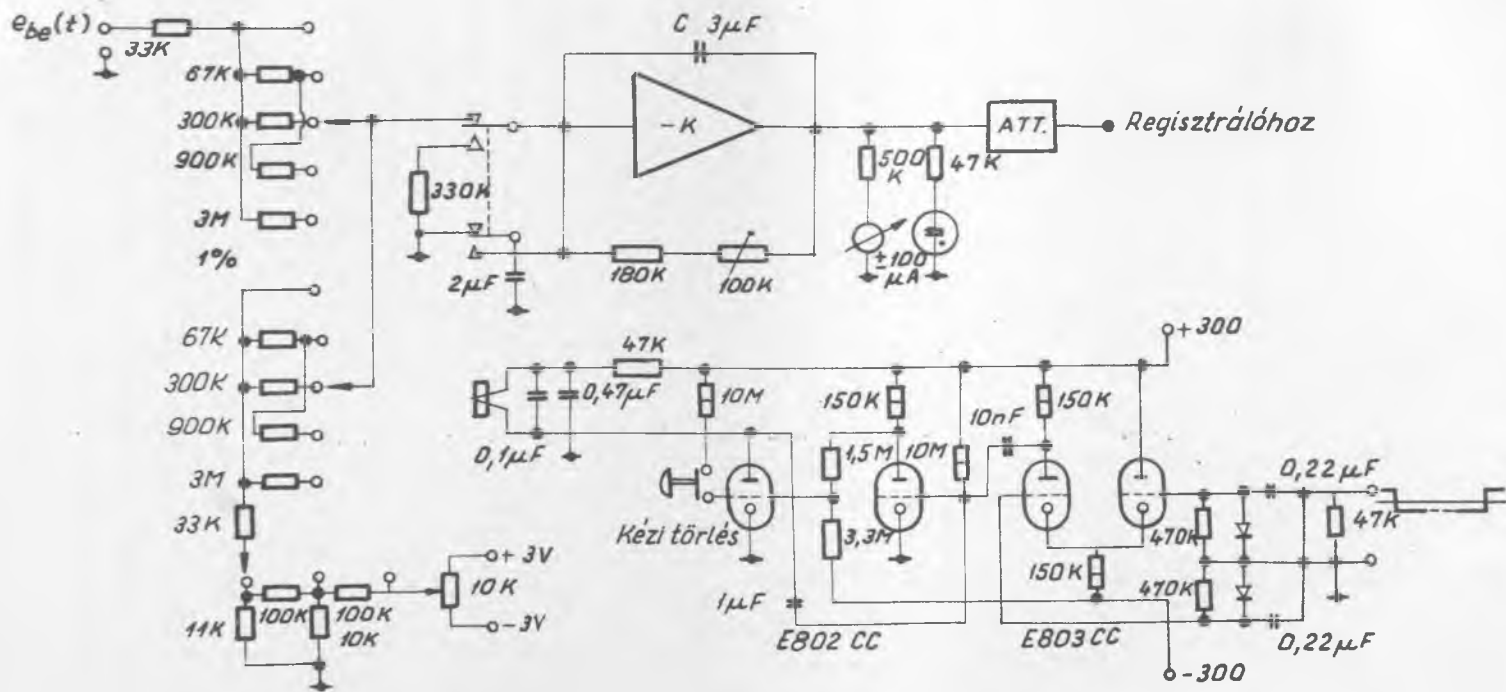


2. ábra

Az integrátor tömbvázlata

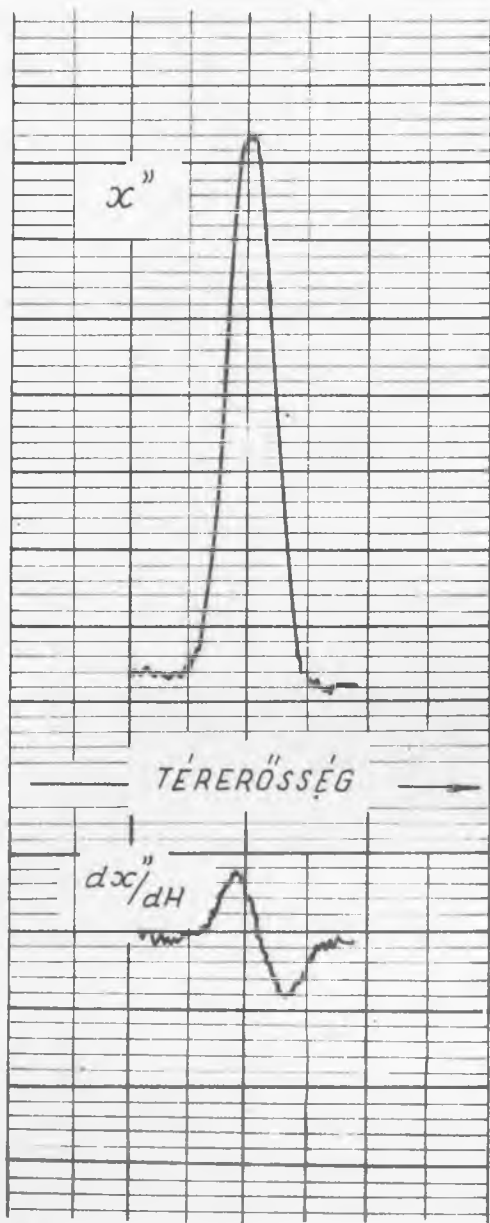
Az integrátor után az eredeti rezonancia görbét kapjuk vissza és egyúttal az effektív időállandó teteszésszerinti mértékben megnövelhető, jeltorzító hatás nélkül. Így egyidejűleg jelentős jel/zaj viszony javulás is várható.

A Szilárdtestfizikai Laboratórium széles-jelű MMR spektrométeréhez analóg integráló fokozatot készítettünk a leírt feladatok elvégzésére. Műveleti erősítőnek az EKMŰ által gyártott NV 213 típusu lineáris programvezérlőt használtuk fel oly módon, hogy a bemenetéről levettük a referencia feszültségforrást, kimenetéről pedig az amplitudó diszkriminátort, és a 3. ábrán látható változtatható integrálási időállandó kört, drift kompenzáló feszültségosztót és automatikus nullszint helyreállítót építettünk be. Ez utóbbi fokozatot egy másik, a mágneses teret lineárisan változtató programvezérlő vezérli, a kimenőjelenek süllyedésből emelkedésbe, vagy fordítva történő átváltásakor, tehát egy újabb jelfelvétel előtt az integrátort automatikusan nullszintre állítja vissza. A műveleti erősítő bemenetére az integrálandó jellel egyidejűleg ráadható, változó polaritású és amplitudójú feszültséggel kikompenzálható az integrálandó jel állandó értékű összetevője,



3. ábra

A kiegészítő egységek kapcsolási rajza



4. ábra

Integrált és derivált MMR jelek

egyirányu elmászása /offset/. Az időállandó változtatásával a különböző amplitudóju és szélességü jelek esetén is azonos nagyságrendü regisztrált görbék kaphatók.

A programvezérlő eredetileg csak pozitívba menő kimenő feszültséget állított elő, integrálásnál viszont mindkét irányu jelváltozás fellép, emiatt a kimenet katód-követőjének munkaellenállását 150Kohm-ra változtattuk, és azt a -100 V-os tápfeszültségü pontról a -300 V-ra kötöttük át; a mérő műszert pedig + 50 V méréshatárura cseréltük ki.

Az integrátor alapszintjének beállítása után mérhető alapintegrálási drift /1 sec időállandónál/ nem haladja meg a kimeneten a 0,36 mV/óra értéket, annak ellenére, hogy a nyitott hurku egyenfeszültség-erősítés nagysága nem nagyobb néhányszor 10^5 -szeresnél, és chopper stabilizálást sem tartalmaz. Ez részben annak köszönhető, hogy a bemenetén lévő cső rácsárama kisebb mint 30×10^{-12} A, teljesen szimmetrikus felépítésü és tápegységei nagy stabilitásuak.

Alkalmazások

Az integrátor egyik lehetséges felhasználását a 4. ábrán mutatjuk be, ahol egyidejüleg ugyanazt a mag-rezonancia jelet felvettük a szokásos módon is 1 sec-os RC időállandós szűrésnél, és integrátorral. Szembetünő alkalmazásának előnye, azonkivül, hogy az eredeti abszorpciós görbét kaptuk vissza, jelentős jel/zaj viszony javulás is megfigyelhető. Ez az érzékenység növekedés lehetővé teszi olyan effektusok kimutatását is, amelyeket eddig a zaj elfedett.

Az integrátor sokoldalú használhatóságára bemutatunk egy másik egyszerű példát is; sztatikus lassan változó mágneses-tér mérését. Amint az jól ismert, időben változó mágneses térbe helyezett tekercsben az indukált feszültség nagysága:

$$e(t) = 10^{-8} FN \frac{\partial \phi(t')}{\partial t'} \left[\frac{0e \cdot cm^2}{sec} \right]$$

ahol F az N menetszámu tekercs felülete, ϕ / t' a mágneses fluxus. Ha ezt a feszültséget az integrátorra adjuk, a kimeneten kapott jel a következő lesz:

$$e_{ki}(t) = 10^{-8} \frac{FN}{RC} \int_0^t \frac{\partial \phi(t')}{\partial t'} dt' = 10^{-8} \frac{FN}{RC} [\phi(t) - \phi(0)]$$

$FN = 10^5$ választással, $RC = 0,1$ sec integrálási időállandóval 100 gauss térerősségváltozás 1 V jelfeszültséget ad, figyelembevéve az integrátor driftjét, a sztatikus mágneses térváltozás mérésének hibája kisebb, mint 0,1 %-koersted nagyságrendű tereknél. Természetesen nagyobb ampermenetszámu tekercssel, kisebb időállandóval az érzékenység tovább is növelhető. A kimenetet mérő műszer közvetlenül térerősségre skálázható, a térbe bevitt tekercssel vagy a tér bekapcsolásával azonnal megkapható a térerősség pontos értéke.

Ha pedig a kimenőjelet töröljük, az integrátor a továbbiakban a tér ingadozását fogja adni, amelyet ilyenmódon - különösen digitális csővoltmérő használatával - állandóan pontosan ellenőrizhetünk; illetve a hibajellel mágneses tér stabilizátort vezérelhetünk /fluxus-stabilizátor/.

Az integrátor felhasználható nagy pontosságú mágnesezettség - hőmérséklet görbék felvételénél is [2].

Köszönetnyilvánítás

Pretz József technikusnak az integrátor kifejlesztésében végzett munkájáért mondunk köszönetet.

I r o d a l o m

- [1] Tompa K., Tóth F.: Magyar Fizikai Folyóirat 11, 177 /1963/
[2] Pugh, E.W., Argyle, B.E.: J. Appl. Phys. Suppl. 32, 334 /1961/

Érkezett: 1966 aug. 4.
KFKI Közl. 14.évf. 6.szám, 1966.

FÉNYKÉPEZŐGÉPEK HELYZETÉNEK MEGHATÁROZÁSA BUBORÉKKAMRÁBAN LEGKISEBB NÉGYZETEK MÓDSZERÉVEL

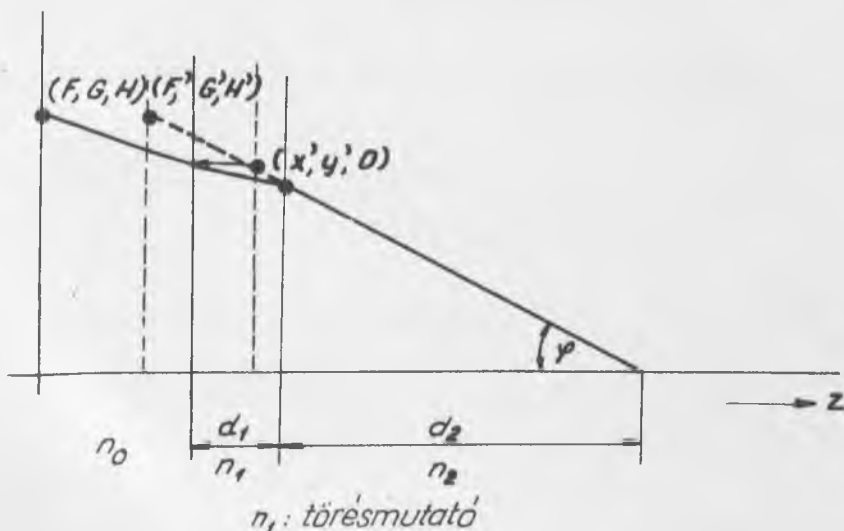
Irta: Pósch Margit, Sebestyén Ákos és Telbisz Ferenc

Összefoglalás

Iterációs eljárást dolgoztunk ki a fényképezőgépek helyzetének meghatározására. A módszert a 30 cm-es CERN hidrogén kamránál próbáltuk ki.

Ismeretes, hogy a fényképezőgépek helyzetét a referenciapontok filmen mért koordinátáinak segítségével lehet meghatározni. Ilyen számolást Böck végzett először a CERN-ben [1]. Ennek az iterációs módszernek egy általánosabb és ugyanakkor egyszerűbb változatát dolgoztuk ki.

A következő geometriai feltevéseket tettük: mindegyik fényképezőgép optikai tengelye merőleges a planparallel törőközegre; a referenciapontok 2 síkban helyezkednek el, melyek merőlegesek az optikai tengelyekre /1. ábra/. A referenciapontok térbeli koordinátáit ismertnek tekintettük és ideális optikát tételeztünk fel.



1. ábra

A koordinátarendszer kezdőpontját rögzítsük a buborékkamra első üvegének hátsó oldalához, a z tengely legyen párhuzamos az optikai tengelyekkel. Jelölje F, G, H a referenciapontok, P, Q, R a fényképező lencsék középpontjának koordinátáit; P, Q-t akarjuk meghatározni.

Definiáljuk a látszólagos referenciapontok síkját úgy, hogy távolsága a lencsétől a redukált optikai hossz legyen:

$$D = \sum_i d_i / n_i$$

A látszólagos referenciapontok x, y koordinátája legyen F', G'.

Igaz, hogy

$$\begin{aligned} F' - P &= \rho (F - P) \\ G' - Q &= \rho (G - Q) \end{aligned} \quad // 1$$

ahol

$$\rho = \frac{\sum d_i / n_i}{\sum d_i / \sqrt{n_i^2 + (n_i^2 - 1) \tan^2 \varphi}} \approx 1$$

X, Y-nal jelöljük a referenciapontoknak a filmen mért koordinátáit. Innen a kamrafolyadék és üveg "redukált határfelületére" /X', Y'/ egy lineáris transzformációval juthatunk el, amely figyelembe veszi a film anizotrop zsugorodását is: /ez eddigi budapesti tapasztalataink szerint nem elhanyagolható effektus/.

$$\begin{aligned} X' &= aX + bY + X_0 \\ Y' &= cX + dY + Y_0 \end{aligned} \quad // 2$$

Az X' Y' koordináták és a látszólagos referenciapontok kapcsolata igen egyszerű:

$$\begin{aligned} X' - P &= \beta (F - P) \\ Y' - Q &= \beta (G - Q) \end{aligned} \quad // 3$$

ahol $\beta = \frac{n_0 D}{n_0 D + H}$ /n₀ a kamrafolyadék törésmutatója/.

Az /1/, /2/, /3/ egyenletekből két meghatározott lineáris egyenletrendszer adódik:

$$\alpha X_k + b Y_k + X_0 + (\beta_k \rho_k - 1) P - \beta_k \rho_k F_k = 0 \quad (ka)$$

$$c X_k + d Y_k + Y_0 + (\beta_k \rho_k - 1) Q - \beta_k \rho_k G_k = 0 \quad (kb),$$

melyek a legkisebb négyzetek módszerével szimultán megoldhatók. Iterációs eljárás szükséges, mivel ρ nem lineáris P,Q-ban.

Az egész módszer eléggé független a törőközegek adatainak bizonytalanságától. Ez azonnal belátható, ha ρ -t hatványsorba fejtsük:

$$\rho \approx 1 + \frac{1}{2} \frac{\sum \frac{d_i}{n_i} \left(1 - \frac{1}{n_i^2}\right) \operatorname{tg}^2 \varphi}{\sum \frac{d_i}{n_i}},$$

mivel a legtöbb esetben $\operatorname{tg} \varphi \leq 0.2$ és az optikai út legnagyobb részén $n_i \approx 1$. Így a látszólagos referenciapontok helyzete gyakorlatilag független a törőközeg vastagságok és a törésmutatók hibáitól.

A módszert a CERN kis H_2 buborékkamrájára próbáltuk ki. Az iterálás jól konvergált. Igen rossz kezdőérték mellett is elegendő volt három lépés, de általában csak kettőre volt szükség. Tíz marker koordinátáit 100 felvételen kimérve kb. 0.1 mm pontosság érhető el az optikai tengelyek helyzetének meghatározásában.

I r o d a l o m

- [1] Böck, R.: CERN prepr. 60 -7.

Érkezett: 1966. jul. 22

KFKI Közl. 14.évf. 6.szám, 1966.